

Nichtlineare Effekte
bei der Zerstäubung reiner Metalle
mit hochenergetischen Schwerionen

Dissertation der Fakultät für Physik
der
Ludwig-Maximilians-Universität München

vorgelegt von Hans Dieter Mieskes
aus Zeiden

München, den 7. Juni 1999

1. Gutachter: Prof. Dr. Friedhelm Bell

2. Gutachter: Prof. Dr. Johann Peisl

Vorsitzender: Prof. Dr. Hermann Wolter

Beisitzer: Prof. Dr. Jochen Feldmann

Tag der mündlichen Prüfung: 06. August 1999

Kurzfassung

Materialveränderungen, wie beispielsweise permanente Kernspuren, aufgrund des hohen elektronischen Energieverlustes bei Bestrahlung mit hochenergetischen Schwerionen sind in Isolatoren seit langem bekannt. Nach der unerwarteten Entdeckung solcher Kernspuren in *Ti* und *Zr* war es Ziel dieser Arbeit, auch bei der Zerstäubung von Metallen mit schweren Ionen (*Iod* und *Au*) im Bereich von $0.4 - 1.7 \text{ MeV/u}$ nach elektronischen Effekten zu suchen. Wegen der leichten Oxidierbarkeit der Oberflächen unedler Metalle und des dadurch bedingten Aufwands für präzise Zerstäubungsexperimente existierten bislang kaum derartige Messungen. Ausreichend saubere Oberflächen konnten in dieser Arbeit durch UHV-Bedingungen mit einer in-situ Reinigung und einer in-situ ERD-Targetanalyse (Messung elastisch gestreuter Ejektile) garantiert werden. Zusammen mit der Verwendung spiegelnd glatter Targets (mittlere Rauigkeit $6\text{-}20 \text{ nm}$) wurden wohldefinierte Bedingungen geschaffen, und die gemessenen Zerstäubungsausbeuten (Anzahl zerstäubter Atome pro einfallendem Ion) waren innerhalb $10\text{-}15\%$ reproduzierbar.

Die verwendete Kollektormethode erforderte zur Bestimmung der totalen Zerstäubungsausbeuten die Kenntnis der Winkelverteilungen. Diese wurden für mehrerer Materialien gemessen und ergaben in Übereinstimmung mit Simulationsrechnungen vorwärtsgerichtete, rotationssymmetrische \cos^n -Verteilungen, mit $n \approx 3$ jedoch etwas höhere Exponenten als berechnet. Die Untersuchung der Targets zeigte bei *Ti* und *Mn* starke Änderungen der Kristallstruktur und der Oberflächentopographie bereits bei geringen Bestrahlungsfluenzen von einigen $10^{14} \text{ Ionen/cm}^2$. Während die Veränderungen der Kristallstruktur keine meßbare Auswirkung auf die Winkelverteilungen hatten, konnte ein Einfluß der Oberflächenrauigkeit nachgewiesen und mit einem speziell dafür entwickelten Simulationsprogramm bestätigt werden.

Durch die Verwendung unterschiedlicher Ladungszustände der Projektile gelang erstmals bei reinen Metallen (*Ti*, *Mn* und *Zr*) der eindeutige Nachweis eines elektronischen Beitrags zur Zerstäubung. Dadurch wird der elektronische Energieverlust an der Oberfläche geändert, ohne die Kaskadenzerstäubung zu beeinflussen. Die Ergebnisse wurden im Rahmen eines Thermal-Spike Modells erklärt, das eine Aufheizung des Targets durch den elektronischen Energieverlust entlang der Projekttilbahn annimmt. Die Erweiterung dieses Modells zur Berechnung von Zerstäubungsausbeuten zeigte, daß neben dem elektronischen auch der nukleare Energieverlust zum Aufheizen berücksichtigt werden muß (nichtlineare Anteile) und im Gegensatz zu Isolatoren die Kaskadenzerstäubung (linearer Anteil) nicht vernachlässigbar ist. Bei Metallen haben beide Zerstäubungsarten vergleichbare Beiträge zu den Ausbeuten. Mit der ebenfalls gezeigten Unempfindlichkeit

des Edelmetalls *Au* wurden die Voraussagen des Thermal-Spike Modells zur Empfindlichkeit auf elektronische Effekte bestätigt. Der Vergleich der berechneten mit den gemessenen Energieverlustschwellen zeigte den Zusammenhang zwischen der Überschreitung der Verdampfungstemperatur und dem Auftreten elektronischer Beiträge zur Zerstäubung.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Grundlagen der Zerstäubung	5
2.1	Abbremsung hochenergetischer Ionen in Festkörpern	5
2.2	Die klassische nukleare Zerstäubung	9
2.2.1	Analytische Beschreibung	10
2.2.2	Computersimulation	11
2.3	Die elektronische Zerstäubung	13
2.3.1	Erklärungsmodelle zu elektronischen Effekten	14
2.3.1.1	Die Coulomb-Explosion	14
2.3.1.2	Das Thermal-Spike Modell	15
3	Durchführung der Experimente	20
3.1	Messung von Zerstäubungsausbeuten	20
3.2	Voraussetzungen für hochenergetische Zerstäubungsexperimente	22
3.3	Die UHV-Anlage	23
3.3.1	Das Vakuumsystem	23
3.3.2	Die UHV-Kammer und die in-situ Targetreinigung	27
3.4	Die in-situ ERD-Targetanalyse	28
3.4.1	Das ERD-Prinzip	28
3.4.2	Die Ionisationskammer	29
3.4.3	Ergebnisse der in-situ ERD-Analyse	31
3.4.4	Dosisbestimmung mit der Ionisationskammer	33
3.5	Analyse der <i>Si</i> -Auffänger	34
3.5.1	RBS-Analyse der Auffänger	34
3.5.2	TRF-Analyse der Auffänger	37
3.5.3	Vergleich der TRFA und RBS	39
3.6	Auswertung der Kollektoranalyse	40
3.6.1	Berechnung der totalen Zerstäubungsausbeuten	40

3.6.2	Unsicherheit der gemessenen Zerstäubungsausbeuten	41
3.7	Einfluß der Targetpräparation auf die Ausbeuten	43
3.8	Reproduzierbarkeit der Zerstäubungsausbeuten	44
4	Untersuchungen zur Modifikation der Targets durch die Bestrahlung und zum Einfluß der Oberflächenrauigkeit auf die Winkelverteilungen	46
4.1	Targetmodifikationen durch die Bestrahlung	47
4.1.1	Modifikation von <i>Au</i> , <i>Zr</i> und <i>Ge</i>	47
4.1.2	Modifikation von <i>Ti</i>	49
4.1.3	Modifikation von <i>Mn</i>	52
4.1.4	Modifikation von $Y_3Fe_5O_{12}$	54
4.2	Messung von Winkelverteilungen	55
4.2.1	Winkelverteilungen mit <i>Au</i> -Ionen im UHV	56
4.2.2	Winkelverteilungen mit <i>I</i> -Ionen im HV	58
4.2.3	Winkelverteilungen rauher <i>Ti</i> -Oberflächen	59
4.3	Einfallswinkelabhängigkeit von <i>Au</i>	60
4.4	Computersimulation von Winkelverteilungen an rauhen Oberflächen . . .	61
4.4.1	Beschreibung des Simulationsprogramms	62
4.4.2	Ergebnisse der Simulationen	65
4.4.2.1	Simulationen für niederenergetische Ionen	66
4.4.2.2	Simulationen für hochenergetische Ionen	68
4.5	Diskussion der Ergebnisse	69
5	Untersuchung von nichtlinearen Effekten bei der Zerstäubung reiner Metalle	73
5.1	Ergebnisse der Zerstäubungsmessungen	73
5.2	Elektronische Effekte bei der Zerstäubung	78
5.2.1	Ladungszustandsabhängigkeit der <i>Au</i> -Ausbeuten	79
5.2.2	Ladungszustandsabhängigkeit der <i>Ti</i> - und <i>Zr</i> -Ausbeuten	79
5.2.3	Ladungszustandsabhängigkeit der restlichen Materialien	81
5.2.4	Ergebnisse mit Projektilen außerhalb des Ladungsgleichgewichts . . .	81
5.3	Vergleich mit Modellrechnungen	82
5.3.1	Ablauf der Thermal-Spike Rechnungen	82
5.3.2	Modell zur Berechnung elektronischer Zerstäubungsausbeuten . . .	84
5.3.3	Nuklearer Beitrag zum Heizen der Ionenspur	85
5.3.4	Ergebnisse der Thermal-Spike Simulationen	88
5.3.4.1	Thermal-Spike Rechnungen für <i>Au</i>	88

5.3.4.2	Thermal-Spike Rechnungen für Ti	88
5.3.4.3	Thermal-Spike Rechnungen für Zr	92
5.3.5	Schwellenverhalten bei der nichtlinearen Zerstäubung	94
5.4	Diskussion der Ergebnisse	95
6	Zusammenfassung und Ausblick	98
A	Notation	100
B	Materialparameter der verwendeten Targets	101
C	Technische Daten der Ionisationskammer	103

Abbildungsverzeichnis

1.1	Nuklearer und elektronischer Energieverlust von <i>Au</i> -Ionen in <i>Ti</i>	2
1.2	Energieverteilung und Herkunftstiefe zerstäubter Atome	3
2.1	Schema des Energietransports beim Thermal-Spike Modell	16
3.1	Meßgeometrie für die Kollektortechnik	21
3.2	Schemazeichnung der UHV-Anlage	25
3.3	Partialdrücke des Restgases während eines Experiments	26
3.4	Zeitlicher Verlauf der Partialdrücke	27
3.5	Prinzip der ERD-Analyse	29
3.6	Schemazeichnung der Ionisationskammer	30
3.7	$\Delta E - E_{rest}$ -Spektrum eines ungereinigten <i>Ti</i> -Targets	31
3.8	In-situ ERD-Energieprofile von <i>C</i> - und <i>O</i> -Verunreinigungen	32
3.9	Prinzip der RBS-Analyse	34
3.10	RBS-Spektrum eines mit <i>Ti</i> bedeckten <i>Si</i> -Auffängers	37
3.11	Schema der Brechung von Röntgenstrahlung an einer ebenen Grenzfläche	37
3.12	TRFA-Spektrum eines mit <i>Ti</i> bedeckten <i>Si</i> -Auffängers	39
3.13	Skizze zur Berechnung der totalen Zerstäubungsausbeuten	41
3.14	Dosisabhängigkeit der Kollektorbedeckung	42
3.15	Reproduzierbarkeit der Zerstäubungsmessungen	45
4.1	RKM-Aufnahmen von <i>Au</i> -Targets vor der Bestrahlung	47
4.2	REM-Aufnahmen von <i>Ti</i> -Targets vor und nach der Bestrahlung	50
4.3	$\Theta - 2\Theta$ -Messungen einer <i>Ti</i> -Probe vor und nach der Bestrahlung	51
4.4	(011)-Polfiguren einer <i>Ti</i> -Probe vor und nach der Bestrahlung	51
4.5	REM-Aufnahmen eines bestrahlten <i>Mn</i> -Targets	53
4.6	TEM-Dunkelfeldaufnahme eines bestrahlten <i>Mn</i> -Targets	53
4.7	$\Theta - 2\Theta$ -Messung eines bestrahlten $Y_3Fe_5O_{12}$ -Targets	54
4.8	Geometrien für die Messung von Winkelverteilungen	55

4.9	Winkelverteilungen von <i>Au</i> -, <i>Ti</i> -, <i>Zr</i> - und $Y_3Fe_5O_{12}$ -Targets, gemessen mit <i>Au</i> -Ionen	57
4.10	Winkelverteilungen von <i>Au</i> -, $Y_3Fe_5O_{12}$ - und <i>CsI</i> -Targets, gemessen mit <i>Iod</i> -Ionen	58
4.11	Winkelverteilung eines sehr rauhen <i>Ti</i> -Targets, gemessen mit <i>Au</i> -Ionen .	59
4.12	Einfallswinkelabhängigkeit von <i>Au</i> -Targets für $230MeV$ <i>Au</i> -Ionen	60
4.13	Szenario der Bestrahlung rauher Oberflächen	62
4.14	Flußdiagramm zur Berechnung von Winkelverteilungen rauher Oberflächen	64
4.15	RKM-Oberflächenprofile für die Simulationen	66
4.16	Simulationsergebnisse für niedrige Projektilenergien	67
4.17	Simulationsergebnisse für hohe Projektilenergien	68
4.18	Einfluß der Rauigkeit auf die lokalen Einfallswinkel	71
5.1	Ladungszustandsabhängigkeit der <i>Au</i> -Ausbeuten	79
5.2	Ladungszustandsabhängigkeit der <i>Ti</i> -Ausbeuten	79
5.3	Ladungszustandsabhängigkeit der <i>Zr</i> -Ausbeuten	80
5.4	Ladungszustandsabhängigkeit der <i>Mn</i> - und <i>Ge</i> -Ausbeuten	81
5.5	Thermal-Spike Rechnungen im Bereich des nuklearen Energieverlustmaximums	87
5.6	Ergebnisse der Thermal-Spike Rechnungen für <i>Ti</i>	89
5.7	Temperaturverlauf aus Thermal-Spike Rechnungen für $109MeV$ <i>Au</i> -Ionen in <i>Ti</i>	90
5.8	Temperaturverlauf aus Thermal-Spike Rechnungen für $275MeV$ <i>Au</i> -Ionen in <i>Ti</i>	91
5.9	Ergebnisse der Thermal-Spike Rechnungen für <i>Zr</i>	92
5.10	Temperaturverlauf aus Thermal-Spike Rechnungen für $275MeV$ <i>Au</i> -Ionen in <i>Zr</i>	93
5.11	Energieverlustschwelle für elektronische Zerstäubung von <i>Ti</i>	94
C.1	Aufbau der Ionisationskammer	104
C.2	Die elektronische Verschaltung der Ionisationskammer	105
C.3	Schema der elektronischen Datenaufnahme	106

Tabellenverzeichnis

3.1	Vakua in verschiedenen Komponenten der UHV-Anlage.	26
3.2	Konzentrationen von <i>C</i> und <i>O</i> vor und nach der in-situ-Reinigung	32
3.3	Konzentrationen von <i>C</i> und <i>O</i> während der Zerstäubungsexperimente . .	33
3.4	Vergleichsmessungen für TRFA und RBS an <i>Ti</i> - und <i>Ni</i> -Proben	39
3.5	Einfluß verschiedener Targetpräparationen auf <i>Zr</i> -Zerstäubungsausbeuten	44
4.1	Daten der Winkelverteilungen, gemessen mit 230MeV <i>Au</i> -Ionen	56
4.2	Daten der Winkelverteilungen, gemessen mit 210MeV <i>Iod</i> -Ionen	59
5.1	<i>Ti</i> -Ausbeuten	75
5.2	<i>Mn</i> -Ausbeuten	75
5.3	<i>Ge</i> -Ausbeuten	75
5.4	<i>Zr</i> -Ausbeuten	76
5.5	<i>Au</i> -Ausbeuten	76
5.6	<i>CsI</i> -Ausbeuten	77
5.7	$Y_3Fe_5O_{12}$ -Ausbeuten	77
5.8	Materialkonstanten von <i>Au</i> , <i>Ti</i> und <i>Zr</i> für die Thermal-Spike Rechnungen	83
5.9	Energieverlustschwelle für elektronische Zerstäubung	95
B.1	<i>cos</i> -Exponenten der Targets für die Berechnung der totalen Ausbeuten .	101
B.2	Eigenschaften der verwendeten Targetmaterialien	102
B.3	Spezifische Wärmekapazität und Wärmeleitfähigkeit von <i>Au</i> , <i>Ti</i> und <i>Zr</i>	102
C.1	Technische Daten der Ionisationskammer	103

Kapitel 1

Einleitung

Die Erosion von Festkörpern bei Bestrahlung mit energetischen Teilchen wurde vor über 150 Jahren entdeckt [61]. Die umfangreichen Untersuchungen, die seither zu diesem Phänomen durchgeführt wurden, ergaben zwei wesentliche Wechselwirkungsarten, die zur Zerstäubung (im Fachjargon Sputtern) des Targetmaterials führen: elastische Stöße der Projektile mit Targetkernen und Wechselwirkungen mit den Targetelektronen (Anregung und Ionisation). Bei der ersten Kategorie wird Energie direkt auf die Atomkerne übertragen. Dadurch bilden sich Stoßkaskaden aus, die zur Emission von Targetatomen führen. Dies wird als nukleare oder Kaskadenzerstäubung bezeichnet. Sie ist mittlerweile sehr gut verstanden, und die analytische Beschreibung nach Sigmund [102, 103] oder mit Simulationen [127] erreicht gute Übereinstimmung mit Experimenten. Bei der zweiten Kategorie wird die Energie im Elektronensystem des Targets deponiert und durch verschiedene Kopplungsmechanismen (Coulomb-Abstoßung, Elektron-Phonon-Wechselwirkung) anschließend auf die Atome übertragen. Abhängig von der Stärke der Kopplung und anderen Materialparametern kann dies zur Emission von Targetatomen führen, die dann als elektronische Zerstäubung bezeichnet wird. Die Modelle zu ihrer Beschreibung können bislang allerdings nur ein qualitatives Verständnis der zugrundeliegenden Prozesse geben.

Die im Gitter bzw. dem Elektronensystem des Targets deponierte Energie wird durch den nuklearen bzw. elektronischen Energieverlust des Projektils beschrieben. Er ist der entscheidende Faktor, der die Ausbeuten der jeweiligen Zerstäubungsart bestimmt. In Abbildung 1.1 ist der charakteristische Verlauf beider Energieverlustarten für schwere Projektile am Beispiel von $Au \rightarrow Ti$ (Au -Ionen in Ti) dargestellt. Klar erkennbar ist die Dominanz des nuklearen Energieverlustes bei niedrigen Energien bzw. des elektronischen Energieverlustes bei hohen Energien, in dem Bereich auch die Messungen dieser Arbeit liegen (Tandemenergien). Damit die elektronischen Anregungen zur Zerstäubung

führen, muß eine materialspezifische Energiedichte überschritten werden, die meist erst bei hohen Projektilenergien im elektronisch dominierten Energieverlustbereich möglich ist. Elektronische Zerstäubung äußert sich bei Isolatoren durch um Größenordnungen höhere Ausbeuten als mit Kaskadenzerstäubung erklärbar ist. Für Metalle hingegen konnte bisher kein elektronischer Einfluß nachgewiesen werden, was auf die hohe Beweglichkeit der Leitungselektronen zurückgeführt wurde.

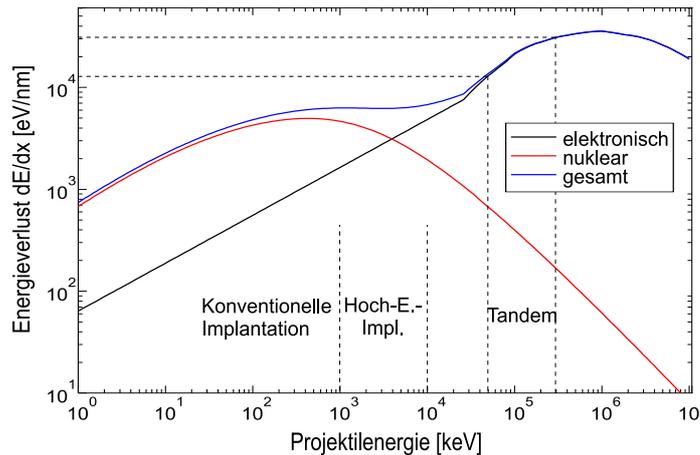


Abbildung 1.1: Nuklearer und elektronischer Energieverlust von Au -Ionen in Ti . Die Energieverluste wurden mit SRIM96 [127] berechnet.

Ein verwandtes Phänomen, die Erzeugung permanenter Kernspuren (i.a. amorphisierte zylindrische Bereiche) entlang der Projektilbahnen bei Bestrahlung mit hochenergetischen Ionen, wurde lange Zeit auch nur bei Isolatoren beobachtet. Erst in den letzten Jahren gelang es, mit Schwerionen- bzw. C_{60} -Strahlen bei hohen elektronischen Energieverlusten von ca. $40 \frac{keV}{nm}$, Kernspuren auch in reinen Metallen (Ti und Zr) nachzuweisen [34,36]. Die Korrelation zwischen Kernspuren und erhöhten Zerstäubungsausbeuten bei Isolatoren warf nach dieser Entdeckung die Frage auf, ob auch bei Metallen ein ähnlicher Zusammenhang besteht. Diese Frage zu klären, war das wesentliche Ziel dieser Arbeit.

Am Münchner $15MV$ Tandembeschleuniger wurden in den letzten Jahren eine Reihe von Verbesserungen vorgenommen. Die Installation eines neuen 90° Analysiermagneten mit etwa 50% mehr Ablenkkraft ermöglichte die Verwendung schwerer Ionen wie Au mit Energien bis $280MeV$ (entsprechend $15MV$ Terminalspannung). Die maximale Stromstärke für Schwerionen bei einem Tandembeschleuniger ist prinzipiell durch die Lebensdauer der Umladefolien bestimmt. Durch die Entwicklung von laserplasma-abgeschiedenen Folien am Beschleunigerlabor gelang eine Verlängerung ihrer Lebensdauer um fast eine Größenordnung, wodurch erst die für unsere Zerstäubungsexperimente

notwendigen Ströme erreicht werden konnten. Zusammen mit einer verbesserten Spannungsstabilität wurden damit die geeigneten Voraussetzungen geschaffen, um diese Experimente durchzuführen.

Bei Zerstäubungsmessungen stellt sich die Frage, wie empfindlich der Zerstäubungsprozeß auf Oberflächenverunreinigungen ist. Dazu zeigt Abb. 1.2 die Energieverteilung und Herkunftstiefe zerstäubter Teilchen an einigen repräsentativen Beispielen (mit dem Simulationsprogramm TC berechnet [106]).

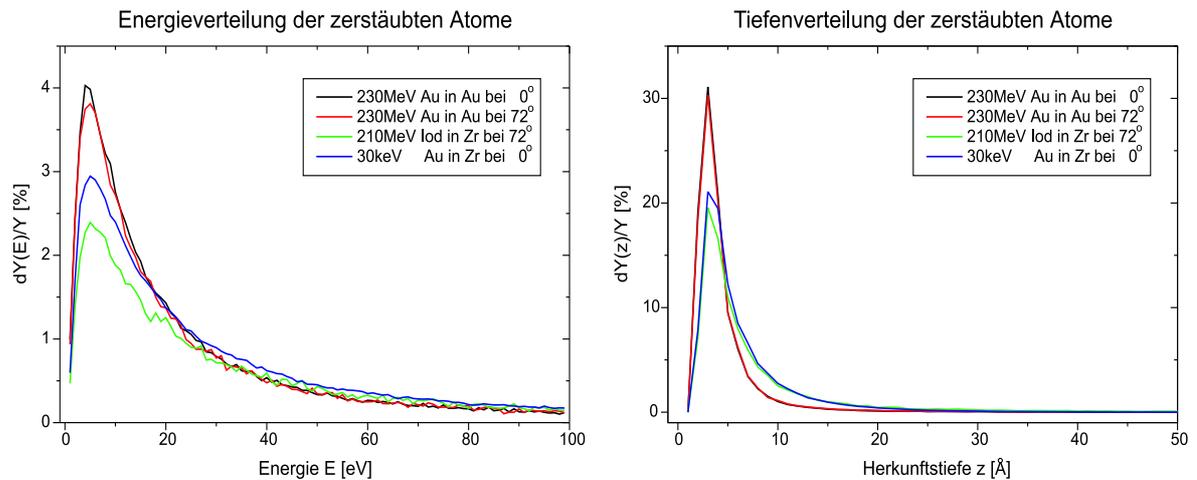


Abbildung 1.2: Energieverteilung und Herkunftstiefe zerstäubter Atome. Unabhängig von der verwendeten Projektilsorte, -energie und dem Targetmaterial haben ca. 65-80% der zerstäubten Atome Energien $< 100\text{eV}$ und 85-95% kommen aus den ersten 10Å . Typischerweise liegt das Maximum der Energieverteilung zwischen $E_{SB}/2$ und E_{SB} , wobei E_{SB} die Oberflächenbindungsenergie ist (3.81eV für Au und 6.25eV für Zr).

Selbst bei sehr hohen Projektilenergien von einigen 100MeV stammt die überwiegende Mehrzahl zerstäubter Atome aus den ersten Atomlagen. Dabei haben die meisten Atome nur Energien von wenigen 10eV , d.h. sie können die Oberflächenbindungsenergie gerade überwinden. Oberflächenverunreinigungen behindern somit die darunter liegenden Targetatome beim Verlassen des Targets. Sie können auch Bindungen mit den Targetatomen eingehen und die Oberflächenbindungsenergie verändern. Gerade bei der Zerstäubung reiner Metalle mit hochenergetischen Ionen wird die Situation noch dadurch verschärft, daß die an der Oberfläche gebildeten Metalloxide Isolatoren sind und somit starke elektronische Effekte zeigen. All dies kann die gemessenen Ausbeuten um eine Größenordnung und mehr beeinflussen. Der Zerstäubungsprozeß ist demnach sehr oberflächensensitiv. Daher müssen Vorkehrungen getroffen werden, um sehr saubere Oberflächen während der gesamten Zerstäubungsexperimente zu garantieren.

Aufbau der Arbeit

Das zentrale Thema dieser Arbeit war die Frage, ob elektronische Effekte bei der Zerstäubung reiner Metalle eine Rolle spielen. Dazu wird im zweiten Kapitel eine kurze Einführung in den nuklearen bzw. elektronischen Energieverlust gegeben und die damit jeweils verbundenen Zerstäubungsmechanismen vorgestellt. Es folgt eine Zusammenfassung bestehender Erklärungsmodelle zur Zerstäubung, wobei das Thermal-Spike Modell ausführlicher behandelt wird, weil es für diese Arbeit von besonderer Bedeutung ist. Kapitel 3 beschäftigt sich mit den vakuumtechnischen, analytischen und präparativen Anforderungen, die für hochenergetische Zerstäubungsmessungen bei Metallen notwendig sind. Die dafür entwickelte UHV-Anlage, das Meßverfahren zur Bestimmung der Ausbeuten und die verwendeten Analysemethoden werden vorgestellt und diskutiert. Der Einfluß verschiedener Oberflächenbedingungen und die letztlich erreichte Reproduzierbarkeit und Genauigkeit werden danach anhand verschiedener Messungen demonstriert. Im vierten Kapitel folgen Untersuchungen zum Einfluß hochenergetischer Bestrahlung auf die Kristallstruktur und die Oberflächen der Targets sowie deren Einfluß auf die Winkelverteilungen. Um den Zusammenhang zwischen rauhen Oberflächen und Winkelverteilungen besser zu verstehen, wurde ein Simulationsprogramm entwickelt, dessen Ergebnisse anschließend mit Messungen verglichen werden. Im fünften Kapitel schließlich folgt eine Zusammenstellung aller Meßergebnisse. Der elektronische Einfluß auf die Zerstäubung verschiedener Metalle wird anhand von Umladeexperimenten gezeigt. Anschließend werden die Erweiterungen des Thermal-Spike Modells zur Berechnung elektronischer Zerstäubungsausbeuten und Berücksichtigung des nuklearen Energieverlustes vorgestellt und die Ergebnisse im Rahmen dieses erweiterten Modells diskutiert.

Kapitel 2

Grundlagen der Zerstäubung

2.1 Abbremsung hochenergetischer Ionen in Festkörpern

Die Wechselwirkung von Ionen mit Festkörpern läßt sich im wesentlichen auf zwei Mechanismen zurückführen. Dies sind zum einen elastische Stöße zwischen Ion und Targetatomen, die sowohl zu einem Energieverlust als auch zu Richtungsänderungen des Ions führen. Zum anderen verliert es Energie durch Wechselwirkung mit den Targetelektronen der Probenatome. Die bei diesen Prozessen auftretende Abbremsung des Ions wird üblicherweise als *nuklearer* oder *elastischer* bzw. *elektronischer* oder *inelastischer* Energieverlust bezeichnet. Beide können in erster Näherung als unabhängig voneinander betrachtet werden, so daß sich der gesamte Energieübertrag T additiv zusammensetzt: $T = T_{el.} + T_{nukl.}$. Die statistische Natur der Energieverlustprozesse erlaubt die mathematische Beschreibung der Einzelstöße als unabhängige Ereignisse. Der mittlere Energieverlust $\overline{\Delta E}$, den Ionen der Energie E_1 beim Durchdringen der Probendicke Δx erleiden, läßt sich wie folgt berechnen:

$$\overline{\Delta E} = N \cdot \Delta x \cdot \int T d\sigma \quad (2.1)$$

N ist die Anzahldichte statistisch verteilter Wechselwirkungszentren des Abbremsmediums. Der differentielle Wirkungsquerschnitt $d\sigma(Z_1, Z_2, M_1, M_2, E_1, T)$ ist ein Maß für die Wahrscheinlichkeit, daß ein Energieübertrag im Intervall $[T, T + dT]$ stattfindet. Die Eigenschaften des Projektils wurden hier, wie auch im folgenden, mit dem Index 1, die des Targets mit dem Index 2 bezeichnet. Z_i kennzeichnet die Ladungszahl und M_i die Masse der beteiligten Stoßpartner. Gleichung 2.1 stellt die Basis für eine theoretische Beschreibung der Energieverluste eines Projektils beim Durchqueren von Festkörpern dar.

Der spezifische Energieverlust (im weiteren einfach Energieverlust) ergibt sich daraus zu:

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_{e,n} = \lim_{\Delta x \rightarrow 0} \frac{\overline{\Delta E}}{\Delta x} = N \cdot S_{e,n}(E_1) \quad (2.2)$$

$S_{e,n}(E_1)$ wird je nach Art der Wechselwirkungszentren als elektronischer bzw. nuklearer Bremsquerschnitt bezeichnet.

Die Berechnung der Energieverluste ist für diese Arbeit in mehrfacher Hinsicht von Bedeutung. Sie geht zum einen bei der Berechnung der nuklearen Zerstäubungsausbeuten in Simulationsprogrammen ein, die in dieser Arbeit verwendet wurden, um den Kaskadenanteil der gemessenen Ausbeuten zu berechnen (z.B. SRIM96 oder TC [106, 127]). Zum anderen legen die Energieverluste die im atomaren bzw. elektronischen System des Targets deponierte Energie fest. Dies erlaubt die Unterscheidung von nuklearer bzw. elektronischer Zerstäubung, je nachdem welche dominierend für das jeweilige Material ist. Deswegen werden die wesentlichen Ideen zur Berechnung der Energieverluste nach Ziegler [128], welche die meisten Simulationsprogramme verwenden, kurz vorgestellt.

Der nukleare Energieverlust des Ions beim Einzelstoß ist gleich dem Energiebetrag, der auf das ruhende Probenatom übertragen wird und hängt nur von den Massen und Streuwinkeln der Stoßpartner ab. Zur Berechnung des differentiellen Wirkungsquerschnitts $d\sigma$ werden die Bewegungsgleichungen der Stoßpartner unter Annahme eines Wechselwirkungspotentials gelöst. Das Potential muß sowohl die positiven punktförmigen Kernladungen als auch deren Abschirmung durch die Hüllenelektronen berücksichtigen. Eine gute Näherung stellt der Ansatz für ein abgeschirmtes Coulombpotential dar, das folgende allgemeine Form hat:

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \cdot \Phi\left(\frac{r}{a}\right) \quad (2.3)$$

$V(r)$ ist das Potential im Abstand r , Z_i sind die Kernladungszahlen und e die Elementarladung. $\Phi(\frac{r}{a})$ ist die sogenannte Abschirmfunktion, die über eine Abschirmlänge a von den Kernladungen der Stoßpartner abhängt. Sie kann aus der Ladungsverteilung der Elektronen berechnet werden und wird für klassische Atommodelle (z.B. Thomas-Fermi Atom) durch eine Exponentialreihe angenähert: $\Phi(\frac{r}{a}) = \sum_{i=1}^n c_i \exp(-d_i \frac{r}{a})$, mit c_i und d_i als Anpassungsparameter. Das in SRIM96 [127] verwendete, von Ziegler, Bierack und Littmark entwickelte Universalpotential Φ_U [128] ist von dieser Art und wurde aus einer Anpassung an Potentiale von etwa 500 verschiedenen, zufällig ausgewählten Projektil-Target-Kombinationen gewonnen. Die Universal-Abschirmlänge wurde ebenfalls aus Anpassungen gewonnen und lautet: $a_U = 0.8854a_0 / (Z_1^{0.23} + Z_2^{0.23})$ mit dem

Bohrradius $a_0 = 0.529\text{\AA}$. Der nukleare Bremsquerschnitt berechnet sich für das Universalpotential damit wie folgt [128]:

$$S_n(E_1) = \frac{4\pi a_U Z_1 Z_2 e^2 M_1}{(M_1 + M_2)} \cdot s_n(\varepsilon) \quad (2.4)$$

mit dem reduzierten nuklearen Bremsquerschnitt

$$s_n(\varepsilon) = \varepsilon \int_0^\infty \sin^2\left(\frac{\Theta}{2}\right) 2\pi b db \quad (2.5)$$

der die Energieabhängigkeit festlegt (b ist der reduzierte Stoßparameter und $\Theta = \Theta(\varepsilon, b)$ der Streuwinkel des Ions im Schwerpunktsystem) und der reduzierten Energie

$$\varepsilon \equiv \frac{a_U M_2 E_1}{Z_1 Z_2 e^2 (M_1 + M_2)} = \frac{(0.03253/eV) M_2 E_1}{Z_1 Z_2 (M_1 + M_2) (Z_1^{0.23} + Z_2^{0.23})} \quad (2.6)$$

Die Einführung der reduzierten Größen ermöglicht eine einheitliche Beschreibung des nuklearen Energieverlustes für alle Kombinationen von Atom-Atom-Stößen, die alleine von der reduzierten Energie ε abhängt.

Es soll darauf hingewiesen werden, daß die Herleitung der nuklearen Abbremsung unter Annahme eines nicht ionisierten Projektils im Grundzustand erfolgte. Damit wurde vernachlässigt, daß der Ladungszustand des Projektils seine Ladungsverteilung und damit die Abschirmfunktion und den Energieverlust beeinflussen kann. Nach Ref. [128] spielt die Abschirmung durch die Elektronen jedoch für große reduzierte Energien $\varepsilon > 30$ keine Rolle, wodurch das reine Coulombpotential verwendet werden kann. Diese Bedingung ist für alle Experimente dieser Arbeit erfüllt ($50 \leq \varepsilon \leq 354$), so daß der nukleare Energieverlust unabhängig vom Ladungszustand der Projektilen ist.

Der elektronische Energieverlust hat seinen Ursprung in einer Reihe von Wechselwirkungen mit den Targetelektronen. Dazu zählen direkte Energieüberträge, vor allem durch Elektron-Elektron-Stöße, Anregung und Ionisation sowohl von Targetatomen als auch des Projektils sowie die Polarisierung des quasifreien Elektronengases des Targets. Bohr machte die Annahmen, daß das Ion beim Durchqueren des Targets jene Elektronen verliert, deren Orbitalgeschwindigkeit geringer ist als die Projektilgeschwindigkeit, und daß Targetelektronen mit höherer Orbitalgeschwindigkeit adiabatische Stöße mit dem Projektil erleiden und somit nicht zum Energieverlust beitragen [23]. Dies führt zu einer Unterscheidung der theoretischen Ansätze in verschiedene Geschwindigkeitsbereiche. Bei sehr hohen, nichtrelativistischen Projektilgeschwindigkeiten ($v_1 > Z_1 v_0$: $v_0 = e^2/\hbar \approx 2188 \frac{km}{s}$ ist die Bohrgeschwindigkeit, \hbar die Planckkonstante) wird das Projektil vollständig ionisiert und die quantenmechanische Beschreibung nach Bethe

und Bloch [18,21] ergibt einen fallenden Energieverlust mit der Projektilgeschwindigkeit $S_e \sim (\ln v_1^2)/v_1^2$. Noch höhere Geschwindigkeiten nahe der Lichtgeschwindigkeit erfordern relativistische Korrekturen der Bethe-Bloch-Theorie. Bei geringeren Geschwindigkeiten ($v_1 < Z_1 v_0$) kann das Ion nicht mehr vollständig ionisiert werden. Die Berücksichtigung der Abschirmung durch die Einführung einer effektiven Projektilladung führt zu einer nur noch relativ schwachen Geschwindigkeitsabhängigkeit ($\sim \ln v_1^2$), die den Verlauf im Bereich des Energieverlustmaximums beschreibt. Für $v_1 < Z_1^{2/3} v_0$ kann S_e nach Lindhard und Scharff [80] beschrieben werden, welche von einem homogenen Elektronengas ausgehend, die Wechselwirkung mit dem Ion als Störung dieses Gases behandeln. In diesem Bereich ist der elektronische Energieverlust proportional zur Projektilgeschwindigkeit $S_e \sim v_1$.

Die Projektilgeschwindigkeiten in unseren Experimenten ($3v_0 - 8v_0$) lagen im letztgenannten Bereich. Somit führen Elektroneneinfang- und -verlustprozesse bei einer ausreichenden Zahl von Umladungsstößen zur Ausbildung einer Gleichgewichtsladungsverteilung der Projektile, die vor allem durch deren Geschwindigkeit bestimmt wird und unabhängig von ihrem Anfangsladungszustand ist. Die geschwindigkeitsabhängige Abschirmung der Kernladung muß also berücksichtigt werden. Obwohl der elektronische Energieverlust nach Lindhard und Scharff analytisch beschrieben werden kann, ist die halbempirische Beschreibung nach Ziegler [128] insgesamt genauer. Sie beruht auf dem Konzept einer von Brand und Kitagawa [26] vorgeschlagenen effektiven Ladung, die etwas abweichend vom Bohrschen Kriterium davon ausgeht, daß dem Projektil alle Elektronen verloren gehen, deren Orbitalgeschwindigkeit geringer ist als die Relativgeschwindigkeit zwischen Projektil und Targetelektronen. Die effektive Kernladung $Z_1^* \equiv \gamma Z_1$ und die Abschirmlänge Λ lauten damit:

$$\gamma = I + \frac{1}{2}(1 - I) \left(\frac{v_0}{v_F} \right)^2 \ln \left[1 + \left(\frac{2\Lambda v_F}{a_0 v_0} \right)^2 \right] \quad (2.7)$$

$$\Lambda = \frac{2a_0(1 - I)^{2/3}}{Z_1^{1/3} \left(1 - \frac{1-I}{7} \right)} \quad (2.8)$$

v_F ist die Fermigeschwindigkeit der Targetelektronen und I bezeichnet den Ionisierungsgrad des Projektils: $I = 1 - \frac{n}{Z_1}$, wobei die Zahl der noch ans Projektil gebundenen Elektronen durch n gegeben ist. Der geschwindigkeitsabhängige Ausdruck für I wird aus Anpassungen an experimentelle Daten gewonnen. Entsprechend dieser effektiven Kernladung werden alle elektronischen Bremsquerschnitte für schwerere Ionen $S_e^{Z_1 > 2}$ durch Skalierung der Protonenquerschnitte S_e^H bei derselben Geschwindigkeit ermittelt:

$$S_e^{Z_1 > 2} = S_e^H \cdot (Z_1^*)^2 \quad (2.9)$$

Die Protonenquerschnitte selbst werden empirisch durch eine Anpassung an alle verfügbaren experimentellen Protonenquerschnitte beschrieben, mit einem *Master Stopping Set* genannten Parametersatz für alle Targetelemente. Auf diese Weise wird eine gute Übereinstimmung der berechneten Energieverluste von typisch 10% mit Experimenten erzielt.

Genauere Energieverlustmessungen der letzten Jahre im Energiebereich unserer Experimente ($1 \frac{MeV}{u}$) bestätigten die gute Übereinstimmung [53,54] für ausreichend dicke Targets. In den ersten Atomlagen wurden jedoch Abweichungen bis zu einem Faktor 2 gefunden, wenn der Anfangsladungszustand des Projektils vom mittleren Ladungszustand im Target stark abwich. Die veränderte Abschirmung bis zum Erreichen des Ladungsgleichgewichts macht diese Abhängigkeit verständlich. Ein Versuch, die Ladungszustandsabhängigkeit von S_e theoretisch zu behandeln, wurde vor kurzem von Sigmund unternommen [99,100]. Diese Theorie kann jedoch nur einen qualitativen Eindruck vom Einfluß des Ladungszustands geben. Die Abweichung der berechneten von den gemessenen Werten beträgt bis zu 35%.

2.2 Die klassische nukleare Zerstäubung

Wird ein Festkörper mit energetischen Teilchen (z.B. Ionen) bestrahlt, so kommt es zur Erosion der Oberfläche, d.h. Targetatome verlassen den Festkörper. Die Stärke der Zerstäubung wird durch die *Zerstäubungsausbeute* (engl. *Sputteryield*) beschrieben und ist wie folgt definiert:

$$Y = \frac{\text{Anzahl zerstäubter Targetatome}}{\text{Anzahl eingeschossener Projektile}} \quad (2.10)$$

Der Vorgang der nuklearen Zerstäubung ist in erster Linie auf elastische Zweierstöße zurückzuführen. Damit trägt derselbe Prozeß, der für die nukleare Abbremsung des Ions verantwortlich ist, auch zum Zerstäubungsprozeß bei. Je nach Energie und Kombination der Stoßpartner kann es zur Ausbildung von Stoßkaskaden kommen, wenn das Projektil auf die Targetatome so viel Energie überträgt, daß diese ihrerseits wieder andere Targetatome von deren Gitterplatz stoßen können. Wenn oberflächennahe Probenatome in Richtung der Oberfläche gestoßen werden, können sie den Festkörper verlassen, sofern sie noch genügend kinetische Energie haben, um die Oberflächenbindungsenergie zu überwinden. Diese Art der Erosion wird auch physikalische Zerstäubung genannt [91].

2.2.1 Analytische Beschreibung

Obwohl das Phänomen der Zerstäubung schon lange bekannt war, wurde eine analytische Theorie erst Ende der 60er Jahre von Sigmund entwickelt [13, 102, 103]. Zusätzlich zur Annahme von Kollisionskaskaden als Ursache der Zerstäubung wird ein strukturloses (amorphes) Target vorausgesetzt. Bei polykristallinen Proben wird angenommen, daß der mögliche Einfluß des Gitters (fokussierende Stöße, Gitterführung) herausgemittelt wird. Die Targetoberfläche wird der Einfachheit halber als ebene Grenzfläche in einem unendlich ausgedehnten Medium behandelt. Die Streuquerschnitte werden für hochenergetische Stöße unter Annahme des Thomas-Fermi-Wechselwirkungspotentials gemäß der sogenannten LSS-Theorie (Lindhard, Scharff und Schiøtt) behandelt [81, 82], an die auch die oben beschriebene Berechnung der nuklearen Abbremsung angelehnt wurde. Bei niederenergetischen Stößen, die vor allem zwischen den Targetatomen stattfinden und maßgeblich zur Zerstäubung beitragen, wird das Born-Mayer-Potential verwendet. Die Berechnung der Ausbeute erfolgt in mehreren Schritten: (1) Bestimmung der vom Ion und den Rückstoßatomen deponierten Energie in Oberflächennähe; (2) Berechnung der Anzahl niederenergetischer Rückstoßatome aus dieser Energie; (3) ermitteln, wieviele davon die Oberfläche erreichen; (4) diejenigen auswählen, deren Energie ausreicht, um die Oberflächenbindungsenergie zu überwinden. Dies geschieht durch Lösen der Boltzmannschen Transportgleichung und liefert folgenden analytischen Ausdruck für die Zerstäubungsausbeute:

$$Y(E_1, \vartheta) = \Lambda_s \cdot \alpha\left(\frac{M_2}{M_1}, \vartheta\right) \cdot N \cdot S_n(E_1) \cong \frac{0.042}{E_{SB} \cdot \text{Å}^2} \cdot \alpha\left(\frac{M_2}{M_1}, \vartheta\right) \cdot S_n(E_1) \quad (2.11)$$

Die Besonderheit dieser Darstellung ist die Aufteilung in einen Target-, einen Geometrie- und einen Projektilfaktor. Λ_s ist eine Konstante, die alle spezifischen Targeteigenschaften enthält (Anzahldichte N der Targetatome, Oberflächenbindungsenergie E_{SB}) und vom verwendeten Wechselwirkungspotential zwischen den Targetatomen bestimmt wird. $\alpha\left(\frac{M_2}{M_1}, \vartheta\right)$ ist eine dimensionslose Funktion, die vom Verhältnis der Targetatom- zu Projektilmasse und vom Einfallswinkel ϑ der Projektile abhängt. $S_n(E_1)$ ist der nukleare Bremsquerschnitt und enthält damit die kinematisch bedeutsamen Parameter wie Projektilenergie E_1 , Kernladung und Masse der Stoßpartner. Daraus kann eine wesentliche Eigenschaft sofort abgelesen werden, nämlich die direkte Abhängigkeit der Kaskadenzerstäubung vom nuklearen Energieverlust.

Folgende Grenzen dieser Theorie sollten beachtet werden: Gleichung 2.11 gilt nur, wenn der elektronische Energieverlust vernachlässigbar ist. Bei hohen Projektilenergien muß er berücksichtigt werden. Die Theorie gilt nicht bei niedrigen Energien im Bereich der

materialspezifischen Schwellenenergie (einige 10eV), unterhalb der keine Zerstäubung stattfindet, da die Wechselwirkungspotentiale zu ungenau bekannt sind. Ebenfalls nicht berücksichtigt werden sogenannte Spike-Effekte im Bereich des nuklearen Energieverlustmaximums. Dabei kann es bei schweren Ionen- und Molekülstrahlen zu sehr dichten Kaskaden und einer lokalen Aufheizung des Gitters entlang der Projektilbahn kommen, die einen zusätzlichen nichtlinearen Anteil zur Zerstäubung zur Folge haben kann. Darauf wird in Kap. 5 noch näher eingegangen.

Mit der Theorie von Sigmund ist es jedoch möglich, Zerstäubungsausbeuten auf einen Faktor 2 genau wiederzugeben. Da auch die Experimente typischerweise um diesen Faktor schwanken [13, 48], kann von einer guten Übereinstimmung gesprochen werden.

2.2.2 Computersimulation

Simulationsrechnungen der Zerstäubungsausbeuten lassen sich aufgrund der mittlerweile hohen Rechenleistung auch auf Personal-Computern durchführen. Sie erlauben eine bessere Anpassung an die experimentellen Gegebenheiten und Materialeigenschaften als dies die Sigmund-Theorie vermag und erzielen deswegen auch genauere Ergebnisse.

Die in dieser Arbeit verwendeten Programme SRIM96 [127], TC [106] und TRIM.SP [20] beruhen alle auf dem sogenannten TRIM-Code (*T*Ransport of Ions in Matter) [19, 20]. Zusätzlich zur Bewegung von Ionen in Festkörpern können sie u.a. Zerstäubungsprozesse simulieren. Sie gehören zur Klasse der BCA-Programme (*B*inary *C*ollision *A*pproximation oder Zweierstoß-Näherung), welche die Bewegung der Atome als sukzessive Zweierstöße behandeln. Wesentlich aufwendiger sind molekulardynamische Rechnungen. Dabei wird die Wechselwirkung mit allen benachbarten Atomen durch Integration der Newtonschen Bewegungsgleichungen berücksichtigt, und die Bewegung der Atome als Funktion der Zeit berechnet. Aufgrund ihres hohen Rechenaufwands waren sie für systematische Simulationen in dieser Arbeit nicht geeignet.

