

# Kapitel 4

## ERDA-Messungen am Q3D

Die Tiefenprofil- und Stöchiometriemessungen an der neuen Probenkammer und mit dem optimierten Fokalebeneendetektor erwiesen sich als äußerst effektiv. Die hohe Güte dieser Meßmethode und die exzellente Auflösung sollen nun im folgenden Kapitel anhand einer Messung an einer Multischichtprobe demonstriert werden. Die dabei erzielte Tiefenauflösung wird in ihren Einzelbeiträgen diskutiert. Anschließend werden auch die Grenzen der ERDA-Methode an einem Magnetspektrographen aufgezeigt.

### 4.1 Meßbedingungen

Als **Strahl** wurden bei diesem Experiment Krypton-Ionen mit einer Energie von 119 MeV (=1,4 MeV/Nukleon) benutzt. Der spezifische Energieverlust ist in diesem Energiebereich für Kr maximal (52,9 keV/( $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ )). Durch Schlitze in der Strahlführung wurde die Energiebreite des Strahls  $\Delta E_0$  auf einen Wert von

$$\Delta E_0/E_0 = 3,9 \times 10^{-4}$$

und die Winkelbreite  $\Delta\alpha$  auf 0,6 mrad begrenzt.

Die **Probe**, bestehend aus einem Siliziumwaver mit nacheinander ca. 10 nm dick aufgedampften Kohlenstoff- und Aluminiumoxidschichten, wurde unter einem Winkel von  $6^\circ$  zur Oberfläche beschossen. Dies führt zu einer Wegverlängerung des Projektils in der Schicht um einen Faktor  $1/\sin 6^\circ \approx 10$ . Abb. 4.1 zeigt die geometrischen Bedingungen mit den analysierten Dicken und den Energien der detektierten Rückstoßteilchen aus den verschiedenen Schichten. Als Streuwinkel wurde  $\Theta=18^\circ$  ausgewählt. Dabei spielten verschiedene Aspekte eine Rolle. Zum einen soll der Winkel klein sein, um eine möglichst gute Auflösung zu erhalten. Zum anderen erzwingt ein kleiner Streuwinkel auch einen kleinen Einfallswinkel  $\alpha$ . Da die Ausdehnung des Strahlflecks auf der Probe proportional zu  $1/\sin \alpha$  ist,

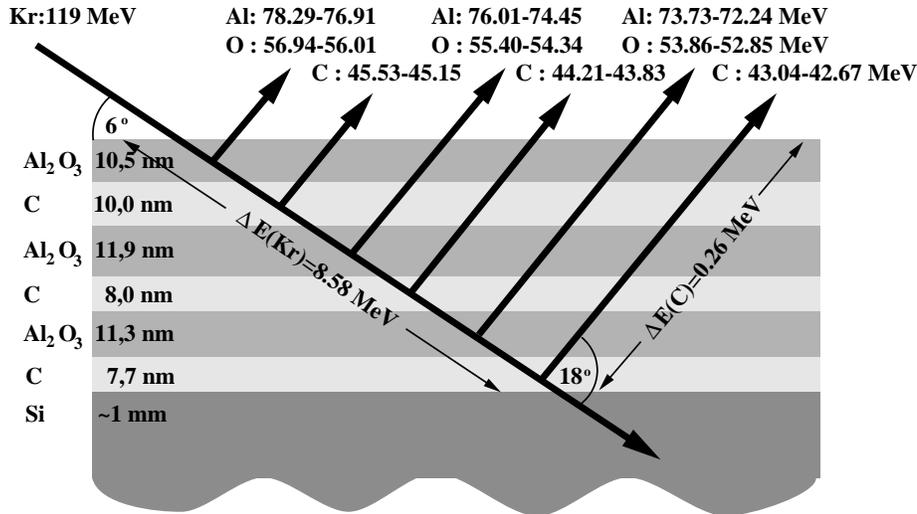


Abbildung 4.1: Querschnitt durch die Multischichtprobe. Die angegebenen Schichtdicken stellen das Ergebnis der Analyse dar. Oberhalb der Schicht sind die Energieintervalle der Rückstoßteilchen aus den einzelnen Schichten angegeben.

erzeugt ein Strahl mit einem Durchmesser von nur 1 mm bei dem von uns gewählten Winkel  $\alpha = 6^\circ$  einen Strahlfleck mit einer Länge von 10 mm. Somit limitiert die Größe der Probe die Wahl des Eintritts- und somit auch des Austritts- oder Streuwinkels.

Die Ejektile verlassen die Probe mit unterschiedlicher Ladung. Als Näherung für die Ladungsverteilung kann man eine semi-empirische Gleichgewichtsladungsverteilung transmittierter Teilchen [Shi82] nehmen, wie z.B. in Tab. 4.1. Bei der

	5 <sup>+</sup>	6 <sup>+</sup>	7 <sup>+</sup>	8 <sup>+</sup>	9 <sup>+</sup>	10 <sup>+</sup>	11 <sup>+</sup>	12 <sup>+</sup>	13 <sup>+</sup>
Al					1,7%	15,3%	40,9%	33,6%	8,4%
O		1,8%	36,6%	61,6%					
C	14,6%	85,4%							

Tabelle 4.1: Gleichgewichtsladungsverteilungen von Ionen nach der Transmission durch eine Kohlenstoffolie mit Energien, wie sie den Rückstoßteilchen aus der Multischicht entsprechen.

Einstellung der Magnetfelder des **Q3D-Spektrographen** wurde darauf geachtet, Ladungszustände mit einem möglichst hohen Prozentsatz in die Fokalebene zu projizieren, um die Bestrahlungszeit der Probe möglichst gering zu halten.

Abb. 4.2 zeigt den Ort der Ejektile in der Fokalebene bei der gewählten Feldstärke von 5,4 kG und einem Streuwinkel von  $18^\circ$ . Diese treten in einer Breite auf, die der Dicke der Schicht entspricht, mit Abständen dazwischen, die durch Schichten mit anderen Substanzen entstehen (s. auch Abb. 4.3, 4.4 oder 4.5). Es gelang uns, alle drei Elemente in einer Einstellung zu erfassen (auch wenn wir beim Aluminium nur den zweitstärksten Ladungszustand detektierten), d.h. das Tiefenprofil aller Elemente in der Probe konnte in nur einer Messung untersucht werden. Desweiteren kann die Bestrahlungszeit minimiert werden, indem man die Öffnung zum Spektrographen möglichst groß macht. Wie schon erwähnt (s. Tab. 3.1), beträgt der maximal nutzbare Raumwinkel  $\Omega_{max} = 10,4$  msr. Da die größten Abbildungsfehler an den Rändern der Öffnung zu finden sind und desweiteren möglichst wenig elastisch gestreutes Kr, das für die Messung irrelevant ist, in die Fokalebene gelangen sollte, wurde der Raumwinkel vor allem auf der Kleinwinkelseite auf  $\Omega = 4,6$  msr begrenzt ( $\Delta\Theta = 17^\circ - 20^\circ$ ,  $\Delta\varphi = \pm 1,5^\circ$ ).

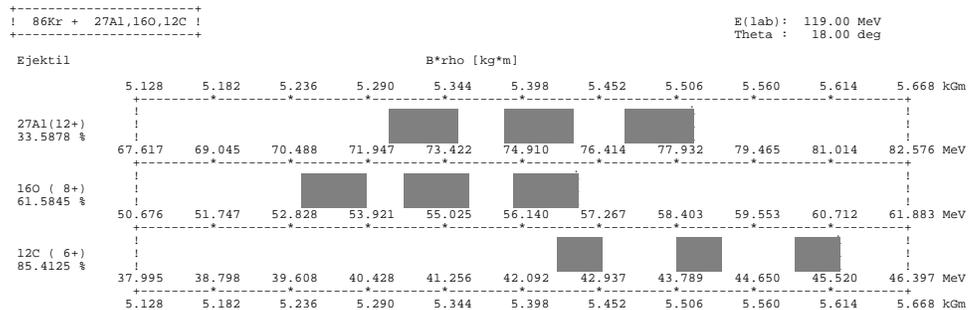


Abbildung 4.2: Berechnung der Orte, an denen die Ejektile in die Fokalebene treffen, bei einer Magnetfeldeinstellung von  $B = 5,4$  kG (der dargestellte Bereich entspricht der Länge der Fokalebene). Als X-Achsen-Beschriftung sind neben den  $B \cdot \rho$ -Werten die Energien der Teilchen abzulesen. Die Rechtecke stellen die Impulsbreiten der jeweiligen Rückstöße aus den verschiedenen Schichten dar. Die %-Angaben links geben den Anteil des jeweiligen Ladungszustandes an (s. Tab. 4.1).

Zum Schluß sei noch erwähnt, daß der **Fokalebenedetektor** mit 30 mbar Isobutan und einer Spannung von -900 V an den Anodendrähten betrieben wurde. Die Ejektile deponierten über jedem  $\Delta E$ -Streifen zwischen 1,3 (C) und 6 MeV (Al) ihrer Energie.

## 4.2 Erzeugung der Energiespektren für jedes Isotop

Von jedem Ejektil wurden drei  $\Delta E$ - und zwei Ortssignale aus der Vieldrahtkammer, sowie ein Energie- und ein Flugzeitsignal vom Szintillator aufgenommen. Der erste Schritt bei der Analyse besteht nun in der Isotopenidentifizierung. Nachdem durch Setzen von Gates (Fensterbedingungen) in verschiedenen Kombinationen der gemessenen Parameter kleine Untergrundbeiträge eliminiert wurden, wird ein  $\Delta E$ -Signal ( $\sim A^2$ ) gegen das Restenergiesignal aus dem Szintillator ( $\sim A^{0,6}(q/A)^{3,3}$ ) dargestellt. In Abb. 4.3 links ist diese Darstellung abgebildet. Jedes Isotop bildet darin eine Insel (es gelangt natürlich auch herausgestreutes Si in den Detektor, doch wurden die Schwellen für die E-Signale so hoch gesetzt, daß das Si-Signal nicht aufgenommen wurde.). Hier können nun Fensterbedingungen auf einzelne Isotope gesetzt werden, so daß im weiteren Verlauf jedes Isotop für sich behandelt werden kann. Rechts ist die Flugzeit (T) der Ejektile gegen das Ortssignal der ersten Delayline (X1) aufgetragen (ohne Fensterbedingung). Da

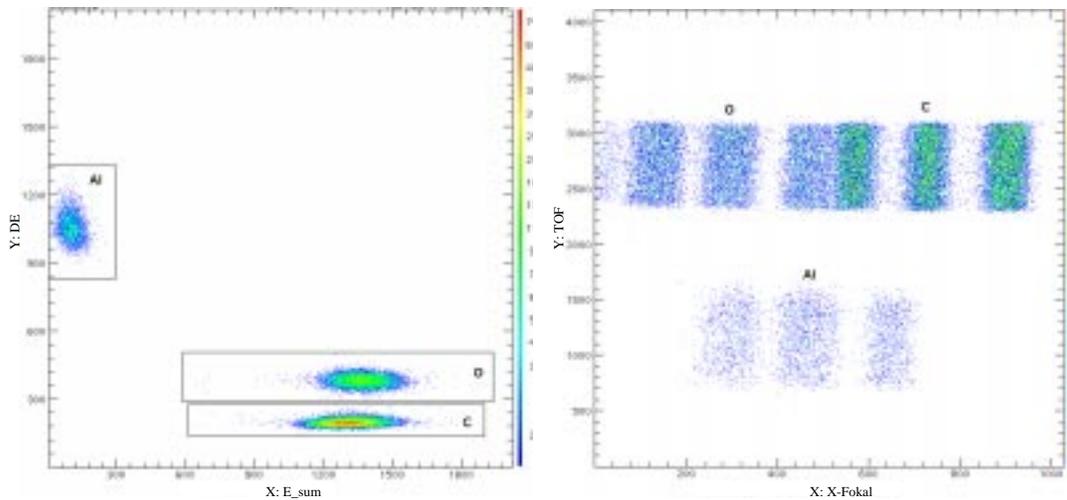


Abbildung 4.3: *Plots zur Isotopenidentifizierung und Erzeugung der Energiespektren . Links ist die Restenergie  $E$  ( $X$ ) aus dem Szintillator gegen das Energieverlustsignal  $\Delta E$  ( $Y$ ) der Vieldrahtkammer aufgetragen. Jedes Isotop bildet dabei eine Insel. Durch Fensterbedingungen können für die darauf folgende Analyse die einzelnen Massen isoliert werden.*

*Rechts ist der Ort in der Fokalebene ( $X$ ) gegen die Flugzeit TOF ( $Y$ ) dargestellt (ohne Fensterbedingungen im linken Spektrum). Jedes Rechteck beinhaltet die Rückstoßteilchen eines Elementes aus einer Schicht. Die vertikale Ausdehnung entspricht der Winkelöffnung  $\Delta\Theta = 3^\circ$  des Spektrographen.*

$T \sim A/q$  ist, befinden sich  $C^{6+}$  und  $O^{8+}$  ( $A/q = 2$ ) auf gleicher Höhe. Die vertikale Ausdehnung der Rechtecke entspricht der Streuwinkelvariation von  $\Delta\Theta = 3^\circ$ . Wie in dem Spektrum gut zu sehen ist, sind die horizontalen Kanten (TOF) sehr scharf, was auf eine sehr gute Winkelauflösung durch die Flugzeitmessung schließen läßt. Auch die vertikalen Ränder sind gerade, d.h. die kinematische Korrektur war richtig eingestellt, die Winkelabhängigkeit ist eliminiert. Mit Hilfe einer Eichung der Fokalebene kann die im Impuls lineare X-Achse in eine Energieachse für jedes Isotop umgerechnet werden. Die Projektion des rechten Spektrums für jedes Isotop (Masse A) auf die Energieachse ergibt dann die getrennten Energiespektren der in der Probe enthaltenen Elemente.

Um die Stöchiometrie in den einzelnen Schichten zu bestimmen, muß man die Anzahl der detektierten Teilchen ins Verhältnis zueinander setzen. Wie bereits oben erwähnt, wird bei dieser Einstellung nur ein Anteil eines Ladungszustandes erfaßt. Die Zählraten lassen sich aber mit Hilfe des Stöchiometriezählers korrigieren. Da er außerhalb des Magnetfeldes steht, erfaßt er die vollständige Zählrate, unabhängig von der Ladung der einzelnen Ejektile. Der Zähler steht bei einem größeren Streuwinkel (ca.  $45^\circ$ ), was jedoch, da mit ihm keine hohe Auflösung erzielt werden muß, nicht hinderlich ist. Auch hier erzeugt man sich einen  $\Delta E$ -E-Plot, in dem die einzelnen Isotope identifiziert werden können. Das Verhältnis der Zählraten im Stöchiometriezähler kann dann auf die Zählraten in der Fokalebene übertragen werden. Diese normierten Energiespektren dienen nun als Basis für die Erstellung des Tiefen- und Stöchiometrieprofiles der Probe.

### 4.3 Das Tiefenprofil einer Probe

Um aus den Energiespektren der Konstituenten der Probe ein Tiefenprofil zu erhalten, gibt es zwei Möglichkeiten. Bei der ersten simuliert man die Spektren mit einer Anfangsverteilung, variiert dann die Parameter der Schichtdicken und -zusammensetzung und vergleicht die simulierten Spektren mit den gemessenen, bis eine zufriedenstellende Übereinstimmung gefunden wird. Hierbei sind Auflösungsfunktionen, in denen die in Kap. 4.4 diskutierten Effekte wie Energiebreite des Strahls, Energieverlust- und Kleinwinkelstreuung, Detektