Elektronentemperatur im Zentrum von Ionenspuren in Metallen

vorgelegt von

Diplom-Physiker

Friedrich Staufenbiel

Berlin

der Fakultät II - Mathematik und Naturwissenschaften
der Technischen Universität Berlin
zur Erlangung des akademischen Grades

Dr. rer. nat.

genehmigte Dissertation

Promotionsausschuss:

Vorsitzender: Prof. Dr. rer. nat C. Thomsen
Gutachter: Prof. Dr. rer. nat. P. Heide
Gutachter: Priv.-Doz. Dr. rer. nat. G. Schiwietz

Tag der wissenschaftlichen Aussprache : 18. Mai 2004

Berlin 2004

D 83

Kurzzusammenfassung

Es wurden hochaufgelöste Energiespektren der Auger-Elektronenemission bei der Wechselwirkung von schnellen Schwerionen mit metallischen Festkörpern gemessen. Mit Hilfe dieser Spektren ist eine Überprüfung des Thermal-Spike- und des Coulomb-Explosionsmodells möglich, welche die Ausbildung von Ionenspuren in Festkörpern beschreiben. Der zentrale Punkt der Untersuchung besteht in der Bestimmung der Elektronentemperatur nach dem direkten Energieeintrag eines Projektilions. Die Elektronentemperatur wird dabei aus der Form der Auger-Elektronenspektren extrahiert. Messungen an Aluminium, Beryllium und metallischen Gläsern ergaben Temperaturen von ca. 10 000 bis 100 000 Kelvin entsprechend der Auger-Zerfallszeit, die in der Größenordnung von etwa 10 fs liegt. Ionenspurpotentiale konnten für die metallischen Proben nicht festgestellt werden, da die gut beweglichen Metallelektronen diese Potentiale sehr schnell neutralisieren können. Eine Coulomb-Explosion ist somit nicht möglich. Materialänderungen innerhalb der Ionenspur können für Metalle deshalb nur durch die heißen Elektronen und einen "Thermal-Spike" entstehen.

Weiterhin wurde die Winkelverteilung von schwerioneninduzierten emittierten Auger-Elektronen für Aluminium- und Beryllium-Proben erstmalig untersucht. Dabei wurden signifikante Ionenspureffekte gefunden. Im hochangeregten Elektronensystem kann eine Verringerung der mittleren freien Weglängen erfolgen. Durch die Geometrie der Ionenspur und des atomaren Gitters können dann Emissionsrichtungen der Auger-Elektronen unterdrückt werden. Es wurde somit erstmals ein deutlicher Einfluß der hohen Projektilladung auf das Elektronensystem von Metallen nachgewiesen.

Abstract

High resolution Auger-electron spectra have been measured for the interaction of swift heavy ions with metallic solids. These spectra allow for a test of the thermal-spike and Coulomb-explosion models, which describe the evolution of ion tracks in solids. The key point of this investigation is the determination of electron temperatures resulting from the energy transfer by the projectile ion. Electron temperatures have been extracted from the shapes of the Auger-line structures. Measurements have been performed for aluminium, beryllium, and several metallic glasses, resulting in electron temperatures between 10 000 and 100 000 K for Auger decay times around 10 fs. There was no significant sign of heavy-ion-track potentials for the metallic samples. Conduction band electrons do neutralize the atomic charges so fast that Coulomb explosion and the corresponding Auger-energy shifts are impossible. Thus, materials modifications inside ion tracks of metals may result only from the hot electrons described in the thermal-spike model.

Furthermore, angular distributions of ion-induced Auger electrons from beryllium and aluminium have been measured for the first time and significant ion-track effects have been found. In a highly excited electron system the mean free electron path-length may be reduced. The geometry of the ion track as well as of the crystal leads then to a suppression of Auger-electron yields along specific directions. In conclusion, a significant influence of the highly charged projectile on the electronic system of metals has been determined in this work for the first time.

Danksagung

Mein Dank gilt zunächst Herrn Priv.-Doz. Dr. Gregor Schiwietz. Durch seine sehr gute Betreuung während meiner Doktorandentätigkeit am Hahn-Meitner-Institut und durch seine in jeder Beziehung gute wissenschafliche Art des Arbeitens, ist es mir möglich, viele Dinge für meine zukünftige wissenschafliche Tätigkeit zu übernehmen. Ebenfalls habe ich durch seine Kompetenz auf dem experimentellen und dem theoretischen Gebiet tiefere Einblicke in das Gebiet der Ion-Festkörper-Wechselwirkung bekommen. Auch durch seine gute menschliche Art ist mir meine Doktorandenzeit hier am HMI-Berlin leicht gefallen.

Mein Dank gilt auch Herrn Prof. P. Heide, der die Betreuung von Seiten der Technischen Universität Berlin übernommen hat. Weiterhin danke ich ihm für die kritische Auseinandersetzung mit dem Thema dieser Arbeit im Rahmen von Seminarveranstaltungen.

Nun möchte ich mich bei den Wissenschaftlern meiner Arbeitsgruppe bedanken, die da wären K. Czerski, M. Roth und M. Rösler. Durch ihre Hilfe bei den Strahlzeiten und den wissenschaftlichen Diskussionen haben sie einen großen Beitrag zu meiner physikalischen Weiterbildung beigetragen.

Ebenfalls möchte ich der Abteilung SF4 und dem HMI-Berlin für die Teilnahmemöglichkeiten an Workshops, Sommerschulen sowie an nationalen und internationalen Konferenzen danken. Somit konnte ich einen Einblick in die Art der wissenschaftlichen Präsentation erhalten und mein Wissen über andere Gebiete der Physik erweitern.

Für Korrekturarbeiten an dieser Arbeit möchte ich mich bei B. Schattat und B. Walz recht herzlich bedanken, die erst kürzlich zu unserer Arbeitsgruppe gestoßen sind.

Abbildungsverzeichnis

0.1 Metallisches Glas nach der Bestrahlung durch Ionen 11

1.2 Geätzte Ionenspuren in PET für Filteranwendungen 13

1.3 Ionenführung in einer perforierten PET-Folie 14

1.4 Metallisches Glas nach der Bestrahlung durch 340 MeV Xe-Ionen 15

1.5 Deformation von SiO_2 durch Ionenbestrahlung 16

1.6 Deformation von Strukturen bei Implantationsverfahren 17

2.7 Dynamik der Ionenspurentstehung 20

2.8 Experimentelle Daten für den mittleren Ladungszustand von Ionen im Festkörper und Fit-Kurve entsprechend Gleichung (2.1.1 - 4) 23

2.9 Elektronische und nukleare Energieverlustkurve 24

2.10 Berechnung der Elektronentemperatur und die Kopplung an das Gitter für 5 MeV/u U-Ionen auf Cu - entnommen aus [Wang94] 29

2.11 Auger-Zerfall von Berxllium 31

2.12 Zustandsdichte (DOS) des Valenzbandes von Beryllium 34

2.13 KVV-Auger-Linien von Be 35

2.14 LVV-Auger-Linien von Al (100) 36

2.15 K^1VV-Auger-Linien-Übergang induziert durch Au-Ionen bzw. Elektronen 37

2.16 C-KVV-Auger-Linien von einer C-Folie bzw. einer PP-Folie mit einer Energiedifferenz von ca. 50 eV 39

3.17 Targetkammersystem und Ionenstrahlführung 41

3.18 Elektronentrajektorien im 90° Elektronenspektrometer (Schnittdarstellung) 42

3.19 Kammer zum Targettransfer und zur Aufbewahrung von mehreren Targets 44

3.20 Präparationskammer und Targettransferkammer 45

4.21 Energie-Spektrum emittierter Elektronen mit Untergrund 47

4.22 Energie-Spektrum der Auger-Elektronen nach Untergrundsubtraktion 48

4.23 Untergrundsubtrahiertes und in Einzellinien zerlegtes Be-Auger-Spektrum für primäre Elektronen und Ionen 49

4.24 Untergrundsubtrahiertes und in Einzellinien zerlegtes Al-Auger-Spektrum für primäre Elektronen und Ionen 50

4.25 Elektroneninduzierte Energiespektren von metallischen Gläsern 53

4.26 Ioneninduziertes Energiespektrum von Al (100) und Al-Glas 54

4.27 Untergrundsubtrahierte und zerlegte L^1VV-Auger-Linie des Al-Glases für primäre Elektronen und Ionen 55

4.28 Elektronen- und ioneninduziertes Energiespektrum von Ni-Glas 56

4.29 Elektronen- und ioneninduziertes Energiespektrum von Co-Glas 57

4.30 Elektronentemperatur in Abhängigkeit vom spezifischen Energieverlust für Be 58

4.31 Verhältnisse von integrierten Auger-Intensitäten für Be 61

4.32 Verhältnisse von integrierten Auger-Intensitäten für Al (100) 62

4.33 Winkelverteilung der KLL-Auger-Elektronen durch Diffraktion in einem Al (100)-Einkristall 63

5.34 Winkelabhängige Elektronenemission durch unterschiedliche Zustände des Festkörpers beim Transport der Elektronen 67

Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis **4**

Einleitung **10**

1 Motivation zur Grundlagenforschung **12**

1.1 Technische Anwendungen von Materialmodifikationen durch Ionen 12

1.1.1 Mikrofilter 12

1.1.2 Nano-Transistoren und elektronische Bauteile in Plastikfolien 13

1.1.3 Feldemissionskathoden für Flachbildschirme 13

1.1.4 Ionenführung durch Nano-Kapillaren 14

1.1.5 Glätten und Aufrauhen von Glas-Oberflächen 15

1.1.6 Formgebung von Nanopartikeln 16

1.1.7 Tiefenimplantation 16

1.2 Physikalisches Neuland 17

2 Ionenspuren in Festkörpern **19**

2.1 Die Dynamik der Energieabgabe des Ions an den Festkörper 19

2.1.1 Ladungszustände von Ionen in Materie 21

2.1.2 Energieverluste von Ionen im Festkörper 24

2.1.3 Elektronisches ”Thermal-Spike”-Modell 27

2.1.4 ”Coulomb-Explosions”-Modell 29

2.2 Quantifizierung der Energiekonversion im Festkörper 30

2.2.1 Energieverteilung der Auger-Elektronen 32

2.2.2 Hypersatellitenlinien und Mehrfachionisation 35

2.2.3 Linienform und Elektronentemperatur 36

2.2.4 Energieverschiebung und Ionenspurpotentiale 38

3 Versuchsaufbau und Neuerungen an der Apparatur 40

3.1 Ultrahochvakuum-Kammersystem (UHV) 40

3.1.1 Hauptkammer 40

3.1.2 Präparationskammer 40

3.1.3 Differentielle Pumpstufe 41

3.2 Elektronenspektrometer 42

3.3 Targettransferkammer 43

4 Meßdaten aus verschiedenen Strahlzeiten und Diskussion 46

4.1 Energiespektren von emittierten Elektronen bei Ionenbeschuß 46

4.1.1 Be-Target 49

4.1.2 Al(100) Einkristall-Target 50

4.1.3 Metallische Gläser 52

4.1.4 Elektronentemperaturvergleich für Be bei Anregung durch verschiedene Projektile 57

4.1.5 Elektronentemperaturvergleich für mehrere Materialien bei Anregung durch 600 MeV $^{197}Au^{48+}$-Ionen 59

4.2 Winkelverteilungen der Auger-Elektronenintensität 61

4.2.1 Verhältnisse der integrierten Auger-Intensitäten (Be und Al) 61

4.2.2 Strukturen der Winkelverteilung beim Al (100) Einkristall 63

5 Zusammenfassung 65

Literaturverzeichnis **69**

Anhang : Zeichnung des Targethalteraufsatzes **73**

Einleitung

Zu Beginn der 80er Jahre waren nur erste Ergebnisse zur Wechselwirkung von schnellen Schwerionen mit Metallen durch Implantationsverfahren bekannt. Dabei sind einzelne Defekte, Amorphisierung, Ionenstrahlätzen bzw. "Sputtering" des Materials auf direkte nukleare Stöße zurückzuführen, da man nicht sehr hohe Projektilenergien für solche Verfahren benötigt. Wird die Energie des Projektils erhöht, so steigt der elektronische Energieverlust und der nukleare Energieverlust geht gegen Null. An dieser Stelle ist nun zu überlegen, ob bei ausschließlicher Energiedeposition in das elektronische System die Elektronen lokal an die Atomrümpfe koppeln können und dadurch bleibende Materialveränderungen verursachen. Die Annahme, daß durch die schnelle Neutralisation und Rekombination und eventuell auch durch die Abschirmung der gut beweglichen Metallelektronen (elektronisches "screening" [Eche95]) nicht genug Energie in der Nähe der Projektilbahn an das atomare System abgegeben wird und somit keine Änderung im Material hervorrufen würde, war durch einige Messungen gezeigt worden. Diese Messungen sind jedoch bei verhältnismäßig geringen Energien und mit leichten Ionen durchgeführt worden, da die Projektile mit kleinen Beschleunigern erzeugt wurden bzw. aus radioaktiven Zerfällen stammten und der Q-Wert der Reaktion die Energie festlegte. Weiterhin arbeitete man mit Metallen, die eine definierte Kristallstruktur haben. Aufgeschmolzenes Material in den Ionenspuren kann sich aber durch die umgebende Struktur wieder in den ursprünglichen kristallinen Zustand reorganisieren. In diesem Fall kann keine Materialmodifikation festgestellt werden. Die ersten Überlegungen zu hochenergetischen und vielfach geladenen Ionen ($\gtrsim$ MeV pro Nukleon pro Ion) in Metallen galten einer neuen Technik, mit der man mögliche neue Phasenübergänge durch Aufschmelzen und natürliches schnelles Abkühlen, bedingt durch die kalte Umgebung der Ionenspur, in amorphen Matrizen (metallische Gläser) erzeugen kann. Die Abschreckraten liegen bei etwa $10^{15}\ \frac{K}{s}$ in einer Ionenspur. Ein neuer Phasenübergang hätte Einfluß auf die Eigenschaften der metallischen Gläser gehabt und neue Materialien hätten synthetisiert werden können. Aus heutiger Sicht ist dieses Vorhaben nicht realisierbar, da mit dieser Methode keine anderen Phasen erreicht werden können. Es zeigte sich aber, daß bei zunehmender Energie Schwellen auftraten, die makroskopische Veränderungen der Proben zur Folge hatten, wie in Fig.1 gezeigt wird. Dieser Effekt ist heute bekannt unter dem Begriff des Ionenstrahlhämmerns (Klaumünzer-Effekt) [Klau92][Klau00]. Die linke bestrahlte Hälfte des metallischen Glases wird durch das Ionenstrahlhämmern verformt und es entsteht eine makroskopische Wellenstruktur, wobei die rechte eingespannte und unbestrahlte Hälfte ihre ursprüngliche Form behält. Die zwei Pfeile deuten die Richtung der einfallenden Ionen unter einem flachen Winkel an. Weitere Untersuchungen zeigten, daß die makroskopische Verformung der Metalle in der Summation der einzelnen mikroskopischen Ionenspuren ihren Ursprung findet, da durch das Aufschmelzen und Abkühlen Zug- bzw. Druckspannungen im amorphen Ma-

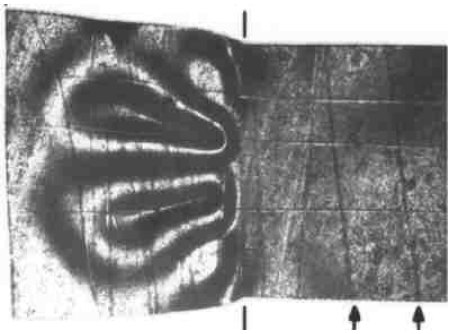


Fig. 1: Metallisches Glas nach der Bestrahlung durch Ionen

terial entstehen [Ming90][Gutz97]. Wie beim Hämmern findet bei einer gleichbleibenden Dichte des Materials ein Schrumpfen entlang der Projektilrichtung und eine Dehnung senkrecht dazu statt. Auch durch die mittlerweile verschiedensten technischen Anwendungen von Ionenspuren hat die Erforschung der Dynamik bei der Entstehung von Ionenspuren in Festkörpern ein wissenschaftliches Interesse gefunden. Durch die sehr geringen Spurendurchmesser ist prinzipiell die Möglichkeit für hoch miniaturisierte Anwendungen gegeben, die mit anderen Techniken kaum oder gar nicht erreicht werden können.

Kapitel 1
Motivation zur Grundlagenforschung der hochenergetischen Ion-Festkörper-Wechselwirkung

1.1 Technische Anwendungen von Materialmodifikationen durch Ionen

Die folgenden Anwendungen entsprechen nur einer Auswahl von Möglichkeiten, die durch Materialmodifikationen durch schnelle energiereiche Ionen gegeben sind. Da die Erforschung der Ionenspuren ein relativ junges Gebiet ist, kann das weitere Erproben von neuen denkbaren Techniken zu neuen Anwendungen führen.

1.1.1 Mikrofilter

Schnelle schwere Ionen in einem hohen Ladungszustand deponieren in Festkörpern entlang ihrer Flugbahn in kürzester Zeit sehr viel Energie. Dies führt in der Ionenspur oft zur Überschreitung der Schmelztemperatur des Materials und beim schnellen Abkühlen kann Stress im Material durch andere kristalline bzw. amorphe Phasen auftreten [Trau02]. Dieser Streß wird durch die verschiedenen spezifischen Volumina der Phasen induziert und führt unter anderem zu einer Änderung des chemischen Potentials innerhalb der Ionenspur. Dieser Effekt bringt Nutzen für Ätzprozesse von ionenbestrahltem Material, da sich die Ätzgeschwindigkeiten innerhalb und außerhalb der Ionenspuren stark unterscheiden können [Trau00]. Fig.2 zeigt eine ionenbestrahlte Poly-Ethylen-Terephthalat (PET)-Folie in einer elektronenmikroskopischen Aufnahme nach einer Ätzprozedur. An der Bruchkante sind die offenen Kanäle zu erkennen, deren Durchmesser unterhalb von 1 μm liegen. Man ist in der Lage, Porendurchmesser von 50 nm bis zu mehreren μm über eine Länge von einigen hundert μm gezielt herzustellen. Für eine industrielle Nutzung sind hohe Anforderungen an die Dichte und die homogene Verteilung der Poren gestellt, die nur mit einer stabilen Intensität des Ionenstrahles über einen langen Zeitraum gegeben ist [Denk03]. Mit einem durchlaufenden Band aus PET-Folie durch den in horizontaler Richtung aufgefächerten Ionenstrahl können einige Quadratdezimeter Folie pro Sekunde bestrahlt werden. Die Mikrofilter können z.B. als Partikelfilter für eine staubfreie Luftzufuhr in Reinsträumen,

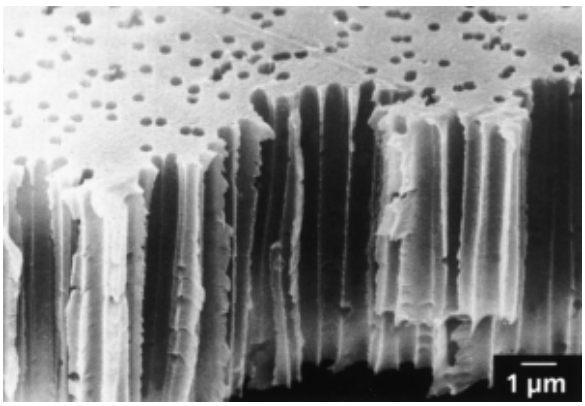


Fig. 2: Geätzte Ionenspuren in PET für Filteranwendungen

Luftfilter für gekapselte Elektromotoren, Analysefilter für Bakterien bzw. einzelne Zellen oder einzelne Poren als Zähler für rote Blutkörperchen dienen.

1.1.2 Nano-Transistoren und elektronische Bauteile in Plastikfolien

Eine Weiterbehandlung von geätzten Ionenspuren in PET-Folie kann zu miniaturisierten elektronischen Bauelementen führen. Durch chemische Deposition von Silber, Kupfer oder Nickel erhält man leitende Kanäle [Fink03b]. Durch Kontaktierung mehrerer Kanäle auf den Oberflächen erhält man einen umlaufenden Leiter, der eine miniaturisierte Spule darstellen kann. Auf diese Art wurde ein Prototyp eines Transformators gebaut, dessen Abmaß kleiner als ein Millimeter ist und dessen Arbeitsbereich bis zu einem GHz reichen kann [Fink03a].

Ebenso kann nach einer metallischen Deposition in den Kanälen eine weitere Belegung mit einem Isolator folgen. Durch die Kombination von Leiter und Isolator läßt sich dann ein miniaturisierter Kondensator herstellen.

1.1.3 Feldemissionskathoden für Flachbildschirme

Um eine Feldemissionserhöhung an Nanostrukturen zu erhalten, können freigeätzte Ionenspuren in PET-Folie auch vollkommen mit einem Metall gefüllt werden. In einem zweiten Ätzverfahren wird die restliche PET-Folie entfernt und es bleiben metallische Nanonadeln auf einem Substrat übrig. Diese sind jedoch sehr instabil und bei einem höheren Stromfluß stellt der Abbrand der Nadeln ein Problem dar. Für leitende Nanostrukturen kann jedoch noch ein anderes Verfahren gute Ergebnisse liefern [Krau03]. Das Ausgangsmaterial ist eine dünne diamantartige nichtleitende Kohlenstoffschicht (sp^3-Bindungstyp) auf einem

Siliziumsubstrat. Durch eine Bestrahlung mit 1GeV Uran-Ionen oder 350 MeV Gold-Ionen wird eine Änderung der Kohlenstoffstuktur in eine leitende Graphitstruktur (sp^2-Bindungstyp) in jeder einzelnen Ionenspur hervorgerufen. Durch Abtasten der Oberfläche mit einem "atomic force microscope" (AFM) im Kontaktmodus, an dessen Nadel eine Spannung von 50 mV anliegt, kann ein maximaler Strom von 15 nA beim Überfahren einer Ionenspur gemessen werden. Durch Messungen der Oberflächentopographie konnten den Ionenspuren eindeutig die leitenden Eigenschaften zugeordnet werden. Für eine Feldemissionskathode für Flachbildschirme, die den Tunneleffekt in starken elektrischen Feldern ausnutzt, ist jedoch nur eine Felderhöhung mit einem Faktor 10 gemessen worden [Zoll03]. Hier sind noch weitere Forschungsarbeiten für die rentable Nutzung solcher Leiterbahnen zu leisten.

1.1.4 Ionenführung durch Nano-Kapillaren

Werden niederenergetische Ionen wie z.B. 3 keV Ne^{7+}-Ionen durch geätzte Ionenspuren in PET-Folie geschickt, tritt durch Aufladung der inneren Wand der Kanäle ein Führungseffekt der Ionen ein [Stol03], wie in Fig.3 schematisch dargestellt ist. Dieses bedeutet,

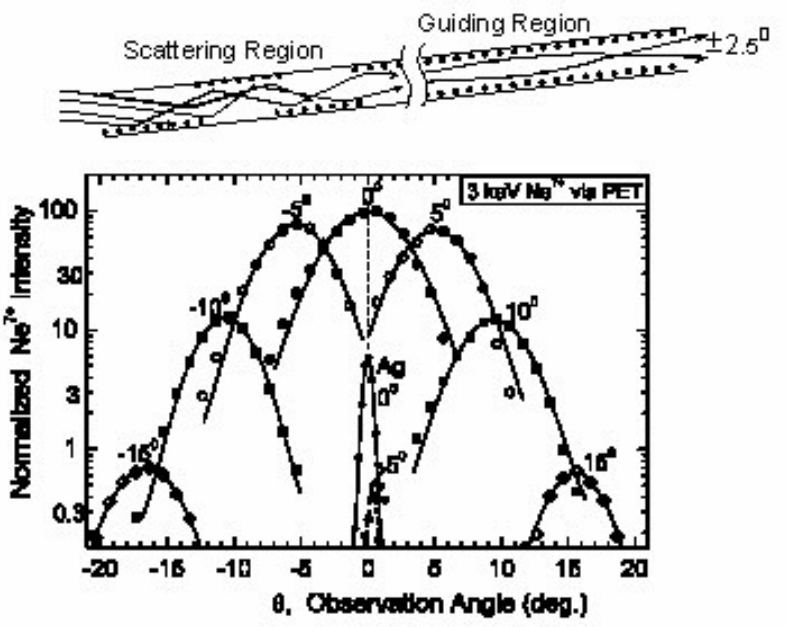


Fig. 3: Ionenführung in einer perforierten PET-Folie

daß die Transmissionsrate der Ionen, die die Folie durchquert haben, deutlich höher ist, als wenn die Spuren mit einer leitenden Silberschicht belegt worden sind. In metallischen

Kanälen werden langsame Ionen an den Wänden durch Elektroneneinfang neutralisiert, so daß nur Teilchen, die keine Wechselwirkung mit der Kanalwand gehabt haben, den Kanal mit ihrer ursprünglichen Ladung verlassen. Eine Aufladung der Kanalwand im Polymer erfolgt durch das Auftreffen der Ionen auf derselbigen. Nach einigen Minuten hat sich ein selbstorganisierendes inhomogenes elektrisches Feld entlang des gesamten Kanales ausgebildet. Nachfolgende Ionen werden mit diesem führenden Feld durch den gesamten Kanal geleitet ohne auf die Wand zu treffen. Sogar für steile Anstellwinkel der PET-Folie ist eine Führung der Ionen noch gegeben und die Transmissionsrate sinkt erst bei einem Winkel von 15° unterhalb von 1% (siehe Fig.3). Weiterhin wird das Strahlprofil kaum verändert und somit wird der Führungseffekt der Ionen damit noch untermauert. Prinzipiell scheint durch diesen Effekt der Bau einer Linse mit einem Mikrofokus für langsame mehrfach geladene Ionen möglich zu sein.

1.1.5 Glätten und Aufrauhen von Glas-Oberflächen

Durch die Bestrahlung von Gläsern tritt abhängig von der Ionenenergie und der Teilchenfluenz eine Oberflächenveränderung ein [Gutz95], wie sie in Fig.4 dargestellt ist (Klaumünzer-Effekt). Das gezeigte $Fe_{40}Ni_{40}B_{20}$-Glas ist mit 340 MeV Xe-Ionen unter einem Winkel von

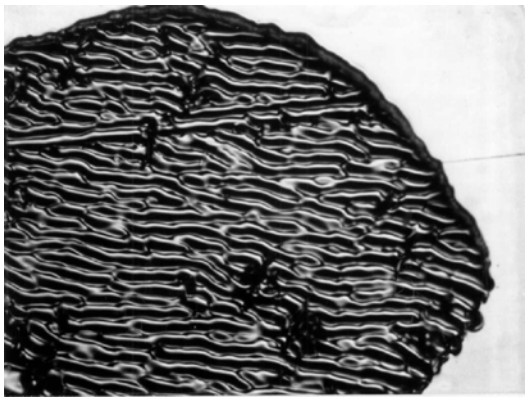


Fig. 4: Metallisches Glas nach der Bestrahlung durch 340 MeV Xe-Ionen

45° bestrahlt worden und im 2 mm großen Strahlfleck ist eine Wellenstruktur, ein Fließen des Materials aufgetreten. Dieses tritt beim Überschreiten einer spezifischen Schwelle des elektronischen Energieverlustes der Ionen im Material auf und ist desweiteren sehr vom Einfallswinkel abhängig. Die Wellenstruktur besitzt je nach Ionensorte und Material einen spezifischen Wert für die Tiefe und die Wellenlänge der Deformation. Das Verhältnis von der Wellenlänge zur Deformationstiefe ($\approx \mu$m) ist bei mehreren untersuchten Gläsern annähernd konstant und beträgt etwa 3:1.

Wird ein Bestrahlungswinkel von 0° gewählt, erhält man einen zum Aufrauhen inversen Prozeß. Durch das Zerfließen des Materials unter dem senkrechtem Bestrahlungswinkel werden Rauhigkeiten, die beim $Fe_{40}Ni_{40}B_{20}$-Glas etwa 1 μm betragen können, geebnet. Nach einer sehr hohen Strahlungsfluenz von $7{\cdot}10^{15}$ Ionen pro cm^2 kann die Rauhigkeit unter 5 nm sinken [Klau00], welches in der Größenordnung von wenigen atomaren Schichten liegt.

1.1.6 Formgebung von Nanopartikeln

Durch das Ionenstrahlhämmern ist die Möglichkeit gegeben, Nanopartikel in ihrer Form zu verändern [Snoe01], wie in Fig.5 schematisch angedeutet ist. Hierbei wurden Silizium-

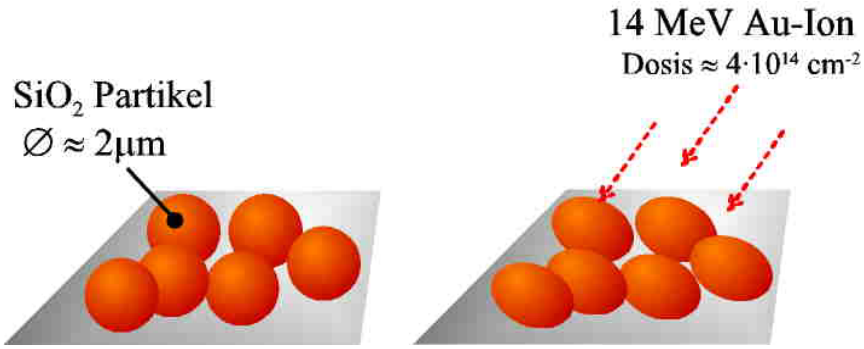


Fig. 5: Deformation von SiO_2 durch Ionenbestrahlung

dioxid Kugeln mit einem Durchmesser von etwa 2 μm auf einem Siliziumsubstrat unter 45° mit Gold-Ionen bestrahlt. Aus der Kugelform ist durch das Hämmern der Ionen eine Ellipsoidform entstanden. Ein ähnliches Verhalten zeigen auch andere Materialien wie z.B. ZnS, TiO_2 oder Al_2O_3 . Die Stärke der Formänderung ist von der deponierten Energie der Ionen abhängig. Die Verformung tritt erst nach dem Überschreiten eines Schwellenwertes des elektronischen Energieverlustes ein, wobei die relative transversale Längenänderung ein lineares Verhalten zum steigendem elektronischen Energieverlust zeigt [Dill01].

1.1.7 Tiefenimplantation

Durch Implantation von Ionen können viele Materialien in Abhängigkeit von der Ionensorte in ihren Eigenschaften (Leitfähigkeit, Magnetisierbarkeit) geändert werden, z.B. Dotierung von Halbleitern etc. . Durch die deponierte Energie der Ionen beim Durchqueren der Proben können aber strukturierte Oberflächen in ihrer Form geändert werden

[Snoe94], wie es Fig.6 schematisch andeutet. Auch gut definierte Oberflächen werden

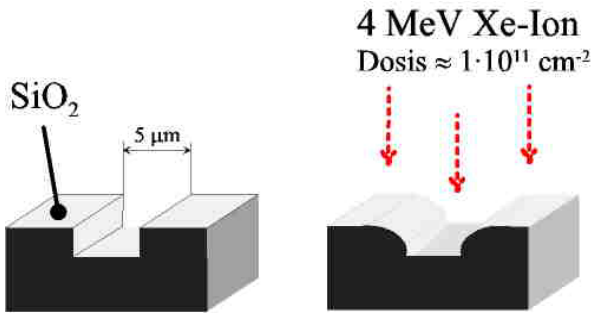


Fig. 6: Deformation von Strukturen bei Implantationsverfahren

in ihrer Rauhigkeit durch Sputterprozesse und durch das Hämmern der Ionen verändert [Amek01]. Dieser Effekt muß vor der Implantation berücksichtigt werden und hier sind die Vorhersagen für die Schwellenwerte und die Stärke der einsetzenden Materialänderung, die von der Ionensorte, der Energie und der Fluenz abhängen, von größter Wichtigkeit.

1.2 Physikalisches Neuland

Durch die sehr hohe Dichte der Anregungsenergie durch schnelle Schwerionen treten innerhalb der Ionenspur extreme dynamische Prozesse auf, die in bisherigen Untersuchungen der Festkörperstruktur kaum berücksichtigt wurden. Im unmittelbaren Zentrum der Spur tritt eine sehr hohe Ionisationsdichte auf und einzelne Schalen können unter Umständen stark oder auch vollständig entleert werden. Für Li-, Be-, B- und C-Proben kommt es sogar zu einer vollständigen Ionisation aller Elektronenschalen durch schwere Ionen bei kinetischen Energien von ca. 5 MeV pro Nukleon. Dieses stellt eine maximale Störung der elektronischen Festkörperstruktur dar. Es werden also alle Bindungen aufgebrochen und dadurch kann es kurzzeitig zu einer Strukturänderung kommen. Dem hoch angeregten Elektronensystem kann man eine Elektronendichte und eine Elektronentemperatur zuordnen, die aber einen extremen Gradienten abhängig von der Zeit und dem Ort aufweisen. Abhängig von den betrachteten Zeiten kann die Thermodynamik ihre Gültigkeit verlieren und der Begriff der Temperatur nicht aufrechterhalten werden. Hier sollte dann eine mittlere Energiedichte des elektronischen Systems betrachtet werden. Diese elektronische Energie kann auf das Kristallgitter übertragen werden und es kann kurzzeitig zur Ausbildung einer flüssigen Phase innerhalb der Spur kommen. Jedoch sind hier die Abschreckraten, die durch das umgebende ”kalte” Gitter verursacht werden, sehr hoch, da der Durchmesser der Ionenspur

nur einige Nanometer beträgt. Auch für die atomaren Bewegungen muß die Anwendbarkeit der Thermodynamik überprüft werden.

An dieser Stelle sei angemerkt, daß die Anregungsdichte durch ein einzelnes schnelles Schwerion mit den etwa 10^{19} Photonen, die ein Höchstleistungslaser erzeugen kann, vergleichbar ist. Die Anregungsenergien, die bei Ionenbeschuß bis zu mehreren keV reichen, wird insbesondere auch der zukünftige Freie-Elektronen-Laser XFEL liefern. Die Wechselwirkungszeit, welche der Pulsbreite der Anregung entspricht, ist bei Ionen mit 10^{-18}-10^{-17}s weitaus geringer als bei Lasern mit einigen 10^{-15}s. Ebenfalls sind die Wechselwirkungsradien von wenigen nm bei Ionenbeschuß um einige Größenordnungen kleiner als ein Laserfokus, der im μm-Bereich liegen kann.

Die vorliegende Arbeit liefert grundlegende Ergebnisse zur Kurzzeitdynamik in Festkörpern. Einerseits dienen sie zur Verbesserung von Modellen und damit auch zur Vorhersage und Planung technischer Ionenspuranwendungen wie in Kapitel 1.1 beschrieben ist. Andererseits ist die Elektronendynamik in hochangeregten Festkörpern ein sich schnell entwickelndes Gebiet, welches für die Forschung mit Hochleistungslasern und dem zukünftigen XFEL eine hohe Relevanz besitzt.

Kapitel 2
Ionenspuren in Festkörpern

Die Arbeiten mit Ionenstrahlen waren bis zur Mitte des zwanzigsten Jahrhunderts nahezu ausschließlich auf kernphysikalische Untersuchungen beschränkt. Damit die Coulomb-Barriere für Kernreaktionen überschritten werden kann, benötigt man entweder sehr hohe Projektilenergien oder relativ geringe Atommassen der beschleunigten Ionen bzw. eine geringe Atommasse der Targetatome. Bei der Erzeugung von Ionenspuren in Festkörpern liegt man energetisch meist etwas unterhalb der Coulomb-Barriere. Nur der Einsatz von schweren hochgeladenen Ionen liefert elektronische Energiedichten, die die kritischen Schwellenwerte für die Modifikation von metallischen Proben überschreiten. Dabei werden sehr viele Ionisationsereignisse und Anregungen von Targetatomen stattfinden, bis das Ion im Target gestoppt wird. Innerhalb von Ionenspuren wirken die Ionen als starke Anregungsquelle, indem sie durch Stöße mit den Targetelektronen (”electronic stopping”) einen großen Teil ihrer Energie in einem eng begrenzten Gebiet entlang ihrer Flugbahn deponieren.

2.1 Die Dynamik der Energieabgabe des Ions an den Festkörper

Die für Ionenspuruntersuchungen verwendeten Ionen sind am Hahn-Meitner-Institut Berlin vorzugsweise schwere Edelgase und Gold. Die Energie der Ionen liegt zwischen 1 MeV und 5 MeV pro nuklearer Masseneinheit und sie besitzen einen hohen Ionisationsgrad. Die Geschwindigkeit beträgt dann etwa 10% der Lichtgeschwindigkeit und Gold-Ionen können, durch Umladung in einer Stripper-Folie hinter dem Zyklotron, bis zu 48-fach geladen sein.

In Fig.7 ist ein schematischer Ablauf der Evolution einer Ionenspur in einem Festkörper dargestellt. Zunächst durchquert das Ion den Festkörper. Die Durchflugszeit des Ions durch die obersten atomaren Lagen beträgt etwa 10^{-17}s. Dabei wird in diesem Energiebereich der Ionen die Energie nahezu ausschließlich im elektronischen System des Targets deponiert. Dieses geschieht jedoch sehr lokalisiert in einem Radius von etwa 1 nm entlang der Ionenspur. Der Ionisationsgrad im Zentrum der Spur kann bei hochgeladenen Ionen beträchtlich sein, und bei leichteren Targetatomen sogar die vollständige Ionisation der Atome entlang der Flugbahn bewirken [Schi99]. Nach 10^{-14}s - 10^{-12}s wird eine atomare Bewegung stattfinden, die im wesentlichen zwei Szenarien gehorcht und deren Ursache stark vom Targetmaterial abhängt. Im einen Fall bildet sich durch Stöße der hochangeregten Elektronen untereinander eine hohe Temperatur in einem stark lokalisierten Gebiet aus.

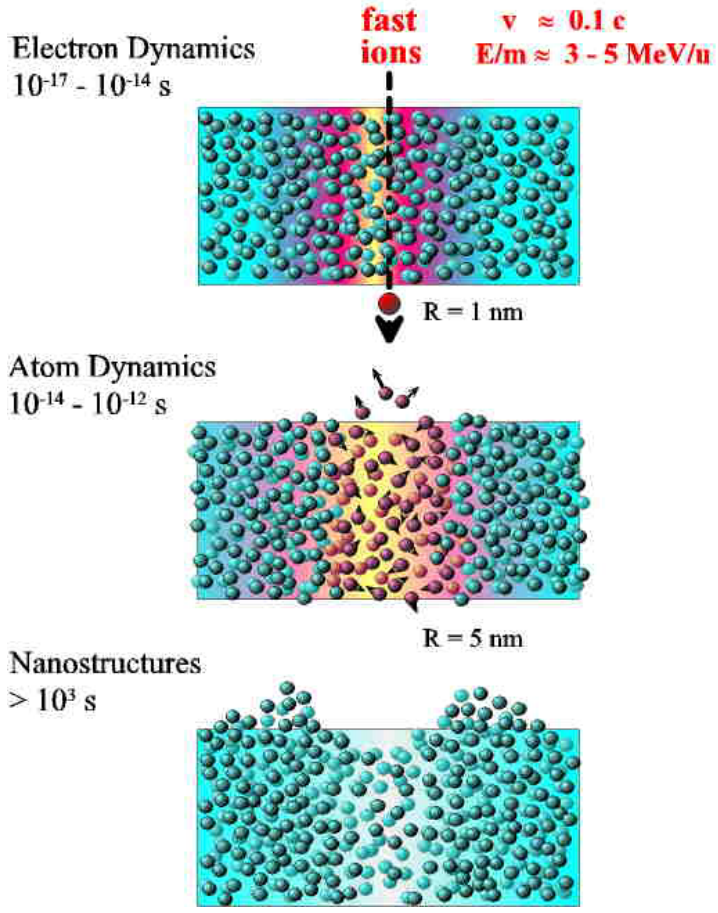


Fig. 7: Dynamik der Ionenspurentstehung

Dabei entsteht auch ein hoher Temperaturgradient. Durch die Kopplung der Elektronen an das Gitter gewinnen die Atome Energie und es kann eventuell zu einer Kristallstrukturänderung kommen [Toul00]. Im anderen Fall, besonders bei Isolatoren, können die herausgeschlagenen energiereichen Elektronen der Ionenspur in Fallen, wie z.B. Farbzentren oder gebundenen Exzitonen, eingefangen werden und somit nicht an ihren ursprünglichen Ort zurückkehren. Dabei bildet sich durch die positiv geladenen Atomrümpfe ein Kernspur-Potential aus, welches eine Abstoßung der geladenen Atome am Rand der Spur zur Folge hat [Flei65]. So kann es ebenfalls zu einer Kristallstrukturänderung in der Ionenspur kommen. An der Oberfläche kann es bei hohen Energien des atomaren Gitters zur Emission von einzelnen Atomen oder sogar ganzen Clustern von Atomen kommen. Die Emission der Teilchen ist winkelabhängig und besitzt in einigen Fällen in Richtung der Targetoberflächennormalen ein Jet-artiges Verhalten [Toul02, Toul03]. Zu größeren Winkeln hin nimmt die Emission monoton ab.

Die zwei diskutierten Modelle, die den Energieübertrag an das atomare Gitter beschreiben, bezeichnet man als ”Thermal-Spike”-Modell und ”Coulomb-Explosions”-Modell. Nach dem Energieausgleich können entlang der Ionenspur im Volumen veränderte Strukturen des Gitters, Dichte- und stöchiometrische Änderungen sowie verschiedenartige Krater an der Oberfläche zurückbleiben.

2.1.1 Ladungszustände von Ionen in Materie

Der Ladungszustand eines schnellen Ions beim Durchqueren von Materie ist hauptsächlich bestimmt vom Elektroneneinfang und vom Elektronenverlust durch Stöße mit den Targetatomen. Er wurde 1954 erstmals genauer von Bohr und Lindhard untersucht [Betz72] . Eine klassische Ratengleichung für die Zustandsbesetzung des Projektiles ohne Berücksichtigung von quantenmechanischen Interferenzen der Projektilzustände ist für homogene Targets gegeben durch [Betz72]

$$\frac{dY_f(q)}{dt} = \sum_{\substack{i,\, q(i)\prime \\ i \neq f}} \left(\sigma_{i,f} \cdot \rho \cdot v_p \cdot Y_i - \sigma_{f,i} \cdot \rho \cdot v_p \cdot Y_f + \frac{Y_i}{\tau_{i,f}} - \frac{Y_f}{\tau_{f,i}} \right) \qquad (2.1.1-1)$$

$f = \{n, l, m_l, m_s\}; i = \{n', l', m_l', m_s'\}$: Elektronenquantenzahlen
q : Ladungszustand
$\sigma_{i,f}$: Wirkungsquerschn. für den Übergang Anfangszustand $i \rightarrow$ Endzustand f
Y_i, Y_f : Besetzungswahrscheinlichkeit des Zustandes i bzw. des Zustandes f
$\tau_{i,f}$: Partielle Zerfallszeit von Auger- bzw. strahlendem Übergang $i \rightarrow f$
ρ : Atomare Dichte der Targetatome
v_p : Geschwindigkeit des Projektils

Die Ratengleichung hängt von den Wirkungsquerschnitten für die Besetzung bzw. Entvölkerung des jeweiligen Projektilzustandes durch Stöße mit den Targetatomen ab. Zusätzlich ist ein möglicher Zerfall jedes Zustandes berücksichtigt, welcher eine Entvölkerung des Anfangszustandes zur Folge hat und gleichermaßen eine Bevölkerung des Endzustandes bedeutet. Die Dichte der Materie ist ein Parameter, der besonders beim Vergleich von Gasen mit Festkörpern eine wesentliche Rolle spielt. Da in Festkörpern die atomare Dichte höher ist, tritt das Projektil häufiger in Interaktion mit Targetatomen und Targetelektronen. Die Stoßraten und die entsprechenden Übergangsraten wachsen somit proportional zur Dichte, während die Zerfallsraten von der atomaren Dichte in erster Näherung unabhängig sind. Dieser Effekt führt zu höheren Ladungszuständen in Festkörpern, da die angeregten Projektilzustände ionisiert werden bevor sie zerfallen können. Der mittlere Ladungszustand $\bar{q}$ des Projektiles ist gegeben durch

$$\bar{q} = \sum_{f,q} Y_f(q) \cdot q \qquad (2.1.1-2)$$

Für eine numerische Lösung dieser Gleichungen bedarf es eines erheblichen Rechenaufwandes, da jedes Projektilelektron eine weitere Dimension im Zustandsraum darstellt. Bei einer Benutzung von Wirkungsquerschnitten in 1.Ordnung Störungstheorie und mit einer geschickten genäherten Faktorisierung der Wahrscheinlichkeiten, ist die Behandlung von 1- bis 10-Elektronensystemen heutzutage möglich [Roze96]. Eine semiempirische Formel zur Berechnung des mittleren Ladungszustandes $\bar{q}_{semi}$ ist von Nikolaev und Dmitriev (1968) entwickelt worden [Clar76], die weniger Beschränkungen unterliegt. Diese Formel ist gültig für $Z_p \gtrsim 20$ mit Projektilenergien oberhalb von 100 MeV und ist gegeben durch

$$\frac{\bar{q}_{semi}}{Z_p} = \left(1 + \left(\frac{v_p Z_p^{-0.45}}{v_B}\right)^{-\frac{1}{0.6}}\right)^{-0.6} \qquad (2.1.1-3)$$

v_p : Geschwindigkeit des Projektiles
$v_B = 3.6 \cdot 10^8 \frac{cm}{s}$: Bohr´sche Geschwindigkeit

Für geringere Projektilenergien werden zunehmend Bandstruktureffekte wirksam und alle bekannten Parametrisierungen versagen. Der mittlere Ladungszustand $\bar{q}$ kann durch eine neue Prozedur abgeschätzt werden [Schi04], die keine Beschränkungen für die Projektilkernladung Z_p aufweist und für Projektilgeschwindigkeiten $v_p > 2v_B$ gültig ist. Fig.8 zeigt experimentelle Daten für verschiedene Festkörper-Targets und Projektilsorten und eine Anpassung mit den nachfolgenden Formeln, die einen relativen Fehler von ca. 2% besitzt.

$$\bar{q} = \frac{Z_p\,(8.29x + x^4)}{0.06/x + 4 + 7.4x + x^4} \qquad (2.1.1-4)$$

$$x = c_1 \left(\frac{\tilde{v}}{c_2 \cdot 1.54}\right)^{1+1.83/Z_p} \qquad (2.1.1-5)$$

$$c_1 = 1 - 0.26 \cdot e^{-\frac{Z_t}{11}} \cdot e^{-\frac{(Z_t - Z_p)^2}{9}} \qquad (2.1.1-6)$$

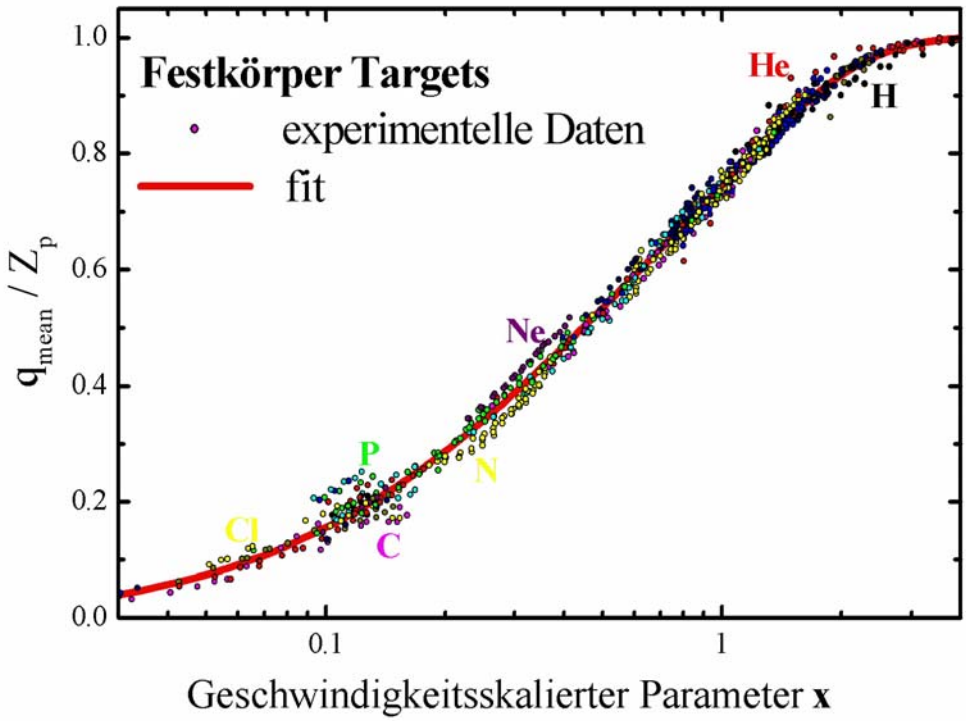


Fig. 8: Experimentelle Daten für den mittleren Ladungszustand von Ionen im Festkörper und Fit-Kurve entsprechend Gleichung (2.1.1 - 4)

$$c_2 = 1 + 0.030\tilde{v}\ln(Z_t) \qquad (2.1.1-7)$$

$$\tilde{v} = Z_p^{-0.543}\frac{v_p}{v_B} \qquad (2.1.1-8)$$

Z_t : Kernladungszahl des Targets
Z_p : Kernladungszahl des Projektiles
v_p : Geschwindigkeit des Projektiles
v_B : Bohr´sche Geschwindigkeit

Um im Vergleich zu Fig.8 eine noch verbesserte Übereinstimmung mit den experimentellen Daten zu erreichen, können noch zusätzlich Projektilschaleneffekte berücksichtigt werden [Schi04].

2.1.2 Energieverluste von Ionen im Festkörper

Ionen können beim Durchqueren von Festkörpern durch einen Stoß ihre Energie an die Gitteratome bzw. an die Elektronen abgeben. Beide Mechanismen können getrennt betrachtet werden und es wird zwischen dem nuklearen und elektronischen Energieverlust unterschieden. In beiden Fällen ist der Energieübertrag von der Energie bzw. der Geschwindigkeit des Ions abhängig. Fig.9 zeigt eine Berechnung für eine theoretische Behandlung des nuklearen und eine semiempirische Behandlung des elektronischen Energieverlustes [Zieg80] für Au-Ionen in einem Al-Target. Bei geringen Projektilenergien dominiert der nuk-

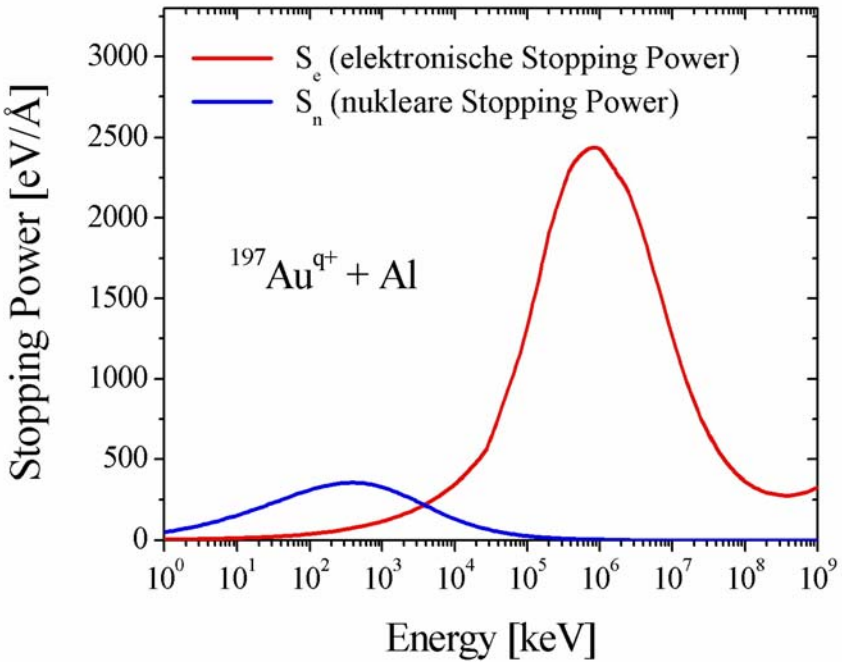


Fig. 9: Elektronische und nukleare Energieverlustkurve

leare Energieverlust und erst bei höheren Projektilenergien wird der elektronische Energieverlust dominant. Zunächst ist der elektronische Energieverlust proportional zur Wurzel der Projektilenergie (linear zur Projektilgeschwindigkeit). Bei steigender Projektilenergie wird zunehmends die Wechselwirkungszeit geringer, so daß nach Erreichen eines Maximums der Energieverlust für den elektronischen Anteil wieder abfällt. Beim elektronischen Energieverlust tritt durch die relativistische Massenzunahme ein weiterer (logarithmischer) Anstieg nach Erreichen eines lokalen Minimums auf.

Um einen theoretischen Ansatz für den elektronischen Energieverlust von Ionen in Materie machen zu können, kann man zunächst folgende zeitabhängige Schrödinger Gleichung betrachten [Schi94b].

$$H_e\left(\{R\left(t\right)\}\right)\Phi_e\left(\{r\},t\right)=i\frac{\partial}{\partial t}\Phi_e\left(\{r\},t\right) \qquad (2.1.2-1)$$

$\{r\}$: gesamter Satz der Elektronenkoordinaten
$\{R\left(t\right)\}$: gesamter Satz der Targetkernkoordinaten und Projektilkoordinaten
H_e : elektronischer Hamiltonoperator

Für eine Lösung dieser Gleichung wird das Problem auf ein einzelnes aktives Elektron reduziert (Modell unabhängiger Elektronen). Das dynamische Verhalten dieses Elektrons infolge der Projektilwechselwirkung wird durch schrittweise zeitliche Berechnung ermittelt. Die Konfiguration der weiteren Elektronen relativ zum Targetkern wird als stationär betrachtet. Der Hamiltonoperator wird zeitabhängig für die vorliegende Elektronenkonfiguration bestimmt. Die Gleichung $(2.1.2-1)$ kann durch einen Satz von gekoppelten Differentialgleichungen erster Ordnung ("coupled-channel" Gleichungen) ersetzt werden. Die elektronische Wellenfunktion Φ_e wird dabei in die Eigenzustände φ_i der Target-Wellenfunktion entwickelt, mit den Wahrscheinlichkeitsamplituden

$$a_i(t)=\langle\varphi_i|\Phi_e(t)\rangle \quad .$$

Es gilt :

$$i\frac{d}{dt}a_i(t)=\sum_j a_j(t)\exp\left(i\omega_{i,j}t\right)V_{j\to i}\left(R\left(t\right)\right) \qquad (2.1.2-2)$$

mit dem Energieübertrag

$$\omega_{i,j}=E_i-E_j \quad .$$

Die Matrixelemente für Übergänge in einem Festkörper ergeben sich aus dem Wechselwirkungspotential V_p zu

$$V_{k_i,n_i;k_{j\prime},n_{j\prime}}=\left\langle\varphi_{k_i,n_i}\left|V_p\left(r-\tilde{R}\left(t\right)\right)\right|\varphi_{k_{j\prime},nj\prime}\right\rangle \quad . \qquad (2.1.2-3)$$

$\tilde{R}\left(t\right)$: Abstand des Projektilkernes zum Target

Das Potential V_p ist dabei eine Funktion des Ortes des betrachteten Elektrons und des Projektiles. Es beinhaltet auch die elektronische Abschirmung [Eche95][Gran02] durch die umgebenden Projektilelektronen. Weiterhin ist der Barkas-Effekt in dieser Betrachtung eingeschlossen, der eine Projektilladungsabhängigkeit durch die dynamische Polarisation des angeregten Elektrons mit Z^3 berücksichtigt [Schi94a]. Dieser Effekt ist am ausgeprägtesten für Projektile, die etwa die ein- bis zweifache Bohr´sche Geschwindigkeit besitzen. Weiterhin sind auch alle anderen Wechselwirkungen höherer Ordnung durch diesen Ansatz berücksichtigt, die noch höhere Potenzen von Z liefern. Zusätzlich wird der mittlere Ladungszustand der Ionen berücksichtigt, der sich beim Durchgang durch die Materie einstellt und vom Ausgangsladungszustand in der Regel verschieden ist [Sigm02, Schi04]. Mit zunehmender Energie wird dieser kontinuierlich erhöht und bewirkt eine Erhöhung des Energieverlustes. Der Wirkungsquerschnitt σ_i für die Anregung oder Ionisation des Elektrons in den Zustand i ist durch die Integration über den Stoßparameter b gegeben durch

$$\sigma_i = \lim_{t\to\infty} \int_0^\infty db 2\pi b |a_i(t,b)|^2 \quad . \qquad (2.1.2-4)$$

Der gesamte elektronische Energieverlustwirkungsquerschnitt S_e ist die Summation der jeweiligen Wirkungsquerschnitte der möglichen angeregten Zustände multipliziert mit dem Energieübertrag $\omega_{i,0} = E_i - E_0$. Somit folgt

$$S_e = \sum_i \sigma_i \omega_{i,0} \quad . \qquad (2.1.2-5)$$

Für Projektilgeschwindigkeiten, die weit über der Bohr´schen Geschwindigkeit liegen dominiert die Z^2-Abhängigkeit von S_e. Für schwere Ionen ist zusätzlich ein Z^4-Term von Bedeutung. Hier findet der Übergang zur Bethe-Bloch-Formel [Momp96] statt, die einen theoretischen Ansatz für den elektronischen Energieverlust von geladenen Teilchen mit einer Energie von $\gtrsim$ 1 MeV/u in beliebiger Materie liefert. Der elektronische Energieverlust dE (”stopping power”) pro Weglänge dx ist gegeben durch

$$\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi N_A e^4 Z_p^2}{m_e v_p^2} \cdot \frac{Z_t}{A} \cdot \left[\ln\left(\frac{2 m_e v_p^2}{I} \cdot \frac{1}{1-\beta^2} \right) - \beta^2 + \Psi(1) - \mathrm{Re}\,\Psi\left(1 + i Z_p \frac{\alpha}{\beta}\right) \right] \qquad (2.1.2-6)$$

$\Psi(z) = \dfrac{d(\ln(\Gamma(z)))}{dz}$
$\Gamma(z)$: Euler Funktion
$\alpha \approx \dfrac{1}{137}$
$\beta = \dfrac{v_p}{c}$
N_A : Avogadro - Zahl
e : Elementarladung

Z_p : Kernladungszahl des Projektiles
Z_t : Kernladungszahl des Targets
A : Massenzahl des Targets
m_e : Ruhemasse des Elektrons
v_p : Geschwindigkeit des Projektiles
I : mittlere Ionisationsenergie pro Atom im Targetmaterial

Für kleine Projektilladungen heben sich die Ψ-Funktionen (Bloch-Korrektur) gegenseitig auf und man erhält die ursprüngliche Bethe-Formel. Die Bethe-Formel ist die asymptotische Hochenergielösung der 1. Born´schen Näherung (1. Ordnung Störungstheorie). Die 1. Ordnung Störungstheorie ist nur dann anwendbar, wenn alle reellen und virtuellen Anregungen vernachlässigbar sind. Die Gleichung $(2.1.2-2)$ vereinfacht sich dann zu

$$i\frac{d}{dt}a_i(t) = \exp\left(i\omega_{i,0}t\right)V_{0\to i}\left(R\left(t\right)\right) \qquad (2.1.2-2)$$

mit 0 als Bezeichnung des Anfangszustandes.

2.1.3 Elektronisches "Thermal-Spike"-Modell

Der Ausgangszustand in diesem Modell ist ein hochangeregtes Elektronensystem entlang der Ionenspur. Es basiert auf dem Wärmediffusionsmodell mit einer Kopplung zwischen dem elektronischen und atomaren System, welches Lifschitz unter der Annahme eines lokalen thermodynamischen Gleichgewichtes hergeleitet hat. Durch viele Stöße der Elektronen mit den Targetatomen erhalten die Atome kinetische Energie und können ihre ursprünglichen Gitterplätze verlassen. Dieser Sachverhalt kann durch zwei gekoppelte Differentialgleichungen dargestellt werden, wobei die temperaturabhängige Kopplungskonstante $g\left(\Delta T\right)$ die Stärke des Energieaustausches zwischen der Elektronenbewegung und den Gitterschwingungen (Phononen) bestimmt [Toul96b]. Die gekoppelten Differentialgleichungen sind gegeben durch

$$C_e\left(T_e\right)\frac{\partial T_e}{\partial t} = \nabla\left(K_e\left(T_e\right)\nabla T_e\right) - g\left(T_e - T_l\right) + B_e\left(r,t\right) \qquad (2.1.3-1)$$

$$C_l\left(T_l\right)\frac{\partial T_l}{\partial t} = \nabla\left(K_l\left(T_l\right)\nabla T_l\right) + g\left(T_e - T_l\right) \qquad (2.1.3-2)$$

C_i : spezifische Wärmekapazität, i = e(lectron), l(attice)
K_i : Wärmeleitfähigkeit, i = e(lectron), l(attice)
T_i : Temperatur des Systems, i = e(lectron), l(attice)
$B_e\left(r,t\right)$: depon. Energie des Ions (abhängig von Zeit und Ort) im elektron. System

Da die hier verwendeten schweren schnellen Ionen nur einen Energieverlust im elektronischen System vollziehen, tritt die Funktion $B_e(r,t)$ nur in der Differentialgleichung $(2.1.3-1)$ des elektronischen Systems auf. Eine Energieerhöhung des Gitters kann nur über die Kopplungskonstante $g(\Delta T)$ geschehen, wobei eine gleichzeitige Energiereduktion im elektronischen System erfolgt. Für den elektronischen Energieverlust S_e gilt die Beziehung

$$S_e = \int\int drdt 2\pi B_e(r,t) \quad . \qquad (2.1.3-3)$$

Für die Kopplungskonstante g eines freien Elektronengases, welches in Metallen in etwa erfüllt ist, gilt folgender Zusammenhang [Toul96a] mit

$$g = \frac{\pi^4 (k_B n_e v)^2}{18 K_l(T_l)} \quad . \qquad (2.1.3-4)$$

$v = \frac{k_B T_l}{\hbar \sqrt[3]{6\pi^2 n_l}}$: Schallgeschwindigkeit des Gitters
n_i : Dichte , i = e(lectron), l(attice)

Noch allgemeiner, also auch für Halbleiter und Isolatoren, ist die Kopplungskonstante gegeben [Toul96b] durch

$$g = \frac{D_e C_e}{\lambda_e^2} \quad . \qquad (2.1.3-5)$$

D_e : thermische Diffusivität
C_e : spezifische Wärmekapazität
λ_e : mittlere freie Weglänge der Elektronen

In Fig.10 ist die zeitliche Entwicklung der Temperatur des elektronischen und atomaren Systems dargestellt, die mit Hilfe der Formeln $(2.1.3-1)$ und $(2.1.3-2)$ berechnet worden ist. Hierbei wurde die dynamische Entwicklung der Temperaturverteilung von Ionenspuren in Cu durch die Bestrahlung mit 5 MeV/u U-Ionen betrachtet. In Abhängigkeit vom radialen Abstand zur Ionenspur werden zunächst für kleine Radien (≈10 Å) Temperaturen von ca. 10^5 K nach 10^{-15} s erreicht. Eine Temperaturänderung des atomaren Systems liegt zu diesem Zeitpunkt noch nicht vor. Zwischen 10^{-14} s und 10^{-13} s findet allmählich ein Temperaturausgleich zwischen dem sehr heißen Zentrum der Ionenspur und den kälteren entfernteren Gebieten um die Ionenspur statt. Die Elektronentemperatur beginnt für Radien unterhalb von etwa150 Å zu sinken während sie für größere Radien noch ansteigt. Nach ca. 10^{-13} s beginnt auch die Kopplung der Elektronen an das atomare Gitter und nach ca. 10^{-11} s liegt ein vollständiger Temperaturausgleich vor. Für SiO_2 kann die Temperatur des atomaren Systems bis zur Verdampfungstemperatur (≈3000 K) und für kleine Radien um die Ionenspur weit darüber hinaus (≈5000 K) ansteigen [Toul00].

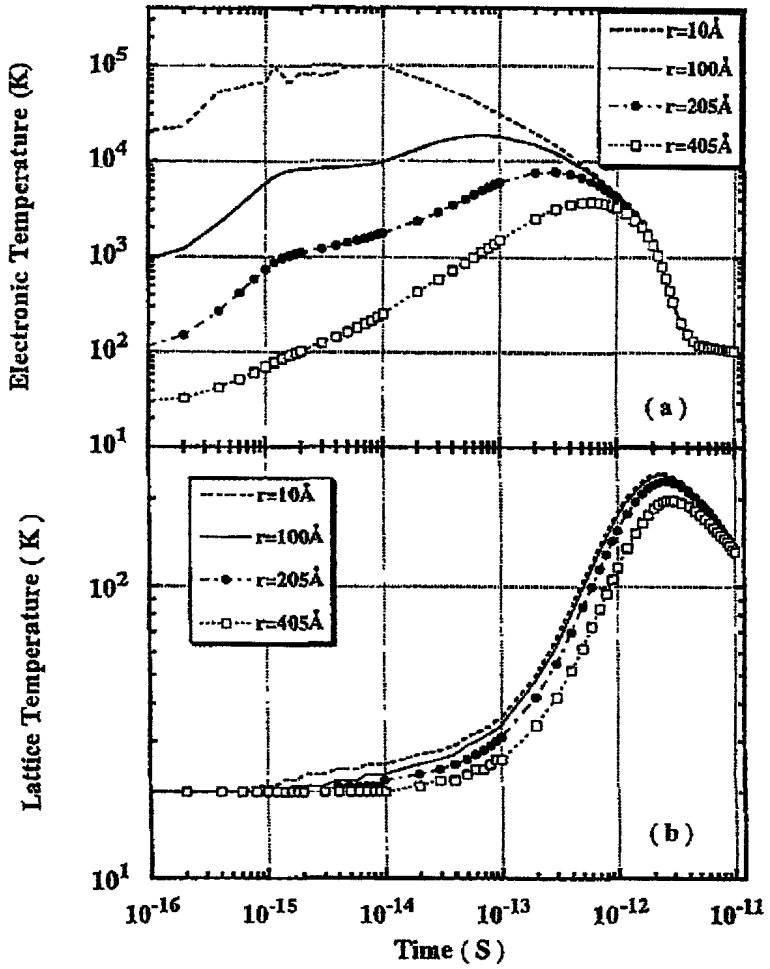


Fig. 10: Berechnung der Elektronentemperatur und die Kopplung an das Gitter für 5 MeV/u U-Ionen auf Cu - entnommen aus [Wang94].

2.1.4 ”Coulomb-Explosions”-Modell

Der Ausgangszustand in diesem Modell ist ein hoch ionisiertes Gebiet entlang der Ionenspur. Besitzt das Targetmaterial grössere Bandlücken, kann das entstehende positive Potential durch die schlechte Beweglichkeit der Löcher nicht neutralisiert werden. Zusätzlich müssen die herausgeschlagenen Elektronen in Fallen (z.B. Farbzentren oder gebundene Exzitonen) [Kitt68] gefangen werden. In Folge des positiven Potentiales stoßen sich die Atomrümpfe gegeneinander ab und verlassen ihre ursprünglichen Gitterplätze [Flei65]. Daraus ergbit sich die Bedingung

$$\frac{q^2\,(t)\,e^2}{\varepsilon a_0^4} > \frac{E}{10} \qquad . \qquad (2.1.4-1)$$

$q(t)$: mittlerer Ionisationsgrad
E : Elastizitätsmodul
e : Elementarladung
a_0 : Bohr´scher Radius
ε : Dielektrizitätskonstante

Weiterhin muß die Neutralisationszeit die Diffusionszeit der Targetionen (10^{-14}-10^{-13} s) überschreiten. Daraus ergibt sich für die Dichte n_e der freien Elektronen (in einem Halbleiter oder Isolator ohne elektrische Felder)

$$n_e < \frac{e n_a}{\pi a_0 \mu_e k_B T t} \quad . \qquad (2.1.4-2)$$

n_a : Anzahl der Ionisationen pro Atomlage
μ_e : Beweglichkeit der Elektronen
T : Temperatur

In einem Metall erwartet man (bei vernachlässigter Diffusion) eine schnelle Neutralisierung durch das zurückschwingende Elektronengas (Plasmaschwingung). Für mittlere Anregungen sollte die Neutralisationszeit der inversen Plasmafrequenz entsprechen.

$$t < \frac{1}{\omega_p} \quad \text{(ohne Diffusion - nur elektr. Feld !)} \qquad (2.1.4-3)$$

ω_p : Plasmafrequenz ($\approx 10^{15}$Hz in Metallen)

Für Metalle ist also kaum eine Coulomb-Explosion zu erwarten, wenn nicht langlebige Ionenschalenlöcher einen Beitrag zur Abstoßung liefern.

2.2 Quantifizierung der Energiekonversion im Festkörper mittels Auger-Spektroskopie

Mit Hilfe der Auger-Spektroskopie ist eine Möglichkeit zur Quantifizierung von einzelnen Prozessen der Dynamik in einer Ionenspur gegeben [Schi00]. Fig.11 zeigt eine schematische Darstellung des KVV-Auger-Zerfalles eines Berylliumatoms. Das linke Bild zeigt den Anfangszustand eines einfach ionisierten Be-Atoms mit einem Elektronenloch in der K-Schale. Diese Ionisation der K-Schale kann durch Ionen, aber auch durch Elektronen oder Röntgenstrahlung geschehen. Der Übergang, bei dem der Zerfall nicht durch Emission eines Photons vonstatten geht, ist der Auger-Zerfall. Dabei füllt ein Elektron

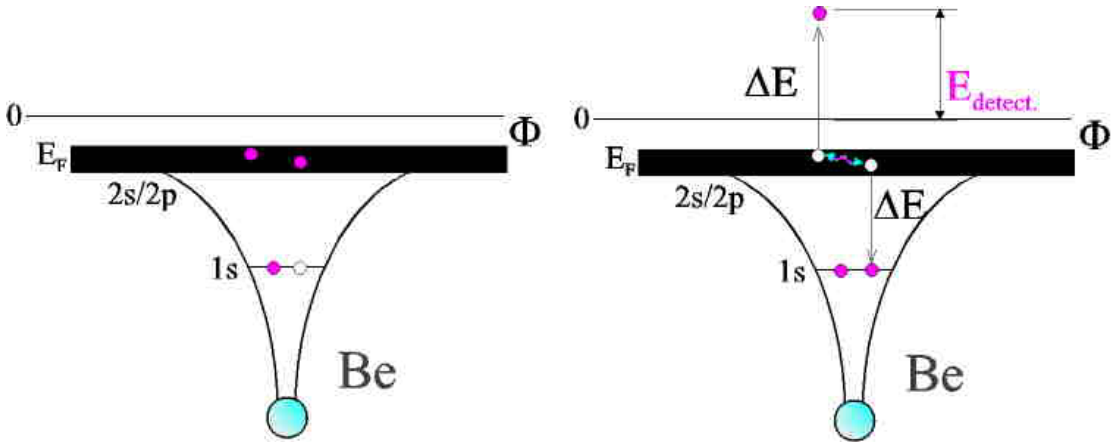


Fig. 11: Auger-Zerfall von Beryllium

aus dem Valenzband die Lücke in der K-Schale auf und überträgt die positive Energiedifferenz an das zweite Valenzelektron. Dieses wird durch den Zugewinn an kinetischer Energie in das Vakuum emittiert (rechtes Bild von Fig.11). Dabei muß jedoch die Austrittsarbeit Φ berücksichtigt werden, die eine Reduzierung der kinetischen Energie bewirkt. Diesen Übergang bezeichnet man als KVV-Auger-Zerfall, da ein Elektron aus dem Valenzband das Loch in der K-Schale füllt (KV) und das emittierte Elektron aus dem Valenzband (V) stammt. Als Konkurrenzprozeß zum Auger-Zerfall tritt der Zerfall mit der Emission eines Röntgenquantes hinzu. Die sogenannte Fluoreszensausbeute (relative Wahrscheinlichkeit des Überganges durch Photonenabstrahlung) der K-Schale ist stark von der Kernladungszahl Z abhängig [Maye85]. Für $Z < 30$ ist der Auger-Zerfall mit über 50% dominant. Mit steigendem Z wird die Wahrscheinlichkeit des Auger-Zerfalles der K-Schale schwächer und liegt für $Z > 60$ unter 10% . Abhängig vom Material und den Quantenzahlen des Loches liegen die Auger-Zerfallszeiten meist in einem Bereich von 10^{-15} - 10^{-13} s. Dieses ist der Zeitbereich, in dem die elektronische und atomare Dynamik in der Ionenspur auftritt. Aus der Form, Intensität und Energieposition der Auger-Linien ergeben sich qualitative und quantitative Aussagen zur Anregungsstärke des Elektronensystems (Temperatur und Mehrfachionisation) und zur Stärke des elektrostatischen Potentiales in der Ionenspur. Zusätzliche Informationen können aus der Winkelabhängigkeit der emittierten Auger-Elektronen gewonnen werden. Diese Zusammenhänge werden im Abschnitt 4.2 diskutiert.

2.2.1 Energieverteilung der Auger-Elektronen

Wie in Fig.11 angedeutet, wird die kinetische Energie der emittierten Auger-Elektronen relativ zum Vakuumniveau detektiert. Bei Auger-Zerfällen, an denen Valenzbandelektronen beteiligt sind, variieren die Anfangsenergien der Elektronen innerhalb der jeweiligen Bandbreite. Diese Auger-Elektronen besitzen keinen scharfen Energiewert im Gegensatz zu Auger-Elektronen aus reinen Innerschalenübergängen. Für die Energieverteilung F_0^{bulk}(E) der erzeugten Auger-Elektronen im Volumen gilt folgende Abhängigkeit [Schi98] :

$$n_x(\varepsilon = E - E_{Fermi}, T_e) = D_x(E) \cdot f(\varepsilon, T_e) \qquad (2.2.1-1)$$

$n_x(\varepsilon, T_e)$: temperaturabhängige Energieverteilung der Elektronen im Band X
$D_x(\varepsilon)$: Zustandsdichte vom Band X
$f(\varepsilon, T_e) = \dfrac{1}{\exp\{(\epsilon - \mu)/k_b T_e\} + 1}$: Fermi-Dirac Verteilung mit
T_e : Temperatur der Elektronen
μ : chemisches Potential

Somit ist bei konstantem T_e

$$F_0^{bulk}(E) = C \sum_{x,y} \mid V_{x,y} \mid^2 \int d\varepsilon n_x(\varepsilon) \cdot n_y \left(E - I_{shell} - \varepsilon\right) \qquad (2.2.1-2)$$

mit

$|V_{x,y}|^2$: Übergangswahrscheinlichkeit pro Zeiteinheit des jeweiligen Auger-Prozesses
$n_{x,y}$: Energieverteilung der Elektronen im Band X,Y
I_{shell} : Innerschalenbindungsenergie

Um nun den Transport der Elektronen durch den Festkörper bis zur Oberfläche zu berücksichtigen, muß man zwei Arten des Energieverlustes betrachten. Erstens können Plasmonen erzeugt werden, eine kollektive Anregung vieler Elektronen, die einen diskreten Energieverlust pro Plasmon bedeutet. Zweitens können die Elektronen durch direkte Einzelanregung von anderen Targetelektronen einen kontinuierlichen Energieverlust erleiden. Diese Inter- und Intra-Bandübergänge werden stark durch die Bandstruktur bestimmt.

Für die Berücksichtigung der Plasmonenanregung kann man folgende iterative Form der Energieverteilung F_n^{bulk}(E) betrachten, wobei n die Anzahl der erzeugten Plasmonen ist und $\left(\frac{dP}{dE}(\varepsilon)\right)_{Plasmon}$ die Plasmonenenergieverlustfunktion.

$$F_n^{bulk}(E) = \int d\varepsilon F_{n-1}^{bulk}(E - \varepsilon) \cdot \left(\frac{dP}{dE}(\varepsilon)\right)_{Plasmon} \qquad (2.2.1-3)$$

$$\left(\frac{dP}{dE}(\varepsilon)\right)_{Plasmon} = (1 - C_{Plasmon})\,\delta(\varepsilon) + C_{Plasmon} \frac{\exp\left(-\frac{(\varepsilon + E_{Plasmon})^2}{2\sigma^2}\right)}{\sigma\sqrt{2\pi}} \qquad (2.2.1-4)$$

$C_{Plasmon}$: Wahrscheinlichkeit für eine Plasmonenanregung pro Zeiteinheit

Schon bei Werten von n=2 wird der Einfluß der Plasmonen auf die Linienform im Allgemeinen ausreichend gut beschrieben. Für den kontinuierlichen Energieverlust durch Einzelelektronenanregung erhält man nach [Toug82] die Energieverteilung F_{CSD}^{bulk}(E) (”Continuous Slowing Down”) mit

$$F_{CSD}^{bulk}(E) = C_{direct} \cdot \int dE_0 F_0^{bulk}(E_0) \cdot J\left(E, E_0, \overrightarrow{\Omega}\right) \qquad (2.2.1-5)$$

$$J\left(E, \overrightarrow{\Omega}\right) \simeq C \cos\theta \cdot \begin{cases} \frac{1}{S(E)}; \Delta E < R_l S(E) \\ \sqrt{R_l / S(E)} \frac{1}{\sqrt{\Delta E}}; \Delta E > R_l S(E) \end{cases} \qquad (2.2.1-6)$$

$R_l = \frac{16}{3\pi}\lambda_l$
ΔE : Energieübertrag $(E_0 - E)$
λ_l : mittlere freie Weglänge (ohne Plasmonenanteil)
S : mittlerer elektronischer Energieverlust
C_{direct} : Wahrscheinlichkeit für eine elektronische Anregung
$\overrightarrow{\Omega}$: Raumwinkel

Der obere Ausdruck in Gleichung (2.2.1 - 6) beschreibt eine rein ballistische Bewegung für kurze Wegstrecken während der untere Ausdruck einer Elektronendiffusion über große Abstände entspricht. Die gesamte Energieverteilung F^{vacuum}(E) der Elektronen, die in das Vakuum emittiert werden, ist gegeben mit der Brechung am Oberflächenpotential $V_{surface}$ und durch Energieverluste durch Plasmonenanregung und Einzelelektronenanregung.

$$F^{vacuum}(E) = \left(F_{CSD}^{bulk}(E) + \lim_{n\to\infty} F_n^{bulk}(E)\right) \cdot \frac{E}{E + V_{surface}} \qquad (2.2.1-7)$$

Dabei wird angenommen, daß Kreuzterme zwischen F_{CSD}^{bulk} und F_n^{bulk} vernachlässigbar klein sind.

Ein weiterer entscheidender Faktor ist die Zustandsdichte $D(E)$ (DOS: Density of States) [Schä96] des Valenzbandes, die in die Energieverteilung der Valenzbandelektronen eingeht (siehe Gleichungen 2.2.1-1 und 2.2.1-2). Für einige Metalle kann man in erster Näherung ein freies Elektronengas annehmen. Für viele Metalle und für amorphe metallische Legierungen kann die DOS jedoch eine komplizierte Funktion der Energie sein. In Fig.12 ist die Darstellung der Zustandsdichte des Valenzbandes von Beryllium [Pari99]

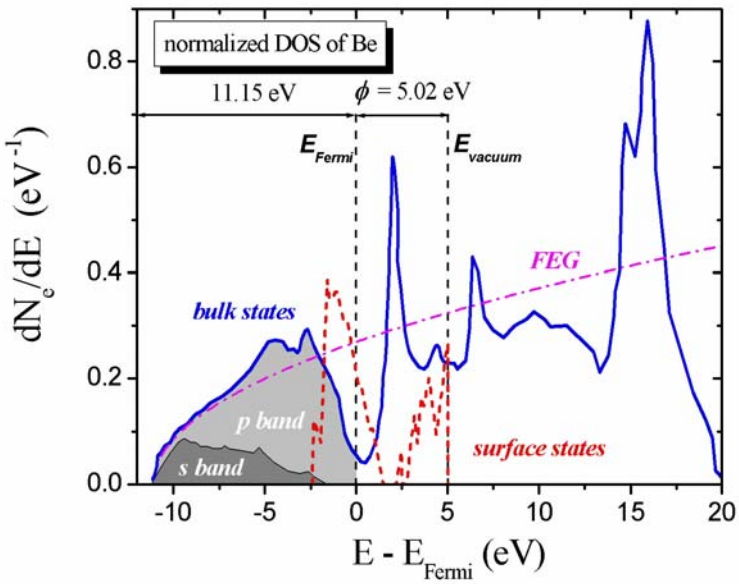


Fig. 12: Zustandsdichte (DOS) des Valenzbandes von Beryllium

dargestellt. Bei einer Temperatur gleich 0 K können die Valenzelektronen höchstens die Fermi-Energie E_{Fermi} besitzen. Unterhalb der Fermi-Energie sind das s-Band und das p-Band angedeutet, die von Valenzelektronen besetzt sein können. Bei Temperaturen oberhalb von 0 K sind auch Besetzungszustände oberhalb der Fermi-Energie innerhalb der DOS-Verteilung möglich (blaue Kurve für ε=E-E$_{Fermi} > 0$). Weiterhin ist in der Darstellung die Zustandsdichte für ein freies Elektronengas (FEG, strich-punktierte Kurve) eingezeichnet, welche proportional zu $\sqrt{\varepsilon}$ ist [Kitt68]. Dieser Verlauf ist für die Aluminiumelektronen eine gute Näherung, führt jedoch für Beryllium zu einer starken Überschätzung der Zustandsdichte in der Nähe der Fermi-Energie, da hier ein deutliches Minimum vorliegt.

2.2.2 Hypersatellitenlinien und Mehrfachionisation

Bei hinreichend hohen Ladungszuständen des Projektils, die bei schweren Ionen leicht zu erreichen sind, werden die Targetatome mehrfach ionisiert und es entstehen die sogenannten Hypersatellitenlinien im Auger-Spektrum. Besonders im Zentrum der Ionenspuren, wo die Energiedeposition an das elektronische System am höchsten ist, kann im Fall von leichten Targetatomen wie Beryllium eine vollständige Ionisation aller Schalen und Bänder stattfinden. Bei schwereren Targetatomen wie Aluminium kann die L-Schale bis zu 5-fach ionisiert werden. Fig.13 und Fig.14 zeigen zwei untergrundsubtrahierte Energiespektren der Auger-Linien von Be (K^1VV- und K^2VV-Auger-Linien) und Al (L^1VV- bis L^4VV-Auger-Linien). Der hochgestellte Index nach dem ersten Buchstaben, der die Schale

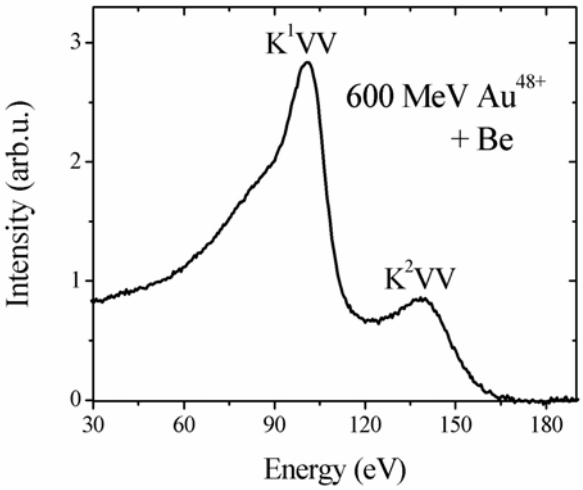


Fig. 13: KVV-Auger-Linien von Be

des Loches kennzeichnet, ist der Grad der Ionisation dieser Schale. Die Energie der verschiedenen Auger-Linien verschiebt sich mit einem höheren Grad der Ionisation zu höheren Energien, da die verbleibenden Innerschalenelektronen immer stärker an den Atomkern gebunden werden. Daraus folgt auch eine erhöhte Bindungsenergie des Loches und damit eine höhere Übergangsenergie. Dieses wird bei den LVV Auger-Linien für Al in Fig.14 besonders deutlich.

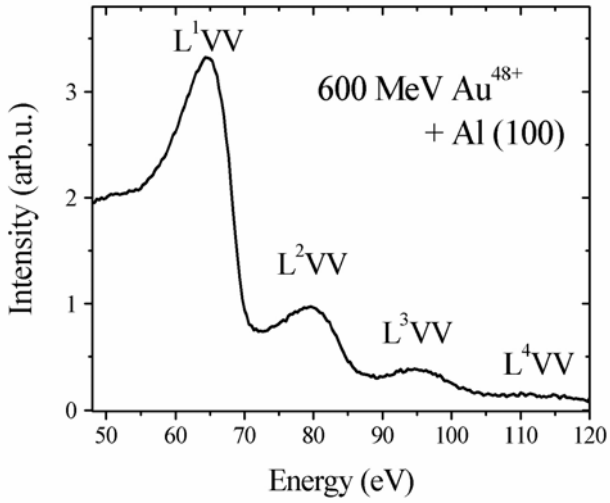


Fig. 14: LVV-Auger-Linien von Al (100)

2.2.3 Linienform und Elektronentemperatur

Um die Stärke der Anregung im elektronischen System quantifizieren zu können, kann man die Temperatur der Elektronen einführen bzw. definieren. Thermodynamisch ist die Temperatur eine Zustandsgröße, die sich aus dem Mittelwert der kinetischen Energien aller Teilchen ergibt. Sie ist wohl definiert für den Gleichgewichtszustand eines größeren Volumens, welches viele Teilchen beinhaltet. Der Begriff der Elektronentemperatur ist hier von spezieller Art, da ein starker Temperaturgradient abhängig vom Ort und von der Zeit in der Ionenspur vorherrscht. Die Energieabgabe des Ions an einzelne Valenzelektronen erfolgt in etwa 10^{-17}s. Nach einigen Stößen jedes Elektrons mit anderen Elektronen der Probe sind etwa 10^{-14}s vergangen, wobei sich eine lokale thermodynamische Energieverteilung einstellt und es zu den Auger-Zerfällen der innerschalenionisierten Atomen kommt. Für diese mittlere Zerfallszeit kann man nun einen Temperaturwert (mittlere kinetische Energie) der Elektronen aus der Auger-Linienverbreiterung aufgrund einer veränderten Fermi-Dirac-Verteilung der Valenzbandelektronen extrahieren. Um eine Linienverbreiterung der Auger-Linie wahrnehmen zu können, benötigt man ein Referenzspektrum, welches einer Auger-Linie bei einer Temperatur nahe 0 K entspricht. Diese Spektren werden mit Elektronen als Projektil erzeugt. Die Primärelektronen geben wegen ihrer geringen Ladung nur wenig Energie an andere Elektronen ab und erzeugen somit keine Bereiche bzw. Spuren, in denen ein hochangeregtes Elektronensystem vorliegt. In Fig.15 ist eine K^1VV-Auger-Linie von Be dargestellt, einmal von Ionen und zum anderen als Referenz von Elektronen induziert. Der kontinuierliche Untergrund sowie der Anteil der Doppelionisation wurden

bereits subtrahiert. Es ist zu erkennen, daß die rechte Flanke (Hochenergieflanke) der

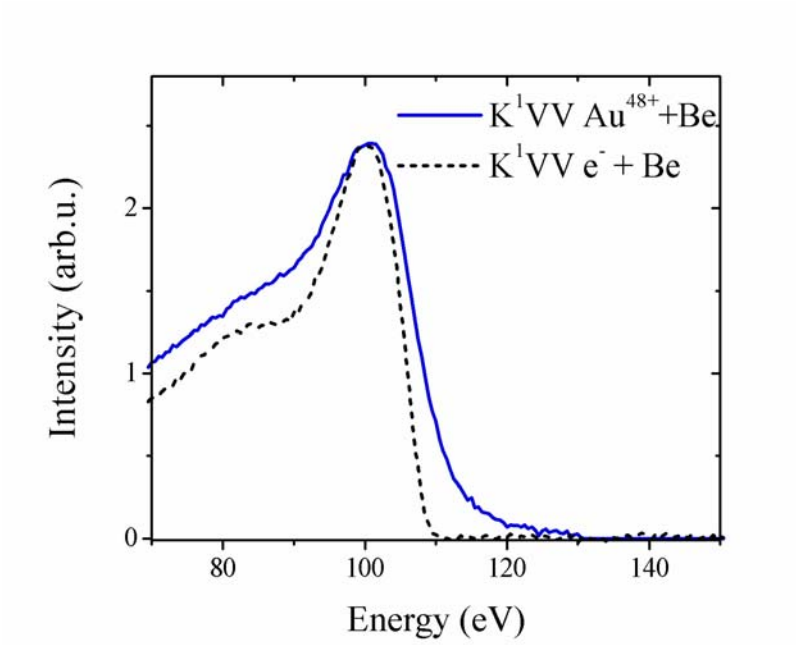


Fig. 15: K^1VV-Auger-Linien induziert durch Au-Ionen bzw. Elektronen

ioneninduzierten Auger-Linie gegenüber der elektroneninduzierten Auger-Linie deutlich verbreitert ist. Die asymmetrische Form der Auger-Linie unterhalb des Linienmaximums ist auf den Energieverlust der Auger-Elektronen im Festkörper beim Transport zur Targetoberfläche zurückzuführen. Für eine erste Abschätzung der Elektronentemperatur T_e im Zentrum der Ionenspur zur K^1VV-Zerfallszeit kann man für metallische Proben folgende Näherung [Schi99] benutzen :

$$T_e = \frac{2}{3}\frac{1}{\sqrt{2}k}\sqrt{(\Delta E)^2 - (\Delta E_0)^2} \qquad (2.2.3-1)$$

mit
ΔE : Halbwertsbreite der ioneninduzierten Auger-Linie
ΔE_0 : Halbwertsbreite der elektroneninduzierten Auger-Linie
k : Boltzmann Konstannte $\approx 8.62 \cdot 10^{-5}\ \frac{eV}{K}$

Die Asymmetrie der Linie findet Berücksichtigung, indem nur die rechte Seite der Linie, also die halbe Halbwertsbreite, zur Ermittlung der Halbwertsbreite benutzt wird. Der $\sqrt{2}$-Term berücksichtigt die Faltung zweier Zustandsdichten für die beiden beteiligten Valenzelektronen beim Auger-Zerfall. Die Halbwertsbreiten der ioneninduzierten und der elektroneninduzierten Auger-Linie beinhalten die gleiche experimentelle Energieauflösung

und so werden durch die Differenzmethode mögliche experimentelle Fehler stark reduziert. Somit wird das Resultat im wesentlichen durch die Breite der Fermi-Dirac Verteilung bestimmt.

2.2.4 Energieverschiebung und Ionenspurpotentiale

Ein weiterer Effekt neben der Elektronentemperatur ist die Entstehung eines elektrischen Potentiales innerhalb der Ionenspur. Durch den hohen Energieübertrag auf die Elektronen verlassen diese das Zentrum der Spur und es entsteht kurzzeitig ein positives Potential, verursacht durch die positiven Atomrümpfe. Dieses Ionenspurpotential kann durch andere gut bewegliche Elektronen im Festkörper (Valenzelektronen) neutralisiert werden, wenn solche Elektronen, wie z.B. in Metallen oder metallischen Verbindungen, vorhanden sind. Bei weniger gut leitenden Materialien, wie Halbleitern oder sogar sehr schlecht leitenden Isolatoren, ist die Neutralisierung durch große Bandlücken stark eingeschränkt. Die energiereichen Elektronen verlassen das Zentrum der Ionenspur, können aber kurzzeitig nicht wieder zurückkehren (eventuell werden sie sogar an Gitteratomen bzw. atomaren Störstellen gebunden) und andere Elektronen sowie Löcher sind in ihrem Bereich zu stark gebunden. In diesem Fall wird das positive Potential in der Ionenspur relativ lange Bestand haben, sogar bis zu den Auger-Zerfallszeiten. Dann werden die den Festkörper verlassenden Auger-Elektronen durch das Potential retardiert. Im Energiespektrum tritt eine Verschiebung der gesamten Auger-Linienstruktur zu geringeren Energiewerten auf. In Fig.16 wird ein Spektrum gezeigt, welches solch eine Linienverschiebung aufzuweisen hat. Hier wurde eine Polypropylen-Folie mit $^{58}Ni^{23+}$-Ionen bestrahlt und zusätzlich mit einem C-K^1VV-Referenzspektrum von amorphem Kohlenstoff verglichen. Die gemessene Energieverschiebung der C-K^1VV-Auger-Linie von Polypropylen zu niedrigeren Werten beträgt ca. 50 eV zur mittleren Auger-Zerfallszeit von ca. 15 fs [Krau79]. Diese ist um einige Größenordnungen höher als die der üblichen chemischen Verschiebungen (C im Vergleich zu C_3H_6) und ist konsistent mit einer vollständigen Unterdrückung der Neutralisation der Ionenspur in Polypropylen [Xiao96].

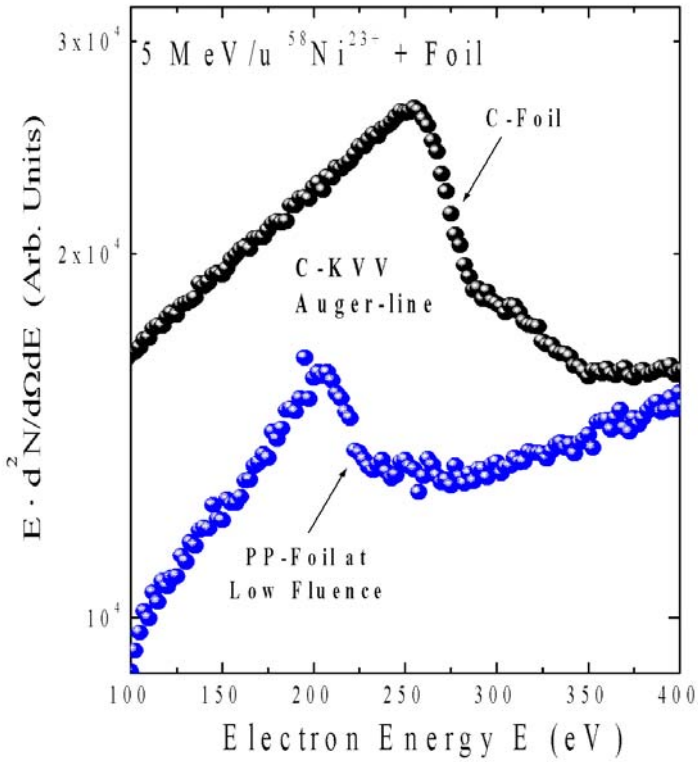


Fig. 16: C-KVV-Auger-Linien von einer C-Folie bzw. einer PP-Folie mit einer Energiedifferenz von ca. 50 eV

Kapitel 3
Versuchsaufbau und Neuerungen an der Apparatur

Zunächst sollen an dieser Stelle der grundsätzliche Aufbau der Apparatur vorgestellt und die Neuentwicklungen nachfolgend erläutert werden.

3.1 Ultrahochvakuum-Kammersystem (UHV)

Die Apparatur besteht im wesentlichen aus drei Kammern, die durch Ventile getrennt bzw. miteinander verbunden werden können, wie es in Fig.17 dargestellt ist. Dabei befindet sich die Hauptkammer in der Mitte zwischen der Target-Präparationskammer und der differentiellen Pumpstufe, die zusätzlich mit Geräten zur Manipulation und Kontrolle des Ionenstrahls ausgestattet ist.

3.1.1 Hauptkammer

In der Hauptkammer, in der der Ionenstrahl auf das Target trifft, ist zunächst das im Winkel verfahrbare Elektronenspektrometer zu erwähnen. Dieses kann die Zählrate von Elektronen mit einer bestimmten kinetischen Energie ermitteln. Die doppelte μ-Metallabschirmung verhindert ein Durchgreifen des Erdmagnetfeldes, welches auf die Trajektorien der zu detektierenden Elektronen wirken würde. Weiterhin ist in der Hauptkammer die Elektronenkanone für die Generierung von elektroneninduzierten Spektren in einem Winkel von 45° zu der Targetoberflächennormalen positioniert. Die Targetoberflächennormale entspricht der Richtung des einfallenden Ionenstrahls. Zur weiteren Analyse des Targets steht eine Röntgenquelle für XPS-Spektren (X-ray Photoelectron Spectroscopy) und eine UV-Quelle für UPS-Spektren (UV Photoelectron Spectroscopy) zur Verfügung. Das Target, welches in einem speziellen Targethalter (konzipiert in dieser Arbeit, siehe Anhang) integriert ist, kann mit einem Manipulatorarm von der Hauptkammer in die Präparationskammer gefahren werden.

3.1.2 Präparationskammer

Die wichtigste Aufgabe der Präparationskammer ist die Reinigung der Targetoberfläche durch Sputtern (Ionenstrahlätzen) mit Argonionen. Auch ist es möglich durch Implantation von Sauerstoff definierte dünne Oxidschichten herzustellen. Die Reinigung ist wichtig,

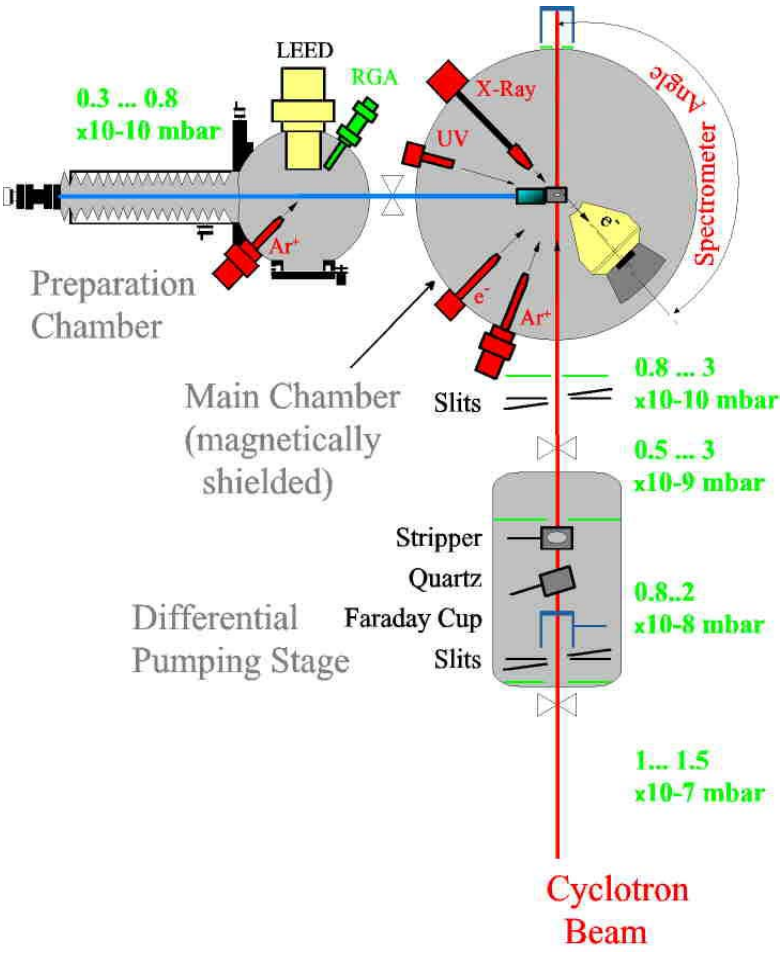


Fig. 17: Targetkammersystem und Ionenstrahlführung

weil sich die Meßergebnisse schon bei einer atomaren Lage von Fremdatomen auf der Targetoberfläche zu verfälschen beginnen. Dabei ist insbesondere ein Ultrahochvakuum (etwa 10^{-10} mbar) in dem Kammersystem nötig und die Präparationskammer dient auch der Hauptkammer als zusätzliche Pumpstufe. Weiterhin befindet sich ein Massenspektrometer (”Residual-Gas Analyser”) und eine LEED-Kanone (Low Energy Electron Diffraction) an der Präparationskammer. Mit dem LEED kann man das Target auf einen kristallinen Zustand durch Elektronenbeugung am Kristallgitter untersuchen.

3.1.3 Differentielle Pumpstufe

Die differentielle Pumpstufe reduziert den Druck der ISL-Anlage (Ionen Strahl Labor) von etwa 10^{-7} mbar auf den nötigen UHV-Druck in der Hauptkammer. Im vorhandenen

Blendensystem findet an jeder einzelnen Blenden ein Druckabfall statt, welches in der Elektrik mit dem jeweiligen Spannungsabfall an einem Serien-Widerstandssystem zu vergleichen ist. Die Formalismen der Elektrik (Kirchhoff´sche Regel und Ohm´sches Gesetz) sind hier in gleicher Weise anwendbar. Weiterhin wird die Kammer der differentiellen Pumpstufe für verschiedene Elemente zur Ionenstrahloptik und -analyse genutzt (Kollimatoren, Stripperfolie, Faraday-Cup, Quarz für Strahlfleckgeometrie).

3.2 Elektronenspektrometer

Das Elektronenspektrometer stellt ein sehr wichtiges und empfindliches Gerät zur Messung der kinetischen Energie der Elektronen dar. Die Empfindlichkeit soll hier nicht nur als die Auflösung der Elektronenenergie verstanden werden, sondern damit einhergehend die Geometrie und die Abmaße des Spektrometers, die den Nachweisraumwinkel und die Winkelauflösung bestimmen. Das Spektrometer ist als ein elektrostatisches 90° Plattenspektrometer konstruiert. Nach dem Eintritt der Elektronen gelangen sie zu einem elektrostatischen Deflektor und nach der 90°-Ablenkung in einen Mikrokanalplatten-Detektor (Microchannel Plate). Die Elektronentrajektorien können für beliebige Spektrometergeometrien inklusive Randfelder mit dem Simion-Programm [Simi00] berechnet und graphisch dargestellt werden, wie in Fig.18 gezeigt ist. Die Elektronen gelangen durch den Eintritt auf der

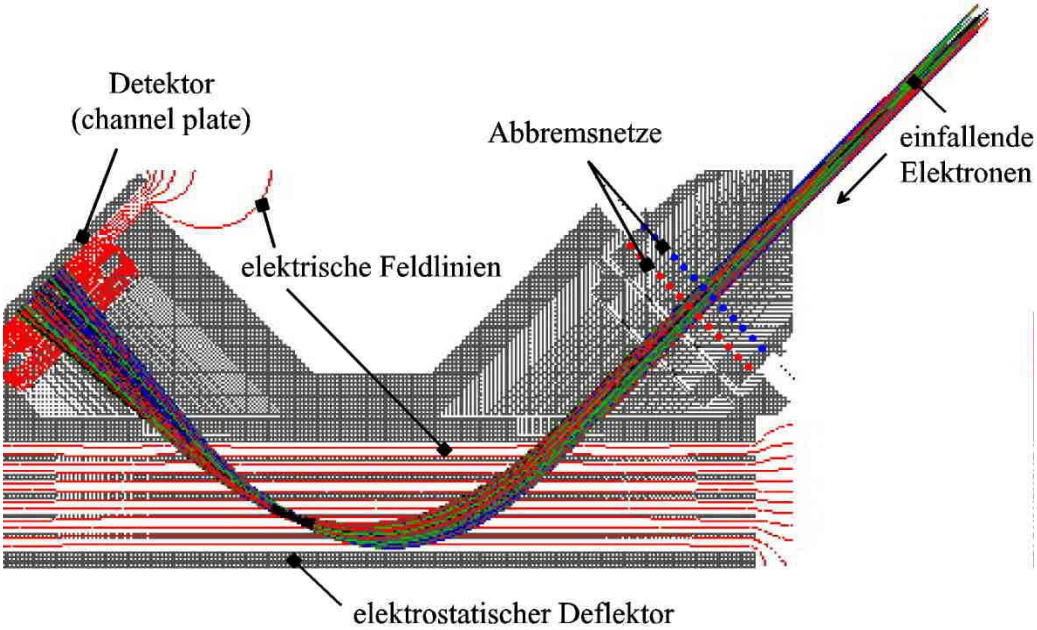


Fig. 18: Elektronentrajektorien im 90° Elektronenspektrometer (Schnittdarstellung)

rechten oberen Seite der Abbildung in das Innere des Spektrometers. Alsbald durchqueren sie zwei Netze in der ”Nase” des Spektrometers. Das erste liegt auf Masse und das nachfolgende kann mit einer Retardierungsspannung versehen werden. Dieser ”Deceleration-Mode” ist zur Erhöhung der Energieauflösung für energiereiche Elektronen vorgesehen. Die Abbremsspannung kann wahlweise konstant oder prozentual zur detektierten Elektronenenergie mit einem Programm, welches die Spannungsversorgungen für die Spektrometerspannungen ansteuert, eingestellt werden. Im relativen ”Deceleration-Mode” kann die kinetische Energie bis auf 1% reduziert werden, um noch auswertbare Energiespektren zu erhalten. Dabei wird die Energieauflösung um einen Faktor von etwa 20 verbessert bei einer noch akzeptablen Reduktion der Spektrometertransmission. Im weiteren Verlauf der Trajektorien bemerkt man kurz nach der 90° Ablenkung einen Fokuspunkt. Dieser Punkt kann durch Veränderung der Spektrometergeometrie z.B. der Eintrittsnase, Ein- und Austrittsschlitze, Form des elektrostatischen Feldes usw. variiert werden. Der Fokuspunkt wird so gelegt, daß für einen großen Bereich von relativen Abbremsungen der Elektronen der Austrittsschlitz optimal passiert werden kann, und die Elektronen danach auf das Microchannel Plate treffen. Auch sollen möglichst wenige Elektronen durch Streuung im Spektrometer in die Detektoreinheit gelangen. Deshalb wurde im Rahmen dieser Arbeit der Bereich der Rückwand der Ablenkplatten, der durch den primären Elektronenstrahl in Vorwärtsrichtung getroffen wird, durch ein Netz ersetzt, welches eine Transmission von etwa 80 % besitzt. Dabei wurde auch auf hervorgerufene Kontaktpotentiale durch verschiedene Materialien geachtet und diese weitgehend reduziert. Durch dieses Netz und einen zweiten Blendensatz in der Spektrometernase konnte der unerwüschte Untergrund durch elastisch gestreute Elektronen um einen Faktor von etwa 3 reduziert werden.

3.3 Targettransferkammer

Die Targettransferkammer ist eine vollständige Neuentwicklung im Rahmen dieser Arbeit. Fig.19 zeigt Bilder der Kammer, wie sich der Aufbau der Targettransferkammer gestaltet. Dieses System erlaubt verbesserte Handhabungen und Präparationsmöglichkeiten der Proben im vorhandenen UHV-Vakuumsystem als bisher in der Präparationskammer. Zunächst besteht die Möglichkeit bis zu fünf Targets in speziellen Targethaltern in der Kammer zu lagern. Diese können mit einem Greifarm (”wobble stick”), welcher mehrere Bewegungsrichtungen erlaubt, auf dem Manipulatorarm angebracht werden. Der Manipulatorarm kann nun für die Messung von der Präparationskammer in die Hauptkammer gefahren werden (siehe Fig.17). Fig.20 zeigt die Verbindung der Targettransferkammer zur Präparationskammer. Der größte Vorteil der Targettransferkammer ist die Kombination mit den beweglichen Targethaltern, da man früher die Präparationskammer belüften und infolgedessen das UHV-Vakuum brechen mußte, um das Target zu wechseln. War man

Fig. 19: Kammer zum Targettransfer und zur Aufbewahrung von mehreren Targets

gezwungen einen Targetwechsel während einer Ionenstrahlzeit zu vollziehen, mußte man einen erheblichen Zeitverlust in Kauf nehmen, denn ein brauchbares UHV-Vakuum war erst nach einigen Stunden wieder vorhanden. Mit diesem neuen System kann die Planung der Strahlzeiten besser gestaltet werden, da man nun mehrere Targets innerhalb einer Strahlzeit untersuchen kann, wie z.B. zur Messung der Winkelabhängigkeit der Emission von Auger-Elektronen, die in einer kristallinen Struktur erzeugt werden. Um reine kristalline Targetoberflächen zu erzeugen, werden die Kristalle (z.B. Si(111), Si(100), Al(100), Ge(100)) zunächst in der Präparationskammer mit Argonionen gereinigt (Ionenstrahlätzen bzw. -sputtern). Durch das Sputtern wird aber die kristalline Oberflächenstruktur zerstört und kann nur durch einen Heizvorgang wieder hergestellt werden. Nach dem Sputtervorgang werden die Targets auf einem Heizblock (siehe ”target heater” in Fig.19 und Fig.20) in der Targettransferkammer befestigt und können auf eine Temperatur gebracht werden, bei der eine Diffusion der Targetatome und damit Rekristallisierung einsetzt.

Um eine noch unabhängigere Möglichkeit zur Targetbestückung des Manipulatorarmes zu erreichen, ist zusätzlich ein Schleusensystem für die Targettransferkammer entwickelt worden [Hann99]. So können mehrere Proben ausgetauscht, einer Hitzebehandlung unterworfen oder auch neue Proben in das System eingebracht werden, ohne das UHV-Vakuum zu brechen. Ein weiterer Schritt besteht in einer Erweiterung einer Sputter- und Aufdampfanlage, um Kompatibilität mit dem Schleusensystem herzustellen. Damit wird die Untersuchung dünner Oberflächenschichtsysteme und reaktiver Oberflächen erstmals möglich.

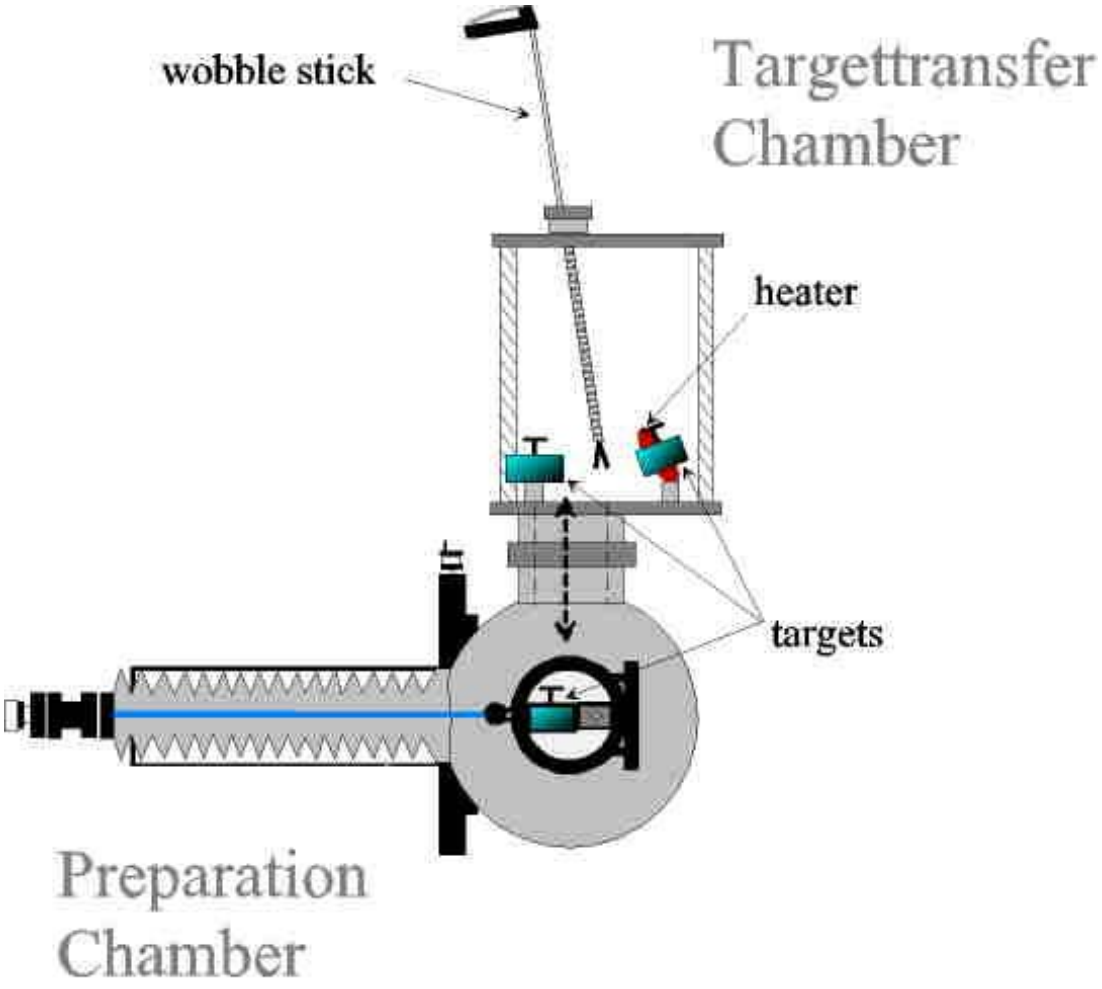


Fig. 20: Präparationskammer und Targettransferkammer

Kapitel 4
Meßdaten aus verschiedenen Strahlzeiten und Diskussion

Die Strahlzeiten zu den nachfolgenden Messungen fanden in folgender chronologischer Reihenfolge statt :

Strahlzeit	Datum	Ionensorte	Energie	Target-Material
1. (5 Schichten)	15.Juni 2001	Ar^{16+}	200 MeV	Be
2. (5 Schichten)	16.Jan.2002	Au^{41+}	351 MeV	Be
4. (6 Schichten)	15.März 2002	Au^{41+}	351 MeV	Be
5. (5 Schichten)	25.Okt.2002	Au^{48+}	592 MeV	Be
6. (7 Schichten)	14.Dez.2002	Au^{48+}	592 MeV	$Ni_{78}B_{14}Si_8$
				$Co_{66}Si_{16}B_{12}Fe_4Mo_2$
				$Al_{87}La_7Ni_5Zr_1$
				$Zr_{46.8}Be_{27.5}Ni_{10}Ti_{8.2}Cu_{7.5}$
7. (3 Schichten)	16.Feb.2003	Au^{41+}	351 MeV	Al (100) Einkristall
8. (4 Schichten)	15.März 2003	Au^{48+}	592 MeV	$Ni_{78}B_{14}Si_8$
				$Al_{87}La_7Ni_5Zr_1$
				Al (100) Einkristall
9. (7 Schichten)	13.Mai 2003	Au^{48+}	592 MeV	Al (100) Einkristall
				$Al_{87}La_7Ni_5Zr_1$
10. (5 Schichten)	15.Nov.2003	Kr^{28+}	400 MeV	Al (100) Einkristall

4.1 Energiespektren von emittierten Elektronen bei Ionenbeschuß

In Fig.21 wird ein Elektronenenergiespektrum aus der 5. Strahlzeit gezeigt, an dem die Struktur und die Prozedur der Untergrundsubtraktion dargestellt werden soll. Bei einer Energie von etwa 100 eV bzw. 130 eV sind die K^1VV- und die K^2VV-Auger-Linien von Be sichtbar. Bei ca. 80 eV ist eine leichte Plasmonenenergieverlust-Linie zu erkennen. Ein Plasmon ist eine kollektive Anregung von vielen Elektronen, die aber als ein einzelnes Quasiteilchen beschrieben werden kann. Die Energie des Be-Plasmons beträgt etwa 20 eV und somit wird die Plasmonenenergieverlust-Linie von den K^1VV-Auger-Elektronen gebildet, die auf dem Weg zur Oberfläche des Festkörpers ein Plasmon erzeugt haben. Der wesentliche Untergrund im niederenergetischen Energiebereich wird indirekt und bei

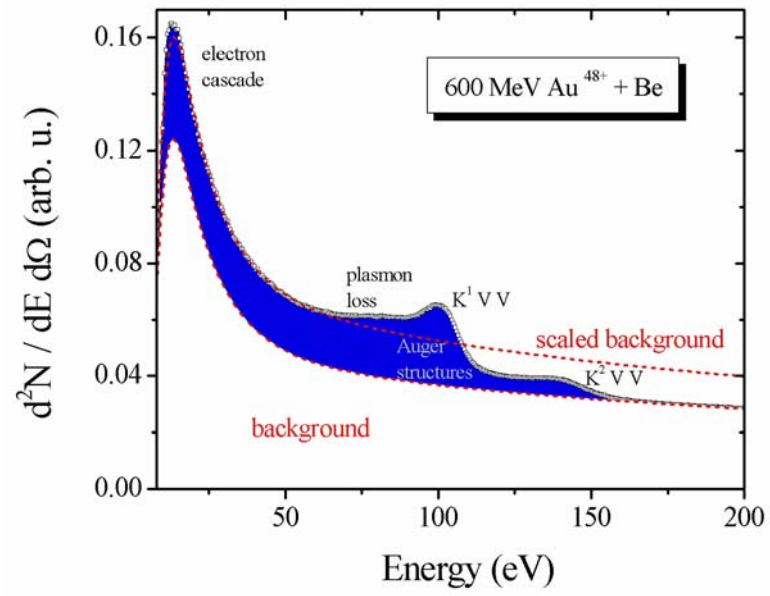


Fig. 21: Energie-Spektrum emittierter Elektronen mit Untergrund

hohen Energien direkt durch hochenergetische δ-Elektronen hervorgerufen. Dieses sind Elektronen, die durch das Ion direkt einen hohen Energieübertrag erhalten. Sie können einen erheblichen Teil ihrer hohen Energie an viele Elektronen in Form einer Stoßkaskade abgeben und es entsteht die dominante Kaskadenlinie unterhalb von 10 eV. Ebenfalls kann auch das Auger-Elektron eine Stoßkaskade erzeugen. Beide Stoßkaskaden besitzen die gleiche Energieverteilung, also auch die gleiche Form im Spektrum, denn welches primäre schnelle Teilchen die Kaskade ausgelöst hat ist unerheblich. Somit kann der Verlauf der Untergrundfunktion im niederenergetischen Bereich an das Gesamtspektrum angepasst werden. Diese Funktion muß dann nach der Multiplikation mit einem Faktor < 1 mit dem fast linearen hochenergetischem Bereich des Spektrums übereinstimmen. Im dargestellten Fall ist die Untergrundfunktion im niederenergetischen Bereich (0-70 eV) und im hochenergetischen Bereich (160-200 eV) in ihrer Form wohl definiert. Im Energiebereich der Auger-Linien (70-160 eV) findet eine Interpolation der Untergrundfunktion statt. Nach dem Abzug des Untergrundes erhält man ein Spektrum, welches mit ”total” bezeichnet wird und in Fig.22 dargestellt ist. Da zunächst die Summe aus der K^1VV- und K^2VV-Auger-Linie vorliegt, müssen diese Linien voneinander getrennt werden. Durch die Annahme, daß die Form der Spektren und der Energieverlust beim Transport der verschiedenen Auger-Elektronen ähnlich sind, kann durch eine Skalierung der K^1VV-Auger-Linie an die K^2VV-Auger-Linie eine Anpassung (multiplikative Skalierung der Intensitäts- und

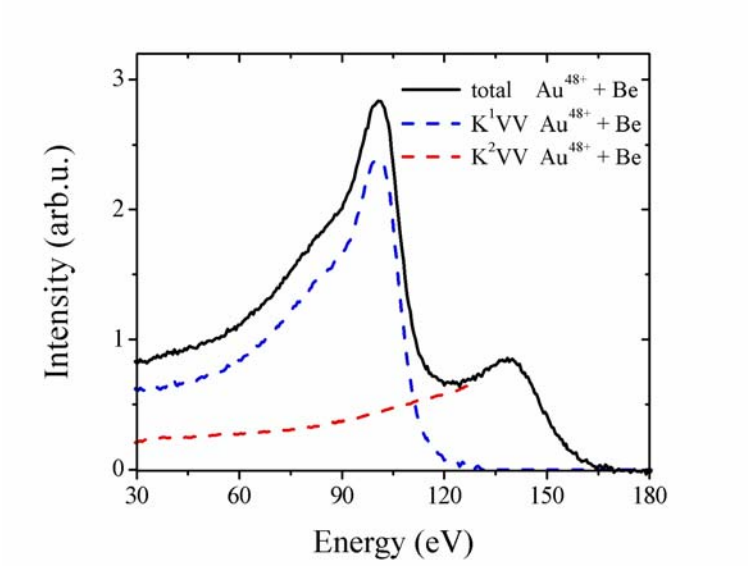


Fig. 22: Energie-Spektrum der Auger-Elektronen nach Untergrundsubtraktion

der Energieachse) stattfinden. Die angepasste Linie wird dann vom totalen Spektrum subtrahiert und man erhält somit eine verbesserte Abschätzung für die einzelne K^1VV-Auger-Linie. Diese Anpassung wird iterativ durchgeführt, wobei die zweite Iteration schon meist eine stabile Linienform liefert. Wird nun diese einzelne K^1VV-Auger-Linie wiederum vom totalen Spektrum subtrahiert, erhält man die einzelne K^2VV-Auger-Linie. Wenn mehrere Auger-Linien wie z.B. bei Aluminium (L^1VV bis L^4VV) vorliegen, muß die Prozedur sukzessive fortgesetzt werden, bis die vollständige Trennung der Auger-Linien erfolgt ist.

4.1.1 Be-Target

Die folgenden untergrundsubtrahierten Spektren der Auger-Linien von Be, die mit 600 MeV Gold-Ionen und mit 2.7 keV Elektronen als Projektile erzeugt wurden, sind zum Vergleich in Fig.23 dargestellt. Für einen Temperaturvergleich ist die rechte Flanke der

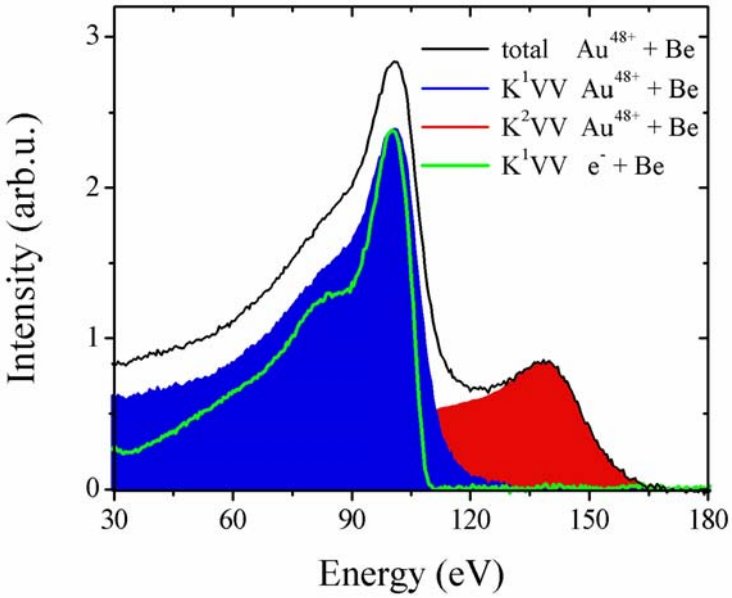


Fig. 23: Untergrundsubtrahiertes und in Einzellinien zerlegtes Be-Auger-Spektrum für primäre Elektronen und Ionen

Auger-Linie maßgeblich. Beim elektroneninduzierten Spektrum (Kurve ist als grüne Linie dargestellt) ist auf der niederenergetischen Flanke der Auger-Linie eine ausgeprägte Plasmonen-Energieverlustschulter sichtbar. Für das ioneninduzierte Spektrum (Kurven sind ausgefüllt dargestellt) erhält man nach der Bestimmung der Halbwertsbreiten mit der Beziehung (2.2.3-1) einen Temperaturwert des elektronischen Systems (nach 14 fs Zerfallszeit [Krau79]) von

$$T_e \approx 7 \cdot 10^4 \pm 10\% \text{ K}$$

für die K^1VV-Auger-Linie. Der angegebene Fehler wird im wesentlichen durch eine unsichere Untergrundfunktion (siehe Fig.21) bestimmt. Unter der Annahme einer ladungsunabhängigen elektronischen Zustandsdichte ergibt sich dann für die K^2VV-Auger-Linie

ein Temperaturwert des elektronischen Systems (nach 14/2 fs = 7 fs Zerfallszeit [Krau79] da zwei Löcher vorhanden) von

$$T_e \approx 1 \cdot 10^5 \pm 10\% \text{ K} .$$

Diese Annahme scheint gut gerechtfertigt zu sein, wie im nachfolgenden Fall für den Al(100)-Einkristall durch Analyse des elektroneninduzierten Spektrums gezeigt wird.

Durch die Bestimmung der Temperaturwerte des K^1VV- und K^2VV-Überganges wurde ein Temperaturabfall zwischen 7 fs und 14 fs um ca. $3 \cdot 10^4$ K ±14% (≙ 30 %) gemessen.

4.1.2 Al(100) Einkristall-Target

Nun folgt ein untergrundsubtrahiertes Spektrum eines Al(100) Einkristalls aus der 9. Strahlzeit. Wieder ist zum Vergleich ein ioneninduziertes Spektrum mit 600 MeV Goldionen und ein elektroneninduziertes Spektrum mit 2.7 keV Elektronen in Fig.24 dargestellt. Die Temperatur des elektronischen Systems kann hier für einen Mittelwert von 15 fs [Citr77]

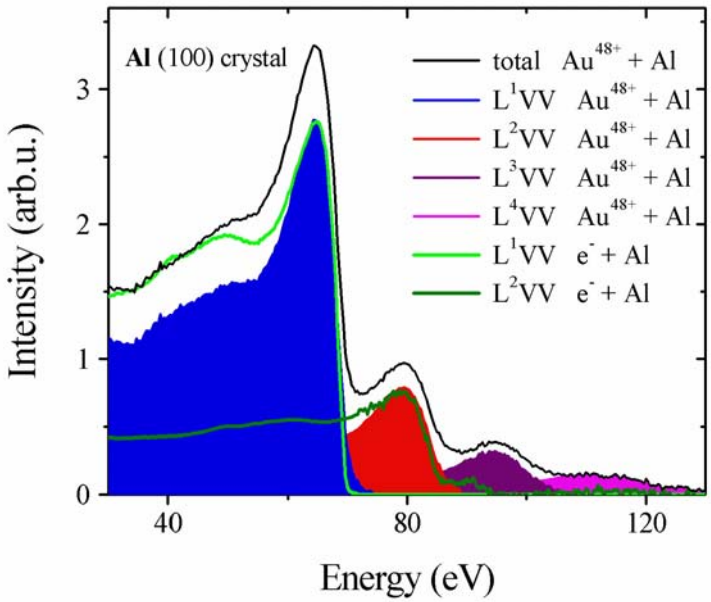


Fig. 24: Untergrundsubtrahiertes und in Einzellinien zerlegtes Al-Auger-Spektrum für primäre Elektronen und Ionen

nach dem Ionendurchgang bestimmt werden. Aus dem Vergleich der L^1VV-Auger-Linien

für Elektronen (Kurve ist als Linie dargestellt) und Ionen (Kurven sind ausgefüllt dargestellt) kann die Temperatur nach (2.2.3-1) berechnet werden und beträgt

$$T_e \gtrsim 1.4 \cdot 10^4 \pm 10\% \text{ K} .$$

Das elektroneninduzierte Spektrum zeigt für Al eine L^2VV-Auger-Linie. Eine Doppelionisation der L-Schale kann nur mit extrem geringer Wahrscheinlichkeit in einem Stoß durch ein Elektron geschehen. Deshalb handelt es sich hier um einen shake-off-Prozeß, welcher durch die einfache Ionisation eines Elektrons hervorgerufen wird. Durch eine sehr schnelle Ionisation der L-Schale, die für Stöße mit hohem Energieübertrag vorliegt, tritt eine plötzliche Potentialänderung innerhalb des Atomes auf. Durch das fehlende Elektron wirkt nun auf die anderen Elektronen ein verstärktes positives Potential, das eine stärkere Bindung derer zur Folge hat. Das Übergangsmatrixelement, welches von dem Anfangszustand in den Endzustand führt, enthält jedoch Anteile von Elektronenwellenfunktionen, die in das Kontinuum führen. Somit kann mit einer geringen Wahrscheinlichkeit zusätzlich ein zweites Elektron in das Kontinuum gelangen. Die zerlegte elektroneninduzierte (shake-off-Prozeß) L^2VV-Auger-Linie (Kurve ist als Linie dargestellt) kann nun zur Bestimmung der Elektronentemperatur wie im Fall der L^1VV-Auger-Linie benutzt werden. Aus der L^2VV-Auger-Linie ergibt sich 8 fs [Citr77] nach dem Ionendurchgang ein Temperaturwert des elektronischen Systems von

$$T_e \approx 2.5 \cdot 10^4 \pm 10\% \text{ K} .$$

In Fig.24 sind die Intensitäten der Elektronenspektren an die Intensitäten der Ionenspektren multiplikativ angepaßt. Das Intensitätsverhältnis der L^1VV-Auger-Linie zur L^2VV-Auger-Linie beträgt etwa 30:1. Beim Vergleich beider Auger-Linien bezüglich der Linienformen konnte kein signifikanter Unterschied festgestellt werden. Somit kann durch eine Energieverschiebung um einen konstanten Wert auch eine Temperaturbestimmumg für die L^3VV-Auger-Linie vorgenommen werden, obwohl hier keine Referenz durch eine elektroneninduzierte Auger-Linie vorliegt. Für die L^3VV-Auger-Linie ergibt sich 5 fs [Citr77] nach dem Ionendurchgang ein Temperaturwert des elektronischen Systems von

$$T_e \approx 5 \cdot 10^4 \pm 10\% \text{ K} .$$

Die Al-Temperatur nach etwa 15 fs ist im Vergleich zur Be-Temperatur (siehe Abschnitt 4.1.1) verhältnismäßig gering. Zum einen scheint sich das Elektronensystem schneller abzukühlen. Zum anderen erfährt die Temperaturverbreiterung der L^1VV-Auger-Linie eine Reduktion durch die energiereichen δ-Elektronen, die eine nicht vernachlässigbare Rückstreuung an den Al-Targetatomen (Z=13) erfahren. Dabei können sie ebenfalls die L-Schale ionisieren. Die Ionisation der Al-Atome geschieht durch diese Elektronenstoßkaskaden aber in einem "kalten" Gebiet und nicht im Zentrum der "heißen" Ionenspur. Die L^1VV-Auger-Linie ist somit die Summe von Auger-Elektronen aus unterschiedlichen Gebieten.

Daher konnte in diesem Fall nur eine untere Schranke der Temperatur angegeben werden. Da die δ-Elektronen nahezu keine Doppel- bzw. Dreifachionisation der L-Schale bewirken können, sind die Auger-Elektronen des L^2VV- bzw. L^3VV-Überganges ausschließlich durch Ionen erzeugt worden. Hier wurde durch die Bestimmung der Temperaturwerte des L^2VV- und L^3VV-Überganges ein Temperaturabfall zwischen 5 fs und 8 fs von ca. $2.5 \cdot 10^4$ K $\pm$ 14% ($\triangleq$ 50 %) gemessen.

Desweiteren kann man eine sehr schwache Energieverschiebung der ioneninduzierten L^1VV-Auger-Linie zu kleineren Energien gegenüber der elektroneninduzierten L^1VV-Auger-Linie erkennen, die ca. 0.4 eV beträgt. Es existiert somit ein geringes Ionenspurpotential während des Auger-Zerfalles.

4.1.3 Metallische Gläser

Das metallische Glas

Die metallischen Gläser sind auch unter dem Begriff der metallischen Legierung bekannt. Sie setzen sich aus mehreren Komponenten zusammen und die kristalline Struktur der einzelnen Komponenten wird durch die Anwesenheit der anderen bzw. durch das Herstellungsverfahren unterdrückt. Es liegt eine amorphe atomare Struktur vor. Bei Erreichen einer verhältnismäßig niedrigen Diffusionstemperatur findet eine Entmischung der jeweiligen Komponenten statt, und die einzelnen Körner gleichen Materials bilden dann eine kristalline Struktur. Somit muß bei der Herstellung von metallischen Gläsern die polykristalline Phase übersprungen werden. Dieses kann nur durch eine sehr hohe Abschreckrate der Schmelze gelingen, die typischerweise bei einem Wert von 10^6 K/s liegt. Durch die Spektroskopie von einzelnen Auger-Linien eines bestimmten Bestandteiles des Glases und die Bestimmung der Elektronentemperatur bzw. eines Ionenspurpotentials in einer amorphen Umgebung ist nun der Vergleich zum reinen Metall in einer kristallinen Umgebung möglich.

Energiespektren von einigen metallischen Gläsern

Fig.25 zeigt elektroneninduzierte Spektren eines großen Energiebereiches von 5 metallischen Gläsern, die aufgrund der vielen Komponenten eine Vielzahl an Auger-Linien aufweisen. Jeder Auger-Übergang ist an der jeweiligen Energie mit der Art des Überganges und dem jeweiligen Element gekennzeichnet. Der Index am jeweiligen Element gibt die prozentuale Häufigkeit in der Legierung an. Nun wählt man Auger-Linien die einen VV-Übergang beinhalten, damit eine Temperaturverbreiterung durch Ionen meßbar wird. Desweiteren wählt man Elemente, die schon als reine Elemente gemessen worden sind (Al, Si, Be), um Rückschlüsse auf den Einfluß der Kristallstruktur für die Elektronen-

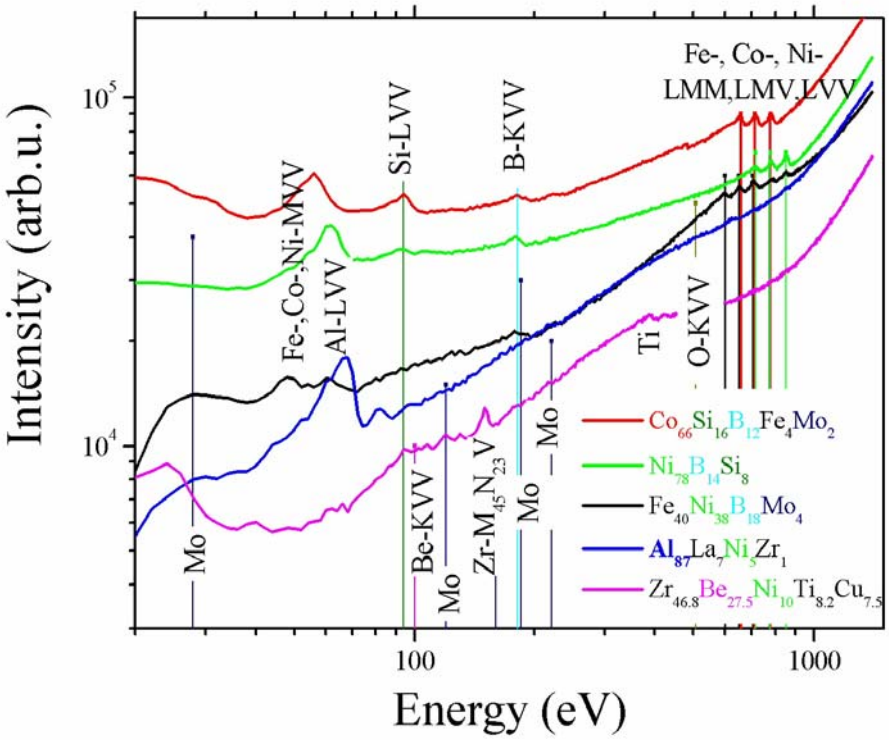


Fig. 25: Elektroneninduzierte Energiespektren von metallischen Gläsern

temperatur machen zu können. Weiterhin kann man Auger-Linien wählen, die in einem günstigen Energiebereich liegen und eine ausgeprägte Linienform besitzen.

$Al_{87}La_7Ni_5Zr_1$ Glas-Proben

Bei diesem Target, welches zu 87% aus Aluminium besteht, wird der Vergleich der Elektronentemperatur und des Ionenspurpotentials mit Hilfe der L^1VV-Auger-Linie zwischen einem amorphen und einem kristallinen Kristallgitter angestrebt. In Fig.26 ist das Spektrum beider Al-Targets unter Ionenbeschuß aus der 9. Strahlzeit (600 MeV Au-Ionen) dargestellt. Eine Energieverschiebung zwischen den Al-Targets liegt nicht vor, so daß beim Al-Glas ebenfalls ein geringes Ionenspurpotential von ca. 0.4 eV zur Auger-Zerfallszeit besteht. In Fig.27 ist zum Vergleich ein ioneninduziertes Spektrum mit 600 MeV Au^{48+}-Ionen und ein elektroneninduziertes Spektrum mit 2.7 keV Elektronen für $Al_{87}La_7Ni_5Zr_1$ dargestellt. Die Bestimmung der Elektronentemperaturen zum Zeitpunkt

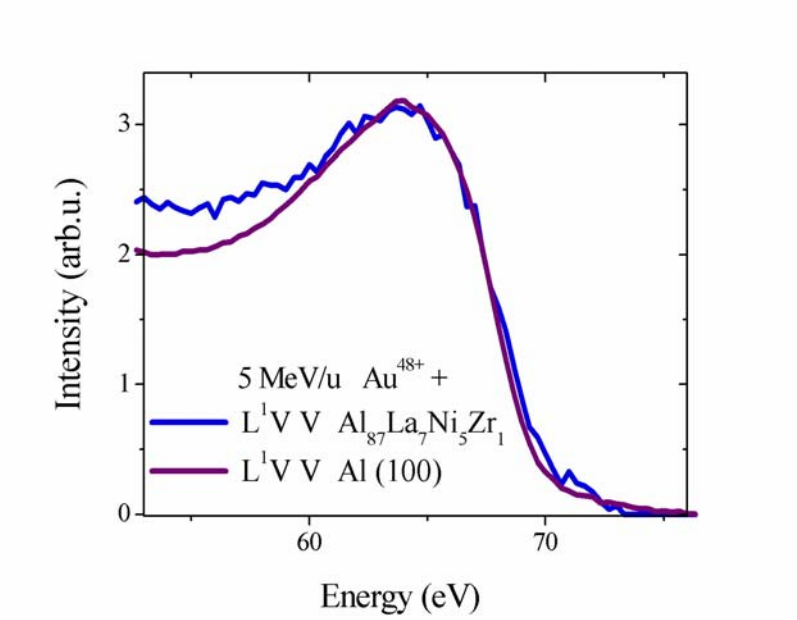


Fig. 26: Ioneninduziertes Energiespektrum von Al(100) und Al-Glas

des Auger-Zerfalls mit (2.2.3-1) ergibt die Werte von

$T_e \gtrsim 1.4 \cdot 10^4 \pm 10\%$ K für den Al(100) Einkristall (siehe Abschnitt 4.1.2) und

$T_e \gtrsim 1.7 \cdot 10^4 \pm 10\%$ K für $Al_{87}La_7Ni_5Zr_1$.

Die höhere Temperatur (unter Berücksichtigung des angegebenen Fehlerbereiches) in $Al_{87}La_7Ni_5Zr_1$ kann durch die weniger gute Beweglichkeit der Elektronen im amorphen Glas erklärt werden. Durch die langsamere Abkühlung liegt zur selben Auger-Zerfallszeit im Al-Glas eine höhere Temperatur als im Al-Kristall vor. Desweiteren wird hier angenommen, daß die maximale Elektronentemperatur in beiden Al-Targets den gleichen Wert erreicht und somit der Temperaturunterschied ein Effekt der unterschiedlichen Kristallstruktur ist.

$Ni_{78}B_{14}Si_8$ Glas-Proben

Bei diesem Ni-Glas wird für die Temperaturbestimmung der Elektronen die MVV-Auger-Linie des Nickels bei ca. 60 eV gewählt, da diese die beste Statistik aufweist und keine übermäßigen Überschneidungen mit benachbarten Linien vorliegen. Durch die Anwesenheit von Bor und Silizium im Ni-Glas erscheinen weitere Linien bei ca. 90 eV, 105 eV und 180 eV wie in Fig.28 gezeigt ist. Bei der Normierung der Auger-Linien-Intensitäten

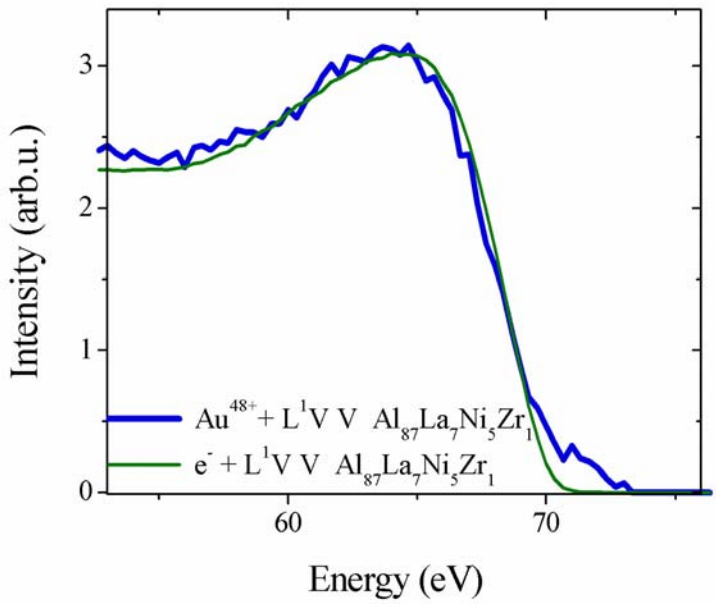


Fig. 27: Untergrundsubtrahierte und zerlegte L^1VV-Auger-Linie des Al-Glases für primäre Elektronen und Ionen

der Komponenten Ni, Si und B ergeben sich große Unterschiede zwischen dem elektroneninduzierten und dem ioneninduzierten Spektrum. Die Intensität der Nickel-Auger-Linie ist beim ioneninduzierten Spektrum deutlich reduziert. Die Normierung ist in der Abbildung so gewählt, daß eine Temperaturbestimmung durch den Vergleich der beiden Nickel-Auger-Linien sinnvoll erscheint. Es ergibt sich ein Temperaturwert der Elektronen von

$$T_e \gtrsim 4.5 \cdot 10^4 \pm 20\% \text{ K} .$$

Die Reduktion der Temperaturverbreiterung der Auger-Linie durch die energiereichen rückgestreuten δ-Elektronen wie im Fall des Aluminiums (Z=13) ist bei Nickel (Z=28) deutlich größer. Der Rutherford´sche Wirkungsquerschnitte ist für eine elastische Streuung proportional zum Quadrat der Kernladungszahl (Z^2) [Maye92], und somit ist die Relation ”größer als” bei der Temperaturangabe noch höher zu bewerten als beim Aluminium. Weiterhin ist die Temperaturangabe mit einem höheren Fehler behaftet, da zum einen die Statistik erheblich schlechter ist als bei den Aluminiummessungen und zum anderen der Untergrund durch die höhere Anzahl der Auger-Linien schwieriger einzugrenzen ist.

Durch die geringe Zerfallszeit der Nickel-MVV-Auger-Linie von 0.4 fs [Fugg80] ist die Temperaturangabe als eine mittlere Energie zu verstehen. Die Temperatur repräsentiert hier kein lokales thermodynamisches Gleichgewicht, da in dieser kurzen Zeit kaum

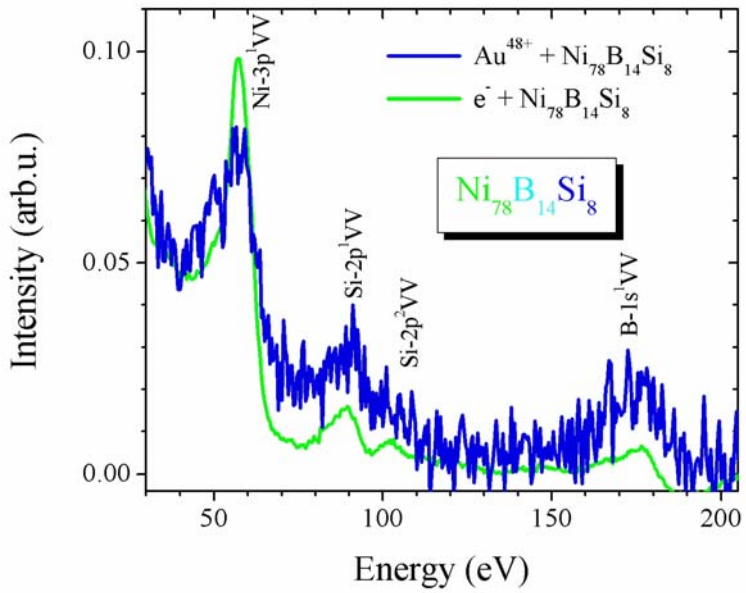


Fig. 28: Elektronen- und ioneninduziertes Energiespektrum von Ni-Glas

Elektron-Elektron-Stöße stattfinden können. Mit der hier angewendeten Methode der Temperaturauswertung steht der ermittelte Wert im Vergleich zu den Temperaturwerten der anderen Metalle jedoch in keinem Widerspruch.

$\mathbf{Co_{66}Si_{16}B_{12}Fe_4Mo_2}$ Glas-Proben

Bei diesem Co-Glas wird für die Temperaturbestimmung der Elektronen die LVV-Auger-Linie des Siliziums bei ca. 100 eV gewählt, da diese eine gute Statistik besitzt und die M^1VV-Co-Auger-Linie durch die Hypersatellitenlinien des MVV-Überganges zu sehr verbreitert ist, wie in Fig.29 gezeigt. Wie beim Ni-Glas ergeben sich erhebliche Unterschiede der Auger-Spektren bezüglich der ioneninduzierten und der elektroneninduzierten Auger-Linien. Es ergibt sich ein Temperaturwert des elektronischen Systems bei der Zerfallszeit von 15 fs [Citr77] von

$$T_e \gtrsim 5.4 \cdot 10^4 \pm 20\% \text{ K} .$$

Die Reduktion der Temperaturverbreiterung der Auger-Linie durch die energiereichen rückgestreuten δ-Elektronen ist der des Nickel-Glases ähnlich.

Bei der Temperaturbestimmung an reinem amorphen und auch kristallinen Silizium wurde mit derselben Auswertungsmethode ein Temperaturwert von

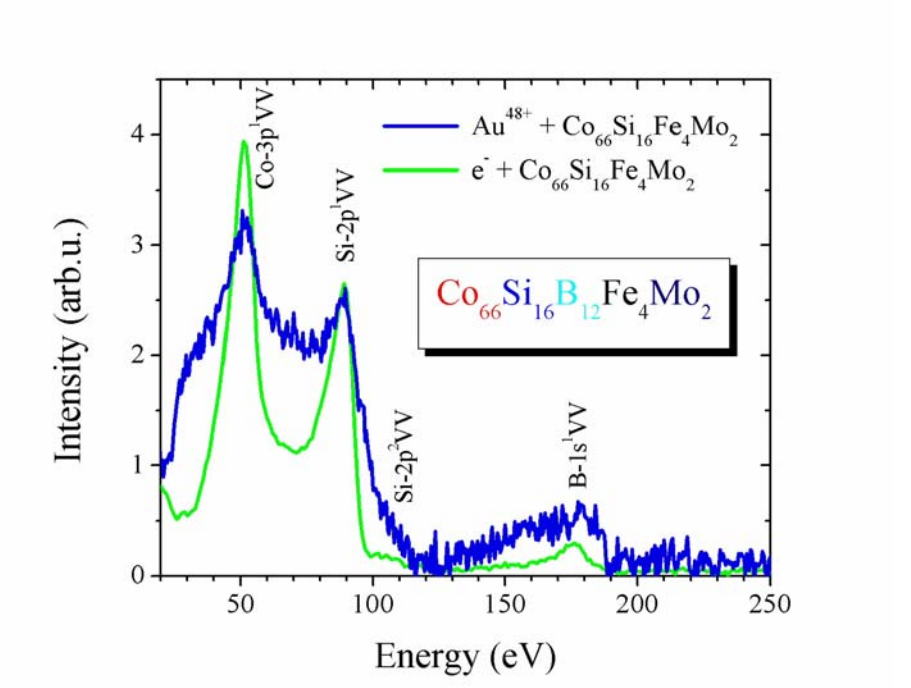


Fig. 29: Elektronen- und ioneninduziertes Energiespektrum von Co-Glas

$T_e \gtrsim 4.9 \cdot 10^4 \pm 10\%$ K

unter der Bestrahlung von 600 MeV Au^{48+}-Ionen gemessen [Schi04]. Diese Temperaturdifferenz (unter der Berücksichtigung der relativen Fehler) bezüglich der Si-Auger-Linie des Co-Glases deutet auf einen Einfluß der atomaren Umgebung auf die resultierende Elektronentemperatur hin. Im Co-Glas scheint eine weniger gute Elektronenbeweglichkeit als im reinen Silizium vorzuliegen, so daß nach der gleichen Zerfallszeit höhere Elektronentemperaturen gemessen werden.

4.1.4 Elektronentemperaturvergleich für Be bei Anregung durch verschiedene Projektile

Für Beryllium liegen mehrere Werte der Elektronentemperatur vor, die unterschiedlichen Projektilionen, Geschwindigkeiten bzw. Projektilladungszuständen entsprechen. Somit kann die Abhängigkeit der Temperatur in Bezug auf die eingetragene Energie des jeweiligen Ions hier diskutiert werden. Die verwendeten Projektile sind 200 MeV Ar^{16+}-, 350 MeV Au^{41+}- und 600 MeV Au^{48+}-Ionen. Für diese drei Projektile liegen die Temperaturen für die K^1VV- und die K^2VV-Auger-Linie mit einem Fehler von $\pm 10\%$ vor. Für die nachfolgende Diskussion ist es sinnvoll, sie über dem Energieverlust aufzutragen, wie es in

Fig.30 dargestellt ist. Zunächst ist festzustellen, daß alle Temperaturen beim K^2VV-Auger-

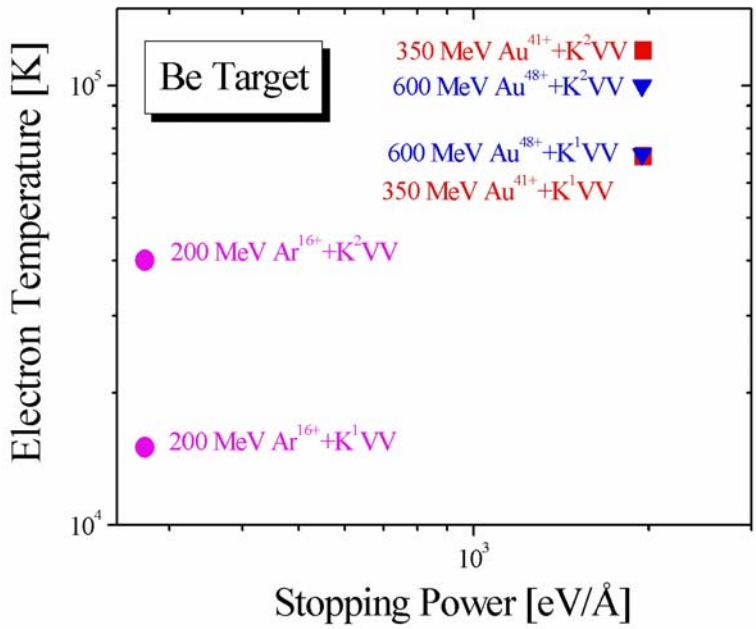


Fig. 30: Elektronentemperatur in Abhängigkeit vom spezifischen Energieverlust für Be

Übergang (7 fs) deutlich höher liegen als beim K^1VV-Auger-Übergang (14 fs), da sich das System nach etwa 7 fs wahrscheinlich noch im Bereich des Temperaturmaximums befindet. Danach beginnt die Phase des Abkühlens und nach etwa 14 fs ist in allen drei Fällen die Temperatur um mehrere 10^4 K gefallen. Dabei sind die relativen Abkühlraten im selben Material aber nicht konstant. Sie können zum einen durch die unterschiedliche Anregung für verschiedene Projektilionen (projektilabhängige Ortsverteilung der Elektronentemperatur) und zum anderen durch eine temperaturabhängige Wärmeleitfähigkeit variieren. Bei der Anregung sind im wesentlichen die Projektilgeschwindigkeit, dieses ist gleichbedeutend mit der Wechselwirkungszeit, und der Ladungszustand des Ions die entscheidenden Parameter. Bei einer kleineren Geschwindigkeit des Ions kann dieses stärker durch die Targetelektronen abgeschirmt werden und gibt dadurch seine Energie in einem enger begrenzten Zylinderradius um die Projektiltrajektorie ab (solch ein Geschwindigkeitseffekt wurde bereits für einige Meßgrößen bei der Ion-Festkörper-Wechselwirkung beobachtet). Somit kann eine höhere Temperatur sogar bei gleichen Energieüberträgen vorliegen, wie es der Vergleich der K^2VV-Auger-Linie für 350 MeV Au-Ionen und für 600 MeV Au-Ionen in Fig.30 suggeriert. Die Temperaturdifferenz beträgt $2 \cdot 10^4 \pm 14\%$ K, obwohl der Energie-

verlust sich nur um 0.1% unterscheidet. Das der Fehler der beiden Elektronentemperaturen für Be in entgegengesetzter Richtung verlauft ist ausgeschlossen, da für die Untergrundsubtraktion eine nahezu gleiche Untergrundfunktion verwendet wurde. Bei sehr großen Unterschieden des Energieverlustes, wie es hier für die Ar-Ionen und Au-Ionen der Fall ist, ergibt sich für die kleineren Energieverluste erwartungsgemäß eine kleinere Elektronentemperatur.

4.1.5 Elektronentemperaturvergleich für mehrere Materialien bei Anregung durch 600 MeV ^{197}Au^{48+}-Ionen

Eine Betrachtung einer Materialabhängigkeit von ioneninduzierten Elektronentemperaturen kann an dieser Stelle geschehen, da für die Bestrahlung mit 600 MeV-Au-Ionen schon Daten existierten und mit dieser Arbeit durch weitere Messungen der Datensatz erweitert werden konnte. Die Materialien der zur Verfügung stehenden Daten sind Silizium [Schi04], Beryllium, Aluminium(100)-Einkristall, Aluminium-Glas, Kobalt-Glas und Kohlenstoff (1.9 GeV ^{238}U^{68+}) [Schi00]. Durch die unterschiedlichen Auger-Zerfallszeiten der betrachteten Übergänge sind die Elektronentemperaturen somit in unterschiedlichen Zeitfenstern ermittelt worden, so daß dieses beim Vergleich der Temperaturen berücksichtigt werden muß. Es folgt eine Tabelle, in der alle wesentlichen Parameter aufgelistet sind.

Target	Übergang	τ_{Auger}	Energie / Ion	T$_e$ [10^{4}K]
Be	Be-K^{1}VV	14 fs	592 MeV ^{197}Ar^{48+}	7.3 $\pm$ 10%
Be	Be-K^{2}VV	7 fs	592 MeV ^{197}Ar^{48+}	9.6 $\pm$ 10%
$Al_{87}La_7Ni_5Zr_1$	Al-L^{1}VV	15 fs	592 MeV ^{197}Ar^{48+}	$\geq 1.7 \pm$ 10%
Al(100)	Al-L^{1}VV	15 fs	592 MeV ^{197}Ar^{48+}	$\geq 1.4 \pm$ 10%
Al(100)	Al-L^{2}VV	8 fs	592 MeV ^{197}Ar^{48+}	2.5 $\pm$ 10%
Al(100)	Al-L^{3}VV	5 fs	592 MeV ^{197}Ar^{48+}	5.0 $\pm$ 10% *
$Co_{66}Si_{16}B_{12}Fe_4Mo_2$	Si-L^{1}VV	15 fs	592 MeV ^{197}Ar^{48+}	$\geq 5.4 \pm$ 20%
Si	Si-L^{1}VV	15 fs	592 MeV ^{197}Ar^{48+}	$\geq 4.9 \pm$ 10%
Si	Si-L^{2}VV	8 fs	592 MeV ^{197}Ar^{48+}	6.9 $\pm$ 10%
Si	Si-L^{3}VV	5 fs	592 MeV ^{197}Ar^{48+}	8.2 $\pm$ 10% *
$Ni_{78}B_{14}Si_8$	Ni-M^{1}VV	0.4 fs	592 MeV ^{197}Ar^{48+}	$\geq 4.5\pm$ 20% *
C	C-K^{1}VV	11 fs	1.9 GeV ^{238}U^{68+}	7.0 $\pm$ 10%
C	C-K^{2}VV	6 fs	1.9 GeV ^{238}U^{68+}	8.5 $\pm$ 10%

Für die mit einem Stern (*) markierten Temperaturen wird durch die kurze Zerfallszeit bedingt angenommen, daß noch kein thermodynamisches Gleichgewicht erreicht worden ist. Bei allen Materialien herrscht bei den kürzeren Zerfallszeiten der mehrfach ionisierten Zustände eine höhere Temperatur als bei den längeren Zerfallszeiten der ein-

fach ionisierten Zustände. Im Fall des Al(100)-Einkristalls liegt durch die drei gegebenen Temperaturwerte bei verschiedenen Zeiten eine kontinuierliche Temperaturabnahme vor. Bei Kohlenstoff und Beryllium kann durch die zwei gegebenen Temperaturwerte zumindest eine Abnahme der Temperatur festgestellt, aber über die Kontinuität der Abnahme keine Aussage gemacht werden. Alle Materialien mit Ausnahme von Aluminium haben ähnlich hohe Temperaturwerte. Dieses liegt vermutlich an der ähnlichen Bandstruktur dieser Materialien. Die Zustandsdichten der Valenzelektronen bei Beryllium und Kohlenstoff haben bei der Fermi-Energie ein Minimum mit einer Energiebreite von etwa 3 eV. Silizium besitzt bei der Fermi-Energie eine Bandlücke von etwa 1 eV. Durch diese Einschränkung des Besetzungszustandes werden die Elektronenbeweglichkeit und die Wärmekapazität reduziert. Somit können höhere Temperaturen des elektronischen Systems erreicht werden und es erfolgt eine langsamere Abkühlung. Durch die Temperaturwerte für Aluminium wird diese Vermutung bestätigt, da die Zustandsdichte des Valenzbandes der eines freien Elektronengases sehr nahe kommt. Der L^3VV-Auger-Übergang besitzt die kürzeste Lebensdauer der hier betrachteten Auger-Zerfälle und dennoch ist die Temperatur an der unteren Grenze der Elektronentemperaturen für Si, C und Be. Eine kleine Temperaturdifferenz hat sich für den L^1VV-Übergang in Si zum Si-L^1VV-Übergang des Co-Glases ergeben. Dies zeigt, daß die Fremdatome des Co-Glases die Elektronenbeweglichkeit durch veränderte atomare Strukturen etwas verringern. Dieser Sachverhalt stellt sich auch im Vergleich des Al-Glases zum Al(100)-Einkristall dar.

4.2 Winkelverteilungen der Auger-Elektronenintensität

Um weitere Informationen zur Entstehung der Ionenspuren zu erhalten, wurde die Winkelverteilung der emittierten Auger-Elektronen untersucht, indem der Beobachtungswinkel variiert wurde. Für eine "ungestörte" Emission aus einem homogenen amorphen Targetmaterial (kein hochangeregtes Elektronen- bzw. Atomsystem) erwartet man nahezu eine reine Cosinus-Funktion für die Winkelverteilung der emittierten Auger-Elektronen wie [Wern01] zeigt.

4.2.1 Verhältnisse der integrierten Auger-Intensitäten (Be und Al)

Um eine Aussage über einen Einfluß der elektronischen bzw. atomaren Dynamik auf die winkelabhängige Emission von Auger-Elektronen treffen zu können, kann man das Verhältnis der Integrale der Auger-Linien für unterschiedliche Ionisationsgrade der jeweiligen Schale bei verschiedenen Winkeln betrachten. Durch die Bildung des Intensitätsverhältnisses heben sich zum einen die Abhängigkeit vom Elektronentransport (Cosinus-Verteilung) und zum anderen Fehler durch eine Fluktuation in der Stromnormierung und andere mögliche Meßfehler auf. Fig.31 zeigt das Verhältnis der K^2VV-Auger-Linie zur K^1VV-Auger-Linie von Be für einen Winkelbereich von 115° bis 160° (Winkelangaben siehe Fig.17). Der Ionenstrahl traf senkrecht zur Be-Oberfläche auf. Das Verhältnis fällt mit größeren Winkeln

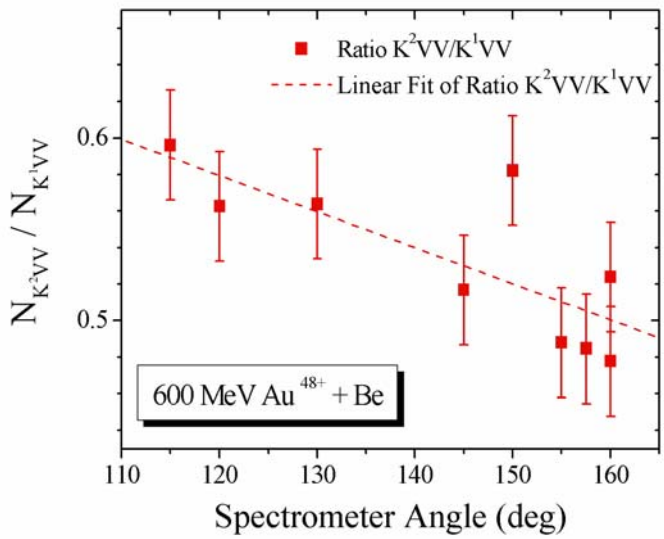


Fig. 31: Verhältnisse von integrierten Auger-Intensitäten für Be

und somit ist eine Abweichung von der Cosinus-Verteilung für die emittierten Elektronen gegeben. Eine Abweichung von der Cosinus-Funktion für aus einem Festkörper emittierte Elektronen, die von der Energie der Elektronen und dem Emissionswinkel abhängig ist, wurde schon in früheren Arbeiten [Wern01] gefunden. Dieser Effekt kann durch Anregungen von Oberflächenplasmonen erklärt werden. Für den von uns betrachteten Energiebereich der Be-Auger-Linien liegt diese Abweichung bei ca. 6 % [Wern01]. Das Verhältnis der K^2VV-Auger-Linie zur K^1VV-Auger-Linie liefert aber eine Abweichung von ca. 20% (siehe Fig.31). Somit wird die Intensität der K^2VV-Auger-Linie von Be zusätzlich mit steigendem Winkel unterdrückt, welches durch die Geometrie der Ionenspur erklärt werden kann. K^2VV-Auger-Elektronen stammen ausschließlich aus dem Zentrum der Ionenspur, denn nur dort kann die K-Schale von Be zweifach ionisiert werden. Mit zunehmendem Winkel müssen die Auger-Elektronen einen größeren Weg entlang der Ionenspur zurücklegen, also einen Weg in einem hoch angeregten Elektronengas. Dadurch kann sich die mittlere freie Weglänge der Elektronen reduzieren und es verringert sich die Intensität der Emission. In Fig.32 ist das Verhältnis der L^2VV-Auger-Linie zur L^1VV-Auger-Linie und der L^3VV-Auger-Linie zur L^1VV-Auger-Linie von Al (100) für einen Winkelbereich von 115° bis 155° dargestellt. Auch hier zeigt sich eine fallende Tendenz zu größeren Winkeln

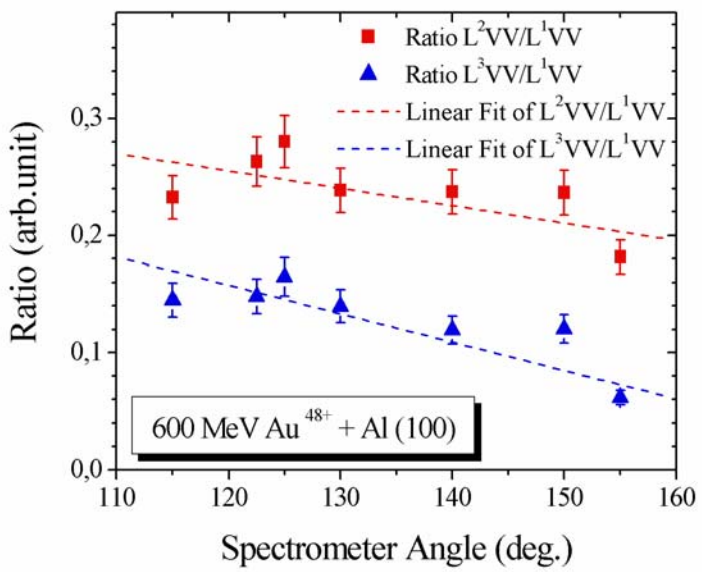


Fig. 32: Verhältnisse von integrierten Auger-Intensitäten für Al (100)

hin. Die Abweichungen durch die Anregung von Oberflächenplasmonen liegen für den von uns betrachteten Energiebereich der Al-Auger-Linien bei ca. 10 % bzw. 15% [Wern01].

Das Verhältnis der L^2VV- bzw. L^3VV-Auger-Linie zur L^1VV-Auger-Linie liefert eine Abweichung von ca. 25% bzw. 55% (siehe Fig.32). Die stärkere Unterdrückung der L^3VV- gegenüber den L^2VV-Auger-Elektronen, die durch die größere negative Steigung des linearen Fits zum Ausdruck kommt, ist mit der kürzeren Zerfallszeit des L^3VV-Auger-Überganges zu erklären. Beim L^3VV-Auger-Zerfall besitzt das Elektronensystem eine höhere Temperatur als beim L^2VV-Auger-Zerfall und es resultiert möglicherweise eine kleinere mittlere freie Weglänge der emittierten Elektronen entlang der Ionenspur. Das Gebiet der dreifachen Ionisation ist außerdem etwas stärker auf das Zentrum der Ionenspur beschränkt als das Gebiet der zweifachen Ionisation.

4.2.2 Strukturen der Winkelverteilung beim Al (100) Einkristall

Werden Elektronen von einem kristallinen Target emittiert, ergibt sich durch die periodische Anordnung der Atome eine strukturierte Winkelverteilung [Cham86]. Bei einer Intensitätsmessung tritt entlang der Atome eine verstärkte Emission der Elektronen auf, da die Atome eine fokussierende Wirkung besitzen. Bei ähnlicher Größenordnung der Gitterkonstanten und der de Broglie-Wellenlänge des Elektrons, werden ebenfalls Interferenzen die Intensität der entsprechenden Emissionswinkel bestimmen [Kitt68]. In Fig.33 ist die winkelabhängige Intensität von KLL-Auger-Elektronen ($\approx$ 1.5 keV) aufgetragen. Die

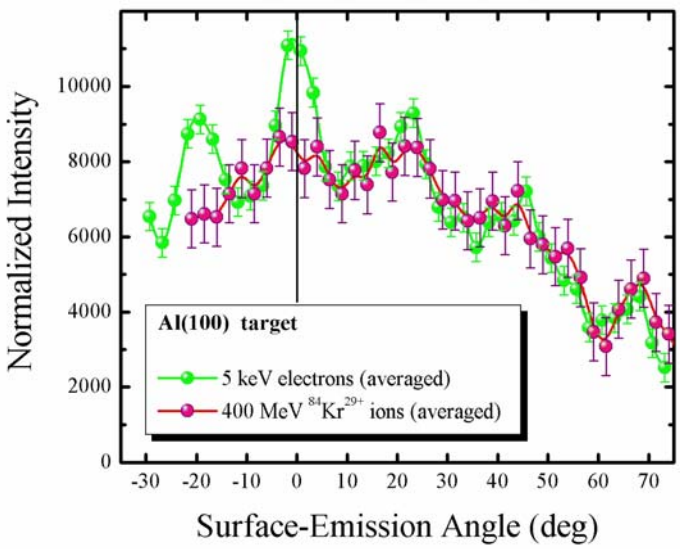


Fig. 33: Winkelverteilung der KLL-Auger-Elektronen durch Diffraktion in einem Al (100)-Einkristall

Auger-Elektronen wurden dabei einmal mit 5 keV Elektronen und einmal mit 400 MeV Kr-Ionen durch Beschuß eines Al(100)-Einkristalls erzeugt. Die Einfallswinkel der Projektile waren identisch und betrugen jeweils -45° relativ zur Oberflächennormalen. Der Emissionswinkel lag dabei in der gleichen Streuebene wie für die einfallenden Strahlen. Bei der Fixierung der kristallinen Probe am Manipulatorarm wurde die Kristallhauptebene mit einer Genauigkeit von $\pm 2°$ in diese Streuebene gelegt. Mit einer nachfolgenden LEED-Analyse wurde dieses verifiziert. Die Winkelverteilung der Diffraktion für elektroneninduzierte Auger-Elektronen ergeben dabei ähnliche Resultate wie sie in mehreren Arbeiten schon beobachtet wurden [Davo95, Rueb95, Chen98]. In diesen Arbeiten wurde gezeigt, daß für Röntgen-Photoemission, Auger-Emission induziert durch Röntgenstrahlung bzw. Elektronen sowie für Elektronenrückstreuung bei gleichen Energien ähnliche Winkelverteilungen auftreten.

Das Diffraktionsmuster der ioneninduzierten Auger-Elektronen in Fig.33 zeigt jedoch ein deutlich verändertes Emissionsverhalten im Vergleich zum elektroneninduzierten Referenzmuster. Die vorhandenen Strukturen scheinen im Vergleich zu der Emission der elektroneninduzierten Auger-Elektronen zunächst allgemein um ca. 20-30% verbreitert zu sein. Beim Vergleich der Intensitäten fällt besonders für die Emission in der 0°-Richtung eine drastische Reduzierung der emittierten Auger-Elektronen auf. Dieser Effekt tritt vermutlich durch eine Änderung der Gitterabstände des Kristalls oder auch durch veränderte Streupotentiale auf, die durch das energiereiche elektronische System verursacht werden. Durch Referenzmessungen mit elektroneninduzierten Auger-Elektronen vor und nach der ioneninduzierten Messung, welche im Rahmen von statistischen Schwankungen die gleichen Diffraktionsmuster lieferten, konnte gezeigt werden, daß das Kristallgitter durch die energiereichen Ionen nicht dauerhaft modifiziert wurde. Somit tritt dieser Effekt nur im Rahmen der ioneninduzierten Kurzzeitdynamik der Atome bzw. Elektronen auf. Die mittlere Zerfallszeit für den KLL-Übergang von Al beträgt etwa 1 fs [Krau79]. Die experimentell bestimmte Temperatur des elektronischen Systems von Al nach 5 fs [Citr77] für den L^3VV-Übergang beträgt $T_e \approx 5 \cdot 10^4 \pm 10\%$ K (siehe Abschnitt 4.1.2). Somit ist dieser Temperaturwert eine untere Schranke für die Temperatur des elektronischen Systems während des KLL-Überganges. Die lineare Extrapolation nach 1 fs (KLL-Zerfallszeit) ergibt eine Elektronentemperatur von $T_e \approx 8 \cdot 10^4 \pm 15\%$ K. Da aber in der Ionenspur nach 1 fs auch ein Gittertemperaturanstieg um einige 100 K nicht auszuschließen ist, könnte die Projektilabhängigkeit in Fig.33 auch durch eine atomare Bewegung bewirkt werden.

Eine Theoriegruppe in Spanien beschäftigt sich zur Zeit mit der Lösung des Diffraktionsproblemes für 1.5 keV Auger-Elektronen in Aluminium, um einen Beitrag zur Klärung dieses Effektes zu liefern [Abaj01]. Diese Modellrechnungen erlauben sowohl die Analyse der Gittertemperatur als auch die Verwendung von Nichtgleichgewichtsstreupotentialen. Weitere experimentelle Untersuchungen mit verschiedenen Materialien werden parallel dazu durchgeführt.

Kapitel 5
Zusammenfassung

Innerhalb dieser Arbeit wurden Elektronenspektren bei der Wechselwirkung hochenergetischer schwerer Ionen mit Festkörpern gemessen und analysiert. Dabei wurden sehr geringe Ionenspurpotentiale und relativ hohe Elektronentemperaturen erstmalig für metallische Proben (Al, Be und metallische Gläser) bestimmt.

Durch die verschiedenen zu untersuchenden Materialien waren diverse experimentelle Vorarbeiten und Testmessungen für die eigentlichen Experimente nötig. So mußte wegen der niedrigen Coulomb-Barriere des Berylliums eine Tantalabschirmung am Elektronendetektor installiert werden, um Neutronen aus Kernreaktionen zu absorbieren. Durch hohe Elektronenrückstreukoeffizienten in den schweren metallischen Gläsern wurde eine bessere Unterdrückung gestreuter Elektronen im elektrostatischen Spektrometer erforderlich. Dazu wurde eine Optimierung der Elektronentrajektorien durchgeführt, das Blendensystem erweitert und die Streuflächen verkleinert durch Verwendung von Metallnetzen in der Ablenkplatte. Metallische Gläser sind außerdem sehr temperaturempfindlich, so daß die Konstruktion eines neuen Probenhaltersystems mit verbesserten Kühleigenschaften notwendig war. Die Benutzung mehrerer Proben innerhalb der Ionenstrahlzeiten führte zum Bau einer Targettransferkammer, innerhalb derer mehrere Proben unter UHV-Bedingungen gelagert, geheizt, ausgetauscht und zukünftig auch eingeschleust werden können.

Alle wesentlichen wissenschaftlichen Ergebnisse dieser Arbeit basieren auf der Analyse der Intensität, der Position und der Linienform der gemessene Auger-Strukturen der Probe. Die Analyse konzentrierte sich auf sogenannte CVV-Linien (C für 'Core') bei denen ein Innerschalenloch durch die Wechselwirkung zweier Valenzbandelektronen (VV) aufgefüllt wird. Durch den Vergleich von ioneninduzierten zu elektroneninduzierten Auger-Linien können nun Aussagen über die schnelle Elektronendynamik in Ionenspuren gemacht werden, welche für andere Methoden bislang unzugänglich war.

Aus der Verbreiterung von Auger-Linien läßt sich die Elektronentemperatur im Zentrum der Ionenspuren bestimmen. Qualitativ folgt aus dieser Arbeit, daß sehr unterschiedliche Elektronentemperaturen bei der Bestrahlung von Metallen mit schnellen schweren Au^{48+}-Ionen erreicht werden können. Diese Elektronentemperaturwerte entsprechen einer Mittelung über die jeweilige Auger-Zerfallszeit, die mit dem betrachteten Element und dem Typ des Auger-Übergangs variiert. Insgesamt sind für Zerfallszeiten von 5 fs bis 15 fs (5 bis 15 $\cdot 10^{-15}$ s) Temperaturen von $\gtrsim 1.4 \cdot 10^4$ K bis $1 \cdot 10^5$ K in den untersuchten Metallen nachgewiesen worden.

Für reines Aluminium und Beryllium konnte durch die zusätzliche Temperaturbestimmung für die Hypersatellitenlinien der Mehrfachionisation eine zeitliche Entwicklung der Elektronentemperatur festgestellt werden. Aluminium besitzt eine höhere Abküh-

lungsrate (siehe Abschnitt 4.1.2) als Beryllium (siehe Abschnitt 4.1.1). Zum einen ist die Elektronentemperatur nach ca. 15 fs für Beryllium mit ca. $7 \cdot 10^4$ K wesentlich höher als bei Aluminium mit $\gtrsim 1.4 \cdot 10^4$ K bei nahezu gleicher Zeit. Zum anderen wurde ein Temperaturabfall bei Beryllium innerhalb von 7 fs um einen Faktor 1.4 und bei Aluminium innerhalb von 3 fs um einen Faktor 2 festgestellt. Somit kann die Abkühlung in Aluminium viel schneller als in Beryllium erfolgen. Dieses Verhalten kann wahrscheinlich durch die Bandstruktur und die damit verbundene Elektronenbeweglichkeit im Valenzband begründet werden. Die Zustandsdichte der Valenzbandelektronen von Aluminium entpricht in guter Näherung der eines freien Elektronengases. Die Zustandsdichte bei Beryllium besitzt etwa bei der Fermi-Energie ein starkes Minimum mit einer Energiebreite von ca. 3 eV (siehe Abschnitt 2.2.1, Fig.12). Somit stehen nur wenig Elektronen zur Verfügung, die die elektronische Wärme aus dem Zentrum der Kernspur ableiten können und die Ionenspuren in Beryllium kühlen nur langsam ab. Ein möglicher Einfluß der Korngrenzen sollte sehr gering sein. Ebenfalls aufgrund der Bandstruktur in Beryllium genügen geringe mittlere Elektronenenergien, um eine breite Fermi-Dirac-Verteilung zu erzeugen. Dies entspricht einer kleinen elektronischen Wärmekapazität und resultiert letztendlich in einer höheren Anfangselektronentemperatur.

Beim Vergleich des Temperaturverhaltens vom Al(100)-Einkristall mit dem Al-Glas ($Al_{87}La_7Ni_5Zr_1$) sollten keine großen Unterschiede auftreten, da das Al-Glas einen Anteil von 87% Aluminium enthält. Durch die amorphe Struktur und durch die Fremdatome kann es aber zu einer Störung der Energieniveaus (Valenzbandstruktur) kommen und die Beweglichkeit der Elektronen wird eingeschränkt. Deshalb tritt im Al-Glas bei der selben Zerfallszeit des L^1VV-Auger-Überganges eine um ca. 20% höhere Temperatur als im Aluminium-Kristall auf.

Durch die Temperaturbestimmung des Co-Glases ($Co_{66}Si_{16}B_{12}Fe_4Mo_2$) mit Hilfe der Si-$L^1VV$-Auger-Linie kann hier der Vergleich mit Messungen an reinem Silizium vorgenommen werden. Wie beim Vergleich des Al(100)-Einkristalls mit dem Al-Glas liegen hier ähnliche Verhältnisse für beide Materialien vor. Die Elektronentemperatur für das Co-Glas ist um etwa 15% höher als die des Si-Kristalls. Auch bei diesem Glas tritt eine Einschränkung der Elektronenbeweglichkeit durch eine amorphe Struktur auf und es gibt sogar eine völlig andere Valenzbandstruktur.

Aus der Position von Auger-Linien läßt sich im Prinzip das Potential im Zentrum der Ionenspuren bestimmen. Die Auger-Linien aller im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Metalle weisen jedoch nur geringe Energieverschiebungen ($< 1eV$) beim Vergleich von ionen- und elektroneninduzierten Spektren auf. Solche geringen Verschiebungen lassen sich durch Besetzungsänderungen der Zustandsdichte bei hohen Elektronentemperaturen erklären. Es konnte in keinem der Fälle ein signifikantes Ionenspurpotential nachgewiesen werden. Für den Coulomb-Explosionsmechanismus sind aber Potentiale über mindestens 10 eV und für eine Zeitdauer von mindestens 10 fs notwendig, um atomare Veränderun-

gen herbeizuführen. Deshalb kann die Coulomb-Explosion als Materialmodifikationsmechanismus für alle untersuchten Metalle ausgeschlossen werden.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden erstmals Emissionswinkelabhängigkeiten der Auger-Emission bei Anregung durch schnelle Schwerionen untersucht. Durch diese Messungen konnte der Einfluß des hochangeregten Elektronensystems auf den Transport von Elektronen zur Festkörperoberfläche nachgewiesen werden. Bei den Messungen wurde Aluminium bzw. Beryllium mit 600 MeV Au^{48+}-Ionen bestrahlt. Die Elektronentemperaturen liegen für Beryllium im Bereich von $7 \cdot 10^4$-$1 \cdot 10^5$ K und für Aluminium im Bereich von $\geq 1.4 \cdot 10^4$-$5 \cdot 10^5$ K. Das Verhältnis der Auger-Elektronenausbeuten von K^2VV- zu K^1VV-Auger-Elektronen für Beryllium und L^2VV- zu L^1VV-Auger-Elektronen bzw. L^3VV- zu L^1VV-Auger-Elektronen für Aluminium zeigt eine Variation mit dem Emissionswinkel. Nach Berücksichtigung der bekannten energieabhängigen Winkelvariation, ergibt sich eine Nettoabweichung von einem Verhältnis um $14 \pm 8\%$ für Beryllium und um $40 \pm 10\%$ für Aluminium. In beiden Fällen wurde eine Reduktion der Auger-Emission bei steilen Emissionswinkeln nachgewiesen. Die Abweichung ist sehr gering für Be aber statistisch sehr signifikant für Aluminium. Dieser Effekt kann mit der Geometrie der Ionenspur erklärt werden, wie es in Fig.33 angedeutet ist. Für Auger-Elektronen, die aus Zerfällen von

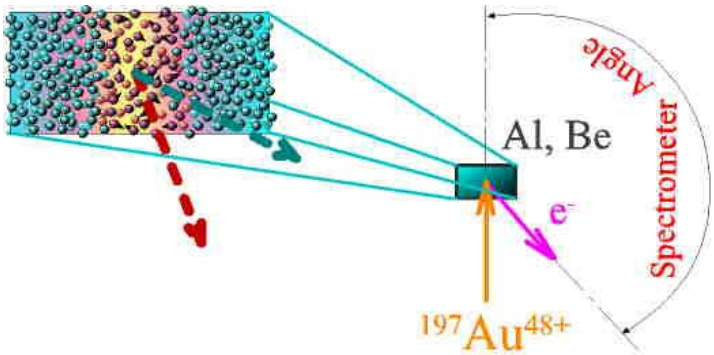


Fig. 34: Winkelabhängige Elektronenemission durch unterschiedliche Zustände des Festkörpers beim Tranport der Elektronen

mehrfach ionisierten Zuständen stammen (K^2VV-, L^2VV- und L^3VV-Auger-Zerfall), tritt bei steilen Winkeln eine stärkere Intensitätsreduzierung als für einfach ionisierte Zustände auf. Da die mehrfach ionisierten Zustände nur für kleine Stoßparameter des Ions erzeugt werden können, sind sie stark auf das Zentrum der Ionenspur begrenzt. Bei steilen Emissionswinkeln laufen die Elektronen auf ihrem Weg zur Oberfläche ausschließlich durch ein hochangeregtes Elektronensystem (”heißes” Gebiet) und dadurch wird vermutlich ihre mittlere freie Weglänge verringert. Die einfach ionisierten Zustände können jedoch auch in Gebieten erzeugt werden (”kaltes” Gebiet), die nicht zentral in der Ionenspur liegen. Damit

ist eine große temperaturabhängige Änderung der mittleren freien Weglänge für diese Elektronen nicht zu erwarten und es findet somit keine zusätzliche winkelabhängige Reduktion der Emission statt.

Bei der Untersuchung des Diffraktionsmusters eines Al(100)-Einkristalles konnte auch eine Unterdrückung von emittierten Elektronen durch das hochangeregte Elektronensystem festgestellt werden. Das Diffraktionsmuster entsteht zum einen durch die Elektronenführung entlang der verschiedenen Gitterebenen (”channeling”) aber auch durch Interferenzen der Elektronen am Gitter. Die winkelabhängig gemessene Emission der betrachteten KLL-Auger-Elektronen wurde dabei mit 5 keV Elektronen und mit 400 MeV Kr^{29+}-Ionen induziert. Für das elektroneninduzierte Diffraktionsmuster wurden keine wesentlichen Unterschiede zu bestehenden Arbeiten gefunden. Unter Ionenbeschuß trat aber eine Verbreiterung der winkelabhängigen Maxima mit einer gleichzeitigen Reduzierung der Intensitäten auf. Außergewöhnlich stark ist dabei die Intensitätsreduzierung der Emission entlang der Oberflächennormalen des Al(100)-Einkristalles. Dieses Emissionsmaximum verschwindet fast vollständig. Diese Emissionsrichtung ist anscheinend sehr empfindlich auf eine Änderung von Gitterabständen des Kristalls oder auch auf veränderte Streupotentiale, die durch das energiereiche elektronische System verursacht werden.

Literaturverzeichnis

[Abaj01] F.J.García de Abajo, M.A.van Hove, C.S.Fadley, Phys. Rev. B 63, Nr.7 (2001) 75404

[Amek01] H.Amekura, N.Umeda, N.Okubo, C.G.Lee, Y.Takeda, N.Kishimoto, Nucl. Instr. and Meth. B 175-177 (2001) 345-349

[Betz72] H.-D.Betz, Review of Modern Physics, 44 Nr.3 (1972) 465-539

[Brin03] E.M.Bringa, Nucl. Instr. and Meth. B 209 (2003) 1-8

[Cham86] S.A.Chambers, H.W.Chen, S.B.Anderson, J.H.Weaver, Phys.Rev. B 34 Nr.5 (1986) 3055-3059

[Chen98] X.Chen, G.R.Harp, Y.Ueda, D.K.Saldin, Computer Phys. Communications 112 (1998) 91-101

[Citr77] P.H.Citrin, G.K.Wertheim, Phys.Rev. B 16 Nr.10 (1977) 4256-4282

[Clar76] R.B.Clark, I.S.Grant, R.King, Nucl. Instr. and Meth. 133 (1976) 17-24

[Davo95] I.Davoli, R.Gunnella, R.Castrucci, R.Bernardini, M.De Crescenzi, Journ. of Electron Spectrosc. and Related Phenom. 76 (1995) 493-497

[Denk03] A.Denker, W.Bohne, J.Heese, H.Homeyer, H.Kluge, S.Lindner, J.Opitz-Coutureau, J.Röhrich, E.Strub, Nukleonika (2003) ;48(Supplement 2) 175-180

[Dill01] T.van Dillen, E.Snoeks, W.Fukarek, C.M.van Kats, K.P.Velikov, A.van Blaaderen, A.Polman, Nucl. Instr. and Meth. B 175-177 (2001) 350-356

[Eche95] P.M.Echenique, F.J.García de Abajo, V.H.Ponce, M.E.Uranga, Nucl. Instr. and Meth. B 96 (1995) 583-603

[Fink03a] D.Fink, P.S.Alegaonkar, A.V.Petrov, A.S.Berdinsky, V.Rao, M.Müller, K.K.Dwivedi, L.T.Chadderton, Radiation Measurements 36 (2003) 605-609

[Fink03b] D.Fink, A.V.Petrov, V.Rao, M.Wilhelm, S.Demyanov, P.Szimkowiak, M.Behar, P.S.Alegaonkar, L.T.Chadderton, Radiation Measurements 36 (2003) 751-755

[Flei65] R.L.Fleischer, P.B.Price, R.M.Walker, Jornal of Applied Phys.36 Nr.11 (1965) 3645

[Fugg80] J.C.Fuggle, S.F.Alvarado, Phys.Rev. A 22 Nr.4 (1980) 1615-1624

[Gran02] P.L.Grande, G.Schiwietz, Nucl. Instr. and Meth. B 195 (2002) 55-63

[Gutz95] A.Gutzmann, S.Klaumünzer, P.Meier, Phys. Rev. Letters 74 Nr.12 (1995) 2256-2259

[Gutz97] A.Gutzmann, S.Klaumünzer, Nucl. Instr. and Meth. B 127/128 (1997) 12-17

[Hann99] T.Hannappel, S.Visbeck, K.Knorr, J.Mahrt, M.Zorn, F.Willig, Appl.Phys. A 69 (1999) 427-431

[Kitt68] C.Kittel, Einführung in die Festkörperphysik (übersetzte 3.Aufl.), Oldenbourg (1968)

[Klau89] S.Klaumünzer, Li Changlin, S.Löffler, M.Rammensee, G.Schumacher, Nucl. Instr. and Meth. B 39 (1989) 665-669

[Klau92] S.Klaumünzer, Material Scince Forum 97-99 (1992) pp. 623-630

[Klau00] S.L.Klaumünzer, Multiscale Phenomena in Plasticity,Series E: Appl. Sciences 367 (2000) 441-450

[Krau79] M.Krause, J.H.Oliver, J.Phys.Chem.Ref.Data 8, (1979) 329

[Krau03] J.Krauser, J.-H.Zollondz, A.Weidinger, C.Trautmann, Jornal of Applied Phys. 94 Nr.3 (2003) 1959-1964

[Jäge00] E.Jäger, M.I.Kaganow, Grundlagen der Festkörperphysik (1.Aufl.), Harri Deutsch (2000)

[Maye85] T.Mayer-Kuckuk, Atomphysik (3.Aufl.), Teubner (1985)

[Maye92] T.Mayer-Kuckuk, Kernphysik (5.Aufl.), Teubner (1992)

[Ming90] Ming-dong Hou, S.Klaumünzer and G.Schumacher, Phys. Rev. B 41 (1990) 1144-1157

[Momp96] J.Mompart, C.Domingo, C.Baixeras, F.Fernández, Nucl. Instr. and Meth. B 107 (1996) 56-61

[Pari99] G.Pari, V.Kumar, A.Mookerjee, A.K.Bhattacharyya, J.Phys.: Condens.Matter 11 (1999) 4291-4302

[Roze96] J.P.Rozet, C.Stéphan, D.Vernet, Nucl. Instr. and Meth. B 107 (1996) 67-70

[Rueb95] S.D.Ruebush, R.X.Ynzunza, S.Thevuthasan, A.P.Kaduwela, M.A.van Hove, C.S.Fadley, Surface Science 328 (1995) 302-310

[Schä96] J.Schäfer, J.Ristein, R.Graupner, L.Ley, U.Stephan, Th.Frauenheim, V.S.Veerasamy, G.A.Amaratunga, M.Weiler, H.Ehrhardt, Phys. Rev. B 53 (1996) 7762-7774

[Scha03] B.Schattat, Doktorarbeit an der Universität Stuttgard (2003)

[Sche98] T.Schenkel, A.V.Hamza, A.V.Barnes, D.H.Schneider, Phys. Rev. Letters 81 Nr.12 (1998) 2590-2593

[Schi92] G.Schiwietz, P.L.Grande, B.Skogvall, J.B.Biersack, R.Köhrbrück, K.Sommer, A.Schmoldt, P.Goppelt, I.Kádár, S.Ricz, U.Stettner, Phys. Rev. Letters 69 Nr.4 (1992) 628-631

[Schi94a] G.Schiwietz, P.L.Grande, Nucl. Instr. and Meth. B 90 (1994) 10-19

[Schi94b] G.Schiwietz, P.L.Grande, Radiation Effects and Defects in Solids 130-131 (1994) 137-156

[Schi98] G.Schiwietz, G.Xiao, P.L.Grande, E.Luderer, R.Pazirandeh,U.Stettner, Nucl. Instr. and Meth. B 146 (1998) 131-136

[Schi99] G.Schiwietz, G.Xiao, P.L.Grande, E.Luderer, R.Pazirandeh,U.Stettner, Europhys. Lett. 47 (1999) 384-390

[Schi00] G.Schiwietz, G.Xiao, E.Luderer, P.L.Grande, Nucl. Instr. and Meth. B 164-165 (2000) 353-364

[Schi04] G.Schiwietz, K.Czerski, M.Roth, F.Staufenbiel, P.L.Grande, Nucl. Instr. and Meth. B (2004) in print

[Sigm02] P.Sigmund, a.Schinner, Nucl. Instr. and Meth. B 195 (2002) 64-90

[Simi00] Simulationsprogramm SIMION 3D, Version 7.0, D.A.Dahl, Idaho National Engeneering Laboratory, EGG-CS-7233 (2000)

[Snoe94] E.Snoeks, A.Polman, C.A.Volkert, Appl.Phys.Letters 65 (1994) 2487-2489

[Snoe01] E.Snoeks, A.van Blaaderen, T.van Dillen, C.M.Kats, K.Velikov, M.L.Brongersma, A.Polman, Nucl. Instr. and Meth. B 178 (2001) 62-68

[Stol03] N.Stolterfoht, V.Hoffmann, R.Hellhammer, Z.D.Pešić, D.Fink, A,Petrov, B.Sulik, Nucl. Instr. and Meth. B 203 (2003) 246-253

[Toug82] S.Tougaard, P.Sigmund, Phys. Rev. B 25 (1982) 4452-4466

[Toul96a] M.Toulemonde, Ch.Dufour, Z.Wang, E.Paumier, Nucl. Instr. and Meth. B 112 (1996) 26-29

[Toul96b] M.Toulemonde, J.M.Costantini, Ch.Dufour, A.Meftah, E.Paumier, F.Studer, Nucl. Instr. and Meth. B 116 (1996) 37-42

[Toul00] M.Toulemonde, Ch.Dufour, A.Meftah, E.Paumier, Nucl. Instr. and Meth. B 166-167 (2000) 903-912

[Toul02] M.Toulemonde, W.Assmann, C.Trautmann, F.Grüner, Phys. Rev. Letters 88 Nr.5 (2002) 057602/1-057602/4

[Toul03] M.Toulemonde, W.Assmann, C.Trautmann, F.Grüner, H.D.Mieskes, H.Kucal, Z.W.Wang, Nucl. Instr. and Meth. B 212 (2003) 346-357

[Trau00] C.Trautmann. S.Klaumünzer. H.Trinkaus, Phys. Rev. Letters 85 Nr.17 (2000) 3648-3651

[Trau02] C.Trautmann. S.Klaumünzer. H.Trinkaus, Nucl. Instr. and Meth. B 191 (2002) 144-148

[Wang94] Z.G.Wang, Ch.Dufour, E.Paumier, M.Toulemonde, J.Phys.:Condens.Matter 6 (1994) 6733-6750

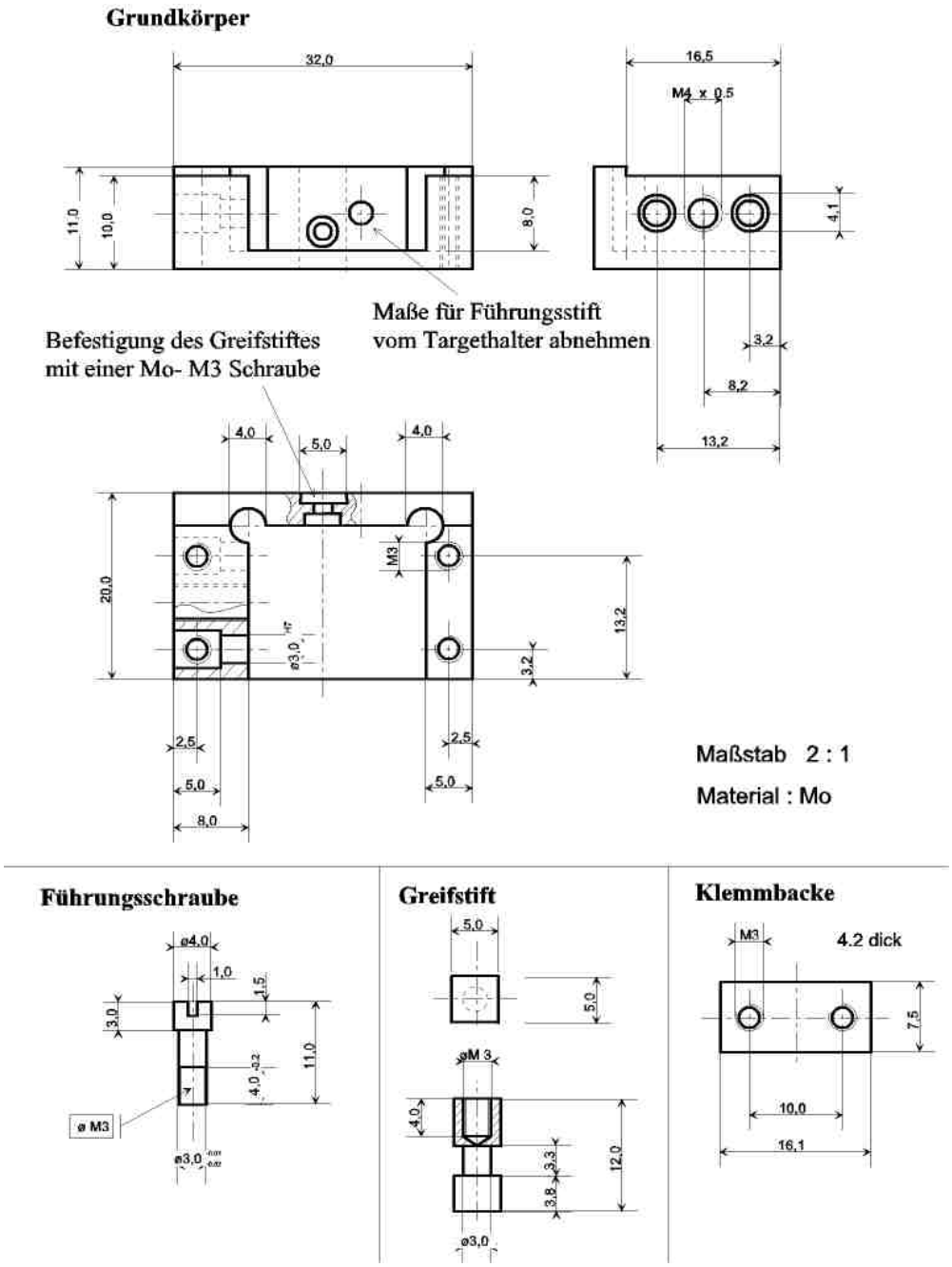
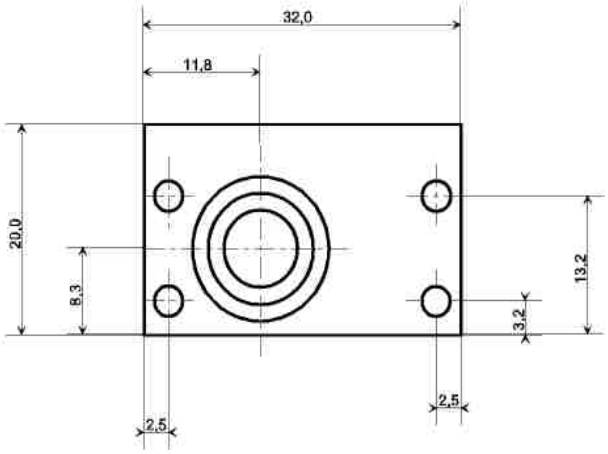
[Wern01] W.S.M.Werner, H.Tratnik, J.Brenner, H.Störi, Surface Science 495 (2001) 107-119

[Xiao96] G.Xiao, Doktorarbeit an der FU-Berlin (1996)

[Zieg80] J.F.Ziegler, The Stopping and Ranges of Ions in Matterb 5 Pergamon Press,New York (1980)

[Zoll03] J.-H.Zollondz, J.Krauser, A.Weidinger, C D.Schwen, C.Ronning, H.Hofsaess, B.Schultrich, Diamond and Related Materials 12 (2003) 938-941

Anhang : Zeichnung des Targethalteraufsatzes



Targetklemmplatte und Blende