Aus Gründen der Rechenzeitminimierung geht der hier verwendete TRIM-Code von einem strukturlosen Target aus, so daß die Parameter für den jeweils nächsten Stoß durch ein Zufallsverfahren ermittelt werden müssen. Deswegen werden solche Programme auch als Monte-Carlo-Programme bezeichnet. Für die vollständige Beschreibung der dreidimensionalen Bewegungsabläufe im Target werden folgende Parameter verwendet: die mittlere freie Weglänge L_s zwischen zwei Stößen, der Stoßparameter p sowie der azimutale Streuwinkel ϕ . Aus der Vorstellung, daß bei hohen Energien spürbare Ablenkungen ($> 1^\circ$) aufgrund der geringen Streuquerschnitte relativ seltene Ereignisse sind, wird ein energieabhängiger Wert für L_s ermittelt, der groß im Vergleich zu interatomaren Abständen ist. Bei niedrigen Energien im Bereich von 100eV werden die Atome

als harte Kugeln behandelt. Aufgrund der endlichen Atomradien ist L_s dann geringer als die interatomaren Abstände. Die Wahrscheinlichkeit für einen Stoßparameter im Bereich $[p, p + dp]$ wird durch den differentiellen Streuquerschnitt bestimmt, was bei der Ermittlung des Stoßparameters durch das Zufallsverfahren berücksichtigt wird. Die Wahrscheinlichkeit für den azimuthalen Streuwinkel ϕ ist hingegen für alle Winkel gleich. Nuklearer und elektronischer Energieverlust werden als unabhängig voneinander angesehen, wodurch das Ion diskrete Energiebeträge bei den Stößen verliert und dazwischen kontinuierlich Energie durch elektronische Wechselwirkungen abgibt. Als Wechselwirkungspotential für Kernstöße wird das oben eingeführte Universalpotential verwendet, und der elektronische Energieverlust gemäß dem oben beschriebenen Formalismus berechnet. Richtungsänderungen erleidet das Ion lediglich durch binäre Kernstöße, d.h. es bewegt sich zwischen zwei Stößen geradlinig weiter. Die Bewegung des Ions wird so lange verfolgt, bis seine Energie unter einen vorher definierten Schwellenwert, die sogenannte Verlagerungsenergie E_D , fällt oder das Target in Transmission oder Reflexion verläßt. Das bisher gesagte gilt auch für alle angestoßenen Targetatome. Damit ein Atom die als eben angesehene Targetoberfläche verlassen kann, muß die Vertikalkomponente der kinetischen Energie mindestens so groß sein wie die Oberflächenbindungsenergie E_{SB} . Austrittsrichtung, Energie und letzte Position zerstäubter Atome werden gespeichert, so daß auch deren Winkel-, Energie- und Tiefenverteilung berechnet werden kann.

Wichtig für verlässliche Simulationsergebnisse ist die geeignete Wahl der Eingangsparameter, z.B. Verlagerungs-, Gitterbindungs- und Oberflächenbindungsenergie. Ein geeigneter Wert für E_{SB} ist die Sublimationsenergie (typ. einige eV) [13, 47]. Die Gitterbindungsenergie kann für die meisten Elemente aus Tabellen entnommen werden und ist oft von derselben Größenordnung wie E_{SB} . Die Verlagerungsenergie liegt im Bereich von ca. 20eV und bezeichnet die Mindestenergie, die auf ein Targetatom übertragen werden muß, um eine Rekombination des angestoßenen Atoms mit der zugehörigen Leerstelle zu verhindern, d.h. es dauerhaft von seinem Gitterplatz zu entfernen.

Im Prinzip gelten für diese Programme dieselben Einschränkungen wie für die Sigmund-Theorie. Die Verwendung des besser angepaßten Universalpotentials und Berücksichtigung des elektronischen Energieverlustes erweitern ihre Anwendbarkeit jedoch auch auf hohe, nichtrelativistische Projektilenergien, sofern weitere elektronische Effekte bei der Zerstäubung (wie sie später beschrieben werden) keine Rolle spielen. Spike-Effekte werden auch hier nicht berücksichtigt. Eine ausführliche Diskussion dieser und einer Reihe anderer Simulationsprogramme ist in Ref. [47, 128] zu finden.

2.3 Die elektronische Zerstäubung

Im Energiebereich unserer Experimente ($0.43\text{-}1.69\frac{\text{MeV}}{u}$), in dem der elektronische den nuklearen Energieverlust um 2 Größenordnungen übersteigt (vgl. Abb. 1.1), treten insbesondere bei der Zerstäubung von Isolatoren neue Effekte auf, die durch elastische Stöße nicht mehr erklärt werden können. Die Ausbeuten folgen nicht mehr dem nuklearen, sondern sind abhängig vom elektronischen Energieverlust ($Y \sim (\frac{dE}{dx})_e^{2-4}$) und $10^2 - 10^5$ mal höher als von der Kaskadenzerstäubung erwartet. Dieses Phänomen wird als elektronische Zerstäubung bezeichnet. Sie wurde erst Anfang der 70er Jahre entdeckt [1] und seither hauptsächlich an Isolatoren untersucht. Dabei zeigte sich eine weitere wichtige Eigenschaft: die Abhängigkeit der Ausbeuten vom Anfangsladungszustand der Projektile. Unterhalb des Ladungsgleichgewichts q_{GG} des Projektils im Target gibt es eine lineare Abhängigkeit von der Projektilladung q , während bei Überschreitung von q_{GG} eine Proportionalität zu q^4 gefunden wurde [10,97,123]. Weitere, für diese Arbeit wichtige Eigenschaften sind die Abhängigkeit von der Projektilgeschwindigkeit bei gleichem elektronischen Energieverlust (höhere Ausbeuten bei geringerer Geschwindigkeit) und eine materialspezifische S_e -Schwelle, die erst überschritten werden muß, um einen elektronischen Einfluß auf die Zerstäubung zu erhalten [85]. Bei Metallen wurden solche Effekte bislang nicht beobachtet und sogar für unmöglich gehalten.

Die Ausbildung permanenter Kernspuren aufgrund des hohen elektronischen Energieverlustes hochenergetischer Projektile ist ein verwandtes Phänomen, das bereits seit Ende der 50er Jahre bekannt ist [104]. Dabei handelt es sich im allgemeinen um zylindrische, amorphisierte Bereiche entlang der Projektilbahnen, die z.B. durch Ätzen sichtbar gemacht werden können. Nachdem sie lange Zeit nur in Isolatoren beobachtet worden waren, konnten Kernspuren vor wenigen Jahren auch in reinen Metallen (*Ti* und *Zr*) nachgewiesen werden [34, 36, 46]. Diese Kernspuren unterscheiden sich von denen in Isolatoren, da es sich nach wie vor um kristallines Material handelt, welches jedoch eine erhöhte Störstellenkonzentration aufweist. Untersuchungen der letzten Jahre zeigten gewisse Parallelen zur elektronischen Zerstäubung auf. So nimmt der Kernspurradius (typ. einige *nm*) mit steigendem S_e zu [46, 56, 73, 112]. Es gibt einen Geschwindigkeitseffekt (geringere Radien bei höherer Geschwindigkeit) [119], und eine materialspezifische S_e -Schwelle für das Auftreten von Kernspuren [46, 56, 84, 112].

2.3.1 Erklärungsmodelle zu elektronischen Effekten

Die Modelle wurden ursprünglich entwickelt, um die Bildung der Kernspuren zu erklären, fanden später jedoch auch Anwendung für die elektronische Zerstäubung, weil dieselben physikalischen Prozesse für beide Erscheinungen verantwortlich gemacht werden. Bevor darauf näher eingegangen wird, ist eine grundsätzliche Vorbemerkung nötig. Bislang ist es mit keinem Modell möglich, die mikroskopischen Vorgänge in Festkörpern bei Bestrahlung mit hochenergetischen Ionen umfassend zu beschreiben und daraus die Wirkungen auf den Festkörper allgemein abzuleiten. Es handelt sich meist um phänomenologische Modelle. Lediglich in einigen Einzelfällen, wenn bestimmte physikalische Prozesse (z.B. Anregung in antibindende Zustände) dominant werden, können die beobachteten Phänomene erklärt werden.

Das historisch Erste war das *Thermal-Spike Modell*, vorgeschlagen von Desauer [38] und überarbeitet von Seitz und Koehler [98]. Das Zweite war die *Coulomb-Explosion*, vorgeschlagen von Fleisher et al. [52]. Dies sind die beiden wichtigsten konkurrierenden Modelle zur Erklärung elektronischer Effekte, die auf alle Materialklassen anwendbar sind. Andere Modelle sind meist auf bestimmte Materialien oder materialspezifische Prozesse beschränkt, z.B. die Besetzung antibindender Zustände, wodurch es zur Dekomposition und damit zum Zerstäuben des Targets kommen kann. Dies ist z.B. bei bestimmten Halbleitern und gefrorenen Gasen der Fall [95, 105]. Es gibt auch kombinierte Modelle, welche z.B. eine Thermalisierung der Coulomb-Energie zu einem Thermal-Spike durch Mehrfachstöße annehmen [96] und Variationen der einzelnen Modelle, welche bestimmte Prozesse (z.B. Auger-Abregung) nach Ionisierung der inneren Schalen für die Wirkung der Coulomb-Explosion verantwortlich machen [111].

2.3.1.1 Die Coulomb-Explosion

Bei der Coulomb-Explosion wird ein zylindrischer Bereich des Targets entlang der Ionenbahn innerhalb der Durchflugzeit von ca. 10^{-16} s ionisiert. Nach $10^{-14} - 10^{-13}$ s haben die positiv geladenen Atome durch die Coulomb-Abstoßung so viel kinetische Energie gewonnen, daß sie ihre Gitterplätze verlassen können. Voraussetzung dafür ist eine genügend lange Lebensdauer des ionisierten Zustands und damit eine geringe Mobilität der freien Elektronen. Deswegen werden Metalle in diesem Modell als unempfindlich und Isolatoren als empfindlich auf elektronische Anregung eingestuft. Von Dunlop et al. [45] wurde eine Erweiterung vorgeschlagen, welche auch für Metalle eine Materialschädigung durch die Coulomb-Abstoßung voraussagt. Dabei wird für eine Zeit unter 10^{-15} s eine kollektive Wirkung der Coulombkraft angenommen, bis die Raumladung kompensiert wird. Dadurch sollen „weiche Moden“ des Phononenspektrums im Atomgitter angeregt wer-

den, welche einer unkorrelierten Bewegung der Nachbaratome entsprechen, wodurch die Coulomb-Abstoßung direkt Energie auf die einzelnen Atome übertragen kann. Wichtig ist auch, daß der einzelne Energieübertrag die Verlagerungsenergie nicht überschreiten muß, da diese nur für ein einzelnes Atom in einem perfekten Gitter und nicht für kollektive Anregung gilt. Allerdings ist auch dieses erweiterte Modell nicht in der Lage, quantitative Voraussagen für verschiedene Materialien zu machen.

2.3.1.2 Das Thermal-Spike Modell

Bei Bestrahlung mit hochenergetischen schweren Ionen wird der größte Teil der Energie (> 99%) im Elektronensystem deponiert. Das führt zusammen mit der kurzen Zeit von ca. 10^{-16} s, in der das Ion die Energie abgibt, entlang der Ionenspur zu einem heißen Elektronensystem in einem nach wie vor kalten Atomgitter. Beim sogenannten Thermal-Spike Modell wird angenommen, daß diese Energie anschließend durch Elektron-Phonon-Wechselwirkungen auf das Gitter übertragen wird, wodurch dessen Temperatur steigt. Abhängig von der Stärke der Kopplung und thermischen Materialparametern kann es zu einem lokalen Aufschmelzen oder gar Verdampfen des Targets, also einem Thermal-Spike (TS) entlang der Ionenspur kommen. Meßbare Folgen sind z.B. permanente Kernspuren oder elektronisches Zerstäuben.

Die nun folgende Ableitung des Thermal-Spike Modells geschieht in Anlehnung an die Referenzen [44, 113, 118]. Die schnelle Energiedeposition bewirkt ein quasi gleichzeitiges Aufheizen der Elektronen entlang der Iontrajektorie. Die Wärmeableitung erfolgt daher vor allem in radialer Richtung, da entlang der Trajektorie überall dieselbe Temperatur herrscht. Das erlaubt eine vereinfachte Beschreibung in Zylindersymmetrie, wobei axiale Effekte an der Oberfläche vernachlässigt werden. Bei der Diskussion der Ergebnisse wird auf mögliche Auswirkungen dieser Näherung noch eingegangen. In Abb. 2.1 sind die beiden Systeme in Zylindersymmetrie schematisch dargestellt, wobei die Iontrajektorie die x-Achse kennzeichnet.

Der Energietransport im elektronischen und atomaren System kann aus folgenden Vorstellungen abgeleitet werden. Ein Zylinder eines Systems im Abstand r zur Trajektorie ist durch seine spezifische Wärmekapazität C und seine Wärmeleitfähigkeit K bei der Temperatur T charakterisiert. Für die zeitliche Entwicklung der Energie gilt: $\frac{dE}{dt} = C \frac{dT}{dt} 2\pi r dr dx$. Diese Energieänderung erfolgt aufgrund der vom Ion am Ort r zur Zeit t deponierten Energiedichte $A(r, t)$, der Wärmeleitung durch die Flächen dS_1 (a) und dS_2 (b) sowie der Kopplung zwischen beiden Systemen $g \cdot (T_e(r) - T_g(r))$. Mit dem Fluß der thermischen Energie (Energie, die pro Zeit durch die Fläche dS fließt) $\frac{dE}{dt dS} = -K \frac{dT}{dr}$ kann die räumliche und zeitliche Temperaturentwicklung im Elektronen-

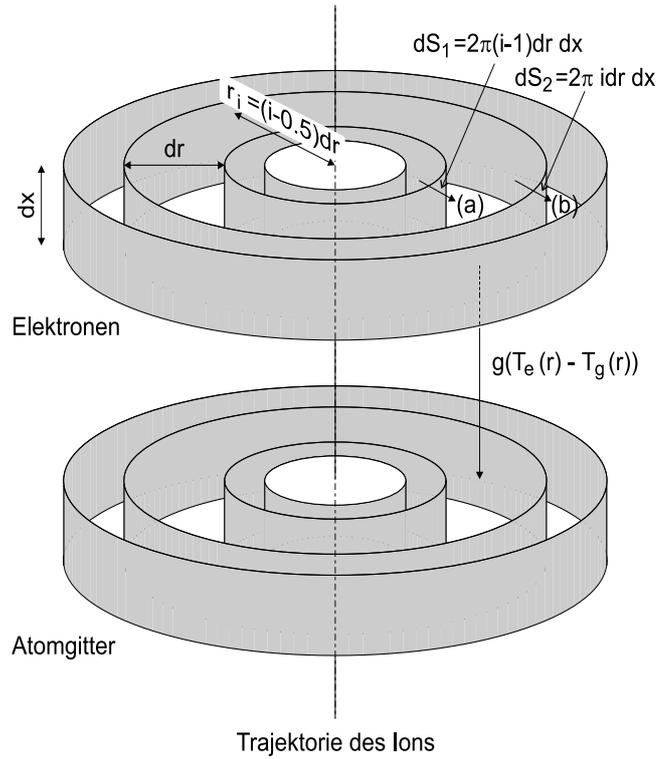


Abbildung 2.1: Schema des Energietransports in beiden Teilsystemen und zwischen dem Elektronengas und dem Atomgitter in Zylindersymmetrie [44].

system bzw. Atomgitter durch die folgenden gekoppelten, nichtlinearen Differentialgleichungen in Zylindersymmetrie beschrieben werden:

$$C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r K_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial r} \right) - g \cdot (T_e - T_g) + A(r, t) \quad (2.12)$$

$$C_g(T_g) \frac{\partial T_g}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r K_g(T_g) \frac{\partial T_g}{\partial r} \right) + g \cdot (T_e - T_g) \quad (2.13)$$

Mit dem Index $_e$ bzw. $_g$ werden die Eigenschaften des elektronischen bzw. des atomaren Systems gekennzeichnet. g ist der Kopplungsfaktor zwischen beiden Systemen. Da alle Parameter temperaturabhängig sind, können die Gleichungen nur numerisch gelöst werden. Noch ein Wort zur Elektronentemperatur: aufgrund des Pauli-Prinzips können bei der Temperatur T_e nur Elektronen im Bereich $k_B T_e$ (k_B =Boltzmann Konstante) unterhalb der Fermienergie E_F thermisch angeregt werden und zum Energieaustausch beitragen. Der daraus resultierenden Verbreiterung der Fermikante kann dann eine Temperatur zugeordnet werden. Die sogenannte Fermitemperatur $T_F = E_F/k_B$ (z.B. für Au: $6.4 \cdot 10^4 K$) ist nur eine formal definierte Größe und nicht die Temperatur der quasifreien Elektronen.

Im folgenden soll ein Überblick gegeben werden, in welcher Weise die Parameter aus obigen Gleichungen in dem von Toulemonde et al. [113, 118] entwickelten Simulationsprogramm berücksichtigt werden, das in dieser Arbeit zur Berechnung der nichtlinearen Ausbeuten verwendet wurde. Als erstes wird der Quellterm $A(r, t)$ diskutiert, der den zeitlichen und räumlichen Verlauf der Energiedeposition beschreibt:

$$A(r, t) = \left(\frac{dE}{dx} \right)_e \cdot G(t)F(r) \quad \text{wobei} \quad \int_{t=0}^{\infty} \int_{r=0}^{\infty} A(r, t) 2\pi r dr dt = \left(\frac{dE}{dx} \right)_e \quad (2.14)$$

Die unmittelbar nach der Energiedeposition stattfindenden Elektron-Elektron-Wechselwirkungen, die zu einer Thermalisierung der Anfangs erzeugten hochenergetischen Elektronen führen, werden durch das Programm nicht simuliert. Vielmehr wird angenommen, daß die Elektronen sich sofort im thermischen Gleichgewicht befinden. Um die dafür nötige Thermalisierungszeit $t_0 \approx 10^{-15} \text{ s}$ [58] und die Temperaturentwicklung zu berücksichtigen, wird die Energiedeposition über diesen Zeitraum mit einer Gauss-Funktion beschrieben: $G(t) \sim \exp(-(t - t_0)^2/2t_0^2)$, mit $G(t) = 0$ für $t \notin [0, 2t_0]$. Die räumliche Verteilung $F(r)$ wird durch eine Anpassung an Ergebnisse aus Monte-Carlo-Simulationen gemäß Waligorski et al. [117] beschrieben: $F(r) \sim r^{-1} \exp(-r/r_0)$. Der Radius r_0 des Zylinders, in dem 66% der Energie auf die Elektronen übertragen wird, ist geschwindigkeitsabhängig (z.B. 3 nm bzw. 12 nm für $3 \frac{\text{MeV}}{u}$ bzw. $20 \frac{\text{MeV}}{u}$ Pb -Ionen [115]). Auf diese Weise ist der bereits mehrfach erwähnte Geschwindigkeitseffekt erklärbar, da bei hohen Energien die mittlere Reichweite der Elektronen größer und damit die deponierte Energiedichte geringer ist.

Die spezifische Wärme und die Wärmeleitfähigkeit des Kristallgitters kann je nach verwendetem Material aus entsprechenden Tabellen entnommen werden, wohingegen C_e für die Elektronen mit der Theorie des quasifreien Elektronengases bestimmt wird. Unterhalb der Fermitemperatur T_F folgt C_e einem linearen Gesetz ($C_e = \pi^2 k_B n_e T_e / 2T_F$: n_e ist die Anzahldichte quasifreier Elektronen) und ist oberhalb davon konstant ($C_e = \frac{3}{2} k_B n_e$). Die Wärmeleitfähigkeit der Elektronen $K_e(T_e)$ wurde aus der thermischen Diffusivität $D_e(T_e) = K_e(T_e) / C_e(T_e)$ von Gold skaliert [42].

Der wesentliche Mechanismus bei der Elektron-Phonon Kopplung wird durch das Phänomen der lokalen Polarisierung beschrieben. Aufgrund der Gitterschwingungen (Phononen) befinden sich die Atome i.a. außerhalb ihrer Gleichgewichtslage. Dadurch entsteht eine lokale Polarisierung \vec{P} , die ein lokales elektrisches Feld \vec{E} induziert, welches auf die Elektronen die Kraft $\vec{F} = -e\vec{E}$ ausübt. Eine vollständige Behandlung dieser Wechselwirkung erfordert die Berücksichtigung der Besetzungszahl F_k der Elektronen (Energie $E_k = \hbar^2 k^2 / 2m_e$: m_e ist die Elektronenmasse) sowie der Besetzungszahl N_q der Phononen (Energie $\hbar\omega_q$: \vec{q} ist der Wellenvektor des Phonons). Aus der Impulserhaltung folgt,

daß ein Elektron mit dem Wellenvektor \vec{k} durch Absorption ($\vec{k} + \vec{q} = \vec{k}'$) oder Emission ($\vec{k} = \vec{k}' + \vec{q}$) eines Phonons in den Endzustand \vec{k}' übergehen kann. Die dadurch verursachte Änderung der Besetzungszahlen $\partial F_k/\partial t$ bzw. $\partial N_q/\partial t$ kann mit den Bloch-Boltzmann-Peierls Gleichungen bei bekannten Anfangsverteilungen berechnet werden [2]. Von Kaganov et al. [69] wurde gezeigt, daß $\partial N_q/\partial t$ als Funktion der Elektronen- und Gittertemperatur ausgedrückt werden kann. Der Energieaustausch zwischen Elektronen und Phononen in einem Volumen V wird durch Integration über die Besetzungsänderung aller Phononenzustände beschrieben:

$$E_{ep} = \frac{V}{(2\pi)^3} \int \rho(\omega_q) \frac{\partial N_q}{\partial t} \hbar \omega_q d\omega_q \quad (2.15)$$

$\rho(\omega_q) \sim \omega_q^2$ ist die Zustandsdichte der ω_q -Zustände. Für hohe Elektronentemperaturen $T_e \gg T_D$ (T_D ist die Debye-Temperatur) läßt sich Gleichung 2.15 durch $g \cdot (T_e - T_g)$, mit folgendem Ausdruck für die Kopplungskonstante g , nähern:

$$g = \frac{\pi^2 m_e n_e v_s^2}{6\tau_e(T_e)T_e} \quad (2.16)$$

$\tau_e(T_e)$ ist die mittlere Stoßzeit der Elektronen mit Gitteratomen bei T_e und $v_s = k_B T_D / \hbar (6\pi^2 n_g)^{1/3}$ die Schallgeschwindigkeit im Metall (n_g ist die Anzahldichte der Gitteratome). Da die direkte Bestimmung von $\tau_e(T_e)$ sehr schwierig ist, kann τ_e mit dem Ohmschen Gesetz ($\sigma_e = n_e e^2 \tau_e / m_e$) auf die elektrische Leitfähigkeit σ_e zurückgeführt werden: $g = (\pi n_e e v_s)^2 / 6\sigma_e T_e$. Mit der Definition der Lorenz-Zahl L und dem Wiedemann-Franzschen Gesetz, welches die elektrische mit der Wärmeleitfähigkeit verknüpft:

$$L = \frac{\pi^2}{3} \left(\frac{k_b}{e} \right)^2 \equiv \frac{K_e}{\sigma_e T_e} \quad (2.17)$$

erhält man für g folgende Ausdrücke:

$$g = \frac{\pi^4 (k_B n_e v_s)^2}{18 L \sigma_e T_e} \quad \text{bzw.} \quad g = \frac{\pi^4 (k_B n_e v_s)^2}{18 K_e(T_e)} \quad (2.18)$$

Ähnliche Modelle wurden zur Beschreibung von fs -Laserexperimenten entwickelt, dort auch Zwei-Temperatur-Modelle genannt. Bei Bestrahlung eines Metalls mit sehr kurzen, intensiven Laserpulsen ($\approx 100fs$) erfolgt ebenfalls eine starke Anregung der Elektronen, die anschließend thermalisieren und durch Elektron-Phonon-Wechselwirkungen das Gitter aufheizen [2, 28, 49, 55, 63, 94, 108]. Dies erlaubt den Vergleich von berechneten mit experimentell in fs -Laserexperimenten gemessenen g -Werten. Dabei zeigt sich, daß mit den Gleichungen 2.18 lediglich die Größenordnung von g abgeschätzt werden kann [42]. Bei Simulationen wird g daher als freier Parameter verwendet, um die experimentellen

Ergebnisse anzupassen und daraus seinen Wert zu bestimmen. Aus den Gleichungen 2.18 ist zu erkennen, daß die Anzahldichte quasifreier Elektronen der einzige freie Parameter ist, der angepaßt werden kann. Für die hier verwendeten Metalle gilt $n_e \approx 2n_g$ [4].

Somit bestimmen zwei physikalische Größen die Empfindlichkeit auf elektronische Anregungen: zum einen die Stärke der Kopplung zwischen beiden Systemen und zum anderen die Schmelztemperatur bzw. Verdampfungstemperatur. Je stärker die Kopplung und je niedriger der Schmelz- oder Verdampfungspunkt, desto wahrscheinlicher ist das Material empfindlich auf elektronische Anregung. Der Schwelleneffekt, der bisher noch nicht diskutiert wurde, wird im Rahmen dieses Modells dadurch erklärt, daß es zur Ausbildung von Kernspuren erst dann kommen kann, wenn die Schmelztemperatur überschritten wird. Analog ist für ein elektronisches Zerstäuben die Überschreitung der Verdampfungstemperatur notwendig. Der dazu mindestens benötigte elektronische Energieverlust wird als Energieverlustschwelle bezeichnet.

Die Stärken des Modells liegen in der Verwendung leicht zugänglicher makroskopischer Festkörpereigenschaften, die es ermöglichen die Temperaturentwicklung auf mikroskopischer Skala zu berechnen. Problematisch ist jedoch, daß letztlich unbekannt ist, inwieweit diese makroskopischen Eigenschaften unter solch extremen Bedingungen noch gültig sind. Es kann innerhalb sehr kurzer Zeit (ca. $10^{-13}s$) zur Aufheizung des Gitters bis weit über die Verdampfungstemperatur kommen, oberhalb der die thermischen Eigenschaften nur ungenau oder gar nicht bekannt sind. Diese Bedingungen können kurzfristig auch einen starken Druckanstieg entlang der Ionenspur bewirken, dessen Auswirkungen auf obige Parameter ebenfalls nicht klar sind. Trotzdem konnte der Geschwindigkeitseffekt und das Schwellenverhalten erklärt werden. Zudem wurde für viele Materialien (Isolatoren und Metalle) eine gute Übereinstimmung mit gemessenen Kernspuren erzielt [33, 42, 43, 84–87, 113–115, 118, 119].

Kapitel 3

Durchführung der Experimente

3.1 Messung von Zerstäubungsausbeuten

Zur Bestimmung der Zerstäubungsausbeute müssen zwei Größen bekannt sein: die Bestrahlungsdosis, also die Anzahl eingeschossener Projektile, und die Zahl der zerstäubten Targetatome. Die Bestimmung der Bestrahlungsdosis durch Stromintegration sollte im Prinzip sehr einfach sein, da meist Ionen mit einem definierten Ladungszustand verwendet werden. Die Emission von Sekundärelektronen durch die Bestrahlung kann die Dosismessung jedoch erheblich verfälschen. Um das zu vermeiden, müssen sie durch eine entsprechende Gegenspannung am Verlassen des Targets gehindert werden. Falls das nicht möglich ist, kann die Dosisbestimmung auch durch eine periodische Strahlstrommessung vor dem Target mit einem Faradaybecher erfolgen. Zur indirekten Dosisbestimmung können verschiedene Sekundäreffekte verwendet werden, z.B. Sekundärelektronenemission oder gestreute Ionen, die aber unter Umständen mittels Faradaybecher geeicht werden müssen.

Zur Bestimmung der Anzahl zerstäubter Targetatome gibt es mehrere Möglichkeiten. Die klassische Methode im keV -Bereich ist die Messung der Massenabnahme durch Wiegen des Targets vor und nach der Bestrahlung. Ein mögliches Problem ist die Unkenntnis der Anzahl implantierter Projektile, wodurch die Massenmessung verfälscht werden kann. Wenn die Messung außerhalb der Vakuumkammer stattfindet, können auch Meßfehler aufgrund von Oxidation auftreten. Eine andere Möglichkeit ist die Massenmessung im Vakuum mit einem Schwingquarz, auf dem das Target aufgedampft wird und dessen Resonanzfrequenz sich mit der Masse ändert. Die Messung des Zerstäubungskraters mit einem Profilometer ist eine weitere Möglichkeit, um die Massenabnahme zu ermitteln. Hier kann das Problem auftreten, daß die Dickenabnahme nicht ausschließlich von den zerstäubten Teilchen herrührt, d.h. durch Strahlenschädigung kann eine Ausdehnung

oder bei amorphen Materialien auch eine Kompaktierung erfolgen [13]. Es gibt auch dynamische Methoden, wie z.B. die Messung zerstäubter Ionen mit einem Massenspektrometer oder anderen Ionendetektoren. Die Hauptschwierigkeit hierbei ist die meist unbekannte Ionisierungswahrscheinlichkeit, die deutlich unter 10% (oft sogar 1%) liegt, so daß nur Ionenausbeuten und nicht totale Zerstäubungsausbeuten gemessen werden. Mittels einer relativ aufwendigen resonanten Laserionisation der Neutralatome kann dieser Nachteil jedoch ausgeglichen werden [70].

Typischerweise schwankt die Reproduzierbarkeit und damit Genauigkeit der gemessenen Ausbeuten mit diesen Methoden um einen Faktor 2, manchmal sogar mehr [13,48]. Verantwortlich dafür sind vor allem die hohen Fluenzen ($10^{18} - 10^{22} \frac{\text{Ionen}}{\text{cm}^2}$), die für diese Experimente verwendet werden müssen, wodurch das Targetmaterial teilweise stark verändert wird. Es kann bei Mehrkomponententargets zur stöchiometrischen Verschiebung kommen und allgemein zu einer starken Aufrauhung der Targetoberflächen. Letzteres kann die gemessenen Ausbeuten wesentlich beeinflussen [14].

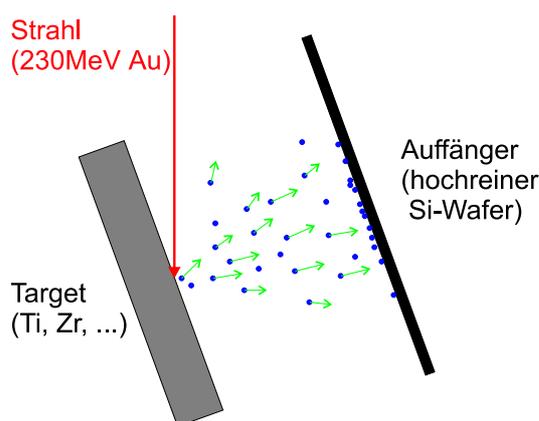


Abbildung 3.1: Meßgeometrie für die Kollektortechnik.

Die in dieser Arbeit verwendete *Auffänger-* oder *Kollektortechnik* (*Catchertechnik*) ist in Abb. 3.1 schematisch dargestellt. Das Target wird unter einem schrägen Einfallswinkel bestrahlt, und ein definierter Teil der zerstäubten Atome auf einem hochreinen Auffänger (Catcher) gesammelt und nachträglich mit verschiedenen Analysemethoden elementspezifisch nachgewiesen. Für die Berechnung der totalen Ausbeuten ist bei dieser Technik daher die Kenntnis der Winkelverteilung der zerstäubten Atome notwendig. Es werden sowohl Neutralteilchen als auch Ionen aufgefangen und Probleme wegen implantierten Materials oder Oxidation werden vermieden. Wenn ausreichend empfindliche Analysemethoden zur Verfügung stehen, sind Messungen mit sehr geringen Bestrahlungsfluenzen ($10^{13} - 10^{15} \frac{\text{Ionen}}{\text{cm}^2}$) möglich, die den zusätzlichen Vorteil bieten, daß Targetveränderun-

gen minimiert werden. Der unbekannte Haftkoeffizient zerstäubter Teilchen auf dem Auffänger und die Möglichkeit der Zerstäubung bereits aufgefangenen Materials durch nachfolgende Teilchen können jedoch auch hier die gemessenen Ausbeuten verfälschen. Um dies zu klären, wurde die Dosisabhängigkeit der Kollektorbedeckung gemessen. Die Verwendung eines leichten Kollektormaterials (*C*-, *Al*-Folie oder *Si*-Wafer) läßt aus kinematischen Gründen eine direkte Rückstreuung von aufgefangenen Atomen schwererer Elemente nicht zu, lediglich durch Mehrfachstreuung können diese reflektiert werden. Experimente zeigten unter obigen Voraussetzungen jedoch Haftkoeffizienten von ca. 0.98 [79], so daß Mehrfachstreuung vernachlässigbar ist und tatsächlich nahezu alle Teilchen auf dem Kollektor verbleiben.

3.2 Voraussetzungen für hochenergetische Zerstäubungsexperimente

Wie bereits in der Einleitung dargelegt wurde, sind saubere, wohldefinierte Targetoberflächen eine wesentliche Voraussetzung zur Durchführung korrekter Zerstäubungsmessungen. Bei Experimenten mit niederenergetischen Ionen werden die Targetoberflächen typischerweise durch den Ionenstrahl selbst dynamisch sauber gehalten. Eine einfache Abschätzung zeigt, daß mit üblichen Strömen im μA - bis mA -Bereich ein Fluß von $10^{16} \frac{\text{Ionen}}{\text{cm}^2 \cdot \text{s}}$ leicht erreichbar ist. Bei einem üblichen Hochvakuum von 10^{-6} mbar beträgt die Adsorptionsrate aus dem Restgas ca. $10^{15} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2 \cdot \text{s}}$, so daß bei Ausbeuten von $1-10 \frac{\text{Atomen}}{\text{Ion}}$ eine Selbstreinigung gut möglich ist.

Experimente mit hochenergetischen Schwerionen sind jedoch Beschränkungen unterworfen, die eine Selbstreinigung nicht erlauben. Zum einen können Tandem-Beschleuniger Schwerionenströme von maximal einigen Partikel- nA ($p nA$) liefern, entsprechend einem Ionenfluß von typischerweise nur $10^{11} \frac{\text{Ionen}}{\text{cm}^2 \cdot \text{s}}$. Zum anderen würden bei Projektilenergien von einigen 100 MeV aufgrund des hohen Energieverlustes (z.B. $29 \frac{\text{keV}}{\text{nm}}$ bei $230 \text{ MeV Au} \rightarrow \text{Ti}$) und Strömen im $p\mu A$ -Bereich so hohe Energiedichten im Target erzeugt ($> 20 \frac{\text{kW}}{\text{cm}^2}$), daß das Target aufschmelzen und verdampfen würde. Aufgrund der geringen nuklearen Ausbeuten - sofern es keine elektronischen Effekte gibt, welche die Ausbeuten wesentlich erhöhen - ist es also nicht möglich, den Ionenstrahl gleichzeitig zur Targetreinigung zu verwenden. Daher sind UHV-Bedingungen zwingend geboten, um den Partialdruck *C*- und *O*-haltiger Gase und damit die Adsorptionsrate zu reduzieren, damit eine unmittelbar vor dem Experiment in-situ gereinigte Oberfläche während der Messung ausreichend sauber bleibt. Unter diesen Umständen ist es auch sehr wichtig, die Targetoberfläche während des gesamten Experiments zu kontrollieren.

Die geringe Gesamtdosis hat auch erhebliche Konsequenzen für den Nachweis der aufgefängenen Atome, wie die folgende Abschätzung am Beispiel von $230\text{MeV } Au \rightarrow Ti$ zeigt. Bei einer nuklearen Ausbeute $Y_n = 1$, einem typischen Projektilstrom von $10^{10} \frac{Au\text{-Ionen}}{s}$ und einer Bestrahlungsdauer von 3 Stunden werden insgesamt nur ca. 10^{14} Ti -Atome zerstäubt. So geringe Materialmengen erfordern entsprechend saubere Auffänger und den Einsatz sehr empfindlicher Analysetechniken.

Dies zeigt, daß Zerstäubungsexperimente mit hochenergetischen schweren Ionen sehr viel höhere Anforderungen an das Vakuumsystem, die Nachweisteknik und die Sauberkeit von Target und Kollektor stellen als Experimente im keV -Bereich.

3.3 Die UHV-Anlage

Als erstes mußte gewährleistet sein, daß UHV-Bedingungen mit Strahl am Target möglich waren. Das bedeutete zum einen, daß alle Komponenten bis ca. $300^\circ C$ ausheizbar sein mußten, d.h. ausschließlich CF-Metalldichtungen und Keramikisolierungen (für stromführende Teile) verwendet wurden. Ebenso mußten öl- und fettfreie Pumpsysteme eingesetzt werden. Da im Strahlrohrsystem ein typisches Vakuum von $10^{-7} mbar$ herrschte, waren differentielle Pumpstufen nötig, um den Druck stufenweise auf UHV-Bedingungen zu reduzieren. Die Kammer selbst mußte eine in-situ Reinigung der Targets erlauben und auch eine in-situ Targetanalyse während der Zerstäubung. Um die Kollektoren vor Kontaminationen aus dem Restgas, z.B. beim Reinigen der Targets oder vor Übersprechen zwischen den einzelnen Messungen zu schützen, mußten sie gegeneinander und gegen den Rest der Kammer abgeschirmt sein. Ein Öffnen der Kammer während einer Strahlzeit zum Austausch der Auffänger oder Targets war nicht möglich, da zum Erreichen von UHV-Bedingungen ein Ausheizvorgang von mehreren Tagen Dauer erforderlich war. Mit einem Schleusensystem wäre ein Austausch unter den gegebenen Voraussetzungen ebenfalls sehr schwierig, so daß möglichst viele Auffänger und Targets untergebracht werden mußten. Um eine Strahlstromeichung und damit exakte Dosismessung zu ermöglichen, sollte die UHV-Kammer auch einen Faradaybecher mit Sekundärelektronensuppression enthalten.

3.3.1 Das Vakuumsystem

Das Vakuumsystem wurde aus drei Komponenten aufgebaut: zwei differentiellen Pumpstufen mit je einer Kryo- und einer Turbomolekularpumpe und der UHV-Kammer mit einer Turbo- und einer Ti -Sublimationspumpe. Die Pumpstufen waren untereinander

und vom Strahlrohr durch HV-Schieber, und die UHV-Kammer von der zweiten Pumpstufe durch einen UHV-Ganzmetallschieber abgetrennt. Ein Schema des Aufbaus ist in der oberen Hälfte von Abb. 3.2 zu sehen.

Die erste Pumpstufe enthielt eine $1500l/s$ Kryopumpe, während die zweite Stufe, basierend auf einer $500l/s$ Kryopumpe, mit einer speziell für dies Experiment entwickelten Kryofalle ausgestattet wurde. Sie bestand aus einem konzentrisch zur Strahlachse justierten Cu -Zylinder mit mehreren Lochblenden von $18-25mm$ Durchmesser. Der Zylinder war innen mit Aktivkohle beschichtet, um eine hohe Pumpleistung zu ermöglichen, während er außen poliert war, um die Absorption der Umgebungswärme zu reduzieren. Er war durch einen Cu -Stempel mit der $20K$ -Stufe eines CRYOGEN-Kühlsystems R210 [78] verbunden (Kühlleistung ca. $2W$ bei $20K$). Zur Isolierung gegen die Umgebungswärme waren alle $20K$ -Teile von einer ebenfalls polierten Stahlabschirmung umgeben, die an die $80K$ -Stufe des Kühlsystems angeschlossen war. Die Turbopumpen beider Stufen waren ölgelagert und dienten daher nur der Erzeugung eines guten Hochvakuums (ca. $10^{-8}mbar$) für die Inbetriebnahme der Kryopumpen. Hatten diese ihre Arbeitstemperatur erreicht, wurden die Schieber vor den Turbopumpen geschlossen.

Die Öffnung zwischen zweiter Pumpstufe und UHV-Kammer wurde durch eine Lochblende auf $10mm$ Durchmesser reduziert, um das differentielle Pumpen zu unterstützen. Die UHV-Kammer selbst war mit einem ölfreien Pumpsystem ausgestattet, bestehend aus einer Membran-Vorpumpe, einer magnetgelagerten $520l/s$ Turbo-Pumpe und einer Ti -Sublimationspumpe. Dadurch wurde eine Kontamination der Kammer durch Öl- und Fettdämpfe vollständig vermieden.

Zum Ausheizen der UHV-Kammer und der Pumpstufen wurden diese mit Heizbändern umwickelt und in mehreren Lagen Al -Folie verpackt, um eine homogene Temperaturverteilung zu gewährleisten. Zusätzlich waren in die UHV-Kammer noch zwei Heizlampen eingebaut ($500W$ in der oberen und $300W$ in der unteren Hälfte), die ein sehr effektives und homogenes Heizen der inneren Kammerwände auf hohe Temperaturen erlaubten, ohne Flansche und Schieber zu sehr zu erwärmen. Nach 3-tägigem Ausheizen der UHV-Kammer bei $280^{\circ}C$ und der beiden Pumpstufen bei $150^{\circ}C$ wurde in der Regel ein Druck im unteren $10^{-11}mbar$ -Bereich erreicht. In Tabelle 3.1 sind die in den verschiedenen Abschnitten des Vakuumsystems erreichten Vakua aufgelistet.

Die Restgasanalyse während der Experimente mit einem HIDEN HALO 201 Quadrupol-Massenspektrometer (siehe Abb. 3.3) zeigte, daß die Hauptkomponente Wasserstoff war, während die Partialdrücke der kritischen Komponenten H_2O und CO im mittleren $10^{-11}mbar$ -Bereich lagen. Die Partialdrücke von O und OH waren noch niedriger und O_2 nicht mehr nachweisbar. Dabei ist davon auszugehen, daß sowohl H als auch O und OH am Filament des Spektrometers durch Spaltung von H_2 bzw. H_2O entstanden.

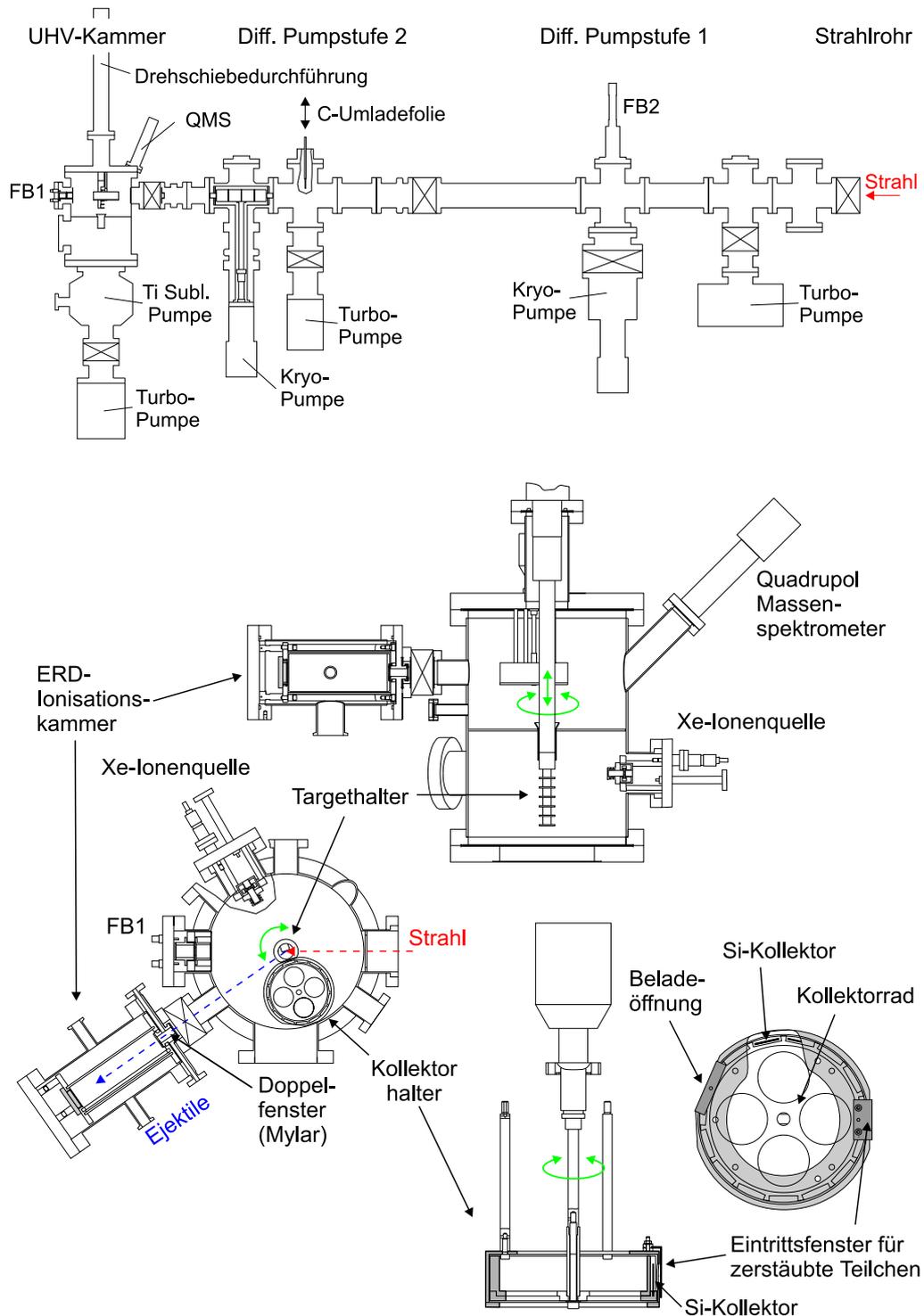


Abbildung 3.2: Schemazeichnung der UHV-Anlage. In der oberen Bildhälfte sind die beiden differentiellen Pumpstufen sowie die UHV-Kammer zu sehen. In der unteren Bildhälfte sind die Details der UHV-Kammer vergrößert dargestellt. Eine Besonderheit ist die UHV-taugliche Ionisationskammer zur in-situ Analyse der Targetoberflächen mit einem differenziell gepumpten Mylar-Doppel-fenster.

Meßort	Druck bei geschlossenen Schiebern	Druck mit Strahl am Target
Strahlrohr	$5 \cdot 10^{-8} - 1 \cdot 10^{-7} \text{ mbar}$	$1 \cdot 10^{-7} - 5 \cdot 10^{-7} \text{ mbar}$
diff. Stufe I	$1 \cdot 10^{-9} - 5 \cdot 10^{-9} \text{ mbar}$	$1 \cdot 10^{-8} - 3 \cdot 10^{-8} \text{ mbar}$
diff. Stufe II	$3 \cdot 10^{-10} - 5 \cdot 10^{-10} \text{ mbar}$	$1 \cdot 10^{-9} - 3 \cdot 10^{-9} \text{ mbar}$
UHV-Kammer	$1 \cdot 10^{-11} - 2 \cdot 10^{-11} \text{ mbar}$	$8 \cdot 10^{-11} - 5 \cdot 10^{-10} \text{ mbar}$

Tabelle 3.1: Typische Vakua in den verschiedenen Komponenten des Vakuumsystems, die bei den Experimenten erreicht wurden.

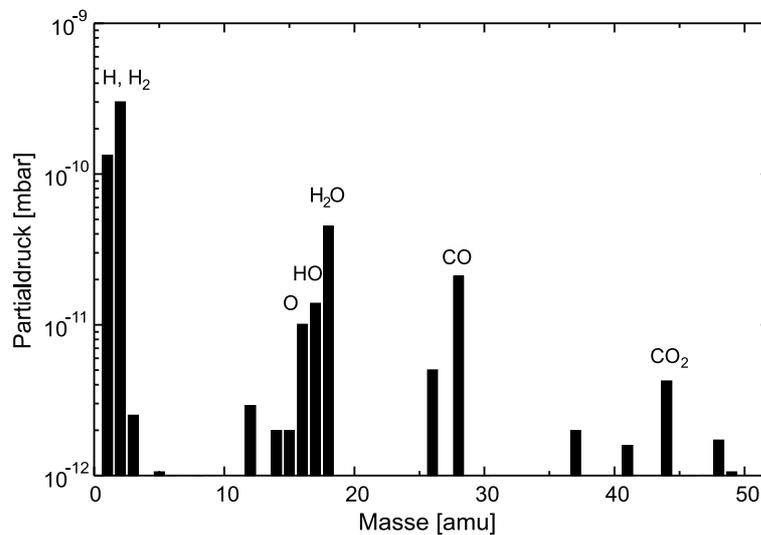


Abbildung 3.3: Partialdrücke des Restgases während eines Experiments. Wasserstoff macht den überwiegenden Anteil des Restgases aus. Die kritischen, *O*-haltigen Gase bewegen sich während der Zerstäubung im mittleren bis unteren 10^{-11} mbar -Bereich. Partialdrücke unterhalb $5 \cdot 10^{-12} \text{ mbar}$ liegen im Rauschen des Spektrometers.

In Abb. 3.4 ist der zeitliche Verlauf der Partialdrücke während mehrerer Experimente über einen Zeitraum von 7 Stunden aufgezeichnet. Es war keine Druckänderung durch den hochenergetischen Schwerionenstrahl während der gesamten Bestrahlungsdauer meßbar. Voraussetzung dafür war jedoch, daß die Targets vorher in-situ gereinigt wurden. War das nicht der Fall, gab es während der ersten Minuten einen deutlichen Anstieg des Wasserstoff-Partialdrucks (teilweise bis in den unteren 10^{-9} mbar -Bereich). Damit war gewährleistet, daß über einen Zeitraum von mehreren Stunden keine nennenswerte Adsorption von Sauerstoff und damit keine Bildung von Oxiden stattfand. Das Vakuumsystem erfüllte somit alle Voraussetzungen, um korrekte Zerstäubungsmessungen auch an stark oxidierenden Metallen durchzuführen.

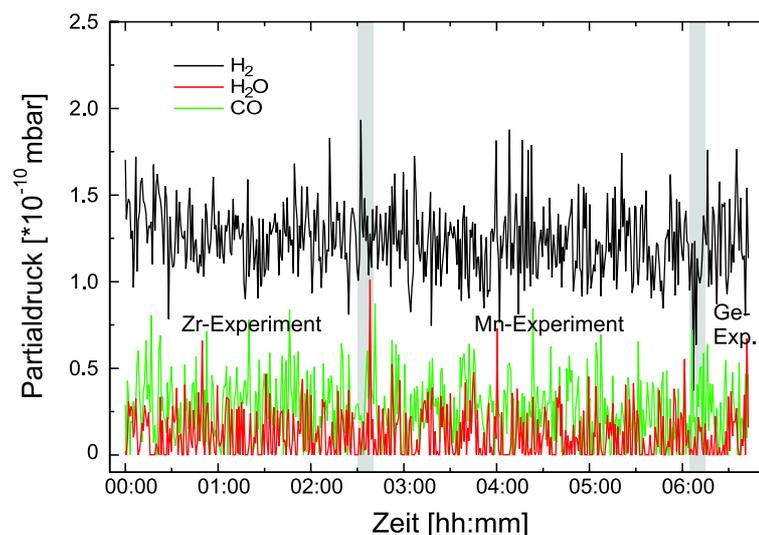


Abbildung 3.4: Zeitlicher Verlauf verschiedener Partialdrücke während mehrerer Experimente. Es ist keine Änderung der Partialdrücke des Restgases durch die Bestrahlung der Targets zu sehen, wenn sie vorher in-situ im UHV gereinigt wurden.

3.3.2 Die UHV-Kammer und die in-situ Targetreinigung

Die UHV-Kammer wurde bei der Firma VAB [116] aus V2A-Stahl gefertigt (Flansche in CF-Norm und Innenflächen mit Glasperlenstrahl gereinigt). In der unteren Hälfte von Abb. 3.2 ist sie zusammen mit dem Kollektorrad im Detail abgebildet. Der Bestrahlungsteil (obere Hälfte) wurde durch einen Zwischenboden vom Reinigungsteil (untere Hälfte) abgeschirmt. Die untere Kammerhälfte enthielt eine Niederenergie-Ionenquelle zur in-situ Targetreinigung. In der oberen Hälfte befanden sich die Auffänger, ein Quadrupol-Massenspektrometer zur Restgasanalyse, ein Faradaybecher zur Stromeichung und eine UHV-taugliche Ionisationskammer zur in-situ ERD-Targetanalyse (Elastic Recoil Detection) und Dosismessung.

Der Targethalter konnte bis zu 5 verschiedene Targets der Größe $12 \times 12 \times 0.5 \text{ mm}^3$ aufnehmen. In der sechsten Position befand sich immer ein *CsI*-Kristall, welcher sich aufgrund seiner Fluoreszenzeigenschaften auch bei geringen Intensitäten zur Strahljustierung und -fokussierung eignet. Die Targetpositionen waren voneinander durch Lamellen abgeschirmt, um eine gegenseitige Kontamination während der Reinigungsprozedur zu vermeiden. Mit einer Drehschiebedurchführung (Hub 30 cm) konnten alle Targets in beiden Kammerhälften in Arbeitsposition gebracht werden.

Der Kollektorhalter wurde als Rad konzipiert, wobei 14 der 15 Kollektorpositionen vollständig umschlossen waren, um sowohl deren Kontamination als auch ein Übersprechen zwischen den Experimenten zu verhindern (siehe Abb. 3.2). Eine Position war nicht

nutzbar, da sie immer ungeschützt vor der Eintrittsöffnung lag. Auf der Halterrückseite befand sich eine abnehmbare Blende zum Be- und Entladen der Auffänger durch einen Kammerflansch. Zur Durchführung der Messungen wurde jeweils ein Auffänger vor die Eintrittsöffnung gedreht. Diese war symmetrisch zur Targetnormalen und erfaßte bei einem Abstand von 19mm zwischen Target und Kollektor einen Winkelbereich von $\pm 14^\circ$, definiert durch eine Eintrittsblende. Die Experimentgeometrie war auf einen Einfallswinkel der Ionen von 72° zur Targetnormalen festgelegt.

Zur in-situ-Reinigung der Targetoberflächen kam eine Sattelfeld Ionenquelle [8] zum Einsatz. Sie wurde bei 8kV mit Xe -Gas der Reinheit 99.998% betrieben und erreichte typischerweise einen Strom von $5\mu\text{A}$ Xe -Ionen. Während einer Reinigungsprozedur von ca. 20min Dauer wurde damit auf einer kreisförmigen Fläche von ca. 10mm Durchmesser typisch $20\text{-}40\text{nm}$ Targetmaterial entfernt. Um die Aufrauhung der Targetoberflächen so gering wie möglich zu halten, wurden die Targets während der Reinigungsprozedur auf verschiedene Einfallswinkel gedreht. RKM-Aufnahmen (Raster-Kraft-Mikroskop) zeigten, daß die Oberflächenrauigkeit von polierten Targets (mittlere Rauigkeit $15\text{-}20\text{nm}$) durch die Reinigung nicht meßbar vergrößert wurde. Die Eindringtiefe von 8keV Xe -Ionen in Festkörpern beträgt etwa 6nm , wodurch deren Implantation nicht ausgeschlossen ist. Mit der ERD-Analyse war jedoch bis hinab zu Konzentrationen von ca. $0.01\text{At.}\%$ kein implantiertes Xe nachweisbar. Während der Prozedur stieg der Druck in der UHV-Kammer auf einige 10^{-5}mbar an, fiel jedoch nach Beendigung in weniger als 10min wieder in den 10^{-10}mbar -Bereich (Xe unterhalb der Nachweisgrenze).

3.4 Die in-situ ERD-Targetanalyse

3.4.1 Das ERD-Prinzip

Bei der ERD-Methode werden Probenatome durch einen schweren, hochenergetischen Ionenstrahl elastisch aus der Probe gestreut und in einem geeigneten Detektor nachgewiesen. Aus kinematischen Gründen ist die Streuung der Probenatome (Ejektile) nur in Vorwärtsrichtung möglich, weswegen die verwendete Experimentgeometrie für diese Methode geeignet ist. Zur quantitativen Analyse sind im wesentlichen drei Größen notwendig: der differentielle ERD-Streuquerschnitt $d\sigma/d\Omega$, der Energieverlust des Projektils und des Ejektils im Target und das charakteristische Verhalten des Ejektils im verwendeten Detektor ($\Delta E/\Delta x$ in der Ionisationskammer).

Aus Abb. 3.5 ist der Ablauf des Streuprozesses und die dafür wesentlichen Parameter zu entnehmen. Beim elastischen Stoß wird auf das Ejektil der Energiebetrag $E_2 = k \cdot E_1$ übertragen:

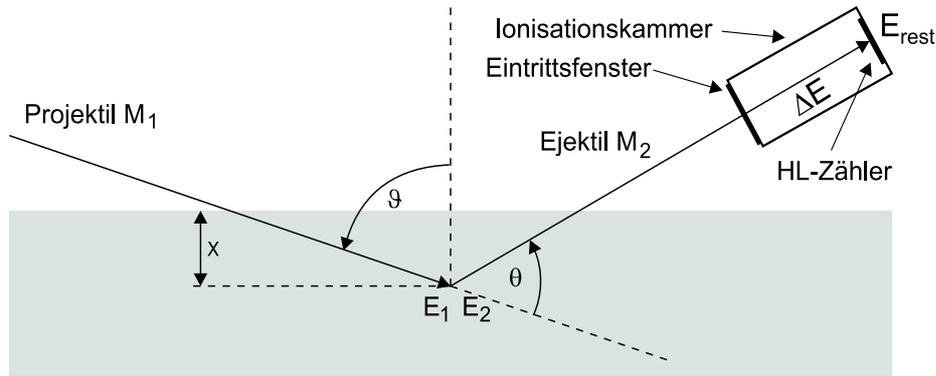


Abbildung 3.5: Prinzip der ERD-Analyse. Bei der ERD-Methode trifft das Projektil unter dem Einfallswinkel ϑ auf das Target, dringt bis zu einer Tiefe x ein und überträgt dort, durch einen elastischen Stoß, die Energie E_2 auf ein Targetatom. Dies wird unter einem Winkel $\theta < 90^\circ$ aus dem Target herausgestreut und in der Ionisationskammer mit der Energie $\Delta E + E_{rest}$ detektiert. Sowohl Projektil als auch Ejektil verlieren auf ihrem Weg durch das Target Energie und das Ejektil zusätzlich noch beim Durchdringen der Eintrittsfenster.

$$k = \frac{E_2}{E_1} = \frac{4M_1M_2}{(M_1 + M_2)^2} \cdot \cos^2 \theta \quad (3.1)$$

k wird als kinematischer Faktor bezeichnet, M_i und E_i sind die Massen bzw. Energien des Projektils bzw. des Probenatoms und θ der Streuwinkel im Laborsystem. Der differentielle Streuquerschnitt für elastische Streuung (reine Coulombstreuung) ist analytisch berechenbar und lautet im Laborsystem [76]:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(E_1, \theta) = \left[\frac{Z_1 Z_2 e^2 (M_1 + M_2)}{8\pi\epsilon_0 M_2 E_1} \right]^2 \cdot \frac{1}{\cos^3 \theta} \quad (3.2)$$

Z_i sind die Kernladungszahlen des Projektils bzw. Ejektils. Aus diesen Größen läßt sich unter Berücksichtigung der Energieverluste von Projektil und Ejektil die Anzahl der Targetatome berechnen, die in einem bestimmten Energieintervall liegen und in den Detektor gestreut werden können. Durch Umrechnung der gemessenen Energieprofile, z.B. mit KONZERD [17] oder mit Simulationsprogrammen wie RUMP [39, 40], lassen sich Konzentrationstiefenprofile von Verunreinigungen ermitteln. Damit ist eine in-situ Analyse der Targetoberflächen möglich. Eine ausführliche Beschreibung dieser Methode ist in Ref. [5–7, 110] zu finden.

3.4.2 Die Ionisationskammer

In dieser Arbeit wurde ein Detektorteleskop verwendet, bestehend aus einer ΔE -Ionisationskammer und einem E_{rest} -Halbleiterzähler (siehe Abb. 3.6). Als Detektorgas diente

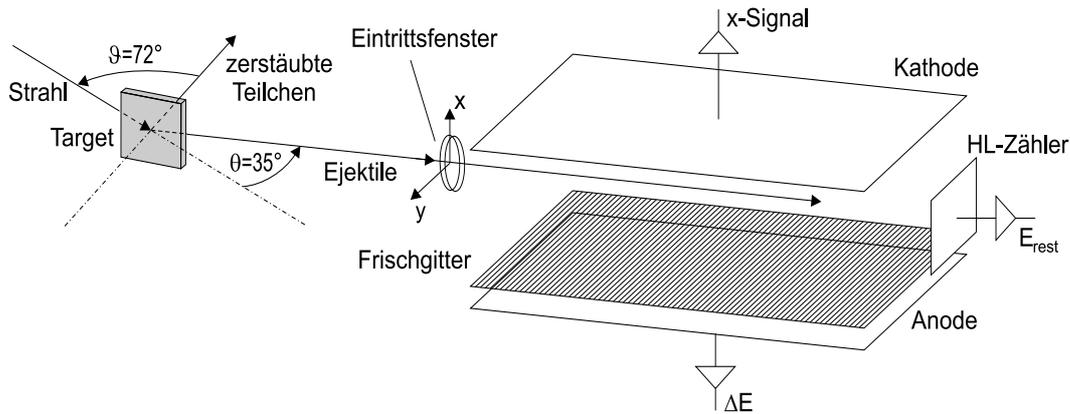


Abbildung 3.6: Schemazeichnung der Ionisationskammer. Das Detektorsystem besteht aus einer gasgefüllten Ionisationskammer und einem Halbleiterzähler zur Messung des ΔE - bzw. E_{rest} -Anteils der Teilchenenergie.

Isobutan der Reinheit 99.95% bei einem typischen Arbeitsdruck von einigen 10mbar . Dieser Druck mußte durch ein geeignetes Eintrittsfenster gegenüber der UHV-Kammer abgedichtet werden. Da eine möglichst hohe Ejektilenergie zur Teilchenidentifizierung notwendig war, sollte der Energieverlust im Eintrittsfenster so gering wie möglich sein. Deswegen kam die Verwendung einer Metallfolie (z.B. *Havar*-Folie) wie bei vergleichbaren Experimenten in der Vergangenheit [16, 126] nicht in Frage. Einfache *Mylar*- oder *Polypropylen*-Folien auf der anderen Seite haben eine zu hohe Leckrate, so daß ein differentiell gepumptes Eintrittsfenster entwickelt werden mußte, welches aus zwei dünnen *Mylar*-Folien bestand. Das kreisförmige Fenster hatte einen Durchmesser von 12mm und wurde auf der UHV-Seite mit einer $0.9\mu\text{m}$ und auf der Detektorseite mit einer $1.5\mu\text{m}$ dicken, jeweils mit 100nm *Al* beschichteten, Folie versehen. Obwohl kein Stützgitter verwendet wurde, war die $1.5\mu\text{m}$ Folie in der Lage, einen Druck von 200mbar unbeschadet zu überstehen. Der Bereich zwischen den Folien wurde mit einer 50l/s Turbopumpe bepumpt, wobei nach Ausheizen des Eintrittsfensters bei 80°C ein Druck von typ. $5 \cdot 10^{-6}\text{mbar}$ erreicht wurde. Dieses milde Ausheizen war nötig, um das adsorbierte Wasser von der UHV-Seite zu entfernen, ohne die Folien zu beschädigen. Danach war keine Druckänderung in der UHV-Kammer meßbar, wenn der Schieber zur Ionisationskammer geöffnet wurde.

Prinzipiell kann der Gas-Detektor durch Teilen der Anode (wie in Ref. [5]) auch zur Messung von E_{rest} verwendet werden. Dazu ist jedoch ein hoher Gasdruck oder eine lange Flugstrecke nötig, um die Ejektile im aktiven Volumen zu stoppen. Aus Sicherheitsgründen wurde der Gasdruck auf maximal 60mbar begrenzt, womit die aktive Detektorlänge von 16.0cm dafür nicht ausreichte. Deswegen wurde zur Messung von E_{rest} ein

Halbleiterzähler verwendet, der jedoch wegen der Strahlenschädigung durch die schweren Ejektile bzw. Projektile nur eine begrenzte Lebensdauer hatte. Anstelle von teuren Halbleiterzählern kamen deswegen wesentlich billigere, sehr rauscharme PIN-Dioden mit einer aktiven Fläche von $20 \times 20 \text{mm}^2$ zum Einsatz, welche eine ausreichend gute Energieauflösung besaßen.

Der Detektor wurde unter einem Streuwinkel von $\theta = 35^\circ$ montiert und hatte einen Raumwinkel von 1.8msr . Der daraus resultierende große Akzeptanzwinkel von 48mrad begrenzte jedoch die Energie- und damit die Tiefenauflösung dieses Detektorsystems. Daher wurde der genaue Streuwinkel für jedes detektierte Teilchen aus dem Verhältnis von Kathoden- zu Anodensignal berechnet und für eine kinematische Korrektur verwendet [5]. Auf diese Weise konnte für die leichten Elemente *C* und *O* eine Energieauflösung von 0.8% erreicht werden, entsprechend einer Tiefenauflösung von 12-15nm. Abbildung 3.7 zeigt ein gemessenes $\Delta E - E_{rest}$ -Spektrum.

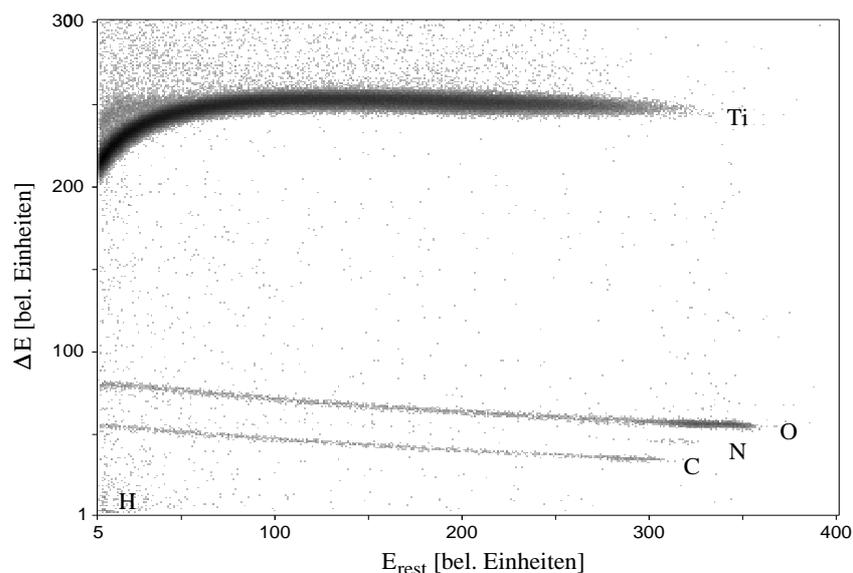


Abbildung 3.7: Das $\Delta E - E_{rest}$ -Spektrum eines mit 230MeV *Au* bestrahlten, ungereinigten *Ti*-Targets zeigt die gute Trennung der leichten Elemente *C*, *N* und *O*. Deutlich kann die *C*- und *O*-Verunreinigung an der Oberfläche (hohes E_{rest}) von Verunreinigungen in der Tiefe (niedriges E_{rest}) unterschieden werden.

3.4.3 Ergebnisse der in-situ ERD-Analyse

Die Vorteile der in-situ Analyse sollen am Beispiel eines *Ti*-Targets vor bzw. nach der *Xe*-Reinigung demonstriert werden. In Abb. 3.8 sind die Energieprofile von *C* und *O* zu sehen, die aus dem $\Delta E - E_{rest}$ -Spektrum aus Abb. 3.7 errechnet wurden. Tab. 3.2

zeigt die zugehörigen Konzentrationen. Es ist klar zu erkennen, daß insbesondere die Oberflächenkonzentration von O vor der Reinigung sehr hoch war. Die Auswertung des Oberflächenmaximums ergab ein Verhältnis $Ti : O$ von ca. 1:2, so daß mindestens die ersten 30 Monolagen ($1ML \approx 1.5 \cdot 10^{15} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$) aus dem Isolator TiO_2 bestanden. Dadurch wäre eine Messung der Ti -Ausbeuten völlig unmöglich geworden. Ebenso war an der Oberfläche eine wenn auch nicht ganz so stark erhöhte C -Konzentration vorhanden.

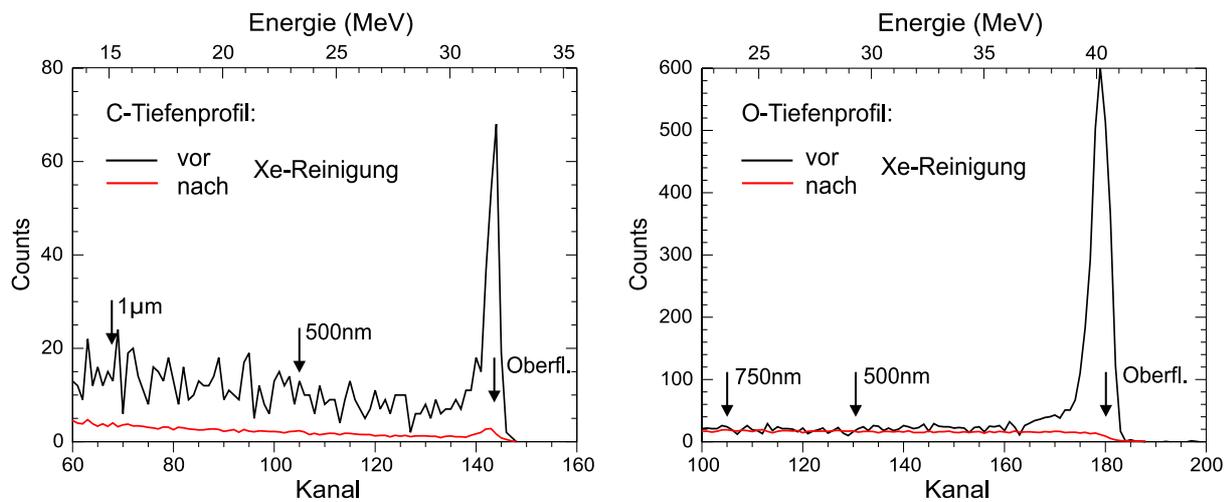


Abbildung 3.8: In-situ ERD-Energieprofile von C - und O -Verunreinigungen eines Ti -Targets. Man kann gut erkennen, daß das Oberflächenmaximum von Sauerstoff durch die Xe -Reinigung vollständig entfernt werden konnte, im Gegensatz zu C . Die Meßdauer vor der Reinigung betrug $15min$ und nach der Reinigung 3 Stunden.

Element	Oberfl. vorher $\frac{1}{\text{cm}^2}$	Oberfl. nachher $\frac{1}{\text{cm}^2}$	Bulk vorher	Bulk nachher
C	$1 \cdot 10^{15}$ (0.68ML)	$7.5 \cdot 10^{13}$ ($5 \cdot 10^{-2}ML$)	0.12 At.%	0.05 At.%
O	$2 \cdot 10^{16}$ (13.5ML)	$2.3 \cdot 10^{12}$ ($2 \cdot 10^{-3}ML$)	0.30 At.%	0.23 At.%

Tabelle 3.2: Konzentrationen von C und O auf Ti vor und nach der in-situ-Reinigung. Die Konzentrationsangaben auf der Oberfläche gehen davon aus, daß alle gemessenen Atome in der ersten Atomlage enthalten sind und geben damit eine obere Abschätzung.

Durch das Reinigen konnte die O -haltige Schicht vollständig entfernt werden, so daß an der Oberfläche lediglich der Sauerstoff übrig blieb, der auch in der Tiefe in vergleichbarer Konzentration enthalten war (0.1-0.3%) und einen vernachlässigbaren Einfluß auf die Zerstäubung hatte. Der Kohlenstoff war trotz der Reinigung nicht vollständig von der Oberfläche zu entfernen und hatte etwa die doppelte Konzentration wie in der Tiefe.

Möglicherweise handelt es sich dabei um eine durch die Bestrahlung gebildete, schwer zu zerstäubende Verbindung, z.B. TiC . Auf anderen Targets wurde unmittelbar nach dem Reinigen ebenfalls eine leicht erhöhte C -Konzentration an der Oberfläche gefunden (z.B. auf Zr). Es ist bekannt, daß Kohlenstoff von Oberflächen generell schwer zu entfernen ist [50]. Bemerkenswert ist die Abnahme der C -Konzentration mindestens im ersten μm des Ti -Targets. Tabelle 3.3 zeigt für die restlichen Targets eine Zusammenfassung der Verunreinigungen während der Zerstäubungsmessungen.

Element/Target	Oberfläche [$\frac{At.}{cm^2}$]	Bulk [At.%]
C / Mn	$4.8 \cdot 10^{12}$ ($3 \cdot 10^{-3} ML$)	0.27
O / Mn	$1.3 \cdot 10^{12}$ ($7 \cdot 10^{-4} ML$)	0.13
C / Ge	$3.0 \cdot 10^{12}$ ($2 \cdot 10^{-3} ML$)	0.01
O / Ge	$8 \cdot 10^{11}$ ($6 \cdot 10^{-4} ML$)	< 0.01
C / Zr	$2.3 \cdot 10^{13}$ ($2 \cdot 10^{-2} ML$)	0.03
O / Zr	$2.5 \cdot 10^{12}$ ($2 \cdot 10^{-3} ML$)	0.25
C / Au	$2 \cdot 10^{11}$ ($1 \cdot 10^{-4} ML$)	0.02
O / Au	$1 \cdot 10^{11}$ ($7 \cdot 10^{-5} ML$)	0.01
C / YIG	< $1 \cdot 10^{11}$ (< $5 \cdot 10^{-5} ML$)	< 0.01
C / CsI	< $1 \cdot 10^{11}$ (< $1 \cdot 10^{-4} ML$)	< 0.01
O / CsI	$3 \cdot 10^{11}$ ($4 \cdot 10^{-4} ML$)	0.03

Tabelle 3.3: Konzentrationen von C und O auf den Targets während der Zerstäubungsexperimente. Die C - und O -Konzentrationen wurden während ca. 3-stündigen Messungen bestimmt (bei CsI ca. $30min$). Für YIG als Oxidverbindung war die Messung der O -Konzentration irrelevant.

Die in-situ ERD-Analyse hat sich als ein sehr leistungsfähiges Hilfsmittel erwiesen, um während der Messungen eine oxid- bzw. adsorbatfreie Targetoberfläche nachzuweisen. Es konnte gezeigt werden, daß bei den unedlen Metallen eine gereinigte Oberfläche im UHV für die Dauer der Experimente (max. $6h$) ausreichend frei von Adsorbaten blieb.

3.4.4 Dosisbestimmung mit der Ionisationskammer

Zur Bestimmung der eingeschossenen Ionenzahl wurde eine indirekte Methode gewählt, die eine kontinuierliche Messung und Integration des Strahlstroms erlaubte. Als ein zum Strahlstrom proportionales Signal wurde die ΔE -Pulsrate der Ejektile in der Ionisationskammer verwendet. Zu deren Integration wurde ein schneller Pulszähler eingesetzt, um

Meßfehler aufgrund der begrenzten Zählrate des Datenaufnahmesystems (Totzeit) zu vermeiden. Die Pulsrate wurde vor jeder Messung mit einem Faradaybecher (FB1 in Abb. 3.2) geeicht. Trotz geringer Schwankung des Strahlstroms während des Eichvorgangs, konnte die gesamte eingeschossene Strahldosis mit einer Genauigkeit von 5-10% gemessen werden.

3.5 Analyse der *Si*-Auffänger

Am Beispiel von $Au \rightarrow Ti$ aus Abschnitt 3.2 wurde abgeschätzt, daß nur etwa $10^{14}Ti$ -Atome zerstäubt werden. Auf dem Kollektor gegenüber dem Strahlfleck ist damit eine Bedeckung von einigen $10^{13} \frac{\text{Atomen}}{\text{cm}^2}$ zu erwarten, d.h. etwa 1/100 Monolage. Meßtechniken, die für den Nachweis derartig geringer Konzentrationen in Frage kommen, sind die *TRFA* (*Totalreflektierende Röntgen-Fluoreszenz-Analyse*) und die *Schwerionen-RBS* (*Rutherford Backscattering Spectrometry*). Beide Methoden sind zudem oberflächenempfindlich, also im vorliegenden Fall besonders geeignet, da sich das aufgefangene Material an der Kollektoroberfläche befindet.

Diese Bedingungen würde die ERD-Analyse ebenfalls erfüllen, sie konnte aber aus Gründen mangelnder Strahlzeit am Garching Tandembeschleuniger nicht eingesetzt werden. Die RBS-Messungen wurden am 1.6MV-Tandetron des Lehrstuhls für Experimentalphysik IV der Universität Augsburg (teilweise auch am Forschungszentrum Rossendorf) und die TRFA-Messungen bei der Firma GeMeTec aus München durchgeführt.

3.5.1 RBS-Analyse der Auffänger

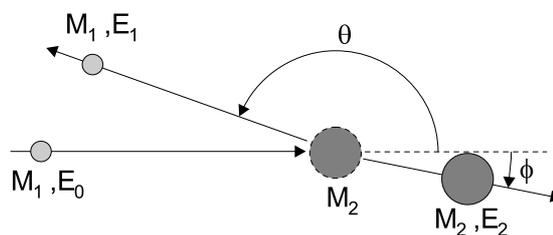


Abbildung 3.9: Schema der RBS-Methode. Leichte Projektile werden an Targetatomen elastisch gestreut ($M_1 < M_2$) und in Rückwärtsrichtung detektiert. Der Energieübertrag beim Stoß hängt nur von den Massen des Projektils und Targetatoms sowie dem Rückstreuwinkel θ des Projektils ab.

Die RBS-Analyse beruht auf der elastischen Rückstreuung leichter Projektile an einer schwereren Matrix und ist damit die komplementäre Methode zur ERD. Abb. 3.9 zeigt

das Meßprinzip der RBS. Die entscheidenden Größen sind auch hier die Energieverhältnisse beim Stoß, der Rutherford-Streuquerschnitt und der Energieverlust der Projektile. Der kinematische Faktor K beschreibt hier die Energie $E_1 = K \cdot E_0$, die das gestreute Projektil nach dem Stoß hat:

$$K = \frac{E_1}{E_0} = \left[\frac{\sqrt{1 - [(M_1/M_2) \sin \theta]^2} + (M_1/M_2) \cos \theta}{1 + (M_1/M_2)} \right]^2 \quad (3.3)$$

E_0 , E_1 sind die Energie des Projektils vor und nach dem Stoß, M_1 , M_2 die Projektil- bzw. Targetatommasse und θ der Streuwinkel im Laborsystem. Die beste Massentrennung (stärkste Änderung von K als Funktion von M_2) erhält man bei einem Streuwinkel $\theta = 180^\circ$ (Rückstreuung). Der differentielle Streuquerschnitt (reine Coulombstreuung) für die Rutherford-Rückstreuung im Laborsystem lautet [32]:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(E_0, \theta) = \left(\frac{Z_1 Z_2 e^2}{16\pi\epsilon_0 E_0} \right)^2 \cdot \frac{4}{\sin^4 \theta} \cdot \frac{[\sqrt{1 - [(M_1/M_2) \sin \theta]^2} + \cos \theta]^2}{\sqrt{1 - [(M_1/M_2) \sin \theta]^2}} \quad (3.4)$$

Z_1 und Z_2 sind die Kernladungszahlen des Projektils bzw. des Targetatoms. Aus der Formel können drei wichtige Eigenschaften abgelesen werden. Erstens ist $d\sigma/d\Omega$ proportional zu $(Z_1 Z_2)^2$, so daß Projektile mit höherer Kernladungszahl eine empfindlichere Messung erlauben. Daraus folgt auch, daß schwere Elemente mit größerer Empfindlichkeit nachgewiesen werden können als leichte Elemente. Drittens fällt der Wirkungsquerschnitt mit E_0^2 ab, so daß die Streurrate mit niedrigeren Energien ansteigt.

Aus dem bisher gesagten lassen sich die Bedingungen für eine empfindliche RBS-Kollektoranalyse ableiten. Die Auffänger sollten aus einem möglichst leichten und sauberen Material sein, um den Untergrund zu reduzieren. Optimal wäre ein leichteres Element als das verwendete Projektil, da dann kinematisch kein Rückstreusignal möglich ist. Für eine niedrige Nachweisgrenze und geringe Meßdauer sind möglichst schwere Projektile mit geringer Energie von Vorteil. Um die Massentrennung zu verbessern, wäre jedoch eine hohe Energie günstiger, so daß ein geeigneter Mittelweg gefunden werden muß.

1.5 MeV C^+ -Ionen zusammen mit *Si*-Auffängern erwiesen sich als guter Kompromiß. Kohlenstoff hat bei gleicher Energie, im Vergleich zum sonst üblichen *He*, den 9-fachen Streuquerschnitt und ermöglicht damit entsprechend empfindlichere Messungen. Die Verwendung eines an sich geeigneteren *Si*-Strahls war nicht möglich, da auch bei den höchsten in Augsburg verfügbaren Energien (5 MeV Si^{4+}) das Signal von *Ti* im elektronischen Rauschen lag. *C*-Folien als Kollektormaterial hätten auch eine Projektilrückstreuung verhindert, sind jedoch nicht in ausreichender Reinheit erhältlich.

Auf diesem Wege war eine Reduzierung der Rückstreurrate am Auffänger also nicht möglich. Die Untergrundreduzierung war jedoch wegen des sogenannten *Puls-pile-up* Problems notwendig. Wenn die Pulsrate im Halbleiterzähler so hoch ist, daß zwei aufeinander folgende Stropulse von der Verstärkerelektronik nicht mehr unterscheidbar sind, werden sie als ein Ereignis mit der Summe beider Teilchenenergien gezählt (pile-up). Das erzeugt im hochenergetischen Teil des RBS-Spektrums einen Untergrund, der die Messung geringer Oberflächenkonzentrationen empfindlich stören kann. Die Höhe des pile-up Signals kann wie folgt abgeschätzt werden [65]:

$$N_2 = \left(\frac{dN_1}{dt} \right)^2 t \tau \cdot (2E_m - E), \quad E_m \leq E \leq 2E_m \quad (3.5)$$

N_2 ist die Anzahl der Doppelpulse, dN_1/dt die Rate der Einzelpulse (pro Kanal), t die Meßdauer und τ die von der Elektronik benötigte Zeit, um zwischen Einzel- und Doppelereignissen zu unterscheiden. E_m ist die maximale Rückstreuenergie am Kollektormaterial und E die Energie im Spektrum, für die Gleichung 3.5 gilt. Davon war insbesondere *Ti* betroffen, dessen Rückstreusignal am nächsten zu dem von *Si* liegt ($E_m(Ti) = 1.5 \cdot E_m(Si)$). Bei einer typischen Zählrate von $2kHz$ und $\tau = 1\mu s$ erhält man bei $E_m(Ti)$ einen pile-up Untergrund von $5 \cdot 10^{-6}$ im Vergleich zum *Si*-Signal. Das entspricht etwa derselben Signalhöhe, die aus einer *Ti*-Bedeckung von $10^{13} \frac{Ti}{cm^2}$ resultiert. Es mußte also eine Lösung gefunden werden, um das pile-up vom *Si*-Kollektor zu reduzieren. Hier konnte die perfekte Kristallinität der *Si*-Wafer und der *Gitterführungs*- oder *Channeling-Effekt* [32, 51] genutzt werden. Wenn Ionen in Richtung von Kristallachsen oder -ebenen in einen Einkristall eingeschossen werden, kommt es durch die periodische Anordnung der Gitteratome zu vielen korrelierten Kleinwinkelstreuungen. Auf diese Weise werden die Ionen in Gitterkanälen auf oszillatorischen Bahnen weit in den Kristall hineingeführt, ohne starke Ablenkungen zu erfahren (Gitterführung). Dies vermindert die Rückstreuung im Vergleich zu einer beliebigen Einschußrichtung bei sehr guten Kristallen um nahezu zwei Größenordnungen.

Für die Analyse wurde die [100]-Achse der *Si*-Auffänger in Strahlrichtung orientiert (linke Hälfte von Abb. 3.10), wodurch sich die Rückstreurrate aus dem *Si*-Kristall stark reduzierte. Die Streuwahrscheinlichkeit an Oberflächenatomen bleibt davon unberührt, wodurch sich im RBS-Spektrum ein deutlich sichtbares *Si*-Oberflächenmaximum ergibt (siehe Abb. 3.10). Damit war es möglich, die *Si*-Intensität um einen Faktor 20-50 zu reduzieren (entsprechend auch das pile-up), ohne die Messung der Oberflächenbedeckungen zu beeinträchtigen. Das in Abb. 3.10 gezeigte RBS-Spektrum einer *Ti*-Probe verdeutlicht den Intensitätsunterschied zwischen *Si*-Untergrund und den zu messenden Konzentrationen (hier ca. $3 \cdot 10^{13} \frac{Ti}{cm^2} \approx 0.02ML$). Es ist gut zu sehen, daß damit *Ti* und die schwereren Elemente weitgehend untergrundfrei gemessen werden konnten.

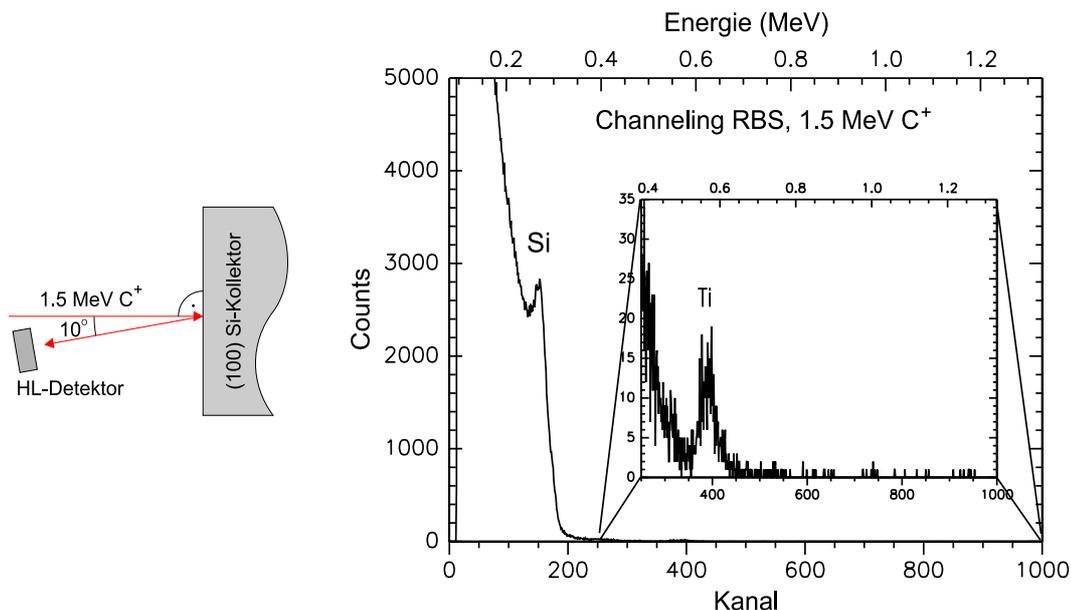


Abbildung 3.10: In der linken Bildhälfte ist das Schema des RBS-Experiments zu sehen, und rechts das RBS-Spektrum desselben mit Ti bedeckten Kollektors wie in Abb. 3.12. Durch den Gitterführungseffekt konnte der Si -Untergrund bei den RBS-Messungen um einen Faktor 20-50 reduziert werden.

3.5.2 TRF-Analyse der Auffänger

Das Prinzip der Röntgenfluoreszenz beruht auf der Photoionisation der Probenatome mit Röntgenstrahlung. Die vom Röntgenphoton erzeugte Lücke in einer inneren Elektronenschale wird durch Elektronen aus höheren Schalen aufgefüllt, wobei eine für das Atom charakteristische Strahlung ausgesendet wird. Grund dafür ist die nahezu quadratische Abhängigkeit der Energie der Fluoreszenzstrahlung von der Kernladungszahl Z des Probenmaterials (Moseley'sches Gesetz), weswegen die charakteristischen Energien zweier Elemente (bezogen auf dieselbe Schale) nicht überlappen. Somit ist ein element-spezifischer Nachweis möglich.

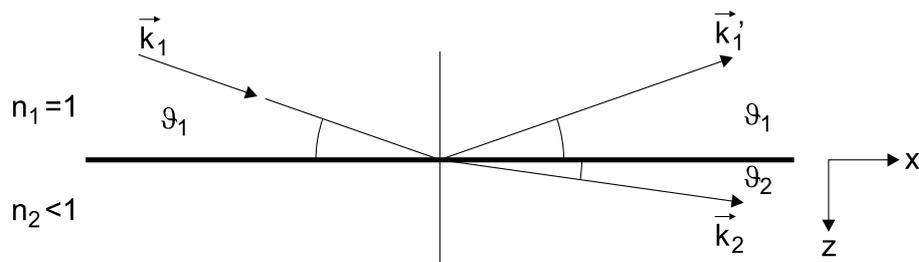


Abbildung 3.11: Schema der Brechung von Röntgenstrahlung an einer ebenen Grenzfläche.

Zur Bestimmung von geringen Oberflächenbedeckungen kann die Röntgenfluoreszenz unter streifendem Einfall verwendet werden (auch TXRF genannt: Total X-ray Reflection Fluorescence). Die Brechung und Reflexion von Röntgenstrahlung läßt sich in gleicher Weise behandeln wie die von Licht, so daß der transmittierte Strahl mit den Snellius'schen Gesetz beschrieben werden kann: $n_1 \cos \vartheta_1 = n_2 \cos \vartheta_2$ mit den Brechungsindizes $n_{1,2}$ des Vakuums bzw. des Mediums und dem Einfallswinkel bzw. Brechungswinkel $\vartheta_{1,2}$. Für Röntgenstrahlung ist Materie ein optisch dünneres Medium ($n < 1$) als das Vakuum, d.h. der Strahl wird vom Lot weg gebrochen wie in Abb. 3.11 gezeigt. Somit gibt es einen kritischen Einfallswinkel ϑ_C , bei dem der gebrochene Strahl entlang der Oberfläche verläuft (\Rightarrow Totalreflexion bei $\vartheta_1 < \vartheta_C$). Der kritische Winkel liegt typischerweise bei einigen zehntel Grad: z.B. für *Si* und die W - L_{β} -Linie (Wellenlänge $\lambda=1.32\text{\AA}$) ist $\vartheta_C = 0.183^\circ$. Die Feldstärke der reflektierten und gebeugten Welle wird durch die Fresnelschen Gleichungen beschrieben. Durch Interferenz der einfallenden und reflektierten Welle wird vor der Grenzfläche ein stehendes Wellenfeld aufgebaut, das bei $\vartheta_1 = \vartheta_C$ einen Wellenbauch an der Grenzfläche besitzt. Dadurch hat der gebrochene Strahl die vierfache Intensität des einfallenden Strahls (ohne Absorption). Im Fall der Totalreflexion ($\vartheta_1 < \vartheta_C$) breitet sich die Welle entlang der Grenzschicht aus, wobei ihre Feldstärke ins Innere des Mediums exponentiell abfällt. Die minimale Eindringtiefe $\Lambda_{min} = \lambda/2\pi\vartheta_C$ beträgt für obiges Beispiel ca. $6.6nm$. Die Tatsache, daß der gebrochene Strahl bei Totalreflexion kaum ins Medium eindringt, ist zusammen mit der Intensitätserhöhung verantwortlich für die Oberflächenempfindlichkeit der TRFA.

Zur Messung von Oberflächenbedeckungen wird der monochromatisierte Röntgenstrahl (W - oder Mo -Röhre) unter Totalreflexion eingestrahlt und das Fluoreszenzlicht mit einem energieauflösenden Halbleiterdetektor gemessen. Für eine quantitative Analyse sind zwei Parameter für das Fluoreszenzsignal wesentlich: die Ionisierungswahrscheinlichkeit und die Fluoreszenzausbeute. Diese hängen ihrerseits von verschiedenen Größen ab, z.B. von der Strahlintensität, dem elementspezifischen Absorptionskoeffizienten $\mu(Z, \lambda)$ und Intensitätsverlusten durch strahlungslose Übergänge (Emission von Auger-Elektronen). Um all das zu berücksichtigen, ist in der Praxis ein Vergleich mit einer geeichten Referenzprobe mit bekannter Bedeckung (externer Standard) notwendig.

In Abb. 3.12 ist das TRFA-Spektrum derselben *Ti*-Probe wie aus Abb. 3.10 zu sehen. Der höhere Untergrund im Vergleich zur RBS-Messung ist gut zu erkennen und liegt typischerweise im Bereich von $10^{12} \frac{\text{Atomen}}{\text{cm}^2}$. Der deutliche *Fe*-Anteil ($5 \cdot 10^{13} \frac{\text{Fe}}{\text{cm}^2}$) stammt hauptsächlich von Streulicht an der Detektorblende und teilweise (wie auch die anderen Verunreinigungen) von Staubpartikeln auf der Kollektoroberfläche. Eine ausführliche Beschreibung dieser Meßmethode ist in Ref. [22, 74, 107] zu finden.

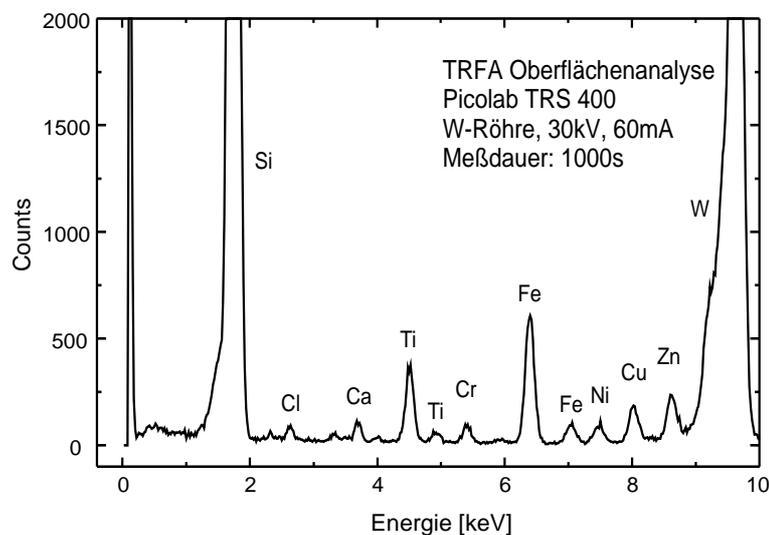


Abbildung 3.12: TRFA-Spektrum eines *Si*-Auffängers mit einer *Ti*-Bedeckung von etwa $3 \cdot 10^{13} \frac{\text{Ti}}{\text{cm}^2}$. Der Untergrund von verschiedenen Verunreinigungen kommt u.a. von Staubpartikeln, welche durch den großen Strahlfleck mitgemessen werden (vgl. Abb. 3.10).

3.5.3 Vergleich der TRFA und RBS

Um die Brauchbarkeit und Genauigkeit beider Methoden zu vergleichen, wurden im Rahmen einer Diplomarbeit [27] mehrere *Si*-Auffänger mit verschiedenen Konzentrationen von *Ti* und *Ni* hergestellt. Die Ergebnisse der Analysen sind in Tabelle 3.4 aufgelistet.

Probe	RBS [$\frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$]	TRFA [$\frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$]
Ti1	$3.2 \cdot 10^{13}$	$2.9 \cdot 10^{13}$
Ti10	$3.3 \cdot 10^{14}$	$2.7 \cdot 10^{14}$
Ti100	$4.9 \cdot 10^{15}$	$2.4 \cdot 10^{15}$
Ni10	$5.3 \cdot 10^{14}$	$5.2 \cdot 10^{14}$
Ni100	$6.5 \cdot 10^{15}$	$3.6 \cdot 10^{15}$
Ni1000	$5.7 \cdot 10^{16}$	$1.0 \cdot 10^{16}$

Tabelle 3.4: Vergleichsmessungen für TRFA und RBS an *Si*-Auffängern mit *Ti*- und *Ni*-Bedeckungen [27]. Die gemessenen Konzentrationen stimmen bei geringen Bedeckungen (\leq ca. $10^{14} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$) im Rahmen der Meßgenauigkeit dieser Methoden überein.

Im Rahmen der Fehler ist die Übereinstimmung bis Konzentrationen von wenigen $10^{14} \frac{\text{At.}}{\text{cm}^2}$ sehr gut. Durch die geringe Eindringtiefe der Röntgenstrahlen von ca. 6nm bei Totalreflexion sind TRFA-Messungen bei höheren Konzentrationen quantitativ nicht mehr

auswertbar. Die Genauigkeit im zulässigen Konzentrationsbereich wird für die TRFA mit ca. 10% angegeben [57]. Bei der RBS wird sie zum einen von der Dosismessung und zum zweiten vom statistischen Fehler der gemessenen Peakflächen bestimmt. Letzterer bewegt sich je nach Bestrahlungsdosis und Element zwischen 1-5%. Mit Hilfe eines auf dem Probenhalter eingebauten Faradaybechers wurde für jede Messung eine Eichung des Target-Stromintegrators durchgeführt. Auf diese Weise war eine genaue Strom- und damit Dosismessung (ca. 3%) möglich, so daß der Meßfehler der RBS ca. 4-8% beträgt. Allerdings ist die Nachweisempfindlichkeit der TRFA bedeutend höher und liegt für die meisten Elemente bei ca. $10^{10} \frac{\text{Atomen}}{\text{cm}^2} \approx 10^{-5} ML$. Für die RBS konnte bei den gegebenen Bedingungen eine Nachweisempfindlichkeit von $10^{11} \frac{\text{Atomen}}{\text{cm}^2} \approx 10^{-4} ML$ für *Au* bis $10^{13} \frac{\text{Atomen}}{\text{cm}^2} \approx 10^{-2} ML$ für *Ti* erreicht werden.

Der extrem flache Einfallswinkel bei der TRFA hat für unsere Messungen jedoch zwei schwerwiegende Nachteile. Die gemessenen Atome werden erstens über einen großen und nicht genau definierten Bereich der Winkelverteilung integriert (bestrahlte Fläche $> 1 \times 1 \text{cm}^2$). Zweitens tragen alle Verunreinigungen (Staubpartikel, ...) im bestrahlten Bereich zum Untergrund bei. Wegen des geringen Strahldurchmessers von ca. 1.5mm und der quantitativen Berechenbarkeit erschien die RBS unter Gitterführungsbedingungen besser geeignet und wurde für alle Kollektoranalysen verwendet.

3.6 Auswertung der Kollektoranalyse

3.6.1 Berechnung der totalen Zerstäubungsausbeuten

Bei Projektilenergien über 100keV ist die Winkelverteilung zerstäubter Atome rotations-symmetrisch zur Targetnormalen, also unabhängig vom Azimutwinkel ϕ . Die Abhängigkeit vom Emissionswinkel θ kann im allgemeinen durch eine $\cos^n(\theta)$ -Funktion beschrieben werden (n im keV-Bereich meist zwischen 1-2 [15]) und wird als *differentielle Winkelverteilung* bezeichnet. Ihre Amplitude $dY(0^\circ, R)$ ist durch die differentielle Ausbeute, senkrecht über dem Zerstäubungsfleck, im Abstand R zum Target gegeben. Somit wird sie durch $dY_D(\theta, R) = dY(0^\circ, R) \cdot \cos^n(\theta)$ vollständig beschrieben. Das entspricht genau der verwendeten Geometrie, bei der die Kollektorbedeckung über dem Zerstäubungsfleck gemessen wird und die durch Normierung auf die Gesamtzahl eingeschossener Projektile die Amplitude $dY(0^\circ, R)$ ergibt. Durch Integration der differentiellen Winkelverteilung über alle Azimut- und Emissionswinkel erhält man die totale Zerstäubungsausbeute. Dazu betrachte man den Schnitt durch einen halbkugelförmigen, über dem Zerstäubungsfleck zentrierten Auffänger in Abb. 3.13.

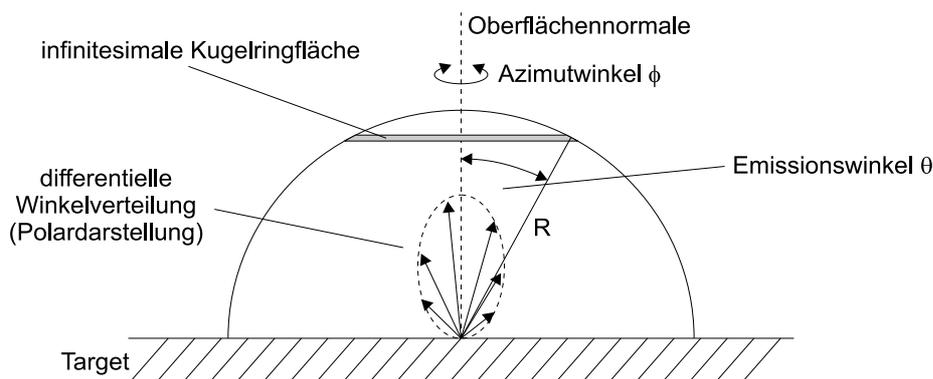


Abbildung 3.13: Querschnitt eines gedachten halbkugelförmigen Kollektors. Aufgrund der Rotationssymmetrie ist die θ -abhängige Bedeckung der Halbkugel unabhängig vom Azimutwinkel ϕ und wird als differentielle Winkelverteilung bezeichnet. Die Teilchenkonzentration entlang der infinitesimalen Kugelringflächen ist daher konstant.

Aufgrund der Symmetrie ist die Bedeckung entlang der infinitesimal dünnen Kugelringflächen konstant, deren Flächeninhalt durch $dF(\theta, R) = 2\pi R^2 \cdot \sin(\theta)d\theta$ gegeben ist. Aus dem Produkt von Ringflächen und differentielle Winkelverteilung erhält man die sogenannte integrale Winkelverteilung $dY_I(\theta) = dY_D(\theta, R) \cdot dF(\theta, R)$, die unabhängig vom Abstand R zum Target ist. Integriert man $dY_I(\theta)$ über alle Emissionswinkel, erhält man die totale Zerstäubungsausbeute:

$$Y_{total} = dY(0^\circ, R) \cdot 2\pi R^2 \int_0^{\frac{\pi}{2}} \cos^n(\theta) \sin(\theta) d\theta \quad (3.6)$$

Das Integral ist für $n \neq -1$ analytisch lösbar, und ergibt bei den gegebenen Integrationsgrenzen folgenden Ausdruck:

$$Y_{total} = dY(0^\circ, R) \cdot 2\pi R^2 \frac{1}{n+1} \quad (3.7)$$

Somit kann aus der gemessenen Kollektorbedeckung und Bestrahlungsdosis, unter Berücksichtigung der Experimentgeometrie und der differentiellen Winkelverteilung, die totale Zerstäubungsausbeute berechnet werden.

3.6.2 Unsicherheit der gemessenen Zerstäubungsausbeuten

Es gibt eine Reihe von Effekten, welche unter Umständen das Ergebnis der Messungen verfälschen können. Einige sind physikalischer Natur und prinzipiell nicht vermeidbar:

- Die direkte Streuung von Ejektilen auf den Auffänger ist eine erste Fehlerquelle. Um das zu verhindern, wurde die Eintrittsblende so gewählt, daß sie auch bei

maximalem Streuwinkel von 90° zur Projektilrichtung, nicht auf den Auffänger gelangen konnten.

- Eine erneute Zerstäubung bereits aufgefangener Atome ist prinzipiell nicht ausgeschlossen. Um dies zu prüfen, wurden dosisabhängige Zerstäubungsmessungen bis zum 4-fachen der üblichen Bestrahlungsdosis durchgeführt. In Abb. 3.14 ist das Ergebnis für $109\text{MeV Au} \rightarrow \text{Zr}$ zu sehen. Der lineare Anstieg der Bedeckung zeigt, daß dieser Effekt vernachlässigbar war.

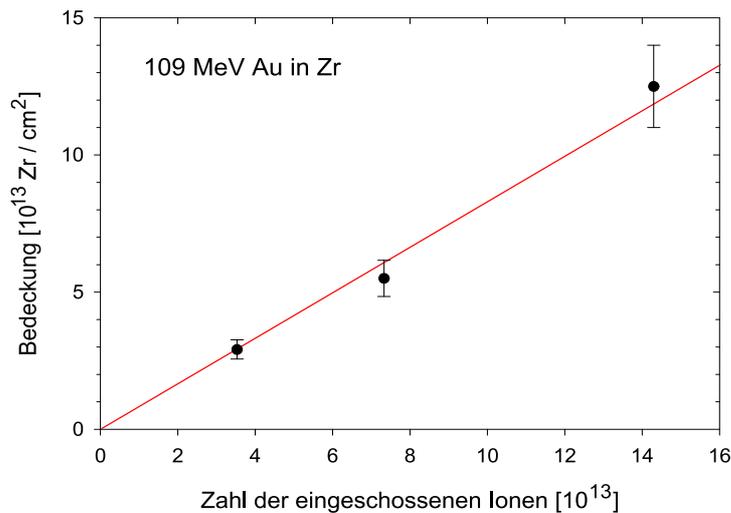


Abbildung 3.14: Kollektorbedeckung als Funktion der Bestrahlungsdosis.

- Die Zerstäubung aufgefangener Atome ist auch bei der RBS-Analyse möglich. Dosisabhängige Messungen mit bis zu 5-fach höheren RBS-Dosen ($150 - 200\mu\text{C}$ statt $30 - 40\mu\text{C}$) zeigten jedoch keinen Einfluß.
- Durch die niedrige Energie der C^+ -Ionen gibt es eine geringe Abweichung vom Rutherford-Streuquerschnitt (1-7% für Ti-Au), die bei der Auswertung der RBS-Messungen jedoch gemäß Ref. [109] berücksichtigt wurde.

Eine weitere Gruppe von Fehlern, welche die Ergebnisse beeinflussen können, sind meßtechnischer Natur:

- Die Fehler der Dosismessung während der Bestrahlung und der RBS-Analyse waren im allgemeinen ca. 5% bzw. 3%.
- Der statistische Fehler der RBS-Messung lag zwischen 1-5%. Bei Ti -Proben mit geringer Bedeckung (bei Winkelverteilungen), führte auch die Untergrundsubtraktion zu einem relativ großen Fehler von 10-30%.

- Aufgrund der hohen Energie und Ladung der Projektile beim Zerstäuben war der Ionenstrahl nur auf eine Fläche von ca. $4 \times 3\text{mm}^2$ fokussierbar. Dies führte zu einer räumlichen Verbreiterung der Winkelverteilung und damit zu einer Reduzierung der Konzentration auf dem Kollektor. Rechnungen haben jedoch gezeigt, daß dies maximal (Strahlfleck von $12 \times 3\text{mm}^2$, also die gesamte Targetbreite) eine Reduzierung der Konzentration um ca. 10% zur Folge hat.

Diese Unsicherheiten können in zwei Kategorien unterteilt werden: systematische Fehler, die alle Ergebnisse gleichermaßen beeinflussen, aber die relativen Verhältnisse nicht berühren, und echte Meßfehler der Einzelmessungen. Zur letzten Kategorie gehören die Dosisbestimmung und der statistische bzw. Untergrund-Fehler. Dieser relative Fehler kann insgesamt auf ca. 15% abgeschätzt werden und wurde in Reproduktionsmessungen überprüft.

3.7 Einfluß der Targetpräparation auf die Ausbeuten

Ein weiterer Effekt, der bisher nicht diskutiert wurde und die Ausbeuten erheblich beeinflussen kann, ist der Zustand der Targetoberfläche. Um den Einfluß der Rauigkeit und der Oxide zu studieren, wurden an polykristallinem *Zr* systematische Untersuchungen mit verschiedenen Targetpräparationen durchgeführt. Da es sich um gewalzte Proben handelte, war deren mittlere Rauigkeit mit 150-200nm relativ hoch. Die Experimente erfolgten mit 230MeV *Au*-Ionen, wobei folgende Targetbehandlungen verglichen wurden:

- *Unbehandelt*: Die Targets wurden lediglich mit Aceton entfettet.
- *Xe-gereinigt*: Hier erfolgte eine in-situ Reinigung der Oberflächen durch Zerstäubung mit 8keV *Xe*-Ionen.
- *Poliert*: Durch eine mechanische Politur mit Diamantpaste (Korngröße $1\mu\text{m}$ im letzten Politurschritt) wurde die mittlere Oberflächenrauigkeit der Targets auf ca. 15-20nm verringert (spiegelnd glatte Oberflächen).
- *Poliert und Xe-gereinigt*: Die polierten Targetoberflächen wurden unmittelbar vor dem Experiment in-situ mit 8keV *Xe*-Ionen gereinigt.

Die Ergebnisse aus Tabelle 3.5 zeigen eine starke Abweichung der Ausbeuten - um etwa eine Größenordnung - von unbehandelten im Vergleich zu polierten und gereinigten Targets. Die Ausbeuten der unbehandelten Proben schwankten stark, während sie bei

Behandlung	Unbehandelt	Xe-gereinigt	Poliert	Poliert und Xe-gereinigt
Mittlere Oberflächenrauigkeit [nm]	150-200	150-200	15-20	15-20
Differentielle Zerstäubungsausbeute $\frac{dY}{d\Omega}(90^\circ)$ [$\frac{Atome}{Ion \cdot sr}$]	6.71	3.55		0.93
	12.68	3.20	4.74	1.08
		2.41		1.01
				1.22
				1.29

Tabelle 3.5: Differentielle Zerstäubungsausbeuten nach verschiedenen Targetpräparationen. Die Oberflächenrauigkeit wurde mittels RKM bestimmt.

polierten und gereinigten Oberflächen relativ gut reproduzierbar waren. Bereits bei Weglassen eines Behandlungsschritts wurde die Reproduzierbarkeit verschlechtert und die Ausbeuten stiegen deutlich an. Bei den unpolierten Proben konnte die Oxidschicht möglicherweise aufgrund der Rauigkeit nicht vollständig entfernt werden, womit der Anstieg der Ausbeuten erklärt würde. Bei der polierten, aber ungereinigten Probe war die Ursache der höheren Ausbeute eindeutig auf die Oxidschicht zurückzuführen. *Ti* zeigte ein vergleichbares Verhalten, obwohl der Einfluß der Oxidschicht nicht ganz so stark war wie bei *Zr*.

Insgesamt verdeutlichen die Ergebnisse sehr eindrucksvoll, daß sowohl die Oberflächenrauigkeit als auch Oxide die Ausbeuten und die Reproduzierbarkeit stark beeinflussen. Um Zerstäubungsmessungen an Metallen durchzuführen, sind also möglichst glatte und oxid- bzw. adsorbatfreie Oberflächen eine Voraussetzung.

3.8 Reproduzierbarkeit der Zerstäubungsausbeuten

Für den Gesamtfehler der Zerstäubungsmessungen ist die Reproduzierbarkeit ein Kriterium, wodurch jedoch systematische Fehler nicht ausgeschlossen werden können. In Abb. 3.15 sind die differentiellen Ausbeuten aus verschiedenen Strahlzeiten für $230MeV$ *Au*-Ionen in *Zr*-, *Ti*- und *Au*-Targets dargestellt.

Au-Targets wurden in allen Experimenten als Referenzmaterial verwendet. Das hat folgende Gründe: die Bedeckung der *Au*-Targets mit *O* oder *C* lag auch ohne Reinigen typischerweise bei ca. $10^{11} \frac{Atomen}{cm^2}$ ($< 10^{-5} ML$), die Oberflächen waren mit 6-12nm Rauigkeit sehr glatt und wurden auch durch hohe Bestrahlungsfluenzen nicht rauher. Außerdem ist die RBS-Analyse für *Au* am empfindlichsten. Für die *Zr*-Messungen wur-

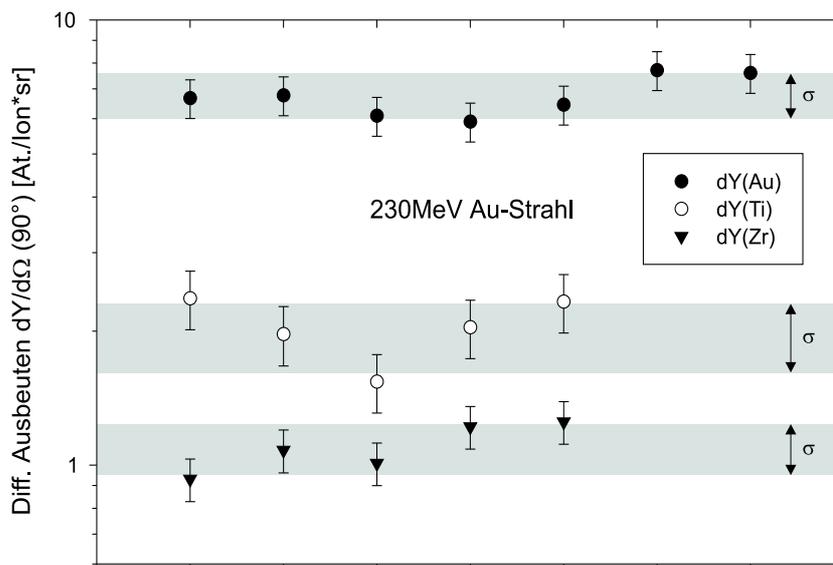


Abbildung 3.15: Differentielle Zerstäubungsausbeuten aus verschiedenen Experimenten für *Ti*-, *Zr*- und *Au*-Targets. Die gemessenen Ausbeuten lagen in allen drei Fällen innerhalb einer Standardabweichung σ .

den ausschließlich polierte *Zr*-Targets verwendet, während bei *Ti* sowohl polierte als auch aufgedampfte Targets zum Einsatz kamen. Sie wurden vor jeder Zerstäubungsmessung im UHV gereinigt.

Für alle drei Targets bewegten sich die gemessenen Ausbeuten innerhalb einer Standardabweichung. Diese war für *Au* mit 10% am geringsten und lag für *Zr* bzw. *Ti* mit 12% bzw. 15% etwas höher. Die stärkeren Schwankungen bei *Zr* rühren vermutlich von der etwas größeren Rauigkeit her und bei *Ti* von der Untergrundsubtraktion. Insgesamt ist die erreichte Reproduzierbarkeit für Zerstäubungsmessungen sehr gut.

Kapitel 4

Untersuchungen zur Modifikation der Targets durch die Bestrahlung und zum Einfluß der Oberflächenrauigkeit auf die Winkelverteilungen

Um die totalen Zerstäubungsausbeuten bestimmen zu können, waren einige Voruntersuchungen nötig. Es mußte geklärt werden, wie die Targets auf die Bestrahlung mit hochenergetischen Ionen reagieren. Veränderungen der Oberflächentopographie und der Kristallstruktur können insbesondere auf die Winkelverteilungen einen deutlichen Einfluß haben, wodurch die berechneten totalen Zerstäubungsausbeuten verfälscht werden könnten. Dazu werden im ersten Abschnitt dieses Kapitels die Veränderungen der Targets aufgrund der Bestrahlung vorgestellt und diskutiert. Da für die untersuchten Metalle (*Ti*, *Mn*, *Zr*, *Au*) bisher noch keine Winkelverteilungen bei so hohen Energien existierten, wurden sie für einige Fälle gemessen. Um einen Eindruck vom Verhalten eines Halbleiters bzw. Isolators zu bekommen, wurden auch für *Ge* bzw. $Y_3Fe_5O_{12}$ und *CsI* Ausbeuten bzw. Winkelverteilungen gemessen. Es zeigte sich ein Einfluß der Oberflächenrauigkeit auf die Form der Winkelverteilungen. Um dies genauer zu untersuchen, wurde ein Simulationsprogramm geschrieben, das die Winkelverteilung und andere relevante Eigenschaften (Einfallswinkelabhängigkeit, Redeposition, ...) in Abhängigkeit der Oberflächentopographie berechnen kann. Die Ergebnisse der Simulationen werden am Schluß des Kapitels vorgestellt, mit Experimenten verglichen und diskutiert.

4.1 Targetmodifikationen durch die Bestrahlung

Diese Untersuchungen erfolgten vor allem im Hinblick auf Veränderungen, welche die Ausbeuten beeinflussen könnten. Die Analyse der Oberflächen erfolgte mittels RKM- und REM-Untersuchungen (Raster-Elektronen-Mikroskop), während die Kristallstruktur durch Röntgendiffraktometrie (XRD) und in Einzelfällen mit TEM-Messungen (Transmissions-Elektronen-Mikroskop) charakterisiert wurde. Die Gliederung erfolgte entsprechend dem Verhalten der Targets bei hochenergetischer Bestrahlung. *Au*, *Zr* und *Ge* zeigten keine oder nur eine geringe Reaktion, während bei *Ti*, *Mn* und *YIG* zum Teil dramatische Veränderungen beobachtet wurden.

4.1.1 Modifikation von *Au*, *Zr* und *Ge*

Als *Au*-Targets wurden durchwegs auf *Si*-Wafer aufgedampfte Schichten von ca. $1.5\mu\text{m}$ Dicke verwendet, die mit einer mittleren Rauigkeit von $6 - 12\text{nm}$ spiegelnd glatt waren. TC-Rechnungen ergaben, daß Schichtdicken ab $0.5\mu\text{m}$ ausreichend sind, um eine korrekte Messung der totalen Ausbeuten zu ermöglichen. In größerer Tiefe ausgebildete Stoßkaskaden erreichen die Oberfläche in der Regel nicht mehr. Die Röntgenanalyse zeigte, daß es sich um polykristallines *Au* mit einer (111)-Vorzugsorientierung handelte. Weder die Kristallstruktur noch die Oberflächentopographie wurden durch die Bestrahlungen (Fluenzen bis zu $5 \cdot 10^{15} \frac{\text{Ionen}}{\text{cm}^2}$) meßbar beeinflusst.

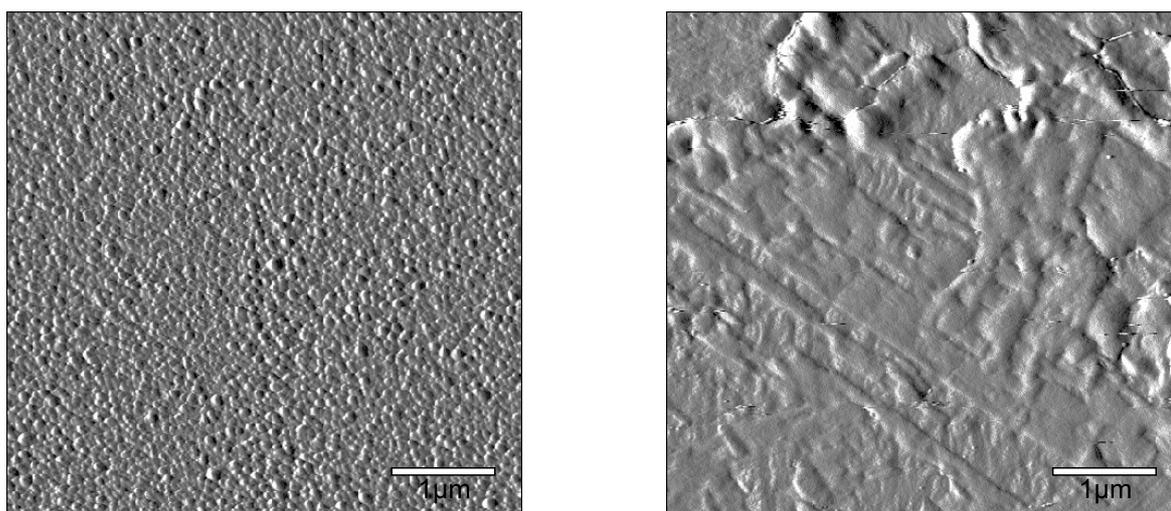


Abbildung 4.1: RKM-Aufnahmen von zwei *Au*-Targets vor der Bestrahlung. Die Aufnahmen deuten darauf hin, daß die Korngröße der Targets stark variiert (links ca. 50nm und rechts im μm -Bereich). Die mittlere Rauigkeit beider Proben liegt bei ca. 9nm .

RKM-Messungen zeigten jedoch, daß bei verschiedener Substrattemperatur hergestellte Targets auch deutlich verschiedene Oberflächentopographien aufwiesen (siehe Abb. 4.1). Diese deuten auf unterschiedliche Korngrößen im $50nm$ - bzw. μm -Bereich hin, obwohl für einen Nachweis dieser Annahme Röntgenanalysen erforderlich wären. In der Regel spielen solche Unterschiede bei der Zerstäubung keine Rolle. Aufgrund der Genauigkeit unserer Messungen war es jedoch möglich, für die kleineren Oberflächenstrukturen, um ca. 25% erhöhte Ausbeuten zu messen (z.B. bei $275MeV Au \rightarrow Au$ aus Tab. 5.5). Dies muß bei der Diskussion der Energieabhängigkeit der Ausbeuten später beachtet werden. Ein Einfluß der Kristallitgröße auf die Zerstäubung wurde von Aleksandrov et al. gezeigt (in Ref. [10]), der jedoch erst bei deutlich geringeren Korngrößen von $6 - 8nm$ auftrat. Dort waren die Au -Ausbeuten etwa um einen Faktor 400 gegenüber grobkristallinem Material erhöht, und die Form der Winkelverteilungen änderte sich von cos - zu stark vorwärts gerichteten exp -Verteilungen. Diese Effekte wurden darauf zurückgeführt, daß die kleinen Kristallite als ganzes zerstäuben, wenn sie von einem hochenergetischen Ion getroffen werden. Solche Veränderungen der Winkelverteilung wurden in dieser Arbeit nicht beobachtet und der Anstieg der Ausbeuten war diesbezüglich auch zu gering. Daß dennoch ein Unterschied gemessen wurde, deutet jedoch auf einen möglichen Einfluß der Korngröße hin.

Für Zr -Messungen wurde ein poliertes Blech von $0.5mm$ Dicke verwendet. Die Politur erfolgte mit Diamantpaste mit Korngrößen von $1\mu m$ im letzten Politurschritt und erreichte mit einer mittleren Rauigkeit von $15 - 20nm$ ebenfalls spiegelnd glatte Oberflächen. Die Röntgenmessungen zeigten polykristallines $\alpha - Zr$ ohne signifikante Vorzugsorientierung. Auch hier war kein Einfluß der Bestrahlungen auf Kristallstruktur und Topographie zu sehen. Erst nach mehreren Strahlzeiten (Gesamtfluenz von ca. $6 \cdot 10^{15} \frac{Ionen}{cm^2}$ hochenergetische und ca. $5 \cdot 10^{17} \frac{Xe}{cm^2} 8keV$ Xe -Ionen) war die Rauigkeit auf ca. $70nm$ gestiegen, und eine erneute Politur notwendig.

Als Ge -Targets kamen $0.3mm$ dicke, einkristalline, (100)-orientierte Ge -Wafer zum Einsatz. In Ref. [66] wurde der Einfluß hochenergetischer Bestrahlung auf Ge ausführlich untersucht. Es wurde festgestellt, daß die ersten μm nach wie vor einkristallin bleiben, obwohl es in mehreren μm Tiefe zur Bildung einer schwammartigen, porösen Struktur und zur Amorphisierung des Ge -Targets kommen kann. Damit ist auch bei Ge eine ausreichend dicke Schicht zur Messung der Zerstäubung vorhanden, die keiner wesentlichen Veränderung durch die Bestrahlung unterworfen ist. Die Oberflächentopographie zeigte eine geringe Reaktion auf die Bestrahlung, wobei die mittlere Rauigkeit von $0.5nm$ nach ca. $1.7 \cdot 10^{15} \frac{Ionen}{cm^2}$ nur unwesentlich auf ca. $2.5nm$ anstieg. Es ist bekannt, daß es bei einkristallinem Material durch fokussierende Stöße zur präferentiellen Emission von

Atomen in Richtung dicht gepackter Kristallachsen kommen kann [121, 122] (hier wäre das die [111]-Achse). Für (100)- Ge wurde jedoch eine kritische Temperatur von $330 \pm 5^\circ C$ gefunden [83], die erst überschritten werden muß, damit solche Effekte auftreten. Das war bei unseren Messungen nicht der Fall. Gitterführungseffekte (welche die Ausbeuten verringern könnten) traten ebenfalls nicht auf, da bei dem gegebenen Einfallswinkel nicht entlang einer Hauptachse eingeschossen wurde.

4.1.2 Modifikation von Ti

Für Ti -Messungen wurden sowohl auf Si -Wafer aufgedampfte als auch polierte Ti -Targets verwendet. Die aufgedampften Targets waren $1.5 - 2.5 \mu m$ dick und hatten mit $6 - 12 nm$ vergleichbare Rauigkeiten wie Au , während durch die Politur $15 - 20 nm$ erreicht wurde. Beide Targetsorten bestanden aus polykristallinem $\alpha - Ti$, wobei das aufgedampfte Target eine (100)-Vorzugsorientierung aufwies.

Ti reagierte auf die Bestrahlung mit hochenergetischen Ionen mit einer starken Aufrauung der Oberfläche, die mit der Fluenz zunahm (beim Reinigungsprozeß mit $8 keV Xe$ war keine Veränderung erkennbar). Bereits nach einer Fluenz von $2.5 \cdot 10^{14} \frac{Ionen}{cm^2}$ war die Rauigkeit bei ca. $120 nm$, nach $1.3 \cdot 10^{15} \frac{Ionen}{cm^2}$ bei $350 nm$ und nach $2.8 \cdot 10^{15} \frac{Ionen}{cm^2}$ bei einigen μm . Der letzte Wert wurde mit dem Lichtmikroskop abgeschätzt, da die Rauigkeit außerhalb des RKM-Meßbereichs lag. Da maximal eine Monolage vom Target abgetragen wird, sind so drastische Änderungen im $100 nm$ - oder gar μm -Bereich durch den Zerstäubungsprozeß nicht erklärbar. In Abb. 4.2 sind REM-Aufnahmen von unbestrahlten und bestrahlten Targets zu sehen. Obwohl es Unterschiede zwischen der aufgedampften Schicht und der Massivprobe gab, zeigte sich doch ein ähnliches Verhalten. Es bildeten sich wellenartige Muster senkrecht zur Strahlrichtung mit sehr großen Höhenunterschieden im μm -Bereich aus. Bei der aufgedampften Schicht war es trotz der großen Tiefenschärfe des REM nicht möglich, die Spitzen und Mulden gleichzeitig zu fokussieren. Im Gegensatz zur Schicht wies die Massivprobe auch eine Mikrostruktur auf, die jedoch in keinem so eindeutigen Zusammenhang zur Strahlrichtung stand.

Eine genaue Erklärung für dies Verhalten ist bisher nicht möglich. XRD-Messungen haben jedoch gezeigt, daß sich auch die Kristallstruktur verändert (siehe Abb. 4.3). Genauere Messungen der Orientierungsverteilung der Kristallite in Abb. 4.4 gaben Hinweise darauf, daß es im Strahlfleck zur massiven Umorientierung des kristallinen Materials in Strahlrichtung kommt. Bei der Messung der sogenannten Polfiguren wird der Beugungswinkel (2θ -Winkel des Detektors) für den zu untersuchenden Röntgenreflex (hier die (011)-Netzebenen) fest eingestellt. Durch Kippen und Drehen der Probe im Kippwinkelbereich $\chi = 0 - 88^\circ$ und bei allen Azimutwinkeln $\phi = 0 - 360^\circ$ wird nacheinander für in

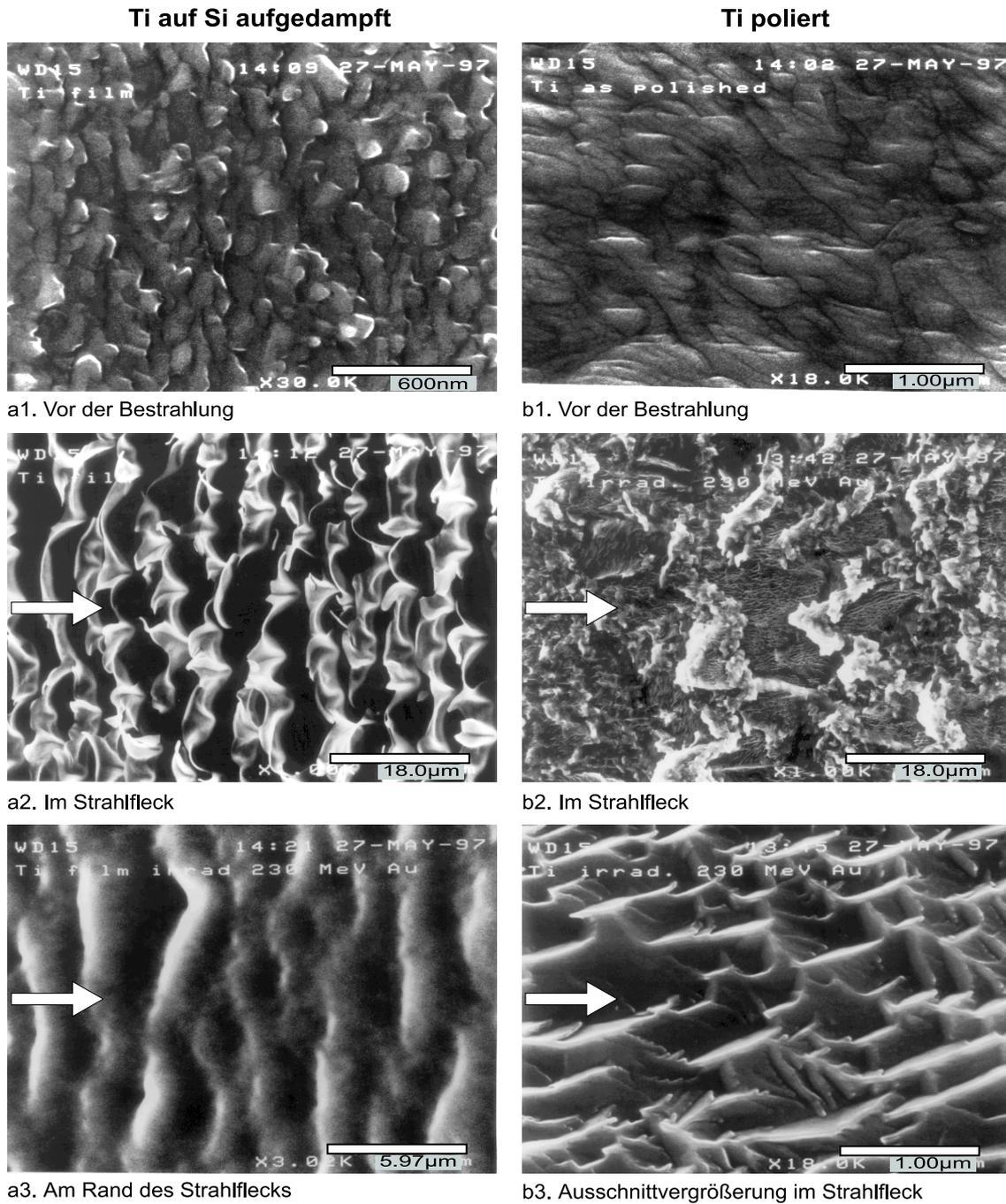


Abbildung 4.2: REM-Aufnahmen von aufgedampften und polierten *Ti*-Targets vor und nach der Bestrahlung. Der starke Kontrast der unbestrahlten Proben soll nicht darüber hinwegtäuschen, daß die Oberflächen mit Rauigkeiten zwischen 5 – 20nm spiegelnd glatt waren. In beiden Fällen ist die Ausbildung wellenartiger Strukturen senkrecht zur Strahlrichtung (durch Pfeile angedeutet) erkennbar, die bei der polierten Probe jedoch weniger klar ausgeprägt sind. Sie enthält im Gegensatz zur aufgedampften Schicht auch eine feine Mikrostruktur, die keinen so eindeutigen Zusammenhang mit der Strahlrichtung zeigt. Diese starken Veränderungen sind nicht durch den Zerstäubungsprozeß erklärbar.

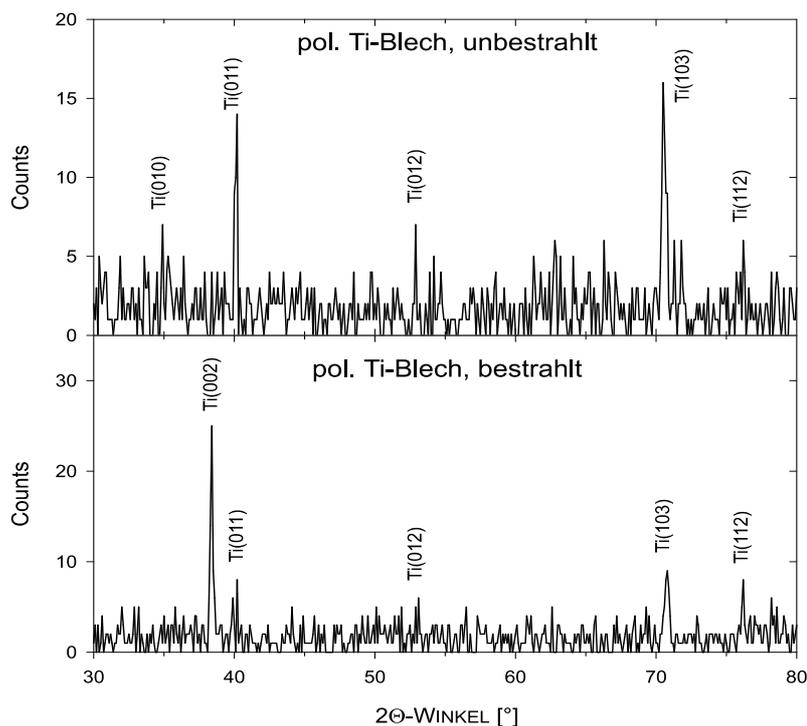


Abbildung 4.3: $\Theta - 2\Theta$ -Messungen einer polierten Ti -Probe vor und nach der Bestrahlung. Die Veränderung der Reflexintensitäten und vor allem das Auftreten des (002)-Reflexes deuten auf kristallographische Veränderungen durch die Bestrahlung hin.

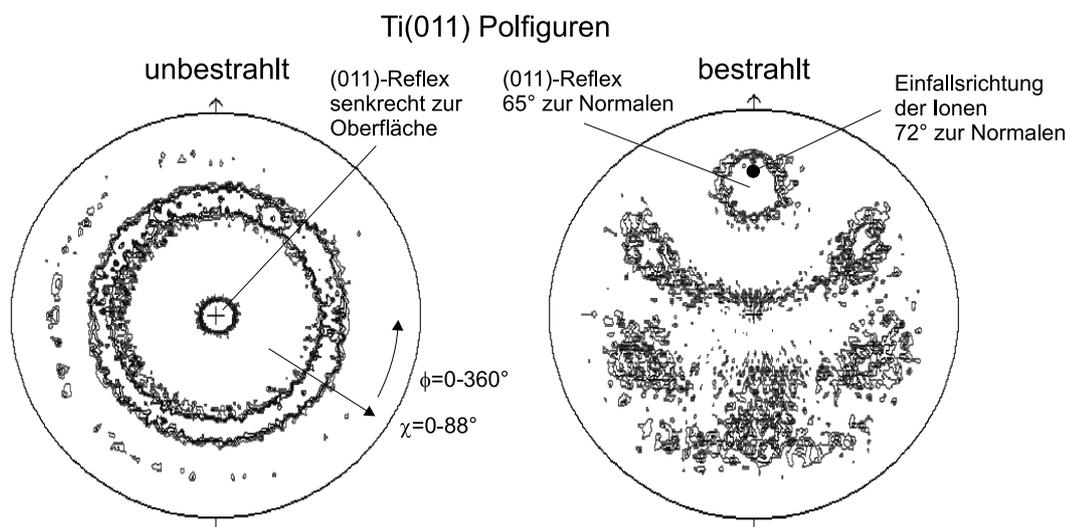


Abbildung 4.4: (011)-Polfiguren einer aufgedampften Ti -Probe vor und nach der Bestrahlung. Vor der Bestrahlung steht die [011]-Achse der meisten Kristallite senkrecht zur Targetnormalen mit einer gleichverteilten Verdrehung um diese Achse. Nach der Bestrahlung zeigt die [011]-Achse der meisten Kristallite annähernd in Strahlrichtung (65° zur Targetnormalen verkippt) und sie sind nicht mehr gleichmäßig um diese Achse verdreht, sondern scheinen sich teilweise zueinander auszurichten.

der Probe verkippte und verdrehte Kristallite die Beugungsbedingung erfüllt und ihre Reflexintensität mit einer konstanten Zeit pro Winkelbereich gemessen. Aus der winkelabhängigen Intensitätsverteilung kann anschließend auf die Orientierungsverteilung der Kristallite innerhalb der Probe geschlossen werden. Diese neuartigen, erstmals gezeigten starken Änderungen der Kristallstruktur unter hochenergetischer Bestrahlung stellen sicherlich ein interessantes Gebiet zur weiteren Erforschung dar.

Eine andere Möglichkeit die starke Aufrauung zu erklären, ist die Bildung der ω -Phase (Hochdruckphase) des Ti , die eine höhere Dichte hat und damit die starken Veränderungen verständlich machen würde. In Ref. [34, 37] wurde der $\alpha \rightarrow \omega$ -Phasenübergang bei Bestrahlung mit 2.2GeV U -Ionen bei 20K nachgewiesen. Obwohl die XRD-Messungen der vorliegenden Arbeit die ω -Phase nicht nachweisen konnten, wären TEM-Untersuchungen notwendig, um ihre Bildung tatsächlich ausschließen zu können.

Eine dritte Möglichkeit ist die Teilamorphisierung des Targetmaterials. Von Klaumünzer et al. [64, 71, 72] wurde gezeigt, daß amorphe Materialien bei Bestrahlung mit hochenergetischen Ionen unter schrägen Einfallswinkeln als Folge des elektronischen Energieverlustes wellenartige Muster senkrecht zur Strahlrichtung ausbilden, die bei senkrechtem Einfall wieder geglättet werden. Dieser Effekt leitet sich aus Überlegungen zum Verhalten einer viskosen Flüssigkeit unter Zug- und Schubspannungen ab und benötigt die freien Volumina amorpher Materialien für die Umlagerung der Atome. Als Ursache für die Kriecheigenschaften wird ein kurzzeitiges Aufschmelzen der amorphen Substanz entlang der Ionenspur gesehen, wodurch die Deformation als Folge der Scherdehnung beim anschließenden schnellen Abkühlen eingefroren wird. Um dies zu prüfen, wurden aufgerauhte Ti -Oberflächen nachträglich unter senkrechtem Einfallswinkel bestrahlt. Es zeigte sich jedoch keine Rückbildung der rauhen Strukturen, so daß eine Amorphisierung von Ti eher unwahrscheinlich ist.

Für die Zerstäubung ist in diesem Zusammenhang wichtig, daß es sich nach wie vor um polykristallines Material handelt und daß die Oberfläche stark aufraucht. Dies muß bei den Zerstäubungsmessungen berücksichtigt werden.

4.1.3 Modifikation von Mn

Als Mn -Targets wurden ca. 850nm dicke auf Si aufgedampfte Schichten verwendet, die wie die anderen aufgedampften Proben mit einer mittleren Rauigkeit von $6 - 12\text{nm}$ spiegelnd glatt waren und aus polykristallinem Mn bestanden. Da die Röntgenreflexe des α - und β - Mn teilweise fast identisch sind, kann nicht ausgeschlossen werden, daß beide Phasen vorlagen. Die Intensitätsverhältnisse der Reflexe lassen jedoch den Schluß zu, daß es sich um polykristallines $\alpha - Mn$ ohne Vorzugsorientierung handelte.

Mn wurde durch die Bestrahlung ähnlich stark aufgeraut wie *Ti*. Auch hier bildeten sich Wellenmuster senkrecht zur Strahlrichtung aus, die jedoch bedeutend regelmäßiger waren als bei *Ti*. In Abb. 4.5 sind REM-Aufnahmen einer bestrahlten Probe zu sehen.

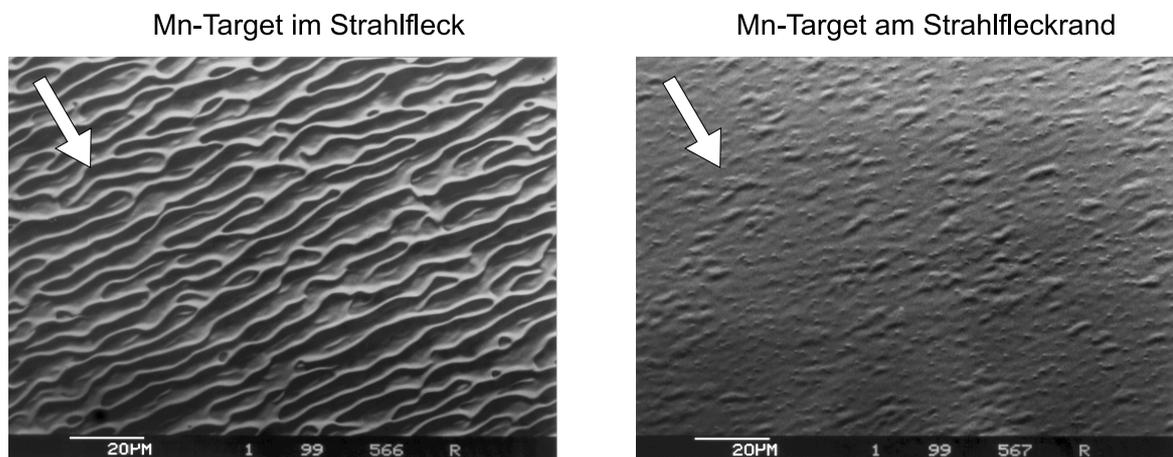


Abbildung 4.5: REM-Aufnahmen eines bestrahlten *Mn*-Targets. Die regelmäßige Wellenstruktur senkrecht zur Strahlrichtung (durch Pfeile angedeutet) ist gut zu erkennen ebenso wie der Beginn der Wellenbildung am Rand des Strahlflecks.

Interessanterweise wurden die aufgerauten Stellen durch eine nachfolgende Bestrahlung unter senkrechtem Einfallswinkel geglättet, so daß hier die Vermutung nahelag, daß zumindest eine Teilamorphisierung des Materials stattgefunden hatte und der Klau Münzer-effekt für die Aufrauung verantwortlich war. Da er, wie bereits erwähnt, bisher ausschließlich an amorphen Materialien beobachtet werden konnte, wurde eine TEM-Untersuchung der bestrahlten Bereiche durchgeführt, um dies zu prüfen.

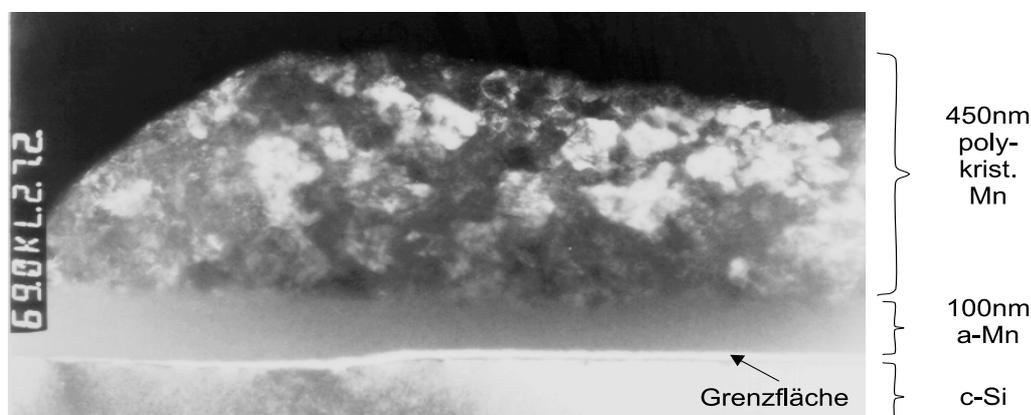


Abbildung 4.6: TEM-Dunkelfeldaufnahme eines bestrahlten *Mn*-Targets.

Das Ergebnis der TEM-Messung in Abb. 4.6 zeigt, daß der Oberflächenbereich nach wie vor polykristallin war, daß aber an der Grenzfläche zum *Si* eine ca. 100nm dicke Schicht amorphisiert wurde. Weitergehende Untersuchungen wären notwendig, hätten jedoch über den Rahmen dieser Arbeit hinausgeführt. Aber auch hier gilt: der für das Zerstäuben relevante Bereich bleibt polykristallin, und die Aufrauung der Oberfläche muß bei den Zerstäubungsmessungen berücksichtigt werden.

4.1.4 Modifikation von $Y_3Fe_5O_{12}$

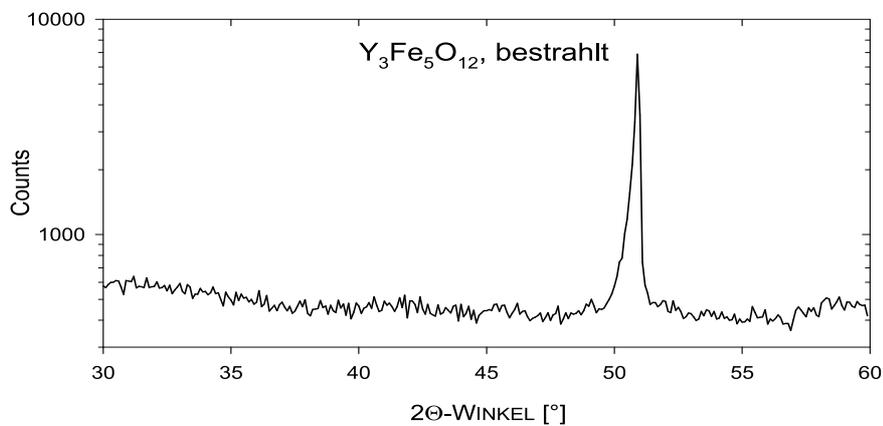


Abbildung 4.7: $\Theta - 2\Theta$ -Messung eines bestrahlten $Y_3Fe_5O_{12}$ -Targets. Der Reflex bei 50.9° konnte keinem $Y_3Fe_5O_{12}$ -Reflex zugeordnet werden.

Für die *YIG*-Messungen kamen einkristalline, 0.5mm dicke Targets zum Einsatz, die mit ca. 2nm mittlerer Rauigkeit ebenfalls spiegelnd glatt waren.

YIG zeigte die stärkste Reaktion auf die Bestrahlung. Bereits nach einer Fluenz von wenigen $10^{13} \frac{Ionen}{cm^2}$ trat eine sehr starke Aufrauung ein, die außerhalb des RKM-Meßbereichs lag. Die Kristallstruktur wurde durch die Bestrahlung völlig zerstört. Das Röntgenspektrum einer bestrahlten *YIG*-Probe in Abb. 4.7 zeigt keine *YIG*-Reflexe mehr (der Reflex bei 50.9° war nicht zuzuordnen). Diese starken Veränderungen während der Bestrahlung machen einen Vergleich der *YIG*-Ergebnisse mit existierenden Messungen problematisch, da nicht klar ist welchen Einfluß sie auf die Zerstäubung haben.

4.2 Messung von Winkelverteilungen

Für die Messung der Winkelverteilungen wurden halbkreisförmige Kollektorhalter in zwei Varianten verwendet, abhängig davon, ob die Messung in der UHV-Kammer (Abb. 4.8a) oder der ERD-Streukammer [5] (Abb. 4.8b) erfolgte. Da in letzterer lediglich ein Vakuum von ca. $5 \cdot 10^{-7} \text{ mbar}$ möglich ist, wurden hier ausschließlich nicht-oxidierende Targets, also *Au*, *YIG* und *CsI* untersucht. In der UHV-Kammer wurden Winkelverteilungen von *Au*, *Ti*, *Zr* und *YIG* gemessen.

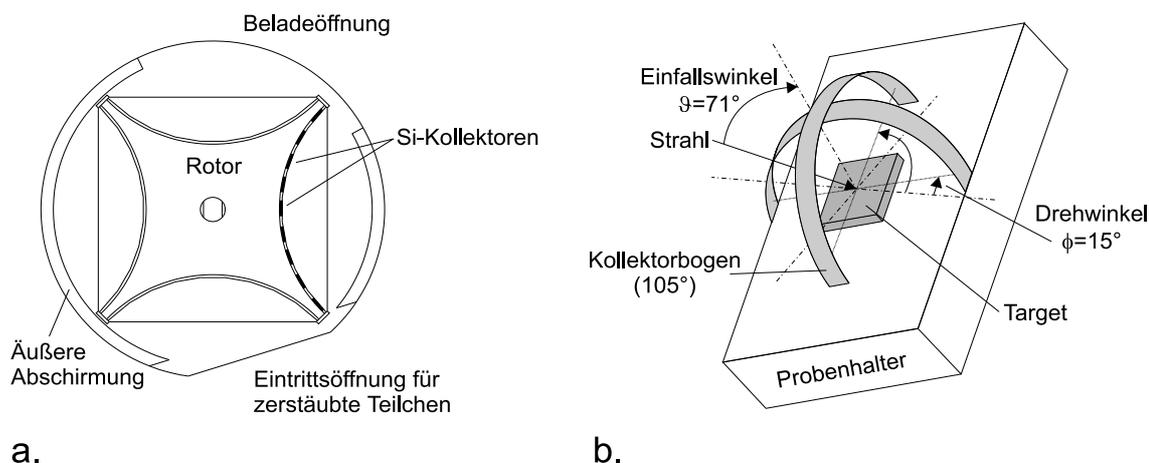


Abbildung 4.8: Geometrien für die Messung von Winkelverteilungen: **a.** Kollektorradsystem für die UHV-Kammer mit *Si*-Auffängern ($\pm 40^\circ$ zur Targetnormalen) in der Strahlebene. **b.** Kollektorhalter für die ERD-Streukammer [5] mit *Al*-Kollektorfolien ($\pm 80^\circ$ zur Targetnormalen) unter 15° und 105° Drehwinkel zur Strahlebene.

Die Geometrie des Kollektorrades in der UHV-Kammer erlaubte lediglich Messungen in der Strahlebene mit einem Winkelbereich von $\pm 40^\circ$. Pro Verteilung gab es je 9 Positionen in 10° -Schritten. Es wurden 230 MeV-Au^{16+} -Ionen bei einem Einfallswinkel von 72° zur Targetnormalen verwendet.

In der ERD-Streukammer kamen *Al*-Folien der Reinheit 99.999% als Kollektormaterial zum Einsatz. Es wurde ein Winkelbereich von $\pm 80^\circ$ abgedeckt und die Verteilungen in zwei zueinander senkrechten Ebenen gemessen. Damit der Ionenstrahl den Kollektorbogen nicht trifft, wurde der Probenhalter um $\phi = 15^\circ$ zur Strahlebene verdreht. Der Abstand zum Target betrug 19 mm . Es wurden $210 \text{ MeV-Iod}^{15+}$ -Ionen bei einem Einfallswinkel von 71° zur Targetnormalen verwendet.

In beiden Fällen betrug die Winkelgenauigkeit ca. 5° . Bei der UHV-Kammer sind die Ursachen dafür auf mechanische Unzulänglichkeiten der Kollektorradsystem-Drehdurchführung zurückzuführen sowie auf die Tatsache, daß die Auffänger im Rad nicht fest positionierbar sind (sie würden beim Heizen oder Montieren zerbrechen). In der ERD-Streukammer

könnte ein größerer Kollektorbogen nicht eingeschleust werden. Damit entspricht ein Winkel von 10° einem Abstand von 3.3mm auf der Kollektorfolie. Zusammen mit einem RBS-Strahlfleckdurchmesser von ca. 1.5mm bei der späteren Analyse ergibt sich also auch hier eine Winkelgenauigkeit von 5° .

Bei der *Al*-Kollektoranalyse zeigte sich, wie wesentlich die perfekte Kristallinität des *Si* für eine untergrundfreie Messung war. Bei den *Al*-Folien war es unmöglich den *Fe*-Anteil von *YIG* zu messen, wohingegen dies bei *Si*-Auffängern ohne Schwierigkeiten gelang. Die schwereren Elemente *Y* – *Au* waren hingegen gut nachweisbar.

4.2.1 Winkelverteilungen mit *Au*-Ionen im UHV

Für alle mit 230MeV *Au*-Ionen durchgeführten Messungen wurden polierte oder aufgedampfte Targets verwendet, welche im UHV mit einem 8keV *Xe*-Ionenstrahl gereinigt wurden. In Abb. 4.9 sind Beispiele für die gemessenen Verteilungen zu sehen und in Tab. 4.1 die Ergebnisse. Wiederholungsmessungen an *Au*-Targets zeigten eine gute Reproduzierbarkeit und Fluenzunabhängigkeit der Winkelverteilung.

Abb.	Target	Herst.	Fluenz [$\frac{\text{Au}}{\text{cm}^2}$]	Verteilung	Exponent
4.9a.	<i>Au</i>	aufged.	$1.13 \cdot 10^{15}$	$\cos^n(\theta)$	3.6 ± 0.2
4.9b.	<i>Au</i>	aufged.	$4.51 \cdot 10^{14}$	$\cos^n(\theta)$	3.3 ± 0.3
4.9c.	<i>Ti</i>	aufged.	$3.75 \cdot 10^{14}$	$\cos^n(\theta)$	2.5 ± 0.5
4.9d.	<i>Zr</i>	pol.	$1.23 \cdot 10^{15}$	$\cos^n(\theta)$	3.2 ± 0.4
4.9e.	<i>Fe</i> (<i>YIG</i>)	pol.	$3.34 \cdot 10^{15}$	$\exp(-n \theta)$	1.9 ± 0.2
4.9f.	<i>Y</i> (<i>YIG</i>)	pol.	$3.34 \cdot 10^{15}$	$\exp(-n \theta)$	5.5 ± 0.5

Tabelle 4.1: Daten der Winkelverteilungen von *Au*, *Ti*, *Zr* und *YIG*, gemessen mit 230MeV *Au*-Ionen im UHV. Die Verteilungen sind symmetrisch zur Targetnormalen und für *Au* gut reproduzierbar.

Die Verteilungen sind im Rahmen der Winkelgenauigkeit symmetrisch zur Targetnormalen. Die gemessenen Metalle zeigen ein $\cos^n(\theta)$ -Verhalten mit Exponenten von $2.5 - 3.6$, während die von *YIG* gemessenen Verteilungen sich davon unterscheiden und durch $e^{-n|\theta|}$ beschreibbar sind. Dabei zeigen die *Fe*- und *Y*-Komponenten mit $n = 1.9$ bzw. $n = 5.5$ ein sehr unterschiedliches Verhalten.

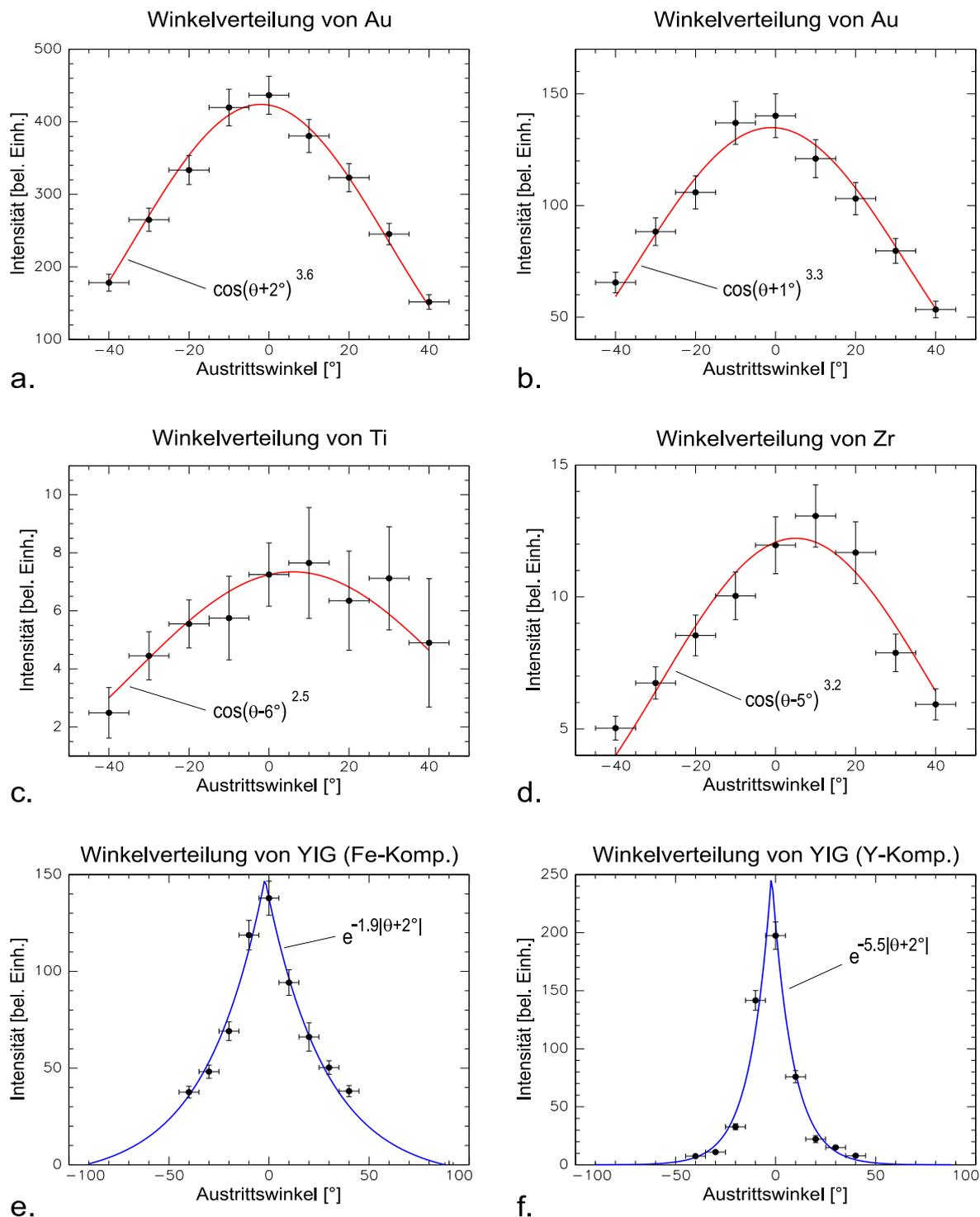


Abbildung 4.9: Winkelverteilungen von Au -, Ti -, Zr - und YIG -Targets, gemessen mit $230MeV$ Au -Ionen bei einem Einfallswinkel von 72° . Die Winkelverteilungen der Metalle sind $\cos^n(\theta)$ -Verteilungen mit Exponenten von ca. 3. YIG zeigt einen starken Unterschied zwischen Fe und Y , wobei die Verteilungen einem $\exp(-n|\theta|)$ -Gesetz folgen. Die Verschiebung der Symmetrieachse liegt innerhalb der Winkelgenauigkeit.

4.2.2 Winkelverteilungen mit I -Ionen im HV

Bei den Messungen mit 210MeV Iod -Ionen konnte die Rotationssymmetrie der Winkelverteilungen und damit die Anwendbarkeit der Ausbeutenberechnung, durch die zueinander senkrecht angeordneten Kollektorbögen (siehe Abb. 4.8b), geprüft werden. Die gemessenen Winkelverteilungen sind in Abb. 4.10 und die experimentellen Bedingungen und Ergebnisse in Tab. 4.2 zu sehen.

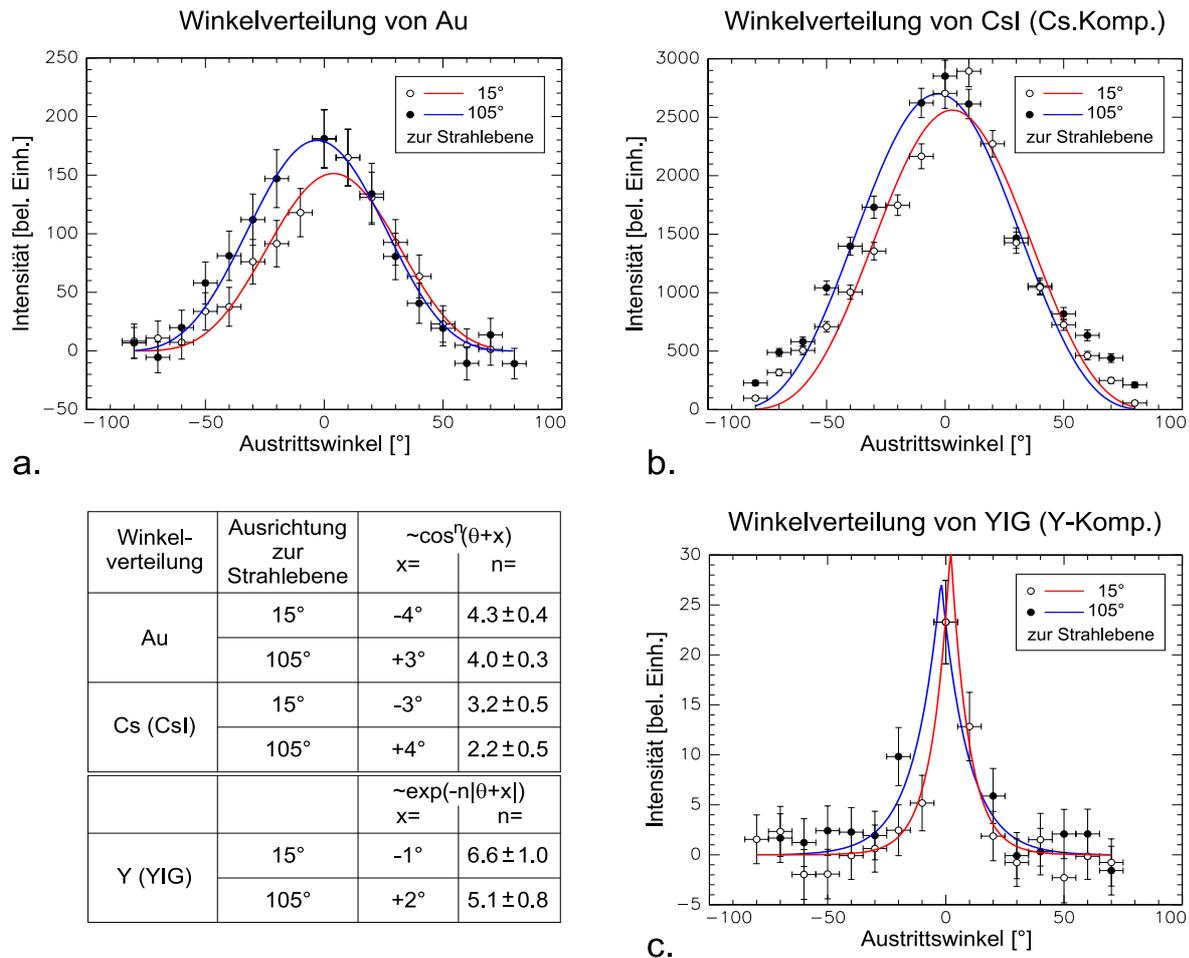


Abbildung 4.10: Winkelverteilungen von Au -, CsI - und YIG -Targets, gemessen mit 210MeV Iod -Ionen bei einem Einfallswinkel von 71° . Die Graphik zeigt, daß die Winkelverteilungen symmetrisch zur Oberflächennormalen sind. Die Verschiebung der Symmetrieachse liegt auch hier innerhalb der Winkelgenauigkeit.

Die Winkelverteilungen sind innerhalb des Meßfehlers rotationssymmetrisch zur Targetnormalen und folgen für Au und CsI einem $\cos^n(\theta)$ -Gesetz mit $n = 4.1$ bzw. 2.7 . Die Y -Komponente von YIG ist auch hier durch $e^{-n|\theta|}$ mit $n = 5.9$ beschreibbar. Die Verschiebung der Verteilungen zueinander stammt von geometrischen Ungenauigkeiten

der Kollektormontage. Im Rahmen der Meßgenauigkeit ist die Übereinstimmung für Au und YIG mit den im UHV, mit $230MeV$ Au -Ionen gemessenen Verteilungen gut.

Abb.	Target	Herst.	Ausricht. z. Strahleb.	Fluenz [$\frac{Iod}{cm^2}$]	Verteilung	Exponent
4.10a.	Au	aufged.	15°	$6.65 \cdot 10^{14}$	$\cos^n(\theta)$	4.3 ± 0.4
4.10a.	Au	aufged.	105°	$6.65 \cdot 10^{14}$	$\cos^n(\theta)$	4.0 ± 0.3
4.10b.	CsI	pol.	15°	$6.50 \cdot 10^{13}$	$\cos^n(\theta)$	3.2 ± 0.5
4.10b.	CsI	pol.	105°	$6.50 \cdot 10^{13}$	$\cos^n(\theta)$	2.2 ± 0.5
4.10c.	$Y(YIG)$	pol.	15°	$1.13 \cdot 10^{15}$	$\exp(-n \theta)$	6.6 ± 1.0
4.10c.	$Y(YIG)$	pol.	105°	$1.13 \cdot 10^{15}$	$\exp(-n \theta)$	5.1 ± 0.8

Tabelle 4.2: Daten der Winkelverteilungen von Au , YIG und CsI , gemessen mit $210MeV$ Iod -Ionen im HV. Die Winkelverteilungen von Au bzw. CsI sind durch $\cos^n(\theta)$ -Funktionen und die Y -Komponente von YIG wieder durch $e^{-n|\theta|}$ charakterisiert.

4.2.3 Winkelverteilungen rauher Ti -Oberflächen

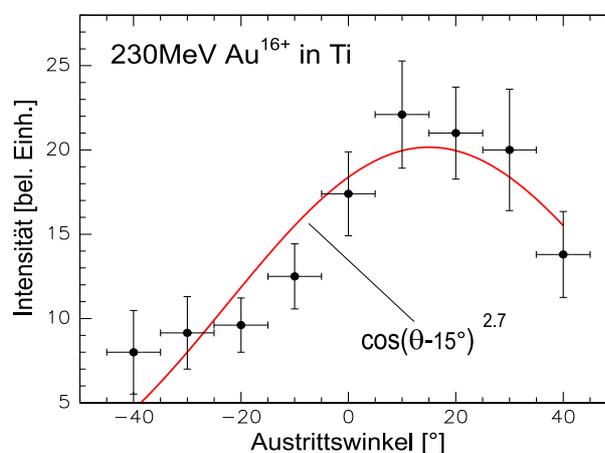


Abbildung 4.11: Winkelverteilung eines sehr rauhen Ti -Targets, gemessen mit $230MeV$ Au -Ionen bei einem Einfallswinkel von 72° . Die ursprünglich glatt polierte Ti -Oberfläche hatte nach der Bestrahlung mit $2.8 \cdot 10^{15} \frac{Au}{cm^2}$ eine mittlere Rauigkeit von mehreren μm . Die Winkelverteilung ist nicht mehr symmetrisch zur Oberflächennormalen.

Es wurde bereits diskutiert, daß Ti , Mn und YIG durch die Bestrahlung mit hochenergetischen Schwerionen teilweise dramatische Veränderungen erfuhren. In diesem Abschnitt wird der Einfluß der Rauigkeit auf die Winkelverteilung am Beispiel einer Ti -Probe gezeigt. Die polierte Ti -Oberfläche hatte eine mittlere Rauigkeit von $15-20nm$ und wurde

vor der Zerstäubungsmessung in-situ im UHV gereinigt. Anschließend wurde die Winkelverteilung mit einem $230\text{MeV } Au^{16+}$ -Ionenstrahl und einer Fluenz von $2.8 \cdot 10^{15} \frac{Au}{cm^2}$ gemessen, also nahezu einer Größenordnung mehr als bei Abb. 4.9c. Dadurch erhöhte sich die mittlere Rauigkeit des Ti nach der Bestrahlung - um mehr als eine Größenordnung - auf mehrere μm . Die zugehörige Winkelverteilung ist in Abb. 4.11 zu sehen.

Es ist gut zu erkennen, daß die Winkelverteilung der rauhen Ti -Oberfläche nicht mehr symmetrisch zur Targetnormalen ist und weder durch eine $\cos^n(\theta)$ - noch durch eine $\exp(-n|\theta|)$ -Verteilung korrekt beschrieben werden kann. Da sich die Targetoberfläche während der Bestrahlung dynamisch verändert, ist die gemessene Verteilung eine Überlagerung von verschiedenen Winkelverteilungen unterschiedlich rauher Oberflächen. Weil jedoch bereits nach Fluenzen von einigen $10^{14} \frac{Au}{cm^2}$ eine Rauigkeit von ca. $200nm$ erreicht wird, entspricht die Verteilung vor allem der einer rauhen Oberfläche. Dies Beispiel zeigt, daß die Oberflächentopographie einen starken Einfluß auf die Winkelverteilungen haben kann. Daher ist bei Zerstäubungsmessungen an derartigen Materialien eine hohe Fluenz unbedingt zu vermeiden.

4.3 Einfallswinkelabhängigkeit von Au

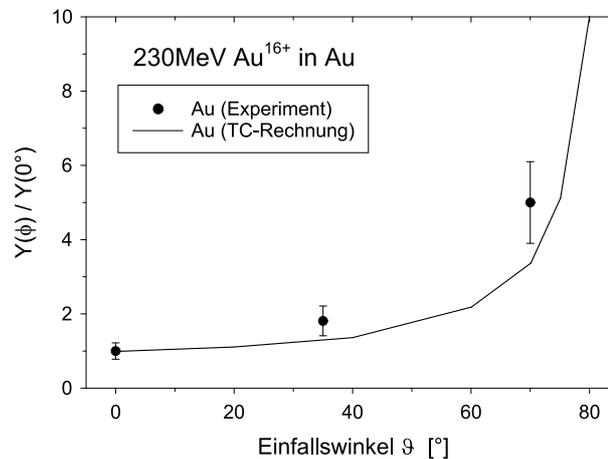


Abbildung 4.12: Einfallswinkelabhängigkeit von Au -Targets, gemessen in der ERD-Streukammer mit $230\text{MeV } Au$ -Ionen. Zum Vergleich mit der TC-Rechnung wurden die Ergebnisse jeweils auf die Ausbeute bei 0° Einfallswinkel normiert.

Zum Vergleich der gemessenen Ausbeuten aus dieser Arbeit mit anderen Messungen bei senkrechtem Einfall ist es wichtig, die Einfallswinkelabhängigkeit zu kennen. Die Geometrie der UHV-Anlage erlaubte lediglich einen Einfallswinkel von 72° zur Targetnormalen, wodurch Einfallswinkelabhängigkeiten dort nicht gemessen werden konnten.

In der ERD-Streukammer, die einen variablen Einfallswinkel erlaubt, ist das Vakuum jedoch nicht gut genug, um unedle, leicht oxidierende Materialien zu untersuchen. Somit konnte die Einfallswinkelabhängigkeit nur für *Au*-Targets gemessen werden.

In Abb. 4.12 ist sowohl die gemessene als auch die mit TC berechnete Einfallswinkelabhängigkeit von *Au* dargestellt. Der Vergleich zeigt eine etwas stärkere Abhängigkeit für die gemessenen Ausbeuten, die einem $\cos^{-1.5}(\vartheta)$ -Gesetz folgen, im Gegensatz zu $\cos^{-1.2}(\vartheta)$ aus der Simulation. Damit liegen beide sowohl für die Kaskaden- [13] als auch für die elektronische Zerstäubung [10] im Bereich von Literaturwerten ($1/\cos^f(\vartheta)$ mit $1 \leq f \leq 2$). ϑ bezeichnet den Einfallswinkel der Ionen zur Targetnormalen. Im Rahmen der Fehler von Experiment und Rechnung ist die Übereinstimmung obiger Werte jedoch gut, so daß für die anderen Targets die berechneten Einfallswinkelabhängigkeiten verwendet werden können.

4.4 Computersimulation von Winkelverteilungen an rauhen Oberflächen

Es wurde gezeigt, daß rauhe Oberflächen einen sehr starken Einfluß auf die Winkelverteilungen haben können. Da sich Ausbeuten und Einfallswinkelabhängigkeit ebenfalls von denen glatter Oberflächen unterscheiden, wurde von Küstner [75] ein Verfahren entwickelt, um den Einfluß der Rauigkeit zu berücksichtigen. Dabei wurde die Struktur rauher Oberflächen hinsichtlich der Häufigkeitsverteilung lokaler Einfallswinkel (*Einfallswinkelverteilung*) und der Redeponierungsfraction analysiert und die mit TRIM.SP berechneten Ausbeuten glatter Oberflächen gewichtet. Damit wurde für die Einfallswinkelabhängigkeit rauher Oberflächen eine gute Übereinstimmung mit Experimenten erzielt ($2.0\text{keV } D^+$ in pyrolytischem Graphit). Das Verfahren hat jedoch den Nachteil, daß es keine Berechnung der Winkelverteilung ermöglicht. Es vernachlässigt auch die Tatsache, daß hochenergetische Ionen bei flachem Einfallswinkel Teile der Oberflächenstruktur durchdringen können, wodurch es auch zur Zerstäubung in Transmission kommt. Um den Einfluß der Rauigkeit diesbezüglich besser zu verstehen, wurde im Rahmen dieser Arbeit ein Simulationsprogramm entwickelt, das Winkelverteilungen beim Zerstäuben beliebiger Oberflächenstrukturen berechnen kann. Im folgenden werden Aufbau und Funktionsweise des Programms beschrieben. Die Simulationsergebnisse werden anschließend mit den gemessenen Winkelverteilungen und mit Ergebnissen aus Ref. [75] verglichen.

4.4.1 Beschreibung des Simulationsprogramms

Für eine möglichst korrekte Berechnung der Ausbeuten und Winkelverteilungen rauher Oberflächen sollten reale Oberflächenstrukturen in Monte-Carlo-Codes, z.B. SRIM96 oder TC, implementiert werden. Aus Gründen der Rechenzeit ist dies jedoch nicht praktikabel und wie gleich gezeigt wird auch nicht in jedem Fall notwendig.

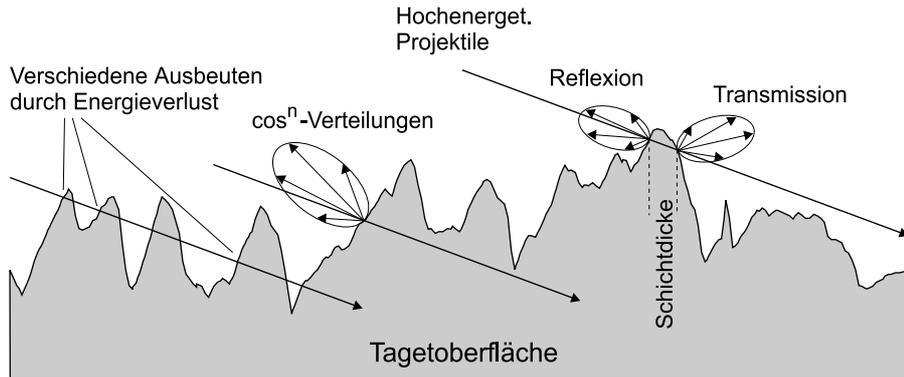


Abbildung 4.13: Szenario der Bestrahlung rauher Oberflächen.

Da das Programm den Einfluß rauher Oberflächen ohne Berechnung der Stoßkaskaden simulieren soll, benötigt es eine Reihe von Daten über Eigenschaften zerstäubter Atome von idealen Oberflächen. Dazu zählen die Winkelverteilung, die totalen Ausbeuten und deren Einfallswinkelabhängigkeit. Außerdem müssen Eigenschaften berücksichtigt werden, die sich speziell aus der Bestrahlung rauher Oberflächen ergeben. So kann ein hochenergetisches Ion die Oberflächenstruktur mehrfach durchdringen und an jedem Durchstoßpunkt Targetatome zerstäuben. Es kann Unterschiede bei der Zerstäubung in Reflexion bzw. Transmission geben, und es kann zur Abschattung und Redeposition zerstäubter Teilchen kommen. Vor allem unterscheidet sich der lokale Einfallswinkel im allgemeinen vom nominalen Einfallswinkel. Die durchlaufenen Oberflächenbereiche führen zu einem Energieverlust des Ions, wodurch in unserem Energiebereich eine Erhöhung des nuklearen Bremsquerschnitts S_n (siehe Abb. 1.1) und der Ausbeuten für die nachfolgenden Durchstoßpunkte erfolgt. Die Ausbildung der Stoßkaskaden kann von der gerade durchlaufenen Schichtdicke begrenzt werden und dadurch die Ausbeuten vermindern. Ein Szenario dieser Vorgänge ist in Abb. 4.13 zu sehen. Ausgehend von diesen Überlegungen wurden folgende Annahmen dem Programm zugrundegelegt:

- Es wird davon ausgegangen, daß die lokalen Winkelverteilungen rotationssymmetrisch zur lokalen Targetnormalen sind. Sie werden durch \cos^n -Funktionen berechnet, wobei der Exponent vorgegeben werden muß. Bei niederenergetischen

Ionen ($2keV D^+ \rightarrow C$ aus Ref. [75]) stellt diese Annahme eine gewisse Näherung dar. Da die Projektile nur wenig in das Target eindringen ($20-30nm$), befinden sich die ausgelösten Kaskaden in Oberflächennähe und es sind nur wenig Stöße nötig, um Atome aus dem Target zu streuen. Der Vorwärtsimpuls der Projektile bleibt teilweise erhalten und die Winkelverteilungen sind bei schrägem Einfall in Vorwärtsrichtung geneigt [15]. Die Rechnungen werden zeigen, daß dennoch realistische Ergebnisse erzielt werden können. Die Richtungsinformation der Projektile geht bei höheren Energien ($> 100keV$) verloren, da die meisten Stoßkaskaden ins Targetinnere verlagert werden und sehr viel mehr Stöße nötig sind, um ein Atom zu zerstäuben. Die Winkelverteilungen sind daher im Energiebereich unserer Experimente rotationssymmetrisch zur Targetnormalen und obige Annahme ist erfüllt.

Weitere Eigenschaften, z.B. Schichtdickenabhängigkeit und Transmissionszerstäubung, sind bei niederenergetischen Ionen aufgrund der geringen Eindringtiefe vernachlässigbar und werden nur für hochenergetische Ionen berücksichtigt.

- Bei einem flachen Einfallswinkel kann ein hochenergetisches Ion, je nach Oberflächenstruktur, mehrere $100nm$ Oberflächenmaterial durchdringen. Um den dabei erlittenen Energieverlust zu berücksichtigen, wurde aus SRIM96-Rechnungen die Projektilenergie in Abhängigkeit von der transmittierten Materialdicke berechnet. Für das erste Drittel der Ionenreichweite (je nach Material $3-5\mu m$ für $230MeV Au$ -Ionen) ergab sich daraus in erster Näherung mit zunehmender Dicke transmittierten Materials ein linearer Anstieg von S_n und damit auch der nuklearen Ausbeuten. Für Ti bzw. Zr kann die relative Änderung der Ausbeuten pro durchlaufener Weglänge durch $Y(dx)/Y(0nm) = 1 + 0.00013 \frac{1}{nm} \cdot dx$ und für Gold durch $Y(dx)/Y(0nm) = 1 + 0.00025 \frac{1}{nm} \cdot dx$ beschrieben werden.
- TC-Rechnungen haben gezeigt, daß der Einfluß von Einfallswinkel und Schichtdicke nicht unabhängig voneinander ist. Im Programm wurde daher eine Tabelle verwendet, welche die Einfallswinkel- und Schichtdickenabhängigkeit über den gesamten relevanten Bereich enthält: von $0-89^\circ$ und $0-5\mu m$. Um eine repräsentative, materialunabhängige Tabelle zu erhalten, wurden alle Stützpunkte für Ti , Zr und Au berechnet, auf die Ausbeuten $Y_i(0^\circ, 5\mu m)$ normiert und daraus die Mittelwerte gebildet. Die Abweichung zwischen den verschiedenen Targets lag typischerweise unter 10% .
- Mit TRIM.SP wurden einige exemplarische Rechnungen für verschiedene Einfallswinkel durchgeführt ($230MeV Au \rightarrow Au$), um mögliche Unterschiede zwischen Transmissions- und Reflexionszerstäubung zu untersuchen. Die Ergebnisse zeig-

ten, daß die Winkelverteilungen, unabhängig vom Einfallswinkel, in beiden Fällen gleich und die totalen Ausbeuten in Transmission ca. 5% höher waren.

- Eine mögliche Zerstäubung durch redeponierte Atome wurde ebenso vernachlässigt wie ihre Reflexion.

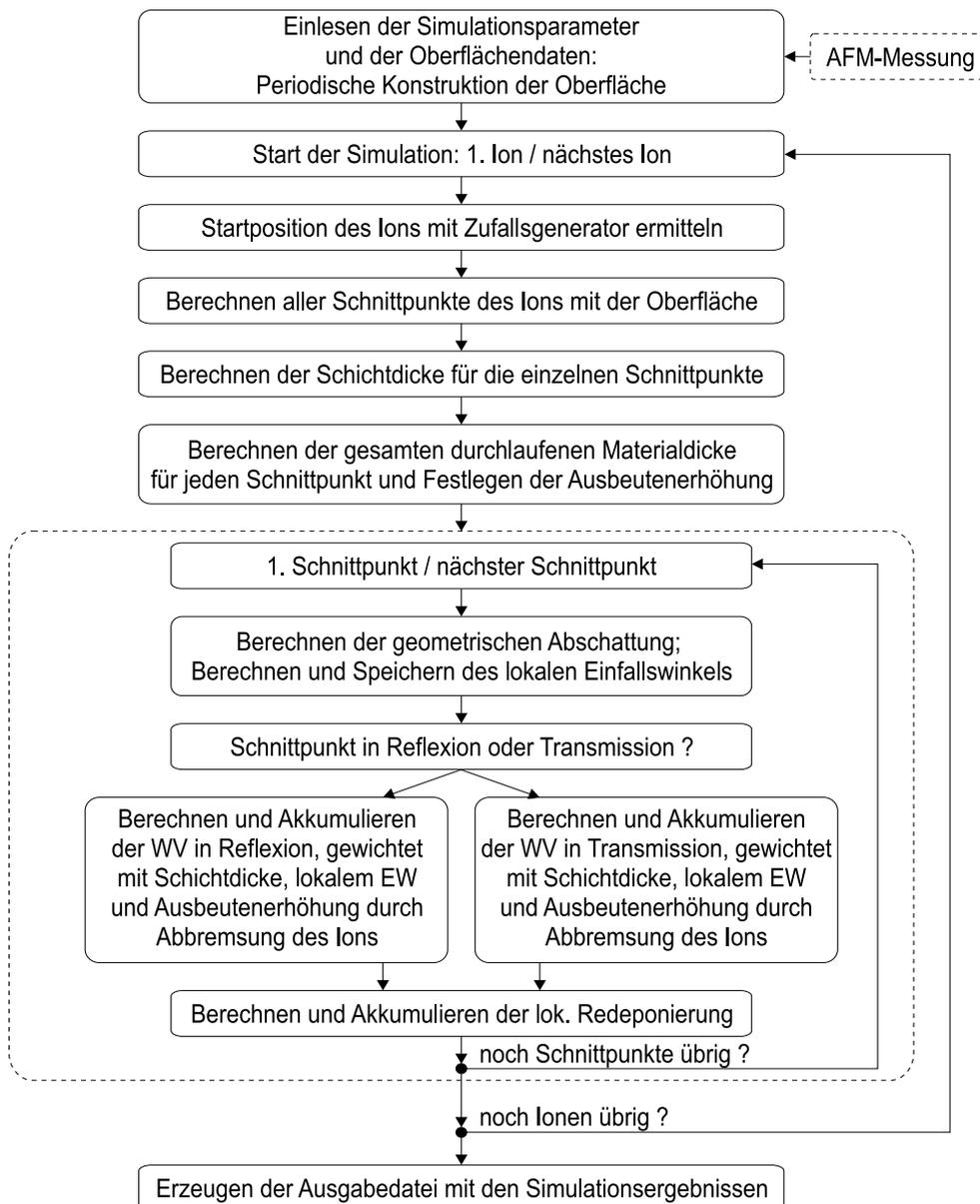


Abbildung 4.14: Flußdiagramm des Simulationsprogramms zur Berechnung von Winkelverteilungen rauher Oberflächen.

In Abb. 4.14 ist der wesentliche Programmablauf anhand des Flußdiagramms zu sehen. Zu Beginn werden Simulationsparameter wie Einfallswinkel, Ionenzahl, \cos -Exponent,

Ausbeute in Reflexion bzw. Transmission (für 0° Einfallswinkel) und eine Startzahl für den Zufallsgenerator eingelesen. Dann folgen Daten, welche das Oberflächenprofil durch eine Reihe von Stützpunkten beschreiben. Zwischen den Stützpunkten wird die Oberfläche linear interpoliert. Da bei einem schrägen Einfallswinkel Ionen den definierten Oberflächenbereich verlassen können, wird das Profil periodisch fortgesetzt. Um dabei Unstetigkeiten zu vermeiden, müssen die Oberflächendaten periodisch sein, was bei Verwendung eines repräsentativen Ausschnitts eine gute Näherung darstellt.

Die Simulation beginnt mit der Festlegung der Startposition des Ions durch den Zufallsgenerator. Nach Berechnung aller Schnittpunkte mit der Oberfläche werden die zugehörigen Schichtdicken ermittelt. Anschließend folgt die Berechnung der insgesamt durchlaufenen Materialdicke und der damit verbundenen Ausbeutenerhöhung für jeden Schnittpunkt.

Das Unterprogramm zur Berechnung der lokalen Winkelverteilungen analysiert sequenziell alle Schnittpunkte des Ions hinsichtlich Abschattung und lokalem Einfallswinkel. Dieser wird in der Einfallswinkelverteilung akkumuliert. Je nach Art des Schnittpunktes wird der offene Bereich der Winkelverteilung in Reflexion oder Transmission, unter Berücksichtigung der erwähnten Parameter, berechnet und in der globalen Verteilung akkumuliert. Der Abstand zum Auffänger wird als unendlich groß angenommen, so daß der Ort der Zerstäubung für den globalen Emissionswinkel vernachlässigbar ist. Anschließend wird der redeponierte Teil berechnet und akkumuliert.

Nachdem das Programm alle Ionen abgearbeitet hat, werden Winkelverteilung, Ausbeute und redeponierter Anteil auf die Ionenzahl, und die Häufigkeitsverteilung der lokalen Einfallswinkel auf die Gesamtzahl der Winkelverteilungen normiert. Die Ergebnisse werden dann in der Ausgabedatei gespeichert.

4.4.2 Ergebnisse der Simulationen

Um einen realistischen Vergleich mit den durchgeführten Experimenten zu erhalten, wurden die Targetoberflächen mit einem RKM gemessen und repräsentative Oberflächenprofile für die Simulationen verwendet (typ. 400 Stützpunkte über $30\mu m$ Länge). Unterschiedliche Stadien der Rauigkeit wurden durch Bestrahlung von *Ti*-Proben mit unterschiedlichen Fluenzen realisiert. Die verwendeten Oberflächenprofile mit den zugehörigen Fluenzen sind in Abb. 4.15 gezeigt. Da die Rauigkeit bereits bei ca. $10^{15} \frac{Au}{cm^2}$ die Meßgrenze des RKM erreichte, konnte von der am stärksten bestrahlten Probe ($2.8 \cdot 10^{15} \frac{Au}{cm^2}$) kein Oberflächenprofil gemessen werden. Um die Winkelverteilung aus Abb. 4.11 dennoch mit Simulationen vergleichen zu können, wurden die y-Koordinaten einer mit $1.3 \cdot 10^{15} \frac{Au}{cm^2}$ bestrahlten Probe mit einem Faktor 2.0 skaliert (Profil d). Da-

durch erreichten die Strukturen Ausmaße von $3\text{-}4\mu\text{m}$, wie sie mit dem Lichtmikroskop gemessen werden konnten.

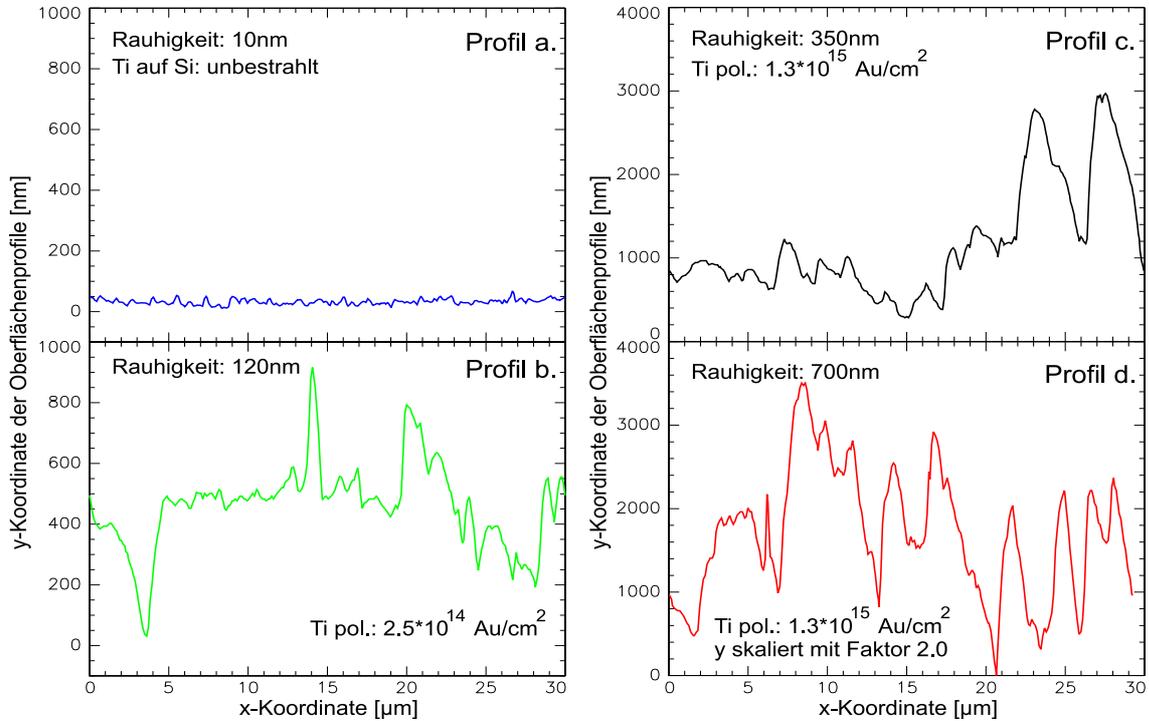


Abbildung 4.15: RKM-Oberflächenprofile von *Ti*-Targets für die Simulationsrechnungen. Sie wurden mit 230MeV Au unter einem Einfallswinkel von 72° mit unterschiedlichen Fluenzen bestrahlt. Man beachte die unterschiedliche Skala der x- bzw. y-Achsen.

Für die Berechnung der Winkelverteilungen betrug der Einfallswinkel analog zu den Experimenten 72° . Es wurden jeweils 25000 Ionen simuliert, um genügend Statistik zu erhalten. Eine Erhöhung der Ionenzahl zeigte keinen weiteren Einfluß auf die Ergebnisse.

4.4.2.1 Simulationen für niederenergetische Ionen

Durch den Vergleich mit Ergebnissen aus Ref. [75] sollte die Brauchbarkeit des Simulationsprogramms gezeigt werden. Um das Programm an die niederenergetischen Bedingungen anzupassen, wurde die Einfallswinkelabhängigkeit für $2\text{keV D}^+ \rightarrow \text{C}$ aus Abb. 1.1 von Ref. [75] verwendet. Für die Winkelverteilungen ergaben TC-Rechnungen einen Exponenten $n = 1.04$, wobei näherungsweise von rotationssymmetrischen Verteilungen ausgegangen wurde. Schichtdickenabhängigkeit und Transmissionszerstäubung wurden aufgrund der geringen Projektilenergien vernachlässigt, so daß jedes Projektil eine Winkelverteilung erzeugte, die lediglich vom lokalen Einfallswinkel abhängig war. In Abb.

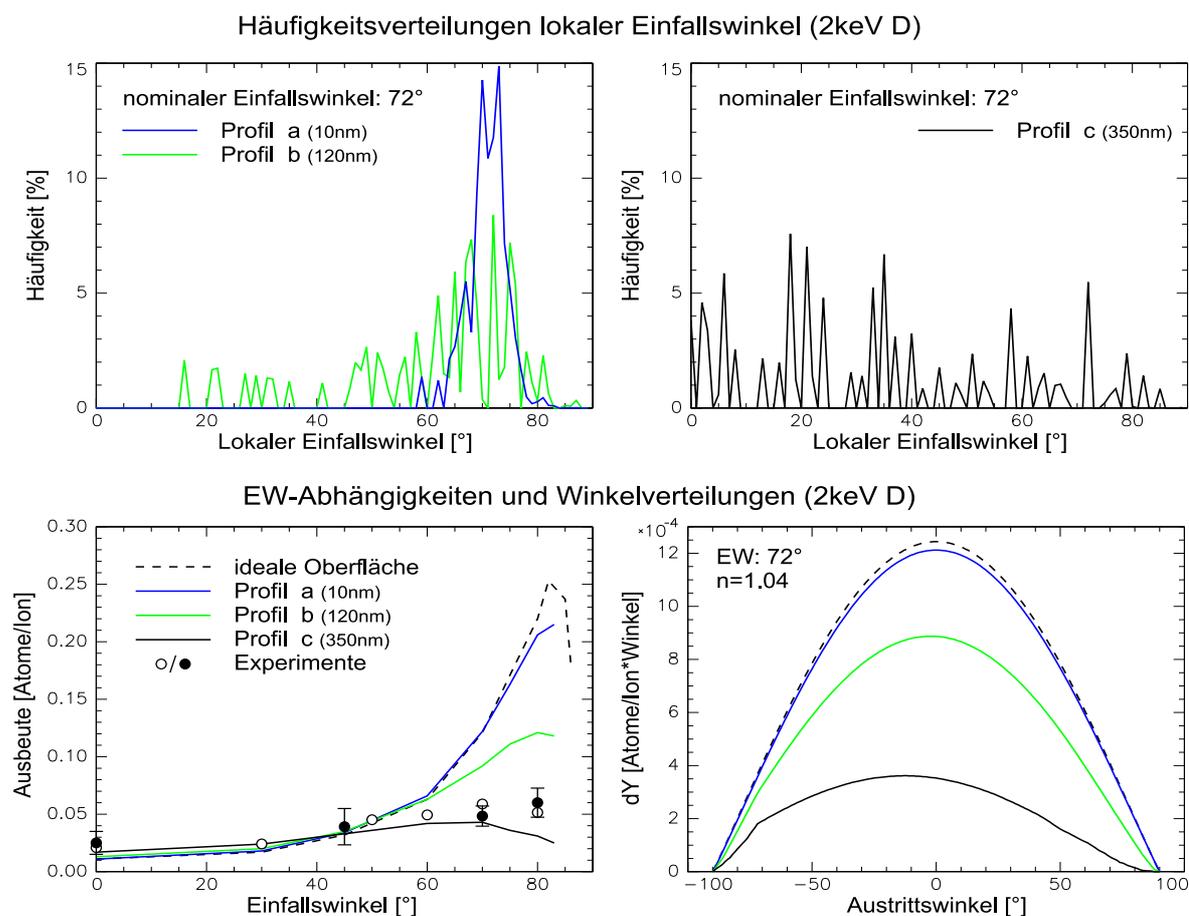


Abbildung 4.16: Häufigkeitsverteilungen lokaler Einfallswinkel (oben) und Einfallswinkelabhängigkeiten bzw. Winkelverteilungen (unten). Die Einfallswinkelabhängigkeit wie auch die Ausbeuten werden durch die Oberflächenrauigkeit stark beeinflusst. Die Stärke der Änderungen korreliert mit der Verbreiterung der Einfallswinkelverteilungen. Die vollen und leeren Punkte sind Meßwerte rauher Graphitproben aus Ref. [75] (Rauigkeit im Gleichgewicht nach hohen Bestrahlungsfluenzen).

4.16 sind die berechneten Einfallswinkelverteilungen und -abhängigkeiten und die Winkelverteilungen zu sehen.

In Ref. [75] wird die Häufigkeitsverteilung lokaler Einfallswinkel mit der Oberflächenrauigkeit korreliert. Bei glatten oder wenig rauhen Oberflächen ist diese Verteilung mehr oder minder stark um den nominalen Einfallswinkel lokalisiert, während sie bei rauhen und sehr rauhen Oberflächen verschmiert und das gesamte Spektrum an Einfallswinkeln (0-90°) abdeckt. Dieses Verhalten konnte mit den Simulationsrechnungen dieser Arbeit reproduziert werden. Die zweite wichtige Eigenschaft rauher Oberflächen nach Ref. [75] waren leicht erhöhte Ausbeuten bei geringen und stark reduzierte Ausbeuten bei hohen Einfallswinkeln. Auch dieses Verhalten war reproduzierbar. Die abgebilde-

ten Winkelverteilungen konnten nicht verglichen werden, da sie von Küstner [75] nicht berechnet wurden. Sie zeigten eine Verschiebung des Maximums in Rückwärtsrichtung mit steigender Rauigkeit, wobei sich ihre Form fast nicht veränderte. Untersuchungen der Redeposition zeigten bei glatten Oberflächen einen Anteil von ca. 0.2%. Bei rauen Proben stieg er auf ca. 10-20% an. Diese Ergebnisse stimmen ebenfalls mit Ref. [75] überein.

4.4.2.2 Simulationen für hochenergetische Ionen

Nachdem die Brauchbarkeit des Simulationsprogramms gezeigt wurde, konnte es für hochenergetische Ionen angewendet werden. Der Exponent der Winkelverteilung wurde mit $n = 2.6$ den Ti -Experimenten entnommen. Die Ergebnisse sind in Abb. 4.17 zu sehen.

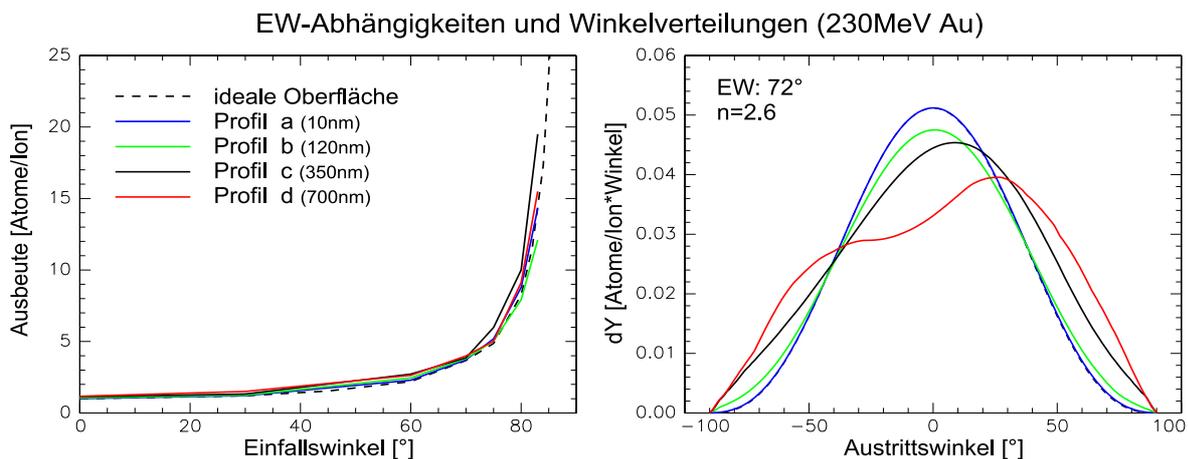


Abbildung 4.17: Einfallswinkelabhängigkeiten bzw. Winkelverteilungen bei hohen Energien. Die Einfallswinkelabhängigkeit und die totalen Ausbeuten verändern sich kaum. Die Winkelverteilungen werden mit zunehmender Rauigkeit teilweise stark deformiert und in Vorwärtsrichtung verschoben.

Da die Einfallswinkelverteilungen eine geometrische Eigenschaft der Oberflächen sind, waren sie vergleichbar mit denen bei niedrigen Energien. Kleine Unterschiede ergaben sich lediglich aufgrund der Transmissionszerstäubung, die jedoch nichts am generellen Verhalten änderte, so daß auch hier ein Zusammenhang zwischen ihrer Verbreiterung und dem Einfluß auf die Winkelverteilungen bestand.

Signifikante Unterschiede zeigten sich jedoch bei Einfallswinkelabhängigkeiten und Winkelverteilungen. Die Einfallswinkelabhängigkeiten blieben nahezu unverändert, wohingegen die Winkelverteilungen mit steigender Rauigkeit zunehmend abgeflacht (Exponent $n = 2.0 \pm 0.4$ für Profil c), in Vorwärtsrichtung verschoben und teilweise deutlich defor-

miert wurden. Der Vergleich mit Abb. 4.11 zeigt, daß sowohl die starke Verschiebung als auch die Deformation der Winkelverteilung aufgrund der Oberflächenrauigkeit reproduziert werden konnte. Eine exakte Übereinstimmung war nicht zu erwarten, da das tatsächliche Oberflächenprofil unbekannt und die gemessene Verteilung eine Überlagerung von verschiedenen Rauigkeitsstadien ist. Untersuchungen der Redeposition ergaben folgende Werte: 0.01% für glatte, 8-11% für rauhe Schichten (Profil c) und 33-40% bei noch höheren Rauigkeiten (Profil d).

Die Simulationsrechnungen zeigten, daß die mittlere durchlaufene Materialdicke auch bei den rauhen Schichten bis zu einem Einfallswinkel von 80° weniger als $2.5 - 3.5 \mu\text{m}$ betrug (weniger als $1/3$ der Reichweite), so daß die Annahme eines linearen Anstiegs der Ausbeuten mit der Schichtdicke gerechtfertigt war.

Die Transmissionszerstäubung spielte bei glatten Schichten keine Rolle, wohingegen sie bereits bei Profil b bei einem Einfallswinkel von 80° einen Anteil von 15% ausmachte. Dieser stieg bei Profil c und d auf 32% bzw. 42% an, so daß klar gezeigt wurde, daß dieser Prozeß bei hohen Energien nicht vernachlässigbar ist.

Die Simulation der *Au*-, *Zr*- und *CsI*-Verteilungen entsprach im Rahmen der Fehler den Experimenten. Eine Simulation der *YIG*-Verteilungen war auch bei Verwendung von exponentiellen Winkelverteilungen nicht möglich.

4.5 Diskussion der Ergebnisse

Diskussion der gemessenen Winkelverteilungen

Die gemessenen Winkelverteilungen zeigen, daß es sich meist um $\cos^n(\theta)$ -Funktionen mit einem Exponenten von ca. $n = 3$ handelt und daß diese für glatte Oberflächen rotationsymmetrisch zur Targetnormalen sind. Damit haben sie einen etwa doppelt so hohen Exponenten wie mit SRIM96 oder TC berechnet, sind jedoch in Übereinstimmung mit Experimenten anderer Gruppen, die für verschiedene Isolatoren Exponenten zwischen 2 und 4 fanden [10, 24, 90]. Abweichend von diesen Ergebnissen wurde in Ref. [60] für UF_4 ein Exponent $n = 0.81$ (mit $0.25 \frac{\text{MeV}}{u}$ ^{19}F bestrahlt) und von O'Connor et al. [89] $n = 1.53$ für Nb (mit $0.88 \frac{\text{MeV}}{u}$ B bestrahlt) gemessen. Sowohl die Messungen als auch die Simulationen haben deutlich gezeigt, daß die Oberfläche einen starken Einfluß auf die Form der Winkelverteilungen hat, die bei Bestrahlung mit hochenergetischen Ionen, mit steigender Rauigkeit auch stark abgeflacht werden. Da dies bisher noch nicht systematisch untersucht wurde, fanden viele Experimente ohne besondere Beachtung der Oberflächenrauigkeit statt, was eine mögliche Ursache dieser Unterschiede sein kann. Hinzu kommt, daß jedes Material spezifische Eigenschaften besitzt und intrinsische Un-

terschiede in den Winkelverteilungen bestehen können, die unabhängig von Rauigkeitseffekten sind.

Die Winkelverteilungen von *YIG* folgen einem $e^{-n|\theta|}$ -Gesetz ($n = 1.9$ für *Fe* und 5.7 für *Y*) und weichen damit deutlich von den relativ flachen $\cos^n(\theta)$ -Verteilungen der anderen Materialien ab. Sie sind trotz der starken Aufrauung rotationssymmetrisch zur Targetnormalen. Es wurde bereits erwähnt, daß von Baranov et al. [10] für feingranuläre Materialien Winkelverteilungen mit ähnlichem Verhalten gemessen wurden. Das Auftreten solcher Verteilungen konnte eindeutig der präferentiellen Emission von Partikeln (mehrere 100-1000 Atome) senkrecht zur Targetnormalen zugeordnet werden. Möglicherweise ist auch bei der Zerstäubung von *YIG* die Emission von Partikeln senkrecht zur Targetnormalen der dominierende Prozeß. Die sehr starke Aufrauung von *YIG* in Kombination mit seiner elektronischen Sensitivität [85] könnte dazu führen, daß die Spitzen rauher Strukturen als Ganzes abdampfen oder abplatzen, da die deponierte Energie nicht schnell genug abgeführt werden kann. Dies tritt beispielsweise bei der Laserablation auf, wo vergleichbar hohe Energiedichten im Target erzeugt werden [31, 88]. Diese Vermutung könnte z.B. durch Messung der emittierten Partikelmassen mit Flugzeitspektrometern geprüft werden [11, 96]. Der Unterschied zwischen den *Fe*- und *Y*-Verteilungen kann nicht erklärt werden. Es ist jedoch bekannt, daß *YIG* ein stark unstöchiometrisches Zerstäuben der Komponenten zeigt. Von Meftah et al. [85] wurde ein Verhältnis *Fe/Y* von 5-13 gemessen, im Vergleich zum stöchiometrischen Verhältnis von 1.7. Im Rahmen der Fehler übereinstimmend zeigten die hier gemessenen Ausbeuten ein Verhältnis von 10-20. Auch dafür gibt es bislang keine Erklärung.

Diskussion der Simulationsergebnisse

Das in dieser Arbeit entwickelte Simulationsprogramm ist trotz der Näherungen in der Lage, charakteristische Eigenschaften zerstäubter Teilchen, z.B. Einfallswinkelabhängigkeit und Winkelverteilungen rauher Oberflächen, sowohl für niederenergetische (wenige *keV*) als auch für hochenergetische Ionen (mehrere *100MeV*), in guter Übereinstimmung mit Experimenten zu berechnen.

Das Verhalten der Einfallswinkelabhängigkeit kann durch den Einfluß der Rauigkeit auf die lokalen Einfallswinkel erklärt werden (siehe Abb. 4.18). Demnach erhöhen rauhe Oberflächen bei senkrechtem Einfall die Ausbeuten und vermindern sie bei schrägem Einfall. In beiden Fällen verstärken sich die Auswirkungen mit steigender Rauigkeit, bis es zusätzlich zur Redeponierung zerstäubter Atome kommt, wodurch die Ausbeuten insgesamt vermindert werden.

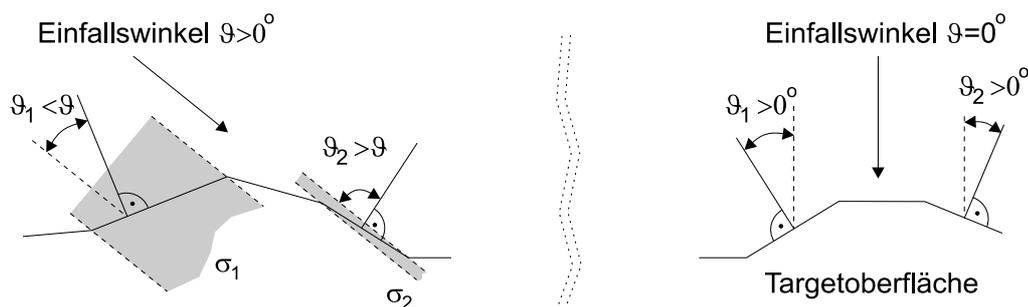


Abbildung 4.18: Einfluß der Rauigkeit auf die lokalen Einfallswinkel. Bei wenig rauhen Oberflächen wird die Ausbeute bei schrägem Einfall reduziert und bei senkrechtem Einfall erhöht. Grund ist der höhere lokale Einfallswinkel der schrägen Bereiche bei senkrechtem Einfall. Bei schrägem Einfall ist der lokale Einfallswinkel der in Strahlrichtung orientierten Bereiche reduziert, und deren effektive Flächenanteile tragen stärker zur Gesamtausbeute bei ($\sigma_1 > \sigma_2$).

Das zeigt auch den Zusammenhang zwischen der Einfallswinkelverteilung und dem Einfluß auf die Zerstäubung. Je rauher die Oberfläche ist, desto stärker variiert der lokale Einfallswinkel. Dementsprechend stärker ist auch die Auswirkung auf die zerstäubten Teilchen, sei es die Winkelverteilung, Einfallswinkelabhängigkeit oder Redeponierung. Dies bestätigt den erstmals von Küstner [75] gemachten Vorschlag, die Rauigkeit im Hinblick auf Zerstäubungsexperimente durch die Einfallswinkelverteilung zu charakterisieren. Gegenüber der üblichen Charakterisierung durch die mittlere Rauigkeit hat sie den Vorteil skalenunabhängig zu sein. Auch eine geringe Rauigkeit von wenigen nm hätte auf die Zerstäubung einen starken Einfluß, wenn die lokalen Einfallswinkel stark variieren. Dies würde durch die einfache Definition der mittleren Rauigkeit nicht erfaßt werden. Im Gegensatz dazu kann die Einfallswinkelverteilung Aufschluß darüber geben, ob eine Oberfläche die Zerstäubung beeinflusst oder nicht.

Im Gegensatz zu niedrigen Energien werden die Ausbeuten und Einfallswinkelabhängigkeiten bei hochenergetischer Bestrahlung durch die Rauigkeit nicht wesentlich beeinflusst. Das kann durch die Ausbeutenerhöhung aufgrund der Transmissionszerstäubung (mehrere Winkelverteilungen pro Ion) und durch die Schichtdickenabhängigkeit der Ausbeuten erklärt werden. Dadurch wird bei rauhen Strukturen und großen Einfallswinkeln ($60\text{-}80^\circ$) die Ausbeutenverminderung aufgrund der Redeponierung ausgeglichen. Das führt auch zu einer Verschiebung der Winkelverteilungen in Vorwärtsrichtung und zur Deformation mit zunehmender Rauigkeit, die gut mit der gemessenen Winkelverteilung der rauhen Ti -Probe übereinstimmt. Auch hier besteht ein eindeutiger Zusammenhang zwischen der Verbreiterung der Einfallswinkelverteilung und dem Einfluß der Oberfläche auf die Zerstäubung.

Da die Winkelverteilungen aus Gründen der Meßzeit nicht für alle verwendeten Targets gemessen werden konnten, wurden die mit TC berechneten Exponenten für Mn und Ge entsprechend den gemessenen Winkelverteilungen skaliert. Die Exponenten, die anschließend für die Berechnung der totalen Ausbeuten verwendet wurden, sind in Tabelle B.1 zusammengefaßt. Es war auch nicht möglich, die Winkelverteilungen für alle verwendeten Energien, Projektile und Einfallswinkel zu messen. TC-Rechnungen haben jedoch bei so hohen Energien keinen signifikanten Einfluß dieser Parameter ergeben, so daß die Gültigkeit der ermittelten Winkelverteilungen für alle verwendeten Energien, Projektile und Einfallswinkel angenommen werden kann.

Kapitel 5

Untersuchung von nichtlinearen Effekten bei der Zerstäubung reiner Metalle

Nach der Beschreibung der für Zerstäubungsmessungen wesentlichen Voruntersuchungen im vorangegangenen Kapitel sollen hier die eigentlichen Experimente vorgestellt werden, mit denen elektronische Effekte bei der Zerstäubung von Metallen und einigen anderen Materialien untersucht wurden. Zuerst werden die wichtigsten Parameter und der wesentliche Experimentablauf beschrieben, gefolgt von einer tabellarischen Zusammenfassung aller gemessenen Ausbeuten. Danach wird der elektronische Einfluß auf die Zerstäubung der untersuchten Materialien gezeigt. Die Erweiterung des Thermal-Spike Modells zur Berechnung von Zerstäubungsausbeuten wird anschließend diskutiert und die Simulationsergebnisse zur Interpretation der gemessenen Effekte verwendet. In Tabelle B.2 sind die wichtigsten physikalischen Eigenschaften der untersuchten Materialien sowie die Voraussagen zur Empfindlichkeit auf elektronische Effekte zusammengefaßt.

5.1 Ergebnisse der Zerstäubungsmessungen

Alle Experimente wurden bei Raumtemperatur durchgeführt. Die Probertemperatur erhöhte sich durch den Strahl auf maximal ca. 40°C [67]. Da der Einfluß der Targettemperatur sowohl für Kaskaden- als auch für elektronische Zerstäubung lediglich knapp unterhalb des Schmelzpunktes bedeutsam wird [10, 13], war dies vernachlässigbar. Der Einfallswinkel betrug immer 72° zur Targetnormalen und der Target-Kollektor-Abstand war 19mm . Durch die Wahl verschiedener Ionensorten und Energien konnte der elektronische Energieverlust von $11.2 - 59.8 \frac{\text{keV}}{\text{nm}}$ und der nukleare Energieverlust von $0.058 - 1.097 \frac{\text{keV}}{\text{nm}}$

variiert werden. Die Ionengeschwindigkeiten bewegten sich dabei zwischen $0.43 \frac{MeV}{u}$ und $1.69 \frac{MeV}{u}$. Die verwendeten Fluenzen lagen typischerweise bei $1 - 6 \cdot 10^{14} \frac{Ionen}{cm^2}$. Weil die *Ti*- und *Mn*-Targets sich als bestrahlungsempfindlich erwiesen hatten, wurden sie unter dem Strahlfleck verschoben, um die Aufrauung zu minimieren. Bei *YIG* erfolgte die Aufrauung so schnell, daß sie nicht vermieden werden konnte.

Um die Ladungszustandsabhängigkeit der Ausbeuten zu untersuchen, wurde der Ladungszustand der Projektile um etwa einen Faktor 2 variiert. Nach Verlassen des Beschleunigers haben die Projektile eine Ladungszustandsverteilung mit einem mittleren Ladungszustand, entsprechend der Projektilenergie beim Umladen im Terminal des Tandems. Daraus wird mit dem Analysiermagneten ein Ladungszustand für die Experimente ausgewählt, z.B. 16+ für $230MeV Au$. Der Gleichgewichtsladungszustand im Festkörper bei den erreichten Endenergien liegt für das erwähnte Beispiel jedoch bei ca. 32+ [9]. Durch Einbringen dünner *C*-Folien ($8 \frac{\mu g}{cm^2} \approx 35nm$ bzw. $16 \frac{\mu g}{cm^2} \approx 70nm$) in den Strahlengang, ca. 1m vor dem Target, wurden die Ionen entsprechend hochgeladen.

Die Berechnung der totalen Zerstäubungsausbeuten erfolgte nach Gleichung 3.7 mit den gemessenen bzw. extrapolierten Winkelverteilungen aus Tabelle B.1. Die *YIG*-Ausbeuten mußten gemäß Gleichung 3.6 numerisch berechnet werden, wobei $\cos^n(\theta)$ durch eine $e^{-n|\theta|}$ -Funktion ersetzt wurde.

In den folgenden Tabellen sind die Ergebnisse der Zerstäubungsmessungen zusammengestellt. Bei den Projektilen ist der Ladungszustand angegeben, wobei $\langle .. \rangle$ für eine Ladungszustandsverteilung um den Gleichgewichtsladungszustand steht, der mit dem Faraday-Becher FB1 ermittelt wurde. $(\frac{dE}{dx})_e$ bzw. $(\frac{dE}{dx})_n$ sind mit SRIM96 [127] berechnete spezifische Energieverluste, die für den Gleichgewichtsladungszustand gelten. Die Klammern (..) sollen auf verminderte elektronische Energieverluste für Projektile unterhalb der Gleichgewichtsladung hinweisen. Y_{TC} sind die mit dem Programm TC berechneten und Y_{exp} die gemessenen Ausbeuten. Die mit † gekennzeichneten Ausbeuten sind Mittelwerte aus mehreren Messungen.

Projektil	$\left(\frac{dE}{dx}\right)_e$ [keV/nm]	$\left(\frac{dE}{dx}\right)_n$ [keV/nm]	Y_{TC} [At./Ion]	Y_{exp} [At./Ion]
275MeV Au^{18+}	(30.3)	0.181	0.76	3.45 ± 0.52
275MeV $Au^{<29+>}$	30.3			6.50 ± 0.97
230MeV $Au^{16/17+}$	(29.0)	0.210	0.90	$3.66 \pm 0.55^\dagger$
230MeV $Au^{<29+>}$	29.0			7.41 ± 1.11
109MeV Au^{11+}	(22.3)	0.374	1.62	$5.78 \pm 0.87^\dagger$
109MeV $Au^{<26+>}$	22.3			8.93 ± 1.34
215MeV I^{15+}	(22.6)	0.073	0.34	1.15 ± 0.17
55MeV I^{7+}	(14.1)	0.222	1.04	2.24 ± 0.33

Tabelle 5.1: Totale Ti -Ausbeuten

Projektil	$\left(\frac{dE}{dx}\right)_e$ [keV/nm]	$\left(\frac{dE}{dx}\right)_n$ [keV/nm]	Y_{TC} [At./Ion]	Y_{exp} [At./Ion]
275MeV Au^{18+}	(45.4)	0.291	1.79	2.25 ± 0.33
275MeV $Au^{<29+>}$	45.4			3.29 ± 0.50
230MeV Au^{17+}	(43.1)	0.336	2.04	2.20 ± 0.33
114MeV Au^{12+}	(31.5)	0.585	3.67	2.14 ± 0.32
210MeV I^{15+}	(34.0)	0.121	0.84	0.49 ± 0.07
59MeV I^{8+}	(20.5)	0.336	2.46	1.46 ± 0.22

Tabelle 5.2: Totale Mn -Ausbeuten

Projektil	$\left(\frac{dE}{dx}\right)_e$ [keV/nm]	$\left(\frac{dE}{dx}\right)_n$ [keV/nm]	Y_{TC} [At./Ion]	Y_{exp} [At./Ion]
275MeV Au^{18+}	(29.1)	0.194	1.26	1.73 ± 0.19
275MeV $Au^{<29+>}$	29.1			2.61 ± 0.29
230MeV Au^{16+}	(27.2)	0.224	1.39	1.81 ± 0.19
109MeV Au^{11+}	(18.0)	0.403	2.72	2.52 ± 0.28
215MeV I^{15+}	(22.1)	0.079	0.58	0.55 ± 0.06
55MeV I^{7+}	(11.2)	0.235	1.73	1.57 ± 0.17

Tabelle 5.3: Totale Ge -Ausbeuten

Projektil	$(\frac{dE}{dx})_e$ [keV/nm]	$(\frac{dE}{dx})_n$ [keV/nm]	Y_{TC} [At./Ion]	Y_{exp} [At./Ion]
275MeV Au ¹⁸⁺	(32.3)	0.229	0.98	1.85 ± 0.23
275MeV Au ^{<29+>}	32.3			2.86 ± 0.34
230MeV Au ^{16/17+}	(30.3)	0.265	1.07	1.71 ± 0.21 [†]
230MeV Au ^{<29+>}	30.3			2.89 ± 0.35
230MeV Au ^{<32+>}	30.3			3.66 ± 0.44
157MeV Au ¹⁴⁺	(26.0)	0.358	1.52	2.50 ± 0.30
109MeV Au ¹¹⁺	(21.8)	0.474	1.93	3.57 ± 0.43 [†]
109MeV Au ^{<26+>}	21.8			5.50 ± 0.66
215MeV I ¹⁵⁺	(24.5)	0.093	0.43	0.52 ± 0.06
210MeV I ¹⁵⁺	(24.4)	0.095	0.45	0.45 ± 0.05
210MeV I ^{<28+>}	24.4			0.78 ± 0.09
59MeV I ⁸⁺	(14.8)	0.260	1.39	1.33 ± 0.15
59MeV I ^{<20+>}	14.8			1.66 ± 0.20
55MeV I ⁷⁺	(14.4)	0.275	1.33	1.01 ± 0.12

Tabelle 5.4: Totale Zr-Ausbeuten

Projektil	$(\frac{dE}{dx})_e$ [keV/nm]	$(\frac{dE}{dx})_n$ [keV/nm]	Y_{TC} [At./Ion]	Y_{exp} [At./Ion]
275MeV Au ¹⁸⁺	(59.8)	0.537	2.47	(12.4 ± 1.5)
275MeV Au ^{<29+>}	59.8			(12.1 ± 1.4)
230MeV Au ^{16/17+}	(55.4)	0.619	3.00	9.6 ± 1.1 [†]
230MeV Au ^{<29+>}	55.4			11.8 ± 1.4
109MeV Au ¹¹⁺	(35.8)	1.097	5.25	13.4 ± 1.6
210MeV I ¹⁵⁺	(45.9)	0.220	1.10	2.86 ± 0.33 [†]
55MeV I ⁷⁺	(22.7)	0.623	4.05	10.8 ± 1.3

Tabelle 5.5: Totale Au-Ausbeuten. Die Meßwerte bei 275MeV sind nur mit Einschränkungen vergleichbar (siehe 4.1.1).

Projektil	$(\frac{dE}{dx})_e$ [keV/nm]	$(\frac{dE}{dx})_n$ [keV/nm]	Y_{TC} [At./Ion]	Y_{exp} [At./Ion]
230MeV Au^{17+}	(18.3)	0.162	1.17	6985 ± 838 (Cs)
			1.14	2100 ± 252 (Iod)
230MeV $Au^{<29+>}$	18.3	0.162	1.17	9676 ± 1161 (Cs)
			1.14	2908 ± 349 (Iod)
210MeV I^{15+}	(14.6)	0.058	0.49	896 ± 107 (Cs)
			0.47	269 ± 32 (Iod)

Tabelle 5.6: Totale CsI -Ausbeuten

Projektil	$(\frac{dE}{dx})_e$ [keV/nm]	$(\frac{dE}{dx})_n$ [keV/nm]	Y_{TC} [At./Ion]	Y_{exp} [At./Ion]
230MeV $Au^{16/17+}$	(32.6)	0.241	0.269	$11.4 \pm 4.6^\dagger$ (Fe)
			0.166	$0.95 \pm 0.57^\dagger$ (Y)
230MeV $Au^{<29+>}$	32.6	0.241	0.269	19.6 ± 7.8 (Fe)
			0.166	1.04 ± 0.63 (Y)
109MeV Au^{11+}	(23.4)	0.434	0.491	9.62 ± 4.8 (Fe)
			0.299	0.97 ± 0.62 (Y)
210MeV I^{15+}	(25.6)	0.087	0.109	$2.84 \pm 1.71^\dagger$ (Fe)
			0.068	$0.13 \pm 0.08^\dagger$ (Y)
55MeV I^{7+}	(15.6)	0.255	0.340	1.27 ± 0.64 (Fe)
			0.202	0.075 ± 0.05 (Y)

Tabelle 5.7: Totale $Y_3Fe_5O_{12}$ -Ausbeuten

Der Vergleich der gemessenen Ausbeuten mit TC-Rechnungen zeigt für Metalle bei niedrigen Energien eine gute Übereinstimmung von typ. besser als einem Faktor 2. Für Au sind die gemessenen Ausbeuten bei allen Energien etwa 2.5-3 mal so hoch wie berechnet. Vergleiche mit SRIM96- bzw. TRIM.SP-Rechnungen zeigen, daß diese für Au bessere Übereinstimmung erreichen (Abweichung weniger als ein Faktor 2) und für die anderen Metalle vergleichbar mit TC sind. Bei höheren Energien liegen die gemessenen Ausbeuten, insbesondere bei Ti , nahezu eine Größenordnung über den berechneten Werten, was auf mögliche elektronische Effekte hinweist. Die Ausbeuten der Isolatoren liegen generell deutlich über den berechneten nuklearen Ausbeuten. Dies soll nun näher diskutiert werden.

5.2 Elektronische Effekte bei der Zerstäubung

Bei den Isolatoren *CsI* bzw. *YIG* ist bereits aus den gemessenen Ausbeuten klar, daß elektronische Effekte bei der Zerstäubung vorliegen müssen, da sie zumindest eine Größenordnung höher sind als mit TC berechnet. Zudem besteht eine klare Abhängigkeit vom elektronischen Energieverlust. Bei den untersuchten elektrischen Leitern bzw. Halbleitern ist die Situation bei weitem nicht so deutlich, so daß der Nachweis elektronischer Effekte einer anderen eindeutigen Signatur bedarf.

Im zweiten Kapitel wurde bereits diskutiert, daß der Ladungszustand des Projektils auf den elektronischen Energieverlust in den ersten Atomlagen einen deutlichen Einfluß hat, der nukleare Energieverlust in unserem Energiebereich davon jedoch nicht beeinflußt wird. Auch wenn der quantitative Zusammenhang von elektronischem Energieverlust und Ladungszustand nicht bekannt ist, zeigen die Messungen und Rechnungen [53,54,99], daß ein höherer Ladungszustand auch einen höheren Energieverlust zur Folge hat (geringere Abschirmung der Kernladung). Eine Änderung der Zerstäubungsausbeute mit verändertem Ladungszustand unter sonst gleichen Bedingungen wäre somit eine eindeutige Signatur für einen elektronischen Beitrag. Daher wurden Vergleichsmessungen mit unterschiedlichen Ladungszuständen durchgeführt. Um weitgehend konstante Bedingungen zu gewährleisten, wurden sie jeweils mit demselben Target in derselben Strahlzeit gemessen, wodurch die Fehler für den relativen Vergleich minimiert wurden. Die Ladungszustandsabhängigkeit der Ausbeuten wurde auch in jüngster Zeit zum Nachweis elektronischer Zerstäubung von Kohlenstoff [92] und von Metalloxiden [93] verwendet. Eine weitere Signatur für elektronische Effekte ist die Verwendung von Projektil-/Energiekombinationen mit annähernd gleichem nuklearen, aber deutlich verschiedenem elektronischen Energieverlust. Dadurch bleibt der Anteil der Kaskadenzerstäubung relativ konstant, so daß auch hier eine veränderte Ausbeute auf elektronische Effekte zurückgeführt werden kann. 55MeV Iod und 230MeV Au als Projektile sind eine solche Kombination. Um Schwierigkeiten bei der Bestimmung von $(\frac{dE}{dx})_e$ zu vermeiden, wird dieses Kriterium lediglich bei Messungen mit dem Gleichgewichtsladungszustand verwendet, wo die Tabellenwerte nach Ziegler [128] gelten. Diese Signatur ist nicht ganz so eindeutig, da sich mehrere Parameter ändern, z.B. Projektilmasse, Ladung und Geschwindigkeit. Sie kann jedoch ergänzend zur Ladungszustandsabhängigkeit geprüft werden.

5.2.1 Ladungszustandsabhängigkeit der *Au*-Ausbeuten

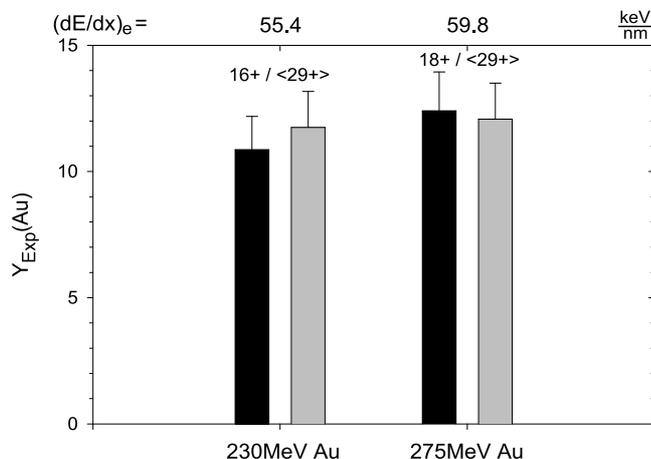


Abbildung 5.1: Ladungszustandsabhängigkeit der *Au*-Ausbeuten. Die Messungen wurden in zwei verschiedenen Strahlzeiten durchgeführt.

Die Ladungszustandsabhängigkeit wurde für *Au* zweimal gemessen. Die Ergebnisse in Abb. 5.1 lassen keinen elektronischen Einfluß erkennen.

5.2.2 Ladungszustandsabhängigkeit der *Ti*- und *Zr*-Ausbeuten

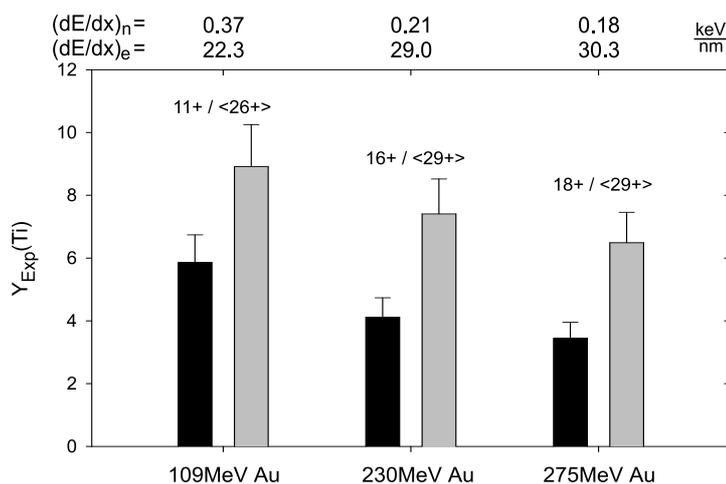


Abbildung 5.2: Ladungszustandsabhängigkeit der *Ti*-Ausbeuten. Die Wertepaare wurden in verschiedenen Strahlzeiten gemessen.

Für *Ti* wurde der Einfluß des Ladungszustands bei drei verschiedenen Energien gemessen. Abb. 5.2 zeigt einen Anstieg der Ausbeuten durch die Ladungszustandserhöhung um

jeweils 52%, 80% und 88%. Der Effekt liegt deutlich außerhalb der Schwankungen, die bei den Reproduzierbarkeitstests gefunden wurden (siehe Abb. 3.15) und ist ein klares Indiz, daß Ti einen elektronischen Beitrag zur Zerstäubung enthält.

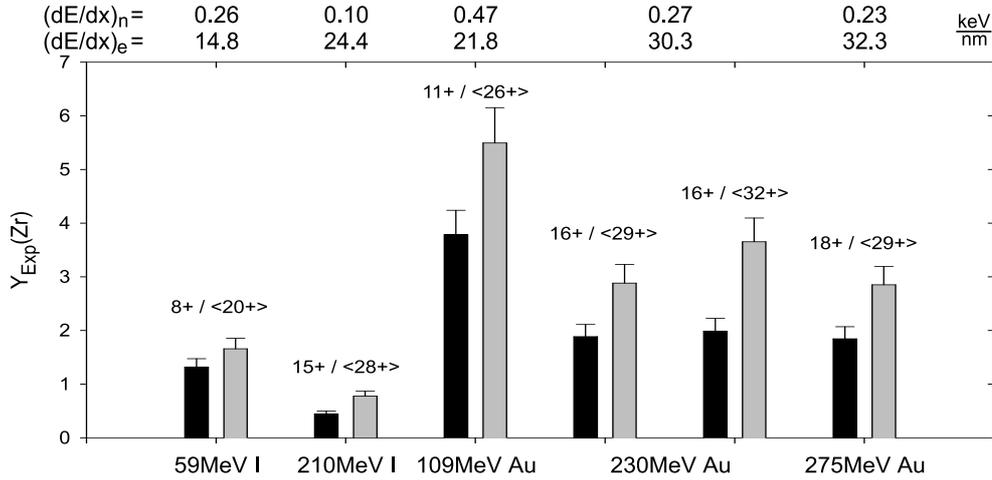


Abbildung 5.3: Ladungszustandsabhängigkeit der Zr -Ausbeuten. Die $230\text{MeV Au}^{16+ / <29+>}$ - und 275MeV -Messungen wurden in separaten Strahlzeiten, die restlichen Messungen in einer gemeinsamen Strahlzeit durchgeführt.

Die Zr -Ergebnisse in Abb. 5.3 lassen sich in zwei Bereiche mit unterschiedlichem Verhalten ordnen, wenn neben dem elektronischen auch der nukleare Energieverlust berücksichtigt wird. Für $(\frac{dE}{dx})_e > 20 \frac{\text{keV}}{\text{nm}}$ ist eine signifikante Erhöhung der Ausbeute mit Erhöhung des Ladungszustands zu beobachten (46-84%), mit steigender Tendenz für höhere $(\frac{dE}{dx})_e$. Unterhalb $20 \frac{\text{keV}}{\text{nm}}$ ist nur ein schwacher Effekt zu sehen. Der Wert für 210MeV Iod weist auf die Bedeutung des nuklearen Energieverlustes hin: trotz eines elektronischen Energieverlustes über $20 \frac{\text{keV}}{\text{nm}}$ sind die Ausbeuten deutlich geringer als bei 109MeV Au , offensichtlich wegen des vergleichsweise geringen $(\frac{dE}{dx})_n$ -Wertes. Insgesamt wird auch bei Zr ein elektronischer Einfluß auf die Zerstäubung beobachtet.

Der Vergleich der Ausbeuten von $59\text{MeV I}^{<20+>}$ mit $230\text{MeV Au}^{<29/32+>}$ zeigt einen Anstieg auf etwa das Doppelte ($Y=1.66$ bzw. $Y=2.89/3.66$), obwohl $(\frac{dE}{dx})_n$ nahezu konstant bleibt. Auch diese zweite Signatur unterstützt also die Aussage, daß Zr bei der Zerstäubung mit hochenergetischen, schweren Ionen elektronisch sensitiv ist.

Trotz des elektronischen Beitrags bei beiden Elementen zeigen die Messungen auch, daß der Einfluß des nuklearen Energieverlustes nicht vernachlässigbar ist, dem die Ausbeuten im wesentlichen folgen.

5.2.3 Ladungszustandsabhängigkeit der restlichen Materialien

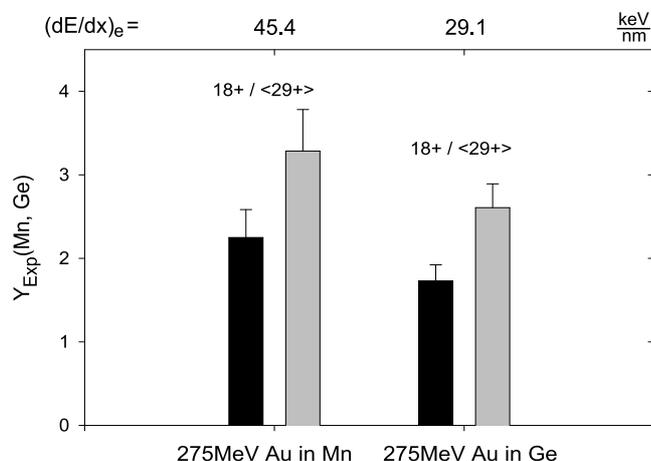


Abbildung 5.4: Ladungszustandsabhängigkeit der *Mn*- und *Ge*-Ausbeuten.

Bei den übrigen Targets wurde die Ladungszustandsabhängigkeit nur jeweils einmal gemessen. *Mn* und *Ge* zeigen beide einen Anstieg der Ausbeuten mit dem Ladungszustand (siehe Abb. 5.4). Obwohl er mit 46% bzw. 51% geringer ausfällt als bei *Ti* oder *Zr*, ist der Anstieg signifikant und zeigt, daß auch diese Materialien einen elektronischen Beitrag zur Zerstäubung enthalten. Somit muß der als Grenzfall eingestufte Halbleiter *Ge* [41] zu den elektronisch sensitiven Materialien gezählt werden.

In Übereinstimmung mit der Literatur [10, 123, 124] konnte auch für die Isolatoren *CsI* und *YIG* eine Ladungszustandsabhängigkeit gezeigt werden (siehe Tab. 5.6 und 5.7). Mit 39% für *CsI* und ca. 89% für *YIG* ist die Abhängigkeit vergleichbar groß wie bei den sensitiven Metallen. Zum Vergleich der Abhängigkeit von *YIG* wurde für die 230 MeV Au^{17+} -Ionen nicht der Mittelwert aus verschiedenen Strahlzeiten (siehe Tab. 5.7) verwendet, sondern die Ausbeute, die in derselben Strahlzeit mit demselben Target gemessen wurde ($Y(Fe) = 10.1 \pm 4.1$ und $Y(Y) = 0.56 \pm 0.34$) wie die für 230 MeV $Au^{<29+>}$.

5.2.4 Ergebnisse mit Projektilen außerhalb des Ladungsgleichgewichts

Zusätzlich wurden noch eine Reihe weiterer Messungen mit Ladungszuständen unterhalb des Ladungsgleichgewichts durchgeführt, deren Einordnung jedoch schwieriger ist, da die elektronischen Energieverluste an der Targetoberfläche nicht bekannt sind. Aus den Messungen von Frey et al. [53, 54] und den Rechnungen von Sigmund [99] läßt sich jedoch

abschätzen, daß eine Verdopplung des Ladungszustands auch etwa eine Verdopplung des elektronischen Energieverlustes zur Folge hat. Der verwendete Ladungszustand von $7/8+$ für $55/59\text{MeV Iod}$ entspricht nur etwa einem Drittel des mittleren Ladungszustands von $< 20+ >$ im Festkörper, während er bei $230\text{MeV Au}^{16/17+}$ etwa der Hälfte entspricht. Damit ist der elektronische Energieverlust für $55/59\text{MeV I}^{7/8+}$ nach wie vor nur etwa halb so groß wie für $230\text{MeV Au}^{16/17+}$, bei etwa demselben nuklearen Energieverlust. Trotz der Ungenauigkeit von $(\frac{dE}{dx})_e$ ist damit eine Prüfung auf elektronische Effekte aus dem Vergleich dieser Ausbeuten möglich. Die Tabellen 5.1-5.7 zeigen analog zur Ladungszustandsabhängigkeit für alle sensitiven Metalle einen Anstieg der Ausbeuten zwischen 30-70%. Für Ge beträgt er lediglich ca. 15% und für Au ist sogar die Ausbeute bei 55MeV Iod um 13% höher. Eine genauere Betrachtung der TC-Ergebnisse zeigt auch, daß für 55MeV Iod tatsächlich generell höhere Ausbeuten berechnet werden (15-35%), obwohl $(\frac{dE}{dx})_n$ nahezu konstant bleibt. Insgesamt werden die bereits gemachten Aussagen zur elektronischen Empfindlichkeit der untersuchten Materialien untermauert.

5.3 Vergleich mit Modellrechnungen

Für die folgende Diskussion werden ausschließlich die Meßergebnisse mit dem Gleichgewichtsladungszustand herangezogen. Dadurch werden Schwierigkeiten durch ungenaue $(\frac{dE}{dx})_e$ -Werte vermieden. Um den elektronischen Beitrag zur Zerstäubung zu erklären, kommen prinzipiell zwei Modelle in Frage: die Coulomb-Explosion und der Thermal-Spike. Obwohl eine quantitative Berechnung mit der Coulomb-Explosion nicht möglich ist, wurde versucht damit die Schädigung von Ti und Fe zu erklären [77]. Die auf die Atome übertragene Energie und die Schädigungseffizienz folgen danach grob einem $(\frac{dE}{dx})_e^4$ -Gesetz. Die gemessenen Ausbeuten zeigen jedoch ein anderes Verhalten, so daß die Coulomb-Explosion die elektronische Zerstäubung auch qualitativ nicht erklären kann. Deswegen wurde in Zusammenarbeit mit M. Toulemonde versucht, die Ergebnisse mit einem erweiterten Thermal-Spike Modell wiederzugeben. Zunächst werden der Ablauf einer TS-Rechnung und die verwendeten Parameter beschrieben. Insbesondere die neuesten Erweiterungen zur Berechnung von Zerstäubungsausbeuten sowie die Grenzen und Unsicherheiten des Modells werden ausführlich diskutiert. Dann folgt ein Vergleich der Rechnungen mit den gemessenen Ausbeuten.

5.3.1 Ablauf der Thermal-Spike Rechnungen

Unter Zugrundelegung einer Zylindersymmetrie wird das Target in mehrere konzentrische Zylinder unterteilt (typ. Abstand 2-10Å) und der Energietransport zwischen diesen

in kleinen Zeitintervallen (typ. $10^{-18}s$) iterativ berechnet (vgl. Abb. 2.1). Wie bereits in Kap. 2 erwähnt wurde, geschieht dies separat für beide Teilsysteme, unter Berücksichtigung temperaturabhängiger thermischer Eigenschaften und eines Energieübertrags zwischen den Teilsystemem (festgelegt durch den Kopplungsfaktor g). Die für die Simulationen benötigten thermischen Eigenschaften sind in Tab. 5.8 und B.3 für Ti , Zr und Au zusammengefaßt und wurden den Referenzen [25, 44, 118] entnommen.

Target	T_m [K]	T_v [K]	L_m [J/g]	L_v [J/g]	E_{SB} [eV]	ρ_s [g/cm ³]	ρ_l [g/cm ³]	g [W/cm ³ K]
Au	1336	3243	63.7	1698	3.81	19.3	19.2	$2.8 \cdot 10^{10}$
Ti	1933	3560	420	8814	4.85	4.51	4.11	$9.3 \cdot 10^{12}$
Zr	2123	4650	165	4580	6.25	6.51	5.80	$2.6 \cdot 10^{12}$

Tabelle 5.8: Materialkonstanten von Au , Ti und Zr für die Thermal-Spike Rechnungen. T_m , T_v und L_m , L_v sind die Schmelz-/Verdampfungstemperatur bzw. die Schmelz-/ Verdampfungswärme. E_{SB} ist die Oberflächenbindungsenergie, ρ_s/ρ_l die Dichte im festen und flüssigen Zustand und g der Kopplungsfaktor zwischen Elektronen und Gitter.

Der Kopplungsfaktor g ist bei TS-Rechnungen normalerweise der einzige freie Parameter, der in einem gewissen Rahmen an die experimentellen Ergebnisse angepaßt wird. In dieser Arbeit war das nicht der Fall, da $g(Ti)$ und $g(Zr)$ bereits durch Anpassung an $(\frac{dE}{dx})_e$ -Schwellen für Kernspuren [35, 36, 118] und $g(Au)$ durch fs -Laserexperimente festgelegt war (aus Ref. [44]). Somit wurden alle Rechnungen **ohne freie Parameter** durchgeführt.

Für alle Rechnungen wurde entsprechend den Experimenten eine Anfangstemperatur von $T_e = T_g = 300K$ angenommen. Die Energiedeposition ist nach ca. $10^{-15}s$ abgeschlossen, wobei Elektronentemperaturen im Bereich von 10^5K erreicht werden. Danach beginnt die Gittertemperatur aufgrund der Kopplung zu steigen. Die maximale Gittertemperatur wird nach etwa $10^{-13}s$ erreicht, wenn sich beide Systeme im thermischen Gleichgewicht befinden. Danach erfolgt ein sehr schnelles Abkühlen beider Systeme, hauptsächlich bestimmt durch die Wärmeleitfähigkeit, mit Raten im Bereich von $10^{14} - 10^{15} \frac{K}{s}$. Wurde die Schmelztemperatur überschritten, führt das zum Einfrieren der Schmelze, so daß der Radius geschmolzenen Materials mit dem Radius der Kernspuren gleichgesetzt werden kann. Wird bei den Rechnungen die Verdampfungstemperatur überschritten, kommt es zur Emission von Atomen, d.h. zur Zerstäubung.

5.3.2 Modell zur Berechnung elektronischer Zerstäubungsausbeuten

Das Thermal-Spike Modell in seiner bisherigen Form war nicht in der Lage, die Emission von Oberflächenatomen bei Überschreitung der Verdampfungstemperatur zu berechnen. Um das Modell dahingehend zu erweitern, wurde analog wie im Fall von nuklearen Spike-Effekten vorgegangen. Um diese in Metallen zu quantifizieren, wurde von Sigmund und Claussen [101] ein Modell entwickelt, das für die Deposition des nuklearen Energieverlustes näherungsweise eine Zylindersymmetrie entlang der Ionenspur annimmt. Da die Verdampfungstemperatur überschritten werden muß, wurde die Emission von Atomen pro Zeit und Fläche durch den Verdampfungsfluß $\varphi(T_g)$ eines idealen Gases beschrieben. Für ein planares Oberflächenpotential E_{SB} (Oberflächenbindungsenergie \approx Sublimationsenergie), das von den Atomen überwunden werden muß, ergibt sich direkt aus der thermischen Maxwell-Boltzmann-Verteilung:

$$\varphi(T_g) = N \sqrt{\frac{k_B T_g}{2\pi M}} \cdot \exp\left(-\frac{E_{SB}}{k_B T_g}\right) \quad (5.1)$$

N ist die Anzahldichte und M die Masse der Targetatome. Durch Integration dieser Gleichung über Raum und Zeit erhält man die Gesamtzahl verdampfter Atome. Sie entspricht gleichzeitig der thermischen Ausbeute, da nur der Energieeintrag eines Ions berücksichtigt wird:

$$Y_{th} = \int_{t_0}^{\infty} dt \int_0^{\infty} \varphi(T_g(r, t)) 2\pi r dr \quad (5.2)$$

Um einen allgemeinen analytischen Ausdruck für Y_{th} zu erhalten, wurde in Ref. [101] die räumliche und zeitliche Temperaturverteilung des Gitters $T_g(r, t)$ durch Lösen der Wärmeleitungsgleichung $\partial T_g / \partial t = \nabla \cdot [D(T_g) \nabla T_g]$ in Zylindersymmetrie unter Annahme gewisser Näherungen für die thermische Diffusivität $D(T_g)$ und einer Gaussähnlichen Anfangsverteilung von T_g berechnet, welche implizit die deponierte Energie enthält. Die Gesamtausbeute setzt sich additiv aus dem thermischen und dem linearen Kaskadenanteil zusammen: $Y = Y_{th} + Y_{lin}$. Dies ist gerechtfertigt, da die Kollisionskaskaden sowohl zeitlich (ca. $10^{-14} s$) als auch räumlich (einige $10 nm$ bis einige $100 nm$ je nach Projektilenergie) von der geheizten Spur getrennt sind ($> 10^{-13} s$ und wenige Å).

Die Situation ist also vergleichbar zum TS-Modell, da es sich um einen thermischen Vorgang in Zylindersymmetrie handelt, mit dem Unterschied, daß beim TS der elektronische Energieeintrag die Ursache des Temperaturanstiegs ist. Daher wurden die Gleichungen 5.1 und 5.2 in das Thermal-Spike Modell integriert, um die elektronisch induzierten thermischen Ausbeuten zu berechnen.

5.3.3 Nuklearer Beitrag zum Heizen der Ionenspur

Es wurde bereits erwähnt, daß der nukleare Einfluß auf die Zerstäubung nicht vernachlässigbar ist. Erste Thermal-Spike Rechnungen zeigten jedoch, daß der elektronische Beitrag und die Kaskadenzerstäubung alleine nicht ausreichten, um die gemessenen Ausbeuten zu erklären. Der nukleare Energieverlust ist auch bei unseren Experimenten mit $0.2 - 1.1 \frac{keV}{nm}$ hoch genug, um das Target entlang der Ionenspur aufzuheizen und die thermischen Ausbeuten zu beeinflussen. Um den thermischen Beitrag von $(\frac{dE}{dx})_n$ zu berücksichtigen, war es nötig in Gleichung 2.13 einen Quellterm analog zu $A(r, t)$ aus Gleichung 2.12 einzuführen, der die räumliche und zeitliche Energieverteilung von $(\frac{dE}{dx})_n$ beschreibt:

$$B(r, t) = \left(\frac{dE}{dx}\right)_n \cdot G_n(t)F_n(r) \quad \text{wobei} \quad \int_{t=0}^{\infty} \int_{r=0}^{\infty} B(r, t) 2\pi r dr dt = \left(\frac{dE}{dx}\right)_n \quad (5.3)$$

Die räumliche Verteilung wurde aus Experimenten zur Erzeugung von Punktdefekten durch Kernstöße und deren Ausheilen durch elektronisches Heizen (TS-Modell) ermittelt [120]. Sie lautet ähnlich wie beim elektronischen Heizen: $F_n(r) \sim r^{-1} \exp(-r/R_d)$ mit dem Radius R_d , in welchem 66% des nuklearen Energieverlustes deponiert wird. Da der tatsächliche Radius unbekannt ist, wurde mit $R_d = 15 \text{ \AA}$ ein Wert verwendet, der mit der mittleren quadratischen lateralen Streuung der Stoßkaskaden vergleichbar ist [101]. Damit konnte Sigmund gute Übereinstimmung mit Experimenten erzielen, bei denen Ag mit Sb_n^+ -Clustern zerstäubt wurde. Dieser Wert wurde einheitlich für alle TS-Rechnungen dieser Arbeit verwendet.

Für den zeitlichen Ablauf der Energiedeposition wurde ein exponentiell fallendes Gesetz angenommen: $G_n(t) \sim \exp(-t/\tau)$ mit der mittleren Depositionszeit τ , die sich aus der mittleren deponierten Energie pro Targetatom berechnet. Diese kann z.B. mit TRIM.SP ermittelt werden und beträgt für die vorliegenden Fälle einige $keV/Atom$. Für diesen Energiebereich haben die angestoßenen Targetatome eine mittlere radiale Reichweite von $20 - 40 nm$, so daß $\tau \approx 4 \cdot 10^{-14} s$ beträgt. Auch dieser Wert ist lediglich eine grobe Abschätzung. τ konnte jedoch zwischen $1 - 4 \cdot 10^{-14} s$ variiert werden, ohne das Ergebnis merklich zu beeinflussen, so daß die genaue Depositionszeit kein kritischer Parameter ist. Die Temperaturentwicklung wird wie zuvor beschrieben vom Programm berechnet.

Mit diesen Erweiterungen wurden vom Programm alle Energieeinträge berücksichtigt und es war in der Lage thermische (nichtlineare) Zerstäubungsausbeuten zu berechnen. Da eine Reihe von Näherungen gemacht werden mußten, soll nun abgeschätzt werden, welche Genauigkeit für die berechneten Ausbeuten zu erwarten ist. Bereits

in Kap. 2 wurde erwähnt, daß unklar ist, inwieweit die makroskopischen Werte für die Wärmeleitfähigkeit und Wärmekapazität für so kurze Zeiten auf mikroskopischer Skala noch gültig sind. Insbesondere oberhalb der Verdampfungstemperatur sind sich nicht genau bekannt, so daß sie extrapoliert werden mußten. Um diese Unsicherheit abzuschätzen, wurde die Wärmeleitfähigkeit um zwei Größenordnungen reduziert, wodurch eine Erhöhung der thermischen Ausbeuten um etwa 50% erfolgte. Der Einfluß einer möglichen Druckänderung innerhalb des geschmolzenen oder verdampften Bereichs auf diese Parameter wurde nicht berücksichtigt. Die Depositionszeit des nuklearen Energieverlustes erwies sich, wie bereits gesagt, als unkritischer Parameter. Dasselbe gilt für die Depositionszeit des elektronischen Verlustes, der im Bereich $t_0 = 1 - 5 \cdot 10^{-15} s$ ohne Einfluß auf die Ausbeuten variiert werden konnte. Der Einfluß des Depositionsradius wurde nicht studiert. Es ist jedoch klar, daß eine Verminderung des Radius eine Erhöhung der Temperatur und damit eine Erhöhung der Ausbeuten bewirken würde. Mögliche Oberflächeneffekte (z.B. unterschiedliche Wärmeleitung) können von dem Modell grundsätzlich nicht behandelt werden, da es aufgrund der Zylindersymmetrie homogene Bedingungen in axialer Richtung voraussetzt und den Energietransport nicht dreidimensional berechnet. Insgesamt ist aufgrund dieser Betrachtungen nicht zu erwarten, daß die gemessenen Ausbeuten genauer als ein Faktor 2 wiedergegeben werden können. Es sollte jedoch möglich sein, das tendenzielle Verhalten bei Änderung der Energieverluste zu berechnen.

Als Test des Programms für die Berechnung der nichtlinearen Ausbeuten aufgrund des nuklearen Energieverlustes wurde versucht, die Zerstäubungsexperimente von Andersen et al. [3] zu simulieren. Dort wurden vor kurzem bei der Bestrahlung von Au mit Au_n -Clustern ($n = 1 - 5$) im Bereich des nuklearen Energieverlustmaximums (Einfluß von S_e vernachlässigbar) stark überhöhte Zerstäubungsausbeuten gemessen. Auch frühere Messungen von Bay et al. [12] zeigten in diesem Energiebereich bereits mit einfachen Au-Ionen deutlich höhere Ausbeuten als durch die Kaskadenzerstäubung erklärbar waren. Für diese Ausbeutenerhöhung wurden nichtlineare thermische Effekte analog zu Ref. [101] verantwortlich gemacht. Die TS-Rechnungen wurden für Au_1 durchgeführt, um vergleichbare Bedingungen mit unseren Experimenten zu haben. Ausnahmsweise wurde für diese Simulationen nicht der einheitliche Wert von $R_d = 15 \text{Å}$ verwendet, sondern Werte aus Ref. [3], die dort an die gemessenen Ausbeuten angepaßt wurden ($R_d = 20 - 25 \text{Å}$). Elektronische Effekte wurden bei diesen Simulationen vernachlässigt, nicht jedoch die Kopplung zwischen atomarem und elektronischem System, die für die Wärmeleitung wichtig ist. Die Ergebnisse unserer Simulationen (TS+TC: thermischer + linearer Anteil) sind in Abb. 5.5 zusammen mit den Messungen aus Ref. [3, 12] dargestellt.

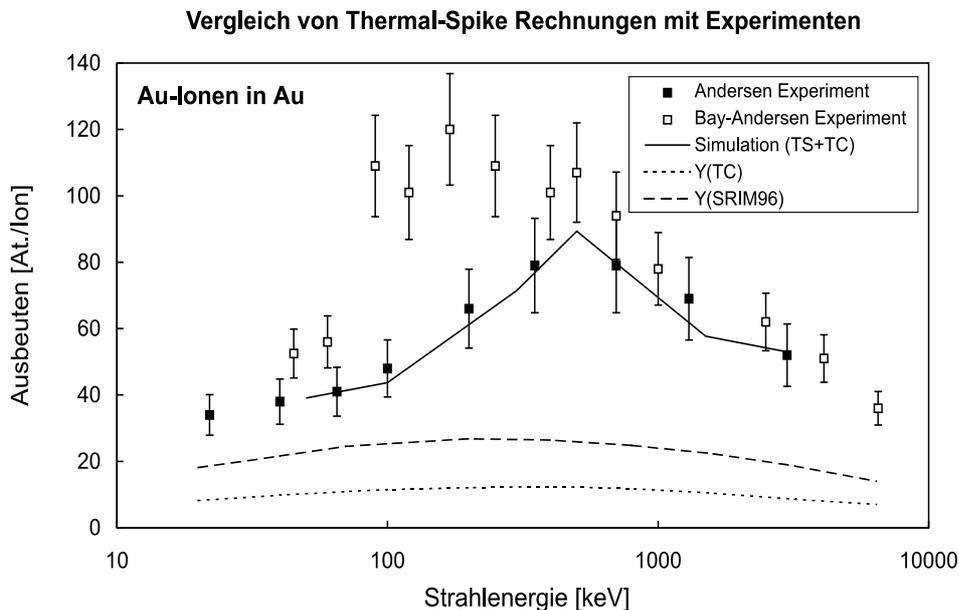


Abbildung 5.5: Thermal-Spike Rechnungen dieser Arbeit (TS+TC) im Vergleich mit Messungen im Bereich des nuklearen Energieverlustmaximums [3, 12].

Im Rahmen der erwarteten Genauigkeit der Simulation ist die Übereinstimmung mit den Messungen gut. Der Vergleich mit Ergebnissen der linearen Kaskadenzerstäubung (berechnet mit SRIM96 bzw. TC) zeigt klar, daß diese die Ausbeuten unterschätzen. Der Vergleich der Messungen untereinander verdeutlicht die bereits erwähnte Reproduzierbarkeit üblicher Zerstäubungsmessungen von einem Faktor 2.

Die gute Übereinstimmung zeigt, daß das erweiterte Thermal-Spike Programm in der Lage ist, nichtlineare (hier nukleare) thermische Effekte bei der Zerstäubung wiederzugeben. Um den thermischen Einfluß sowohl nuklearer wie elektronischer Herkunft zu studieren, wurden Simulationsrechnungen für Au , Ti und Zr mit elektronischem, nuklearem und beiden Beiträgen gemeinsam durchgeführt.

5.3.4 Ergebnisse der Thermal-Spike Simulationen

5.3.4.1 Thermal-Spike Rechnungen für *Au*

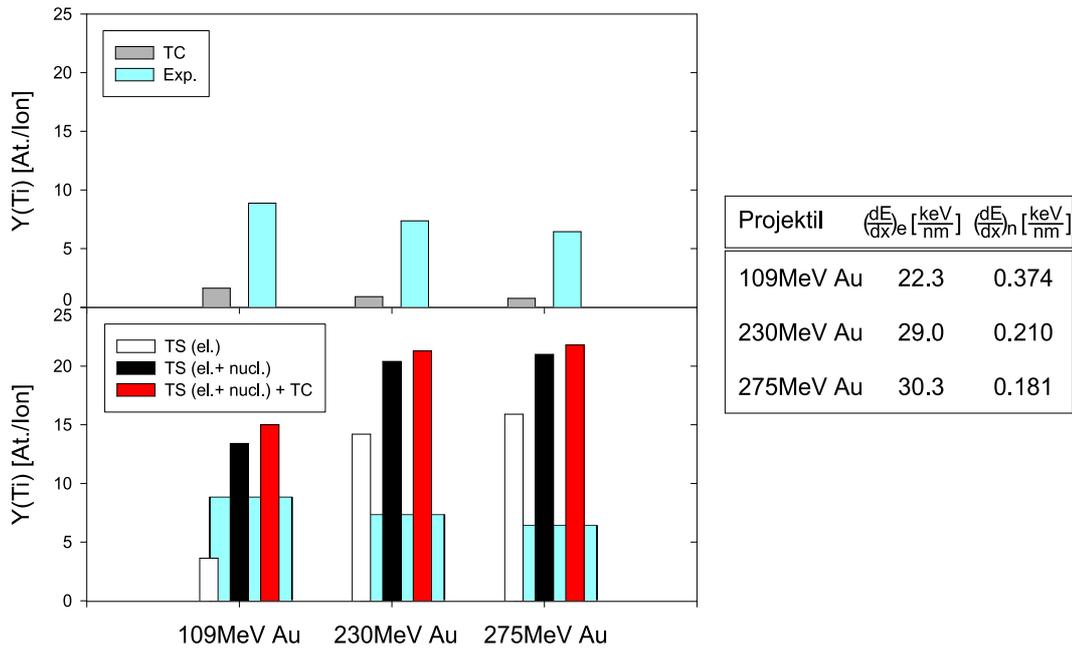
Bei *Au* ergaben sich bei unseren Messungen keine Hinweise auf elektronische Effekte. In der Simulation wurde abgeschätzt, wie groß der nichtlineare thermische Einfluß maximal sein kann. Dazu wurde ein unrealistisch hoher Energieeintrag angenommen, nämlich der maximale nukleare (109MeV Au) und der maximale elektronische (275MeV Au) Energieverlust unserer Experimente: $(\frac{dE}{dx})_n = 1.1\frac{\text{keV}}{\text{nm}}$ und $(\frac{dE}{dx})_e = 60\frac{\text{keV}}{\text{nm}}$. Die TS-Rechnungen zeigten, daß sogar in diesem Fall der nichtlineare Beitrag mit $Y_{n+e} = 0.91$ relativ klein ist und im Rahmen des Fehlers nicht meßbar wäre. Bei rein nuklearem Heizen wäre die thermische Ausbeute $Y_n = 0.65$, und bei rein elektronischem Heizen wird die Verdampfungstemperatur nicht erreicht, so daß $Y_e = 0$ ist. Die Rechnungen bestätigen damit, auch bei Berücksichtigung eines nuklearen thermischen Beitrags, die elektronische Unempfindlichkeit von *Au*.

5.3.4.2 Thermal-Spike Rechnungen für *Ti*

Für *Ti* wurden Rechnungen mit drei Energien (109 , 230 und 275MeV Au) durchgeführt, um den Einfluß der verschiedenen nichtlinearen Beiträge zu studieren. In Abb. 5.7 und 5.8 ist die zeitliche und räumliche Temperaturentwicklung um die Ionenspur für 109MeV bzw. 275MeV Au dargestellt. Es ist zu erkennen, daß bei 109MeV mit $(\frac{dE}{dx})_e = 22.3\frac{\text{keV}}{\text{nm}}$ alleine der elektronische Energieverlust bereits zu einer Überschreitung der Verdampfungstemperatur in einem Radius von 4Å führt. Obwohl das nukleare Heizen mit $(\frac{dE}{dx})_n = 0.374\frac{\text{keV}}{\text{nm}}$ bei dieser Energie am stärksten ist, wird alleine dadurch die Verdampfungstemperatur nicht überschritten. Beide Beiträge zusammen erreichen jedoch eine Maximaltemperatur von nahezu 12000K und überschreiten die Verdampfungstemperatur in einem Radius von $12\text{-}13\text{Å}$.

Bei 275MeV führt der elektronische Energieverlust von $30.3\frac{\text{keV}}{\text{nm}}$ alleine schon zu einer Überschreitung von T_v innerhalb eines Radius von $6\text{-}8\text{Å}$ und einer Maximaltemperatur von fast 6000K , wohingegen das nukleare Heizen alleine kaum zum Schmelzen ausreicht. Der Temperaturanstieg der gemeinsamen Beiträge fällt mit ca. 11000K nahezu gleich aus wie im Fall von 109MeV . Der Radius verdampften Materials ist mit 15Å jedoch etwas größer. Der nukleare Beitrag hat somit bei 109MeV einen deutlich stärkeren Einfluß auf den Temperaturanstieg.

In Abb. 5.6 sind alle Ergebnisse der TS-Rechnungen zusammen mit den TC-Werten und den gemessenen Ausbeuten abgebildet. Obwohl die TC-Rechnungen den Trend der Meßergebnisse durchaus wiedergeben, hat die Untersuchung der Ladungszustandsabhängig-

Abbildung 5.6: Ergebnisse der Thermal-Spike Rechnungen für Ti .

keit eindeutig einen signifikanten elektronischen Einfluß nachgewiesen. Das spiegelt sich auch in den bis zu 8-fach höheren Ausbeuten im Vergleich zu TC-Rechnungen wieder, so daß nukleare Zerstäubung alleine nicht in der Lage ist, die Ergebnisse zu erklären. Die Thermal-Spike Rechnungen mit rein elektronischem Heizen TS(el.) können das Verhalten der gemessenen Ausbeuten jedoch auch nicht richtig wiedergeben. Bei 109MeV ist die elektronische Ausbeute etwa einen Faktor 2 zu gering und bei 230MeV und 275MeV um etwa denselben Faktor zu hoch. Durch die zusätzliche Berücksichtigung des nuklearen Heizens TS(el.+nucl.) wird der thermische Beitrag für 109MeV im Vergleich zu den höheren Energien deutlich angehoben.

Bei Berücksichtigung aller Komponenten zeigt sich somit eine Entwicklung in die richtige Richtung, obwohl die Rechnungen nicht in der Lage waren, das Verhalten der Ausbeuten genau wiederzugeben. Die Tatsache, daß der thermische Anteil deutlich höher war als die gemessenen Ausbeuten zeigt, daß wichtige Simulationsparameter in diesem Fall zu ungenau bekannt sind (z.B. R_d), um eine bessere Übereinstimmung erzielen zu können. Das erwartete Verhalten wird jedoch tendenziell richtig wiedergegeben, so daß die zugrundegelegten Mechanismen die gemessenen Ausbeuten prinzipiell erklären können.

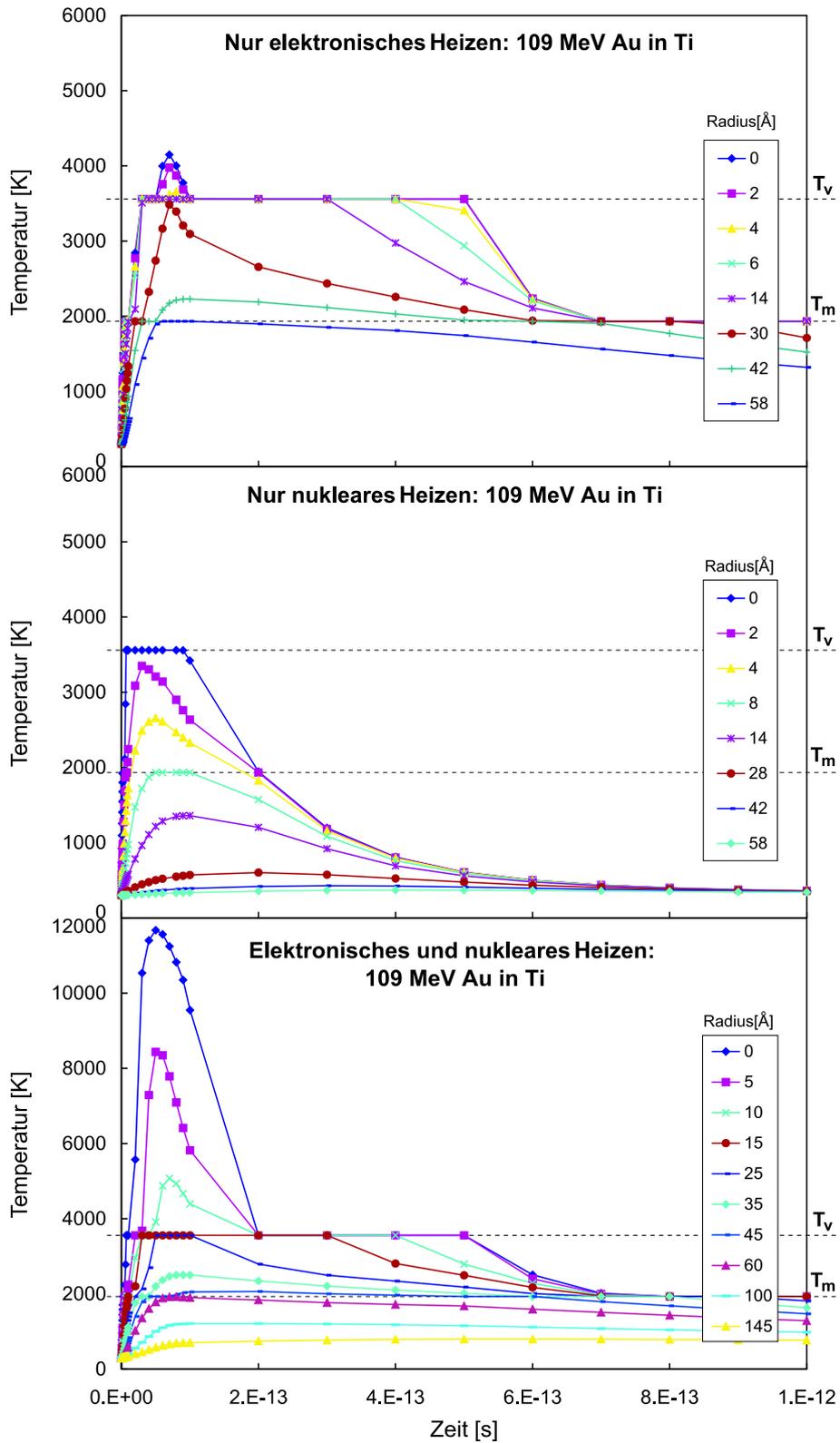


Abbildung 5.7: Zeitlicher und räumlicher Temperaturverlauf aus Thermal-Spike Rechnungen für $109\text{MeV Au} \rightarrow \text{Ti}$. T_m bzw. T_v sind die Schmelz- bzw. Verdampfungstemperatur.

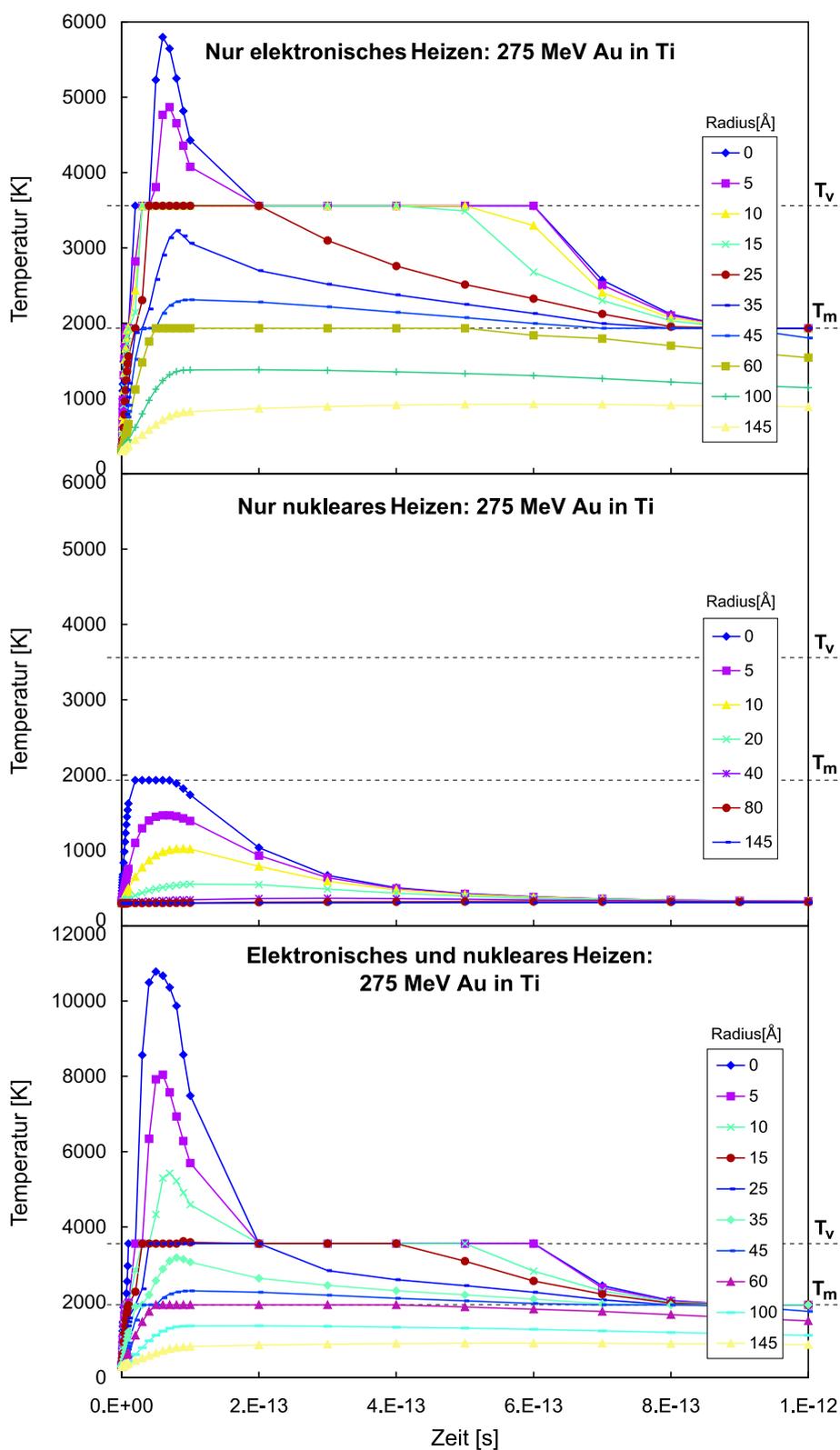


Abbildung 5.8: Zeitlicher und räumlicher Temperaturverlauf aus Thermal-Spike Rechnungen für $275\text{MeV Au} \rightarrow \text{Ti}$. T_m bzw. T_v sind die Schmelz- bzw. Verdampfungstemperatur.

5.3.4.3 Thermal-Spike Rechnungen für Zr

Bei Zr ergaben die TS-Rechnungen weder für elektronisches noch für nukleares Heizen alleine einen Beitrag zur Zerstäubung, da in beiden Fällen die Verdampfungstemperatur nicht überschritten wurde. Erst beide Beiträge gemeinsam erreichten Temperaturen größer T_v . Der zeitliche und räumliche Temperaturverlauf in Zr ist am Beispiel von 275MeV Au -Ionen in Abb. 5.10 zu sehen. Dies Ergebnis bestätigt die bei Ti gemachte Beobachtung, daß es sich nicht um einen rein elektronischen Effekt handelt, sondern um einen thermischen Beitrag aufgrund des Zusammenwirkens beider Energieverlustarten.

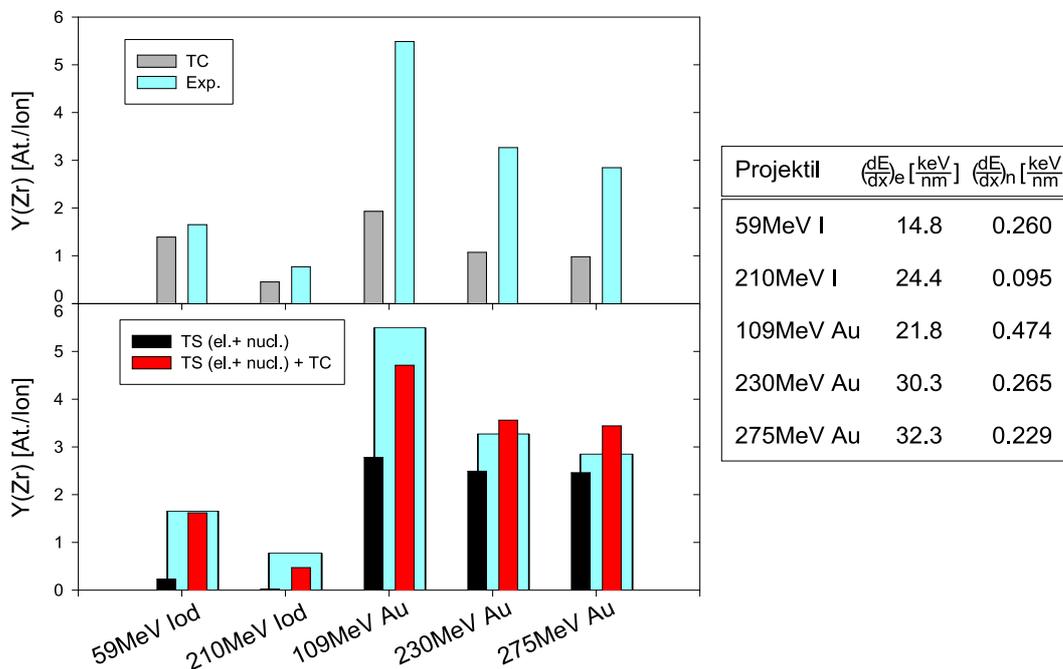


Abbildung 5.9: Ergebnisse der Thermal-Spike Rechnungen für Zr .

In Abb. 5.9 sind die verschiedenen thermischen Beiträge gemeinsam mit den Kaskaden- ausbeuten und den experimentell ermittelten Werten dargestellt. Der Vergleich mit TC- Rechnungen zeigt bei geringen Energien (59MeV Iod) recht gute Übereinstimmung mit den gemessenen Ausbeuten, bei hohen Energien jedoch deutliche Abweichungen. Nimmt man aber die thermischen Beiträge $TS(\text{el.}+\text{nucl.})$ hinzu, so werden die gemessenen Er- gebnisse gut reproduziert. Die wesentlich bessere Übereinstimmung der gemessenen und berechneten Ausbeuten im Vergleich zu Ti deutet darauf hin, daß hier die gewählten Simulationsparameter (z.B. R_d) näher an den tatsächlichen Werten liegen dürften.

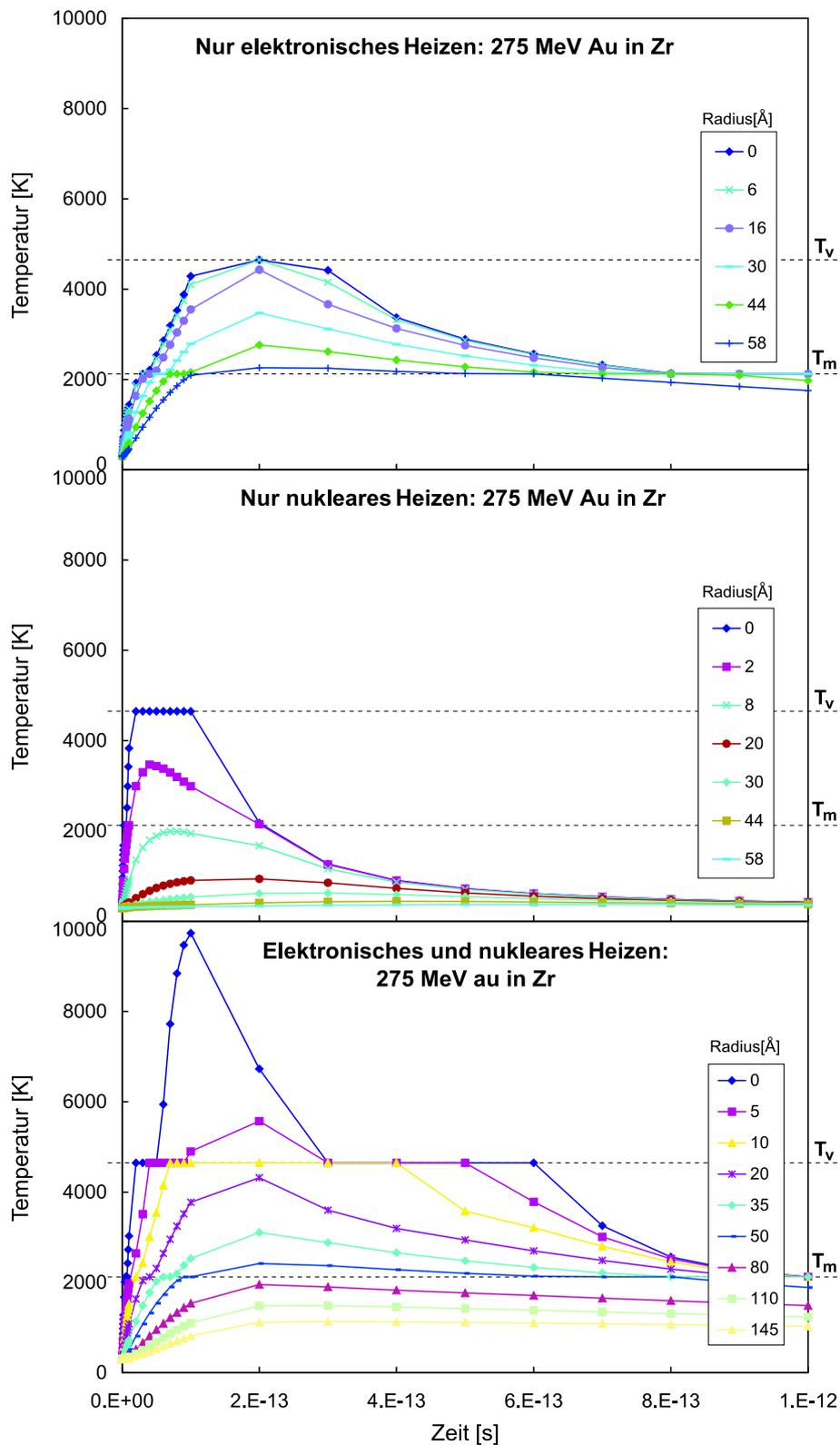


Abbildung 5.10: Zeitlicher und räumlicher Temperaturverlauf aus Thermal-Spike Rechnungen für $275\text{MeV Au} \rightarrow \text{Zr}$. T_m bzw. T_v sind die Schmelz- bzw. Verdampfungstemperatur.

5.3.5 Schwellenverhalten bei der nichtlinearen Zerstäubung

Nach dem Thermal-Spike Modell sind auch hier Energieverlustschwelen zu erwarten, die überschritten werden müssen, um einen elektronischen Beitrag zur Zerstäubung zu erhalten. Obwohl sich gezeigt hat, daß der nukleare Einfluß auf die thermischen Ausbeuten nicht vernachlässigbar ist, und trotz der Unsicherheit des elektronischen Energieverlustes für Projektile außerhalb des Ladungsgleichgewichts, können die $(\frac{dE}{dx})_e$ -Schwellenwerte auch in unseren Experimenten beobachtet werden. Dies ist beispielhaft für Ti in Abb. 5.11 gezeigt.

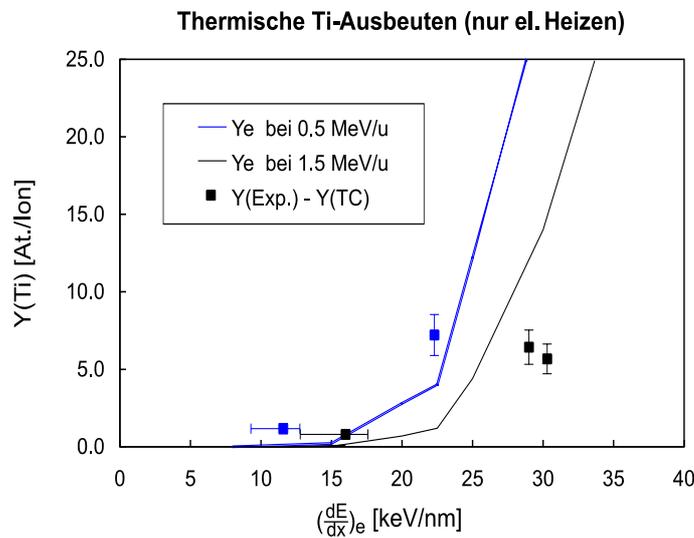


Abbildung 5.11: Energieverlustschwelle für elektronische Zerstäubung von Ti . Die Linien zeigen die $(\frac{dE}{dx})_e$ -Abhängigkeit der elektronischen Ausbeuten aus TS-Simulationen für verschiedene Projektilgeschwindigkeiten. Bei den Meßpunkten wurde der Kaskadenanteil subtrahiert, um die thermischen Beiträge hervorzuheben. Die beiden niederenergetischen Datenpunkte (55 und 210 MeV Iod) sind Meßwerte außerhalb des Ladungsgleichgewichts, so daß die $(\frac{dE}{dx})_e$ -Werte unsicherer sind. Die Schwelle für elektronische Zerstäubung liegt sowohl nach den Rechnungen als auch nach den Messungen um $20 \frac{keV}{nm}$.

Die TS-Simulationen zeigen, abhängig von der Projektilgeschwindigkeit, einen elektronischen Beitrag ab $(\frac{dE}{dx})_e$ -Werten von 16 bzw. $20 \frac{keV}{nm}$. Die Meßpunkte könnten noch Beiträge durch das nukleare Heizen enthalten, wodurch die Bestimmung der $(\frac{dE}{dx})_e$ -Schwelle erschwert wird. Dennoch kann aus den Ergebnissen abgeschätzt werden, daß die Schwelle für elektronische Zerstäubung, in Übereinstimmung mit den Simulationsergebnissen, um $20 \frac{keV}{nm}$ liegen muß. Entsprechend wurden die S_e -Schwellen für die restlichen Targets aus der Gesamtheit der Meßergebnisse gewonnen und in Tab. 5.9 zusammengestellt.

Aufgrund der Unsicherheit des elektronischen Energieverlustes und der großen Abstände in den Projektilenergien sind die angegebenen Schwellenwerte relativ ungenau. Im Rah-

Target	$(\frac{dE}{dx})_e$ -Schwelle für el. Zerstäubung (aus exp. Werten)	$(\frac{dE}{dx})_e$ -Schwelle für el. Zerstäubung (aus TS-Rechnungen)	$(\frac{dE}{dx})_e$ -Schwelle für Spurbildung (aus Ref. [85, 118])
<i>Ti</i>	$20 \pm 4 \frac{keV}{nm}$	$18 \pm 2 \frac{keV}{nm}$	$10 \pm 3 \frac{keV}{nm}$
<i>Mn</i>	$30 \pm 6 \frac{keV}{nm}$	-	-
<i>Ge</i>	$20 \pm 4 \frac{keV}{nm}$	-	-
<i>Zr</i>	$25 \pm 4 \frac{keV}{nm}$	-	$20 \pm 5 \frac{keV}{nm}$
<i>Au</i>	$(> 60 \frac{keV}{nm})$	$(> 60 \frac{keV}{nm})$	-
<i>YIG</i>	$13 \pm 5 \frac{keV}{nm}$	$16 \pm 3 \frac{keV}{nm}$ [85]	$4 \pm 2 \frac{keV}{nm}$

Tabelle 5.9: Energieverlustschwelle für elektronische Zerstäubung und Kernspurbildung.

men der Fehler zeigt sich jedoch eine Übereinstimmung mit den bereits bekannten Literaturwerten. Es zeigt sich auch, wie bereits erwähnt, daß die Schwellenwerte für elektronische Zerstäubung höher liegen als für Materialschädigung (Kernspurbildung). Dies bestätigt die Annahme, daß für die Kernspurbildung die Schmelztemperatur und für elektronische Zerstäubung die Verdampfungstemperatur überschritten werden müssen.

5.4 Diskussion der Ergebnisse

Die Experimente dieser Arbeit haben gezeigt, daß bei den unedlen Metallen *Ti*, *Zr* und *Mn* sowie auch beim Halbleiter *Ge* ein elektronischer Beitrag zur Zerstäubung existiert. Das Edelmetall *Au* zeigte bis zu hohen elektronischen Energieverlusten von $60 \frac{keV}{nm}$ keine elektronischen Effekte. Der Vergleich der Ladungszustandsabhängigkeit der gemessenen Isolatoren mit der von Metallen zeigt, daß auch für die elektronisch sehr empfindlichen Isolatoren unterhalb des Ladungsgleichgewichts nur eine relativ schwache Abhängigkeit besteht, die mit der bisherigen Literatur übereinstimmt [10, 97, 123]. Ob der Zusammenhang tatsächlich linear ist und bei Überschreitung des mittleren Ladungszustands q_{GG} in eine q^4 -Proportionalität übergeht, konnte in dieser Arbeit nicht geprüft werden, da mit dem Garching Tandembeschleuniger nur geringe Variationen des Ladungszustands möglich sind.

Zum Vergleich mit unseren Ergebnissen gibt es nur sehr wenig Literatur bei so hohen Energien. Messungen an *Au*-Folien mit *Cf*-Spaltfragmenten ($(\frac{dE}{dx})_e \approx 23 \frac{keV}{nm}$ und $(\frac{dE}{dx})_n \approx 0.6 \frac{keV}{nm}$) von Baranov et al. [10] ergaben bei senkrechtem Einfall Ausbeuten zwischen 3-10 Atomen pro Fragment. Unter Berücksichtigung der Einfallswinkelabhängigkeit und der nicht so gut definierten Projektileigenschaften von Spaltfragmenten ist dies

im Rahmen der Fehler vergleichbar mit unseren Messungen. Von Cheblukov et al. [30] wurden Messungen an Au mit U -Ionen im Energiebereich von $1.5 - 5.5 \frac{MeV}{u}$ durchgeführt. Die Messung der Ausbeuten sowie die Energievariation erfolgte durch Mehrschichtpakete von Au -, C - und Al -Folien. Die C -Folien dienten als Kollektor für die zerstäubten Atome und die Al -Folien der Abbremsung der Ionen. Es zeigte sich ein Maximum der Ausbeuten bei $2 \frac{MeV}{u}$, die mit ca. $15 - 30 \frac{Atomen}{Ion}$ (bei senkrechtem Einfall) wesentlich über den Kaskadenausbeuten ($\approx 1 \frac{Atom}{Ion}$) lagen. Bei der niedrigsten Energie von $1.5 MeV U$ ($(\frac{dE}{dx})_e = 69 \frac{keV}{nm}$ und $(\frac{dE}{dx})_n = 0.67 \frac{keV}{nm}$) sind die Energieverluste vergleichbar mit denen für $230 MeV Au$ -Ionen. Dennoch waren auch hier die Ausbeuten mit ca. $20 \frac{Atomen}{Ion}$ fast eine Größenordnung höher als unsere Ergebnisse (bei Berücksichtigung der Einfallswinkelabhängigkeit). In Ref. [30] wurde versucht, dies durch Abschätzung eines Thermal-Spikes zu erklären. Unsere Thermal-Spike Rechnungen bei $3.6 \frac{MeV}{u} U$ -Ionen ($(\frac{dE}{dx})_e = 90 \frac{keV}{nm}$ und $(\frac{dE}{dx})_n = 0.33 \frac{keV}{nm}$) ergaben jedoch mit maximal $1740 K$ eine Temperatur deutlich unterhalb der Verdampfungstemperatur von Au und damit keinen thermischen Beitrag zur Zerstäubung. Diese Abweichungen können daher nicht erklärt werden.

Von O'Connor et al. [89] wurden an Nb mit $70 MeV Br$ Ionen ($(\frac{dE}{dx})_e = 19 \frac{keV}{nm}$ und $(\frac{dE}{dx})_n = 0.1 \frac{keV}{nm}$) Messungen unter UHV-Bedingungen durchgeführt, die keine signifikante Abweichung von der Kaskadentheorie zeigten. Daraus wurde geschlossen, daß es keine elektronische Zerstäubung bei Metallen gibt. Da Nb im Rahmen des Thermal-Spike Modells als elektronisch unempfindlich eingestuft wird, ist das zusammen mit unseren Ergebnissen jedoch eine weitere Bestätigung der Voraussagen dieses Modells.

Eine Analyse der Ergebnisse im Rahmen eines erweiterten Thermal-Spike Modells verdeutlichte, daß elektronisches Heizen alleine nicht in der Lage war, die Messungen zu erklären. Erst die Kombination beider Heizmechanismen (elektronisch und nuklear) zusammen mit dem Kaskadenanteil konnte das Verhalten der gemessenen Ausbeuten tendenziell richtig wiedergeben. Damit beeinflußt der nukleare Energieverlust in zweifacher Weise die Zerstäubung, und sein starker Abfall mit steigender Energie setzt sich gegenüber $(\frac{dE}{dx})_e$ durch. Eine genaue Übereinstimmung der Simulationen mit den experimentellen Ergebnissen war aufgrund nur ungenau bekannter Simulationsparameter, z.B. dem Radius der deponierten Energie R_d und der Wärmeleitfähigkeit oberhalb T_m und T_v , nicht zu erwarten. Das insgesamt richtige Verhalten zeigt jedoch, daß die wesentlichen Mechanismen, die zur Zerstäubung bei hohen Energien beitragen, berücksichtigt wurden.

Nach den Simulationen korreliert das Auftreten des thermischen Anteils zur Zerstäubung eindeutig mit dem Überschreiten der Verdampfungstemperatur. Die dafür nötigen Energieverlustschwelle konnten für T_i sowohl aus den experimentellen Daten als auch mit

TS-Rechnungen in guter Übereinstimmung ermittelt werden. Somit sollten die Energieverlustschwelen für elektronische Zerstäubung bei anderen Targets ebenfalls durch das Auftreten der Dampfphase entlang der Ionenspur bestimmt sein. Die in Ref. [118] angegebenen Schwellenwerte und Voraussagen über elektronische Empfindlichkeit müssen hierbei klar unterschieden werden, da sie sich lediglich auf die Bildung von Kernspuren beziehen, die mit der Schmelztemperatur korreliert ist. Die Schwellenwerte für elektronisches Zerstäuben sind damit höher, und Materialien, die Kernspuren aufweisen, könnten unter Umständen unempfindlich auf elektronisches Zerstäuben sein. Für die in dieser Arbeit untersuchten Metalle bestätigten die Messungen jedoch, daß die in Ref. [118] gemachten Aussagen zur elektronischen Empfindlichkeit auch für elektronisches Zerstäuben zutreffend waren.

Kapitel 6

Zusammenfassung und Ausblick

Ziel dieser Arbeit war es, elektronische Effekte bei der Zerstäubung reiner Metalle mit hochenergetischen schweren Ionen nachzuweisen. *Au* erwies sich als elektronisch unempfindliches Material, wohingegen bei *Zr* und insbesondere bei *Ti* ein ausgeprägter Einfluß des Ladungszustands gemessen wurde. Damit konnte zum ersten Mal zweifelsfrei ein elektronischer Beitrag zur Zerstäubung reiner Metalle gezeigt werden, der jedoch von gleicher Größenordnung wie die nuklearen Ausbeuten und somit wesentlich kleiner als bei Isolatoren war. Entscheidend für den Nachweis dieser relativ geringen Effekte war die Verwendung sehr glatter Proben, die zusammen mit UHV-Bedingungen erst eine ausreichend gute Reproduzierbarkeit ermöglichten. Durch Verwendung eines gasgefüllten Teilchendetektors zur in-situ Targetanalyse war es möglich, saubere Oberflächen nach der in-situ Targetreinigung nachzuweisen und den starken Einfluß von Oberflächenoxiden zu zeigen. Die Untersuchung der Winkelverteilungen ergab, daß die Oberflächenrauigkeit generell nicht so kritisch ist, wie ursprünglich angenommen wurde, daß es aber unter gewissen Umständen tatsächlich zu drastischen Veränderungen der Form der Winkelverteilungen kommen kann, so daß dieser Punkt bei Zerstäubungsmessungen generell beachtet werden muß.

Durch Rechnungen mit dem Thermal-Spike Modell wurde gezeigt, daß die beobachteten Effekte nicht rein elektronischer Natur waren. Erst die Erweiterung des Modells durch Berücksichtigen beider Energieverlustarten zum Heizen der Ionenspur konnte zusammen mit dem Kaskadenanteil die experimentellen Ergebnisse reproduzieren. Obwohl eine exakte Übereinstimmung aufgrund von teilweise nur ungenau bekannten Parametern nicht möglich war, zeigt das insgesamt richtige Verhalten, daß die wesentlichen Mechanismen bei der Zerstäubung von Metallen in diesem Energiebereich durch das Modell prinzipiell richtig beschrieben werden.

Für ein besseres Verständnis der einzelnen Beiträge zum Thermal-Spike sind noch weitere systematische Untersuchungen notwendig. Durch Änderung sowohl des elektronischen als auch des nuklearen Energieverlustes in weiten Bereichen könnten die Experimente durch Simulationen besser angepaßt und bisher ungenau bekannte Parameter besser bestimmt werden. Auch die Verwendung von Clusterstrahlen würde sicherlich interessante Ergebnisse erwarten lassen, da viel höhere Energieverluste erreicht werden können als mit einfachen Ionen prinzipiell möglich sind. Schwierigkeiten beim Nachweis der zerstäubten Teilchen aufgrund der relativ geringen Clusterströme könnten durch mittlerweile verbesserte Nachweistechiken (ortsauflösende TRFA) umgangen werden. Gleichzeitig wäre damit auch ein eingehendes Studium des Geschwindigkeitseffekts möglich, da im Vergleich zu Schwerionen dieselben Energieverluste bei wesentlich geringeren Geschwindigkeiten erreicht werden.

Mittels resonanter Laserionisation könnten auch Energieverteilungen sowie Ladungs- und Anregungszustände zerstäubter Teilchen gemessen werden [62, 68, 125]. Die Energieverteilungen elektronisch zerstäubter Atome sind deutlich zu geringen Energien verschoben (thermalisiert). Sie haben eine mittlere Energie von $1\text{-}2\text{eV}$ statt einigen 10eV wie bei der Kaskadenzerstäubung [97]. Aufgrund dieser charakteristischen Signatur wäre ein direkter Beweis des thermischen Ursprungs elektronisch zerstäubter Atome auch bei Metallen möglich.

Als Nebenprodukt der Zerstäubungsmessungen wurde festgestellt, daß einige Targets, speziell *Ti* und *Mn*, durch die Bestrahlung dramatische Veränderungen sowohl der Kristallstruktur als auch der Oberflächenbeschaffenheit erfahren. Diese bisher unbekannt und unverstandenen Effekte eröffnen ebenfalls ein weites Betätigungsfeld zur Untersuchung elektronisch induzierter Materialveränderungen aufgrund von hochenergetischer Ionenstrahlung. Der Einbau von RHEED- (Reflection High-Energy Electron Diffraction) oder LEED-Systemen (Low Energy Electron Diffraction) in die UHV-Anlage würde es erlauben, die Veränderung der Oberflächen durch die Bestrahlung mittels Elektronenbeugung in-situ zu studieren.

Insgesamt zeigen die Ergebnisse, daß bei der Wechselwirkung hochenergetischer Ionen mit Festkörpern noch viele Fragestellungen offen und sicher noch einige Überraschungen zu erwarten sind.

Anhang A

Notation

Abkürzungen

REM	Raster-Elektronen-Mikroskop
TEM	Transmissions-Elektronen-Mikroskop
RKM	Raster-Kraft-Mikroskop
RBS	Rutherford Backscattering Spectrometry
ERD	Elastic Recoil Detection
XRD	X-Ray Diffraction
TRFA	Totalreflektierende Röntgen-Fluoreszenz-Analyse
TS	Thermal-Spike
QMS	Quadrupol Massen-Spektrometer
FB	Faraday-Becher
HV	Hoch-Vakuum
UHV	Ultra-Hoch-Vakuum
YIG	$Y_3Fe_5O_{12}$

Physikalische Konstanten

a_0	Bohrradius (0.529\AA)
e	Elementarladung ($1.6022 \cdot 10^{-19}C$)
ϵ_0	Elektrische Feldkonstante ($8.8542 \cdot 10^{-12}CV^{-1}m^{-1}$)
\hbar	Plancksche Konstante ($1.054 \cdot 10^{-34}Js^{-1}$)
k_B	Boltzmannkonstante ($1.38 \cdot 10^{-23}JK^{-1}$)
L	Lorenz-Zahl ($2.45 \cdot 10^{-8}W\Omega K^{-2}$)
v_0	Bohrgeschwindigkeit ($v_0 = e^2/\hbar \approx 2.188 \cdot 10^6ms^{-1}$)

Anhang B

Materialparameter der verwendeten Targets

Target	Verteilung	Exponent (TC)	Exponent (gemessen)
<i>Au</i>	$\cos^n(\theta)$	1.76	3.8
<i>Ti</i>	$\cos^n(\theta)$	1.44	2.6
<i>Zr</i>	$\cos^n(\theta)$	1.44	3.2
<i>CsI</i>	$\cos^n(\theta)$	1.57	2.7
<i>Mn</i>	$\cos^n(\theta)$	1.68	3.3*
<i>Ge</i>	$\cos^n(\theta)$	1.51	3.0*
<i>Fe(YIG)</i>	$\exp(-n \theta)$	(1.35)	1.9
<i>Y(YIG)</i>	$\exp(-n \theta)$	(1.46)	5.7

Tabelle B.1: *cos*-Exponenten der Targets für die Berechnung der totalen Ausbeuten. Die mit * gekennzeichneten Exponenten wurden extrapoliert.

Target	T_m [K]	T_v [K]	E_b [eV]	$\rho(293K)$ [g/cm ³]	$\sigma(295K)$ 10 ⁵ /Ωcm	S_e - sensitiv
<i>Ti</i>	1933	3560	4.85	4.51	0.23	Ja
<i>Mn</i>	1520	2235	2.92	7.47	0.072	Ja
<i>Ge</i>	1211	3103	3.85	5.32	2 · 10 ⁻⁵	unklar
<i>Zr</i>	2123	4650	6.25	6.51	0.24	Ja
<i>Au</i>	1336	3243	3.81	19.3	4.55	Nein
<i>YIG</i>	1828	unbek.	~ 4	5.15	-	Ja
<i>CsI</i>	899	1553	1.4	4.51	-	Ja

Tabelle B.2: Die wichtigsten Materialeigenschaften der verwendeten Targetmaterialien. T_m , T_v sind die Schmelz- bzw. Verdampfungstemperatur, E_b die Bindungsenergie, ρ die Dichte und σ die elektrische Leitfähigkeit. Die Aussagen zur S_e -Sensitivität kommen aus Ref. [41, 118]

	<i>Ti</i>		<i>Zr</i>		<i>Au</i>
Temp. [K]	$C [\frac{J}{g \cdot K}]$	Temp. [K]	$C [\frac{J}{g \cdot K}]$	Temp. [K]	$C [\frac{J}{g \cdot K}]$
300	0.522	300	0.278	300	0.126
373	0.540	1000	0.312	373	0.130
473	0.569	> T_m	0.367	773	0.142
673	0.619			1173	0.151
873	0.636			> T_m	0.150
1073	0.682				
> T_m	0.700				
Temp. [°C]	$K [\frac{W}{cm \cdot K}]$	Temp. [°C]	$K [\frac{W}{cm \cdot K}]$	Temp. [°C]	$K [\frac{W}{cm \cdot K}]$
300	0.160	300	0.169	300	2.93
373	0.150	400	0.162	373	2.93
473	0.150	500	0.160	773	1.20
673	0.140	600	0.160	1173	0.70
873	0.130	700	0.164	> T_m	1.05
> T_m	0.230	800	0.170		
> T_v	0.020	> T_m	0.150		
		> T_v	0.020		

Tabelle B.3: Spezifische Wärmekapazität C und Wärmeleitfähigkeit K von *Au*, *Ti* und *Zr*, in Abhängigkeit von der Materialtemperatur [25, 118].

Anhang C

Technische Daten der Ionisationskammer

Bezeichnung	Material		Maße
Kammer	V2A-Stahl	Innenmaße	$\phi 100 \times 213mm^3$
	Aktives Volumen		$40 \times 61 \times 160mm^3$
Anode	V2A-Stahl	Platte	$64 \times 172 \times 3mm^3$
Kathode	V2A-stahl	Platte	$64 \times 172 \times 3mm^3$
Frischgitter	V2A-Stahl	Außenmaße (Rahmen)	$172 \times 76 \times 5mm^3$
		Innenmaße	$160 \times 60 \times 5mm^3$
		Abstand zur Anode	$8mm$
		Abstand zur Kathode	$40mm$
		Wolfram, vergoldet	Drahtdurchmesser
		Drahtabstand	$0.25mm$
Eintrittsfenster	Mylar, Al-beschichtet	Folie UHV-Seite	$0.9\mu m$
		Folie Druckseite	$1.5\mu m$
		Durchmesser	$\phi 12mm$
Raumwinkel		Ab Target	$1.83msr$

Tabelle C.1: Technische Daten der Ionisationskammer.

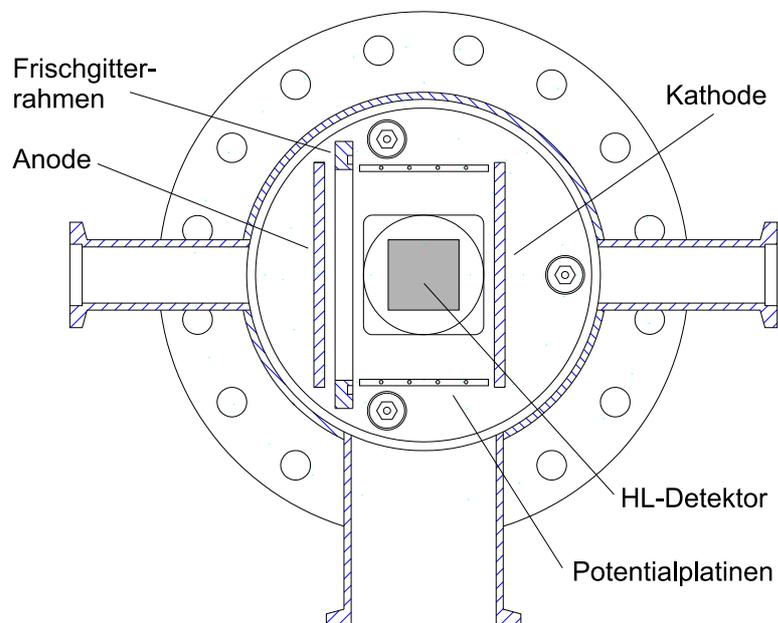
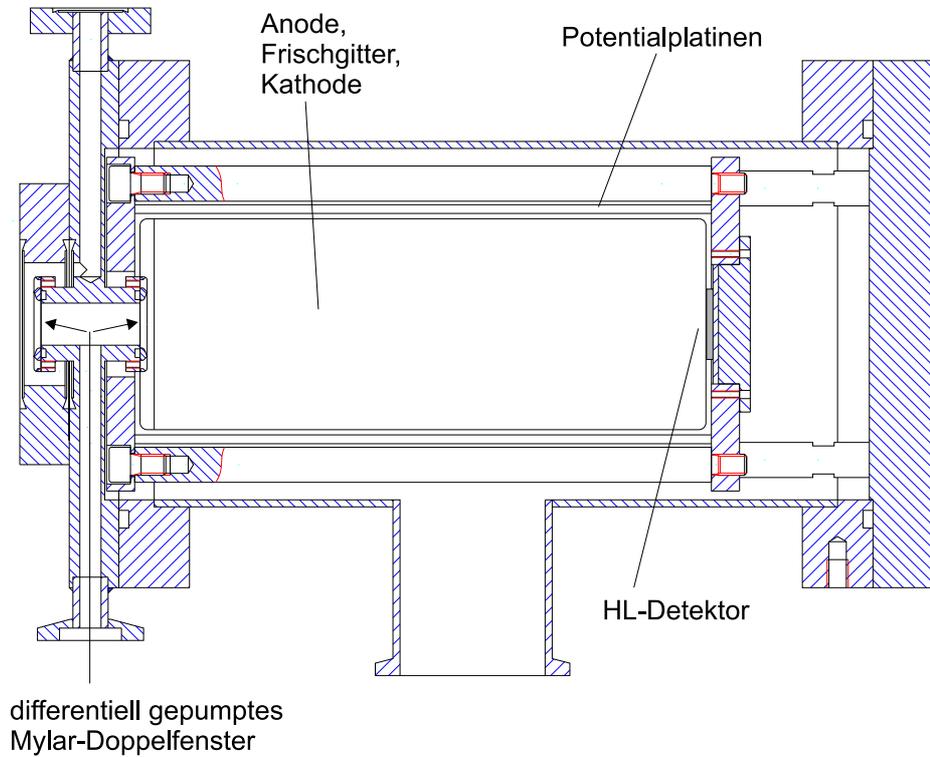


Abbildung C.1: Aufbau der Ionisationskammer, oben im Längsschnitt, unten im Querschnitt.

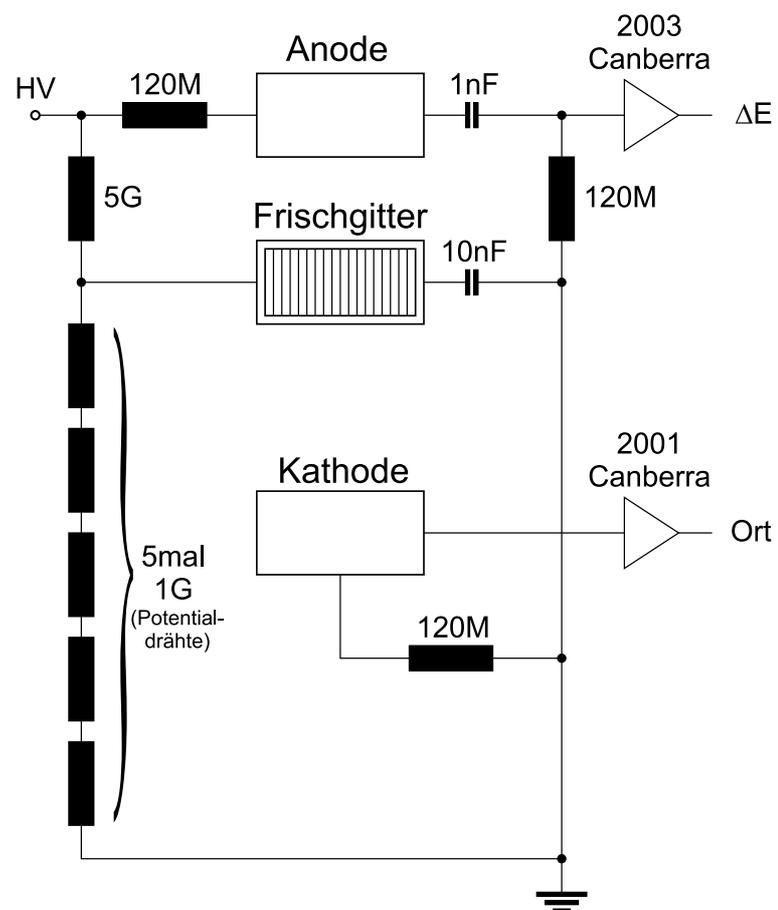


Abbildung C.2: Die elektronische Verschaltung der Ionisationskammer.

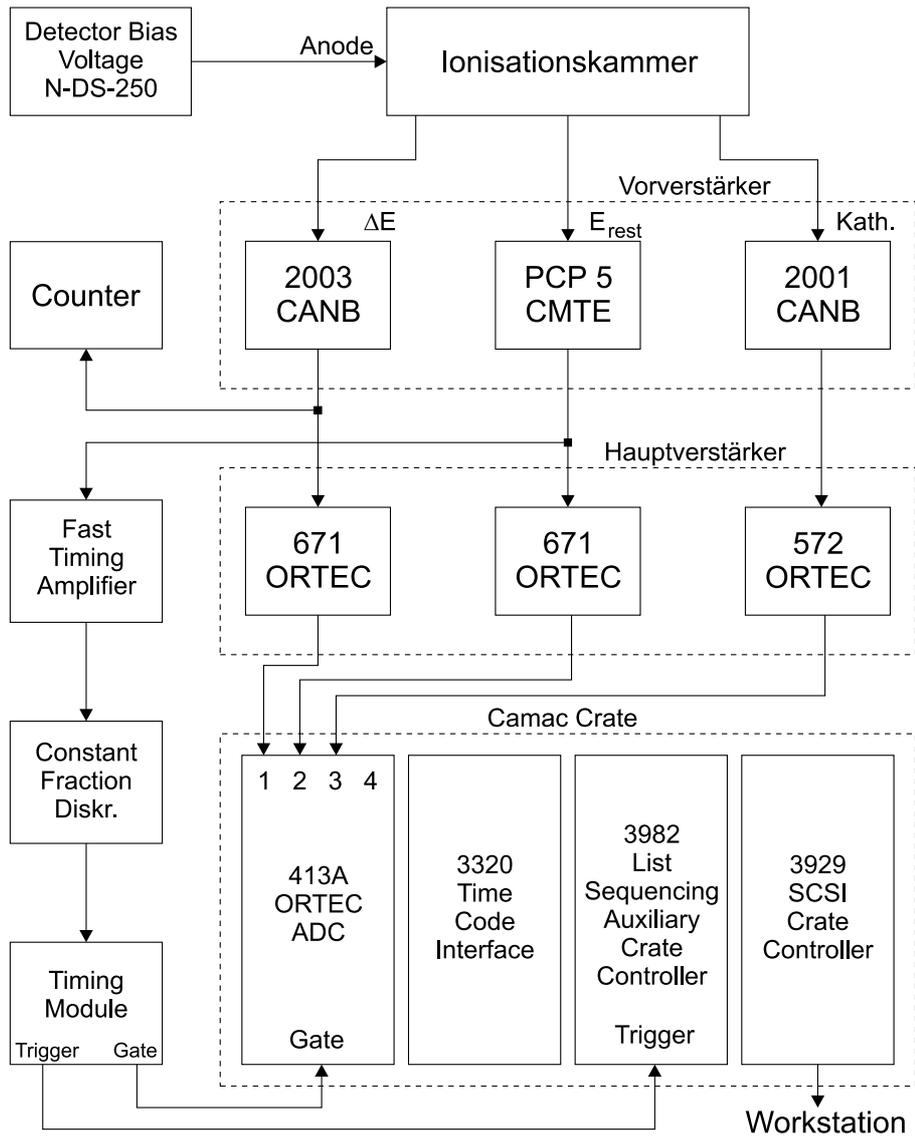


Abbildung C.3: Schema der elektronischen Datenaufnahme.

Literaturverzeichnis

- [1] B.M. Aleksandrov, I.A. Baranov, A.S. Krivokhatskii and G.A. Tutin: *At. Energ.* **33**, 821 (1972)
- [2] P.B. Allen: *Phys. Rev. Lett.*, Vol. **59** (13), 1460 (1987)
- [3] H.H. Andersen, A. Brunelle, S. Della-Negra, J. Depauw, D. Jacquet, and Y. Le Beyec, J. Chaumont and H. Bernas: *Phys. Rev. Lett.*, Vol. **80** (24), 5433 (1998)
- [4] N.W. Ashcroft and N.D. Mermin: *Solid State Physics*. Holt, Reinhart and Winston, New York 1976.
- [5] W. Assmann, P. Hartung, H. Huber, P. Staat, H. Steffens, and Ch. Steinhausen: *Nucl. Instrum. Methods* **B 85**, 726 (1994).
- [6] W. Assmann, H. Huber, Ch. Steinhausen, M. Dobler, H. Glückler, and A. Weidinger: *Nucl. Instrum. Methods* **B 89**, 131 (1994).
- [7] W. Assmann, J.A. Davies, G. Dollinger, J.S. Forster, H. Huber, Th. Reichelt, and R. Siegele: *Nucl. Instrum. Methods* **B 118**, 242 (1996).
- [8] Atom Tech Ltd., West Molesey, Surrey, UK
- [9] *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, Vol. **51** (2), 173-241 (1992)
- [10] I.A. Baranov, Yu.V. Martynenko, S.O. Tsepelevich, and Yu.N. Yavlinskii: *Sov. Phys. Usp.* **31** (11), 1015 (1988)
- [11] K. Baudin, A. Brunelle, S. Della-Negra, D. Jacquet, P. Hakansson, Y. Le Beyec, M. Pautrat, R.R. Pinho, Ch. Schoppmann: *Nucl. Instrum. Methods* **B 112**, 59 (1996)
- [12] H.L. Bay, H.H. Andersen, W.O. Hofer and O. Nielsen: *Nucl. Instrum. Methods* **132**, 301 (1976)

-
- [13] R. Behrisch and K. Wittmaack (Editors): *Sputtering by Particle Bombardment I*, Springer Verlag, Berlin 1981
- [14] R. Behrisch and K. Wittmaack (Editors): *Sputtering by Particle Bombardment II*, Springer Verlag, Berlin 1983
- [15] R. Behrisch and K. Wittmaack (Editors): *Sputtering by Particle Bombardment III*, Springer Verlag, Berlin 1991
- [16] A.M. Behrooz, R.L. Headrick, L.E. Seiberling: R.W. Zurmühle, Nucl. Instrum. Methods **B 28**, 108 (1987)
- [17] A. Bergmaier, G. Dollinger, C.M. Frey: Nucl. Instrum. Methods **B 99**, 488 (1995)
- [18] H. Bethe: Ann. Phys. (Leipzig) **5**, 325 (1930)
- [19] J.P. Biersack, L.G. Hagmark: Nucl. Instrum. Methods **174**, 257 (1980)
- [20] J.P. Biersack, W. Eckstein: Appl. Phys. **A 34**, 73 (1984)
- [21] F. Bloch: Ann. Phys. (Leipzig) **16**, 285 (1933)
- [22] D.K.G. de Boer: Phys. Rev. **B 44** (2), 498 (1991)
- [23] N. Bohr: Phil. Mag. **25**, 10 (1913)
- [24] S. Bouffard, J.P. Duraud, M. Mosbah, S. Schlutig: Nucl. Instrum. Methods B, preprint (1998)
- [25] E. A. Brandes (Editor): *Smithells Metals Reference Book*, Butterworth & Co Ltd, London 1983
- [26] W. Brandt and M. Kitagawa: Phys. Rev. **B 25**, 5631 (1982)
- [27] M. Brodale: *Untersuchungen zum Nachweis gesputterter Atome mit der Catcher-Technik*, Diplomarbeit, Ludwig-Maximilians-Universität München, 1997
- [28] S.D. Brorson, A. Kazeroonian, J.S. Moodera, D.W. Face, T.K. Cheng, E.P. Ippen, M.S. Dresselhaus, and G. Dresselhaus: Phys. Rev. Lett., Vol. **64** (18), 2172 (1990)
- [29] O. Bunemann, T.E. Cranshaw, and J.A. Harvey: Can. Journ. of Res. **27A**, 191 (1949)

- [30] Yu.N. Cheblukov, D.G. Koshkarev, A.R. Peuto, I.V. Rudskoygh, N.A. Vasiliev, V.M. Nazarov, R. Bock, D.H.H. Hoffmann, R.W. Müller, J. Vetter: Jahresbericht der GSI Darmstadt **89**, 209 (1989)
- [31] D.B. Chrisey, G.K. Hubler: *Pulsed Laser Deposition of Thin Films*, John Wiley & Sons Inc., 1994
- [32] W.K. Chu, J.W. Mayer, M.A. Nicolet: *Backscattering Spectrometry*, ACADEMIC PRESS INC., San Diego 1978.
- [33] J.M. Costantini, F. Brisard, M. Toulemonde and F. Studer: Nucl. Instrum. Methods **B 122**, 514 (1997)
- [34] H. Dammak, A. Barbu, A. Dunlop, D. Lesueur and N. Lorenzelli: Philos. Mag. Lett. **67** (4), 253 (1993)
- [35] H. Dammak, D. Lesueur, A. Dunlop, P. Legrand, J. Morillo: Rad. Eff. Def. Sol. **126**, 111 (1993)
- [36] H. Dammak, A. Dunlop, D. Lesueur, A. Brunelle, S. Della-Negra and Y. Le Beyec: Phys. Rev. Lett., Vol. **74** (7), 1135 (1995)
- [37] H. Dammak, A. Dunlop and D. Lesueur: Philos. Mag. A **79** (1), 147 (1999)
- [38] F. Desauer: Z. Physik **38**, 12 (1923)
- [39] L.R. Doolittle: Nucl. Instrum. Methods **B 9**, 344 (1985)
- [40] L.R. Doolittle: Nucl. Instrum. Methods **B 15**, 227 (1986)
- [41] Ch. Dufour, Z.G. Wang, M. Levalois, P. Marie, E. Paumier, F. Pawlak, M. Toulemonde: Nucl. Instrum. Methods **B 107**, 218 (1996)
- [42] C. Dufour, A. Audouard, F. Beuneu, J. Dural, J.P. Girard, A. hairie, M. Levalois, E. Paumier and M. Toulemonde: J. Phys. Condens. Matter **5**, 4573 (1993)
- [43] Ch. Dufour, E. Paumier, M. Toulemonde: Nucl. Instrum. Methods **B 122**, 445 (1997)
- [44] Ch. Dufour: *Modelisation de la formation de traces dues au ralentissement electronique des ions lourds rapides dans les materiaux metalliques et etudes experimentales dans le bismuth*. Doktorarbeit, Universität von Caen, 1992

-
- [45] A. Dunlop, P. Legrand, D. Lesueur, N. Lorenzelli, J. Morillo, A. Barbu and S. Bouffard: *Europhys. Lett.* **15** (7), 765 (1991)
- [46] A. Dunlop, H. Dammak, D. Lesueur: *Nucl. Instrum. Methods* **B 112**, 23 (1996)
- [47] W. Eckstein: *Computer Simulation of Ion-Solid Interaction*. Springer Verlag, Berlin 1991.
- [48] Dr. W. Eckstein: 1997, persönliche Mitteilung.
- [49] H.E. Elsayed-Ali, T.B. Norris, M.A. Pessot and G.A. Mourou: *Phys. Rev. Lett.*, Vol. **58** (12), 1212 (1987)
- [50] Prof. W. Ensinger: 1997. Persönliche Mitteilung
- [51] L.C. Feldman, J.W. Mayer: *Fundamentals of Surface and Thin Film Analysis*. Elsevier Science Publishing Co., Inc., New York 1986.
- [52] R.L. Fleisher, P.B. Price and R.M. Walker: *Nuclear Tracks in Solids* (University of California Press), 1975
- [53] C.M. Frey, G. Dollinger, A. Bergmaier, T. Faestermann, P. Maier-Komor: *Nucl. Instrum. Methods* **B 99**, 205 (1995)
- [54] C.M. Frey, G. Dollinger, A. Bergmaier, T. Faestermann, P. Maier-Komor: *Nucl. Instrum. Methods* **B 107**, 31 (1996)
- [55] J.G. Fujimoto, J.M. Liu, E.P. Ippen, N. Bloembergen: *Phys. Rev. Lett.*, Vol. **53** (19), 1837 (1984)
- [56] S. Furuno, H. Otsu, K. Hojou, K. Izui: *Nucl. Instrum. Methods* **B 107**, 223 (1996)
- [57] Laut Angaben der Firma GeMeTec, München
- [58] B. Gervais: Doktorarbeit, Universität von Caen, 1993
- [59] B. Gervais and S. Bouffard: *Nucl. Instrum. Methods* **B 88**, 355 (1994)
- [60] J.E. Griffith, R.A. Weller, L.E. Seiberling, T.A. Tombrello: *Radiat. Eff.* **51**, 223 (1980)
- [61] W.R. Grove: *Philos. Mag.* **5**, 203 (1853)
- [62] D.M. Gruen, M.J. Pellin, C.E. Young, and W.F. Calaway: *J. Vac. Sci. and Tech.* **A 4** (3), 1779 (1986)

- [63] V.E. Gusev, O.B. Wright: Phys. Rev. B, **57** (5), 2878 (1998)
- [64] A. Gutzmann und S. Klaumünzer: Phys. Rev. Lett. **74**, 2256 (1995)
- [65] R.R. Hart, H.L. Dunlap, A.J. Mohr and O.J. Marsh: Thin Solid Films **19**, 137 (1973)
- [66] H. Huber: *Korrelierte Kleinwinkelstreuung hochenergetischer Schwerionen und Strahlenschädigung in einkristallinem Germanium*. Doktorarbeit, Ludwig-Maximilians-Universität München, 1998.
- [67] Messungen durchgeführt von Dr. H. Huber
- [68] W. Husinsky, R. Bruckmüller and P. Blum: Nucl. Instrum. Methods **170**, 287 (1980)
- [69] M.I. Kaganov, I.M. Lifshitz and L.V. Tanatarov: Sov. Phys. Lett. **59**, 173 (1957)
- [70] M. Kimock, J.P. Baxter, N. Winograd: Nucl. Instrum. Methods **218**, 287 (1983)
- [71] S. Klaumünzer: Mat. Sci. Forum **97-99**, 623 (1992)
- [72] S. Klaumünzer: ISL Information, Berlin, IV'97
- [73] M. Kraus: *Defekte in Hochtemperatur-Supraleitern nach Beschuß mit hochenergetischen Schwerionen - Von nuklearen Stoßkaskaden bis zu amorphen Kernspuren*, Dissertation, Universität Erlangen-Nürnberg, 1995.
- [74] A. Król, C.J. Sher and Y.H. Kao: Phys. Rev. **B 38** (13), 8579 (1988)
- [75] M. Küstner: *Zerstäubung rauher Oberflächen*, Doktorarbeit, Universität Bayreuth, 1997.
- [76] L.D. Landau and E.M. Lifshitz: *Lehrbuch der theoretischen Physik: Mechanik*, Vol. I. Akademie-Verlag, Berlin 1981.
- [77] D. Lesueur and A. Dunlop: Radiat. Eff. Def. Solids **126**, 163 (1993)
- [78] Leybold Hereaus, Köln, Deutschland
- [79] K.G. Libbrecht, J.E. Griffith, R.A. Weller and T.A. Tombrello: Radiation Effects **49**, 195 (1980)
- [80] J. Lindhard, M. Scharff: Phys. Rev. **124**, 128 (1961)

- [81] J. Lindhard, M. Scharff and H.E. Schiøtt: K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat.-Fys. Medd **33**, No. 14 (1963)
- [82] J. Lindhard, V. Nielsen, M. Scharff: K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat. Fys Medd. **36**, No. 10 (1968)
- [83] R.J. MacDonald: Radiation Effects **3**, 131 (1970)
- [84] A. Meftah, M. Hage-Ali, J.P. Stoquert, F. Studer and M. Toulemonde: Radiat. Eff. Def. Solids **126**, 251 (1993)
- [85] A. Meftah, M. Djebara, J.P. Stoquert, F. Studer, M. Toulemonde: Nucl. Instrum. Methods **B 107**, 242 (1996)
- [86] A. Meftah, J.M. Costantini, M. Djebara, N. Khalfaoui, J.P. Stoquert, F. Studer, M. Toulemonde: Nucl. Instrum. Methods **B 122**, 470 (1997)
- [87] A. Meftah, M. Djebara, N. Khalfaoui and M. Toulemonde: SHIM98, Berlin
- [88] H.D. Mieskes: *Herstellung und Charakterisierung laserablatierter Puffer-, Puffer/ $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ -, Puffer/ $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/LaAlO_3$ -Multischichten und dropletfreier $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ -Schichten*, Diplomarbeit, Universität Augsburg, 1995
- [89] J.P. O'Connor, L.M. Baumel, P.G. Blauner, K.M. Hubbard, M.R. Weller and R.A. Weller: Nucl. Instrum. Methods **B 13**, 365 (1986)
- [90] Y. Qiu, J.E. Griffith, T.A. Tombrello: Radiat. Eff. **64**, 111 (1982)
- [91] J. Roth: In D. Post und R. Behrisch; *Physics of Plasma-Wall Interactions in Controlled Fusion*, Plenum Publishing Corporation, 351 (1986)
- [92] T. Schenkel, M.A. Briere, H. Schmidt-Böcking, K. Bethge and D.H. Schneider: Phys. Rev. Lett., Vol. **78** (12), 2481 (1997)
- [93] T. Schenkel, A.V. Barnes, A.V. Hamza, D.H. Schneider, J.C. Banks and B.L. Boyle: Phys. Rev. Lett., Vol. **80** (19), 4325 (1998)
- [94] R.W. Schoenlein, W.Z. Lin, J.G. Fujimoto, G.L. Eesley: Phys. Rev. Lett., Vol. **58** (16), 1680 (1987)
- [95] J. Schou: Nucl. Instrum. Methods **B 27**, 188 (1987)
- [96] L.E. Seiberling, J.E. Griffith and T.A. Tombrello: Radiat. Eff. **52**, 201 (1980)

-
- [97] L.E. Seiberling, C.K. Meins, B.H. Cooper, J.E. Griffith, M.H. Mendenhall and T.A. Tombrello: Nucl. Instrum. Methods **198**, 17 (1982)
- [98] F. Seitz and J.S. Koehler: Solid State Phys. **2**, 305 (1956)
- [99] P. Sigmund: Phys. Rev. A, Vol. **56** Num. 5, 3781 (1997)
- [100] P. Sigmund, L. Glazov: Nucl. Instrum. Methods **B 136-138**, 47 (1998)
- [101] P.Sigmund and C. Claussen: J. Appl. Phys. **52(2)**, 990 (1981)
- [102] P. Sigmund: Phys. Rev. **184**, 383 (1969)
- [103] P. Sigmund: Phys. Rev. **187**, 768 (1969)
- [104] E.C.H. Silk and S.S. Barnes: Phil. Mag. **4**, 970 (1959)
- [105] P. Stampfli: Nucl. Instrum. Methods **B 107**, 138 (1996)
- [106] E. Steinbauer, J.P. Biersack: Monte-Carlo-Code TRIM-CASCADE (TC), 1992.
- [107] P. Stenzel: *Quantifizierung von Elementkonzentrationen bei der Röntgenfluoreszenzanalyse unter streifendem Einfall*, Diplomarbeit, Ludwig-Maximilians-Universität München, 1995
- [108] C. Suárez, W.E. Bron and T. Juhasz: Phys. Rev. Lett., Vol. **75** (24), 4536 (1995)
- [109] J.R. Tesmer, M. Nastasi (Editors): *Handbook of Modern Ion Beam Materials Analysis*, Materials Research Society, Pittsburgh 1995
- [110] J. Tirira, Y. Serruys, and P. Trocellier, editors: *Forward recoil Spectrometry*. Plenum Press, New York, London 1996.
- [111] T.A. Tombrello: Nucl. Instrum. Methods **B 2**, 555 (1984)
- [112] M. Toulemonde, E. Balanzat, S. Bouffard and J.C. Jousset: Nucl. Instrum. Methods **B 39**, 1 (1989)
- [113] M. Toulemonde, C. Dufour and E. Paumier: Phys. Rev. B, **46** (22), 14362 (1992)
- [114] M. Toulemonde, J.M. Costantini, Ch. Dufour, A. Meftah, E. Paumier, F. Studer: Nucl. Instrum. Methods **B 116**, 37 (1996)
- [115] M. Toulemonde, Ch. Dufour, Z. Wang, E. Paumier: Nucl. Instrum. Methods **B 112**, 26 (1996)

-
- [116] VAb Vakuum-Anlagenbau, D-25337 Elmshorn, Deutschland
- [117] M.P.R. Waligorski, R.N. Hamm and R. Katz: Nucl. Tracks Radiat. Meas., Vol. **11** No. 6, 309 (1986)
- [118] Z.G. Wang, Ch. Dufour, E. Paumier and M. Toulemonde: J. Phys.: Condens. Matter **6**, 6733 (1994)
- [119] Z.G. Wang, Ch. Dufour, B. Cabeau, J. Dural, G. Fuchs, E. Paumier, F. Pawlak, M. Toulemonde: Nucl. Instrum. Methods **B 107**, 175 (1996)
- [120] Z.G. Wang, Ch. Dufour, E. Paumier, M. Toulemonde: Nucl. Instrum. Methods **B 115**, 577 (1996)
- [121] G.K. Wehner: J. Appl Phys. **26**, 1056 (1955)
- [122] G.K. Wehner: Phys. Rev. **102**, 690 (1956)
- [123] K. Wien: Radiat. Eff. Def. Solids **109**, 137 (1989)
- [124] K. Wien: Nucl. Instrum. Methods **B 65**, 149 (1992)
- [125] R.B. Wright, M.J. Pellin, D.M. Gruen and C.E. Young: Nucl. Instrum. Methods **170**, 295 (1980)
- [126] R. Yu and T. Gustafsson: Surface Sci. **177**, L987 (1986)
- [127] J.F. Ziegler: Monte-Carlo-Code SRIM (The Stopping and Range of Ions in Matter) Ver. 96, New York 1996
- [128] J.F. Ziegler, J.P. Biersack and U. Littmark: *The Stopping and Range of Ions in Solids*. Pergamon Press, New York 1985 oder neue Ausgabe 1996.

Danken möchte ich:

Herrn Prof. Dr. Friedhelm Bell für die Diskussionen und hilfreichen Ratschläge sowie für sein stetes Interesse an meiner Arbeit.

Herrn Dr. Walter Assmann für die gewissenhafte Betreuung, die Unterstützung bei der Entwicklung und dem Aufbau der UHV-Anlage und die vielen Anregungen zu meiner Arbeit. Seine umfangreichen Kontakte ermöglichten die Zusammenarbeit mit Forschern anderer Universitäten und Institute und trugen zum Erfolg dieser Arbeit wesentlich bei.

Herrn Dr. Marcel Toulemonde für die fruchtbaren Diskussionen, seine engagierte Unterstützung bei der Interpretation der gemessenen Daten und die Durchführung der Thermal-Spike Simulationen.

Herrn Dr. Rainer Behrisch, Dr. Jochen Roth und insbesondere Herrn Dr. Wolfgang Eckstein für zahlreiche Diskussionen und die Durchführung der TRIM.SP Rechnungen.

Herrn Prof. Dr. Stritzker für die Möglichkeit, RBS-, RKM- und XRD-Messungen an seinem Lehrstuhl durchzuführen, die für diese Arbeit von zentraler Bedeutung waren.

Herrn Dr. Rainer Grötzschel für die Möglichkeit, RBS-Messungen am Forschungszentrum Rossendorf durchzuführen.

Meinem Freund Herrn Axel Wenzel für die Präparation der Targets, die essenziell für die gute Reproduzierbarkeit der Messungen war.

Herrn Jürgen Werner Gerlach für die Durchführung der XRD-Messungen und insbesondere der Polfiguren.

Herrn Dr. Jörg Lindner für die Durchführung zeitraubender TEM-Messungen an den Mn -Targets.

Herrn Dr. Werner Prusseit für die Durchführung der REM-Messungen.

Meinen Kollegen Herrn Dr. Herbert Huber, Holger Nolte, Michael Brodale und Florian Grüner für die stete Hilfsbereitschaft, die Unterstützung während der nächtlichen Strahlzeiten und das freundschaftliche Arbeitsklima.

Herrn Dipl. Ing. Peter Hartung für seine Hilfe und technischen Ratschläge bei der Konstruktion wesentlicher Teile der UHV-Anlage.

Dem technischen Personal des Beschleunigerlabors und den Mitgliedern der Rechnergruppe für ihre Unterstützung bei den Strahlzeiten und sonstigen Problemen technischer Natur.

Den Mitgliedern der feinmechanischen Werkstätten der Sektion und des Beschleunigerlabors für ihre stete Hilfsbereitschaft und die gewissenhafte Umsetzung der Konstruktionspläne.

Der DFG für die Bereitstellung meiner Personalmittel.

Meinen Eltern und insbesondere meinem Vater, der in mir die wissenschaftliche Neugier geweckt hat.

Schließlich möchte ich mich von ganzem Herzen bei meiner Frau Kalina für ihre Geduld und jahrelange moralische Unterstützung bedanken.