

Kapitel 1

Einleitung

Die Dünnschichttechnologie hat in der heutigen Zeit einen hohen Stellenwert, sowohl in der Industrie als auch in der Forschung. Dünne Schichten aus Bornitrit (Kunstdiamant) auf Materialien schützen diese vor mechanischer Beschädigung und Korrosion. Fensterschichten aus ZnOAl (ca. 300 – 500 nm) auf Solarzellen haben neben der Eigenschaft, für das Licht transparent zu sein, auch die Aufgabe, den elektrischen Kontakt nach außen herzustellen, müssen also eine hohe Leitfähigkeit haben. Diese kann durch das stöchiometrische Verhältnis der Konstituenten geregelt werden. Wasserstoff in Solarzellen auf Siliziumbasis beeinflusst den Wirkungsgrad der Zelle erheblich, dessen Konzentration in der Si-Schicht ist ein wichtiger Parameter. Zuletzt sei noch das Beispiel der Neutronenspiegel in Neutronenleitern von Forschungsreaktoren angeführt. Diese bestehen aus vielen, abwechselnd aufgetragenen Schichten aus Fe/Co und Si mit abnehmender Schichtdicke (80 – 8 nm). Dabei ist sowohl das stöchiometrische Verhältnis von Fe zu Co als auch die Dicke der einzelnen Schichten für die Qualität des Spiegels entscheidend.

Die Methoden zur Herstellung dünner Schichten sind so vielfältig wie ihre Einsatzgebiete. Die Eigenschaften der Schichten werden unter anderem durch ihre Dicke, Stöchiometrie, Homogenität oder Reinheit bestimmt. Zur Beurteilung sind die Hersteller an einem Tiefenprofil der Schicht interessiert, um damit Materialeigenschaften korrelieren zu können. Zur Tiefenprofilmessung existieren diverse Analysemethoden, die auf unterschiedlichen physikalischen und chemischen Prozessen beruhen. Eine weit verbreitete Klasse von Methoden basiert auf der **Ionenstrahlanalytik**, bei der die Streuung geladener Teilchen mit bekanntem Wirkungsquerschnitt als Sonden benutzt werden. Die wohl am häufigsten benutzte, weil experimentell am einfachsten zu realisierende, Analysemethode ist die **Rutherford-Rückstreuung RBS** (Rutherford Backscattering Spectroscopy). Als Projektil werden hierfür leichte Ionen (z.B. He) benutzt. Sie werden an den Probenatomen elastisch gestreut und in einem in Rückwärtsrichtung positionierten Detektor nachgewiesen. Ihre Energie wird durch den Energieübertrag auf das Probenatom beim Stoß (proportional zur Masse des Atoms) und den

Energieverlust, den sie auf dem Weg in der Probe erlitten haben (proportional zur Tiefe des Streuortes), bestimmt. Eine möglichst genaue Messung der Energie erlaubt daher im Prinzip die Rekonstruktion der Zusammensetzung der Probe in Abhängigkeit von der Tiefe. Da jedoch beide Informationen (Masse des Reaktionspartners und Tiefe des Streuortes) in nur einer Variablen (Energie) stecken, kann es insbesondere bei der Analyse leichter Elemente in einer schwereren Matrix zu Zweideutigkeiten kommen, die dann nur durch eine Simulation der gemessenen Spektren entfaltet werden können. Ein weiterer Nachteil dieser Meßmethode wird durch die Anordnung des Detektors bei großen Winkeln bedingt. Zwar ergeben unter Rückwärtsrichtung gestreute Teilchen eine bessere Tiefen- und Massenauflösung, man ist aber auf Probenatome, die schwerer als das Projektil sind, beschränkt. So kann Wasserstoff z.B. mit RBS nicht nachgewiesen werden. Eine Alternative dazu, bei der diese Probleme nicht auftauchen, stellt die **elastische Rückstoßteilchen-Analyse ERDA** (Elastic Recoil Detection Analysis) dar.

1.1 Elastische Rückstoßteilchen-Analyse ERDA

Bei ERDA wird ebenfalls die Rutherfordstreuung genutzt. Man verwendet schwere Ionen als Projektil, um meist viel leichtere Konstituenten der Probe nachzuweisen. In Abb. 1.1 ist das Prinzip graphisch dargestellt. Die Projektile, wie z.B.

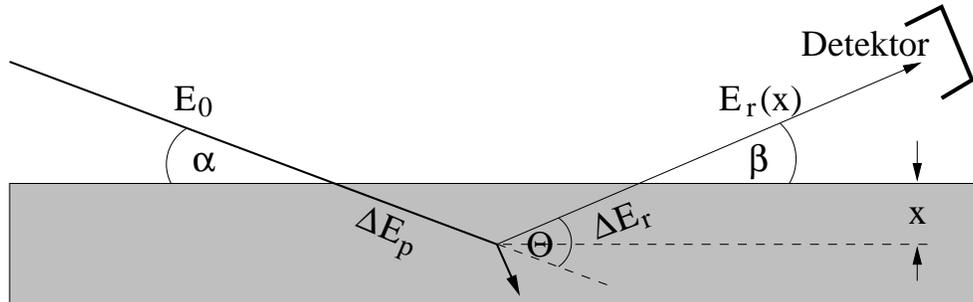


Abbildung 1.1: *Prinzip der ERDA-Messung*

Ar, Ni, Kr oder Xe, mit Einschußenergien von $E_0 = 0,5 - 3$ MeV/Nukleon treten meist unter einem kleinen Eintrittswinkel α in die Probe ein, wo sie durch Wechselwirkung mit den Probenatomen und -elektronen kontinuierlich abgebremst werden, also Energie verlieren (ΔE_p). Trifft ein Projektil in einer Tiefe x ein Probenatom, so überträgt es auf dieses eine vom Streuwinkel Θ abhängige Energie E'_r :

$$E'_r = k(E_0 - \Delta E_p(x)) \quad (1.1)$$

mit

$$k = 4 \frac{M_p M_r}{(M_p + M_r)^2} \cos^2 \Theta \quad (1.2)$$

($M_{p/r}$: Masse von Projektil und Rückstoßteilchen)

Der *kinematische Faktor* k gibt den Bruchteil der beim elastischen Stoß übertragenen Energie an. Ist die Masse des Projektils deutlich größer als die des Ejektils, so erhält das Rückstoßteilchen genügend Energie, um die Probe verlassen zu können. Auf dem Weg zur Oberfläche wird es ebenfalls abgebremst (ΔE_r), so daß es schließlich den Detektor mit einer Energie $E_r(x)$ erreicht:

$$E_r(x) = k(E_0 - \Delta E_p(x)) - \Delta E_r(x) \quad (1.3)$$

Da bei ERDA im Gegensatz zu RBS die aus der Probe herausgestreuten Isotope nachgewiesen werden sollen, hat der Detektor mehrere Aufgaben zu erfüllen. Zum einen mißt er die Energie der Rückstoßteilchen möglichst genau. Desweiteren ist er in der Lage, die Teilchen zu identifizieren, d.h. sie nach Masse A und Kernladungszahl Z zu trennen. Aus diesem Grunde sind die meisten ERDA-Detektoren als ΔE -E-Zähler aufgebaut. Mit der Identifikation der Rückstoßteilchen ist es dann möglich, für jedes Element separat ein Energiespektrum zu erzeugen, das dann in ein Tiefenprofil umgewandelt werden kann. Hierfür ist die Kenntnis des **Abbremsvermögens oder spezifischen Energieverlustes** $S = \Delta E / \Delta x$ von Projektil und Ejektil notwendig, da die Tiefenposition in der Probe mit $x \sim \Delta E / S$ bestimmt wird. Um die Meßgenauigkeit zu erhöhen, wird der Energieverlust des Teilchens auf dem Weg durch das Material im allgemeinen durch einen kleinen Einfallswinkel α um den Faktor $1/\sin \alpha$ für das Projektil bzw. $1/\sin \beta$ für das Rückstoßatom vergrößert.

Die gemessene Häufigkeit eines Isotops kann man bei bekanntem Strahlstrom und Wirkungsquerschnitt der elastischen Streuung zur Bestimmung der Konzentration in dieser Tiefe benutzen. Dabei erkennt man einen weiteren Vorteil der ERDA-Methode. Der Rutherford-Wirkungsquerschnitt für Rückstoßteilchen wird folgendermaßen berechnet:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left(\frac{Z_p Z_r e^2 (M_p + M_r)}{2E_p M_r} \right)^2 \frac{1}{\cos^3 \Theta} \approx \left(\frac{Z_p e^2 M_p}{4E_p} \right)^2 \frac{1}{\cos^3 \Theta} \quad (1.4)$$

(Ω : erfaßter Raumwinkel, $Z_{p/r}$: Kernladungszahl von Projektil/Ejektil)

Da $M_p \gg M_r$ verwendet wird und für die leichten bis mittelschweren Elemente näherungsweise $Z_r = 1/2 M_r$ gilt, ist die Nachweisempfindlichkeit für diese Isotope nahezu gleich. Eine Ausnahme bildet dabei ^1H ($Z_r = M_r$); dessen Empfindlichkeit ist aufgrund des Quadrates um den Faktor 4 höher, was diese Methode für den Nachweis von H besonders interessant macht.

1.2 ERDA am Q3D-Magnetspektrographen

Für die ERDA-Messungen haben wir einen Q3D-Magnetspektrographen und einen ortsempfindlichen Detektor in dessen Fokalebene verwendet. Abb. 1.2 zeigt das Prinzip des Verfahrens. Die Projektile (Xe, Kr oder Ar mit $E_0 = 1,5 - 3$ MeV/Nukleon) treten unter einem flachen Winkel ($\alpha = 4 - 8^\circ$) in die Probe ein und streuen verschiedene, in der Probe enthaltene Ionen heraus. Der Magnetspektrograph transformiert das Impulsspektrum der Rückstoßteilchen in ein Ortspektrum gemäß der Spektrographengleichung

$$p = q \cdot B \cdot \rho \quad (1.5)$$

(p, q : Impuls, Ladung des Ions, B : Feldstärke des Magneten, ρ : Ablenkradius)

In seiner Fokalebene befindet sich der Ortsdetektor zur Messung des Impulses. Außerdem werden in ihm zur Teilchenidentifizierung drei weitere Parameter bestimmt: der Energieverlust ΔE in einem mit Gas gefülltem Bereich und dahinter die Restenergie E und die Flugzeit T . In einer Darstellung ΔE - E (rechter Graph in Abb. 1.2) können die verschiedenen Isotope nach Ladung q und Massenzahl A

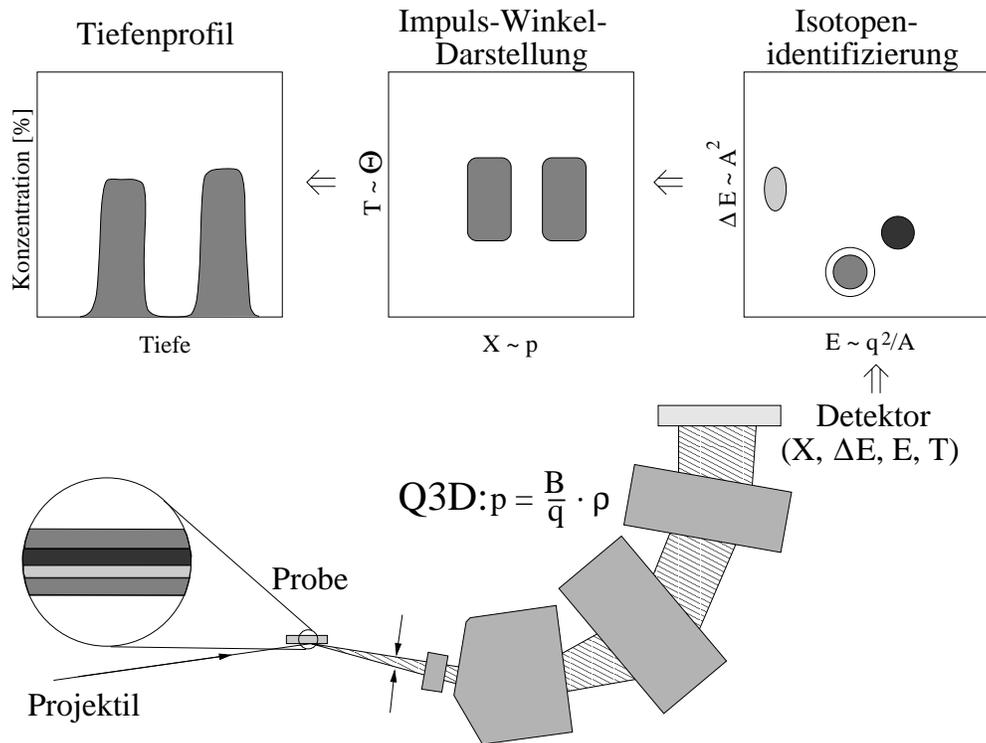


Abbildung 1.2: Prinzip der ERDA-Messung am Q3D

identifiziert werden. Durch Setzen von Fensterbedingungen wird für jedes Isotop über die Projektion eines X- Θ -Plots (mittleres Bild in Abb. 1.2), wobei der Streuwinkel Θ aus der Flugzeit T gewonnen wird, auf die X-Achse ein Impulsspektrum erzeugt, das zu einem Energie- und weiter zu einem Tiefenprofilspektrum verarbeitet werden kann (linker Graph in Abb. 1.2).

Mit dieser Kombination wird eine extrem gute Energieauflösung erzielt, die sich in einer entsprechend guten Tiefenauflösung widerspiegelt. Zwei Eigenschaften des Spektrographen ermöglichen diese hohe Auflösung:

Die **Dispersion** der drei Dipole beträgt 9,5 cm/% p_0 , d.h. ausgehend von einem Teilchen mit dem Impuls p_0 wird ein zweites Teilchen mit einem um 1 % verschiedenen Impuls um 9,5 cm versetzt in die Fokalebene abgebildet. Bei einer Ortsauflösung des Detektors von $\Delta x = 1,5$ mm wird eine Energieauflösung von $\Delta E/E = 2 \cdot \Delta p/p = 3 \times 10^{-4}$ erreicht.

Eine ausführliche Beschreibung des Spektrographen und des Detektors wird in Kap. 3 gegeben.

Die zweite Eigenschaft, die dieses System so geeignet für ERDA-Analysen macht, besteht in der simultanen **kinematischen Korrektur** für alle Rückstoßkerne. Wie aus Gl. 1.1 zu ersehen ist, hängt die Energie des Rückstoßteilchens vom Streuwinkel Θ ab. Der Bereich der Winkelvariation $\Delta\Theta$ wird durch den Detektorraumwinkel definiert. Um eine Energieauflösung wie oben erwähnt allein durch die Begrenzung des Akzeptanzwinkels zu erhalten, müßte man diesen in der Streuebene auf weniger als 1 mrad reduzieren. Das Ergebnis wäre eine unakzeptabel kleine Zählrate, sehr lange Bestrahlungszeiten und dadurch eine erhebliche Schädigung der Probe. Mit Hilfe der Ionenoptik jedoch kann man diese Abhängigkeit bis auf einen vernachlässigbar kleinen Anteil eliminieren (s. Kap. 4.4.3). Nach der Spektrographengleichung (Gl. 1.5) sortiert das Magnetfeld die Ejektile nach ihren relativen Impulsdifferenzen. Die kinematische Impulsvariation wird mit dem Parameter κ charakterisiert. Er gibt an, um welchen Anteil sich der Impuls eines Teilchens ändert, wenn man den Streuwinkel um $\Delta\Theta$ variiert. Mit Hilfe von Gl. 1.1 und Gl. 1.2 kann κ bestimmt werden:

$$\kappa = \frac{1}{p} \frac{dp}{d\Theta} = -\tan \Theta \quad (1.6)$$

Die kinematische Impulsvariation hängt also (im Gegensatz zu elastisch gestreuten Projektilen) weder von der Masse des Projektils, noch von der des Ejektils ab. Das bedeutet, daß eine kinematische Korrektur für alle Rückstoßisotope gleichzeitig optimal ist. Die Eliminierung der Streuwinkelabhängigkeit ermöglicht nun die Nutzung eines großen Raumwinkels, am Q3D maximal 10,4 msr, ohne die Energieauflösung zu verschlechtern, so daß dann kurze Bestrahlungszeiten, niedrige Strahlströme und somit eine schonende Behandlung der Probe möglich sind. Die Effekte der kinematischen Korrektur und deren Auswirkungen auf die Energieauflösung werden in Kap. 4.4.3 an einem Beispiel demonstriert.

1.3 Energieverlust von Ionen in Materie

Aus der bisherigen Darstellung ist zu entnehmen, daß die Kenntnis der Abbremsung von Ionen in Materie von essentieller Bedeutung für die ERDA-Methode ist. Kap. 2.2 gibt aus diesem Grunde einen Überblick über die gängigen Theorien des Energieverlustes. Die dort vorgestellten Berechnungen beziehen sich vorwiegend auf dicke Schichten. Dies hat folgenden Grund. Die Projektile sind geladene Ionen, d.h. Kerne mit einigen Elektronen. Tritt ein Ion in den Festkörper ein, so wechselwirkt es mit den Probenatomen und -elektronen. Dabei sind mehrere alternative Prozesse möglich. Das Ion kann Elektronen einfangen oder verlieren, inneren Elektronen können angeregt werden sowie durch radiative oder Augerprozesse wieder zerfallen. All diese Prozesse beeinflussen das Coulomb-Potential des Ions und somit dessen Abbremsung. Ab einer gewissen Tiefe in der Probe stellt sich ein dynamisches Gleichgewicht dieser Prozesse ein, es werden gemittelt gleich viele Elektronen eingefangen wie ionisiert, das Ion ändert im Mittel seinen Ladungszustand nicht mehr. Die heute benutzten Angaben zu Energieverlusten beziehen sich stets auf diesen Gleichgewichtszustand. Soweit der Nichtgleichgewichtsbereich beim Eindringen in die Schicht gegenüber der Schichtdicke bzw. im Vergleich zur Tiefenauflösung vernachlässigbar ist, kann man die Energieverlustabweichung in diesem Bereich ignorieren. Mit der hohen Auflösung des Q3D-Spektrographen und bei den in unseren ERDA-Messungen verwendeten Projektilenergien ist diese Abweichung jedoch für die Tiefenauflösung nahe der Oberfläche relevant. Die Kenntnis dieser Nichtgleichgewichtsprozesse ist bisher noch unvollständig und wurde in früheren Analysen nicht berücksichtigt.

Die Untersuchung von Umladungsprozessen und Energieverlusten im Nichtgleichgewicht ist aus physikalischer Sicht ein interessantes Thema, bei dem elementare Prozesse, die einer theoretischen Beschreibung zugrunde liegen, noch nicht in allen Einzelheiten verstanden sind. Wir haben aus diesen Gründen eine neuartige, effektive Meßmethode entwickelt, um Mechanismen wie Umladungen und Energieverlustprozesse in dünnen Schichten eines Festkörpers in Abhängigkeit vom Ein- und Ausgangsladungszustand zu untersuchen und mikroskopische, theoretische Modelle zu testen.

Gliederung der Arbeit

Nach einem kurzen Überblick über Analysemethoden, die die Abbremsung von Ionen zur Tiefenanalyse nutzen, werden wegen der zentralen Bedeutung des Energieverlustes von Ionen in Materie in Kap. 2.2 die heute am häufigsten verwendeten Theorien und Methoden zu Energieverlustberechnung vorgestellt. Der experimentelle Aufbau für ERDA-Messungen am HMI wird in Kap. 3 beschrieben, während in Kap. 4 an einem Beispiel das Prinzip, die Analyse und die gewonnenen Ergebnisse demonstriert werden. Eine Diskussion der Tiefenaufösung und deren Grenzen bei ERDA-Messungen am Q3D schließen das Kapitel ab.

Das Prinzip der neuen Methode zur Untersuchung der Umladungsprozesse und Energieverluste in Abhängigkeit vom Ein- und Ausgangsladungszustand und der experimentelle Aufbau dazu, sowie die Ergebnisse der Messungen für Ne-Ionen in dünnen C-Schichten und deren theoretische Beschreibung auf einer mikroskopischen Basis werden anschließend in Kap. 5 vorgestellt.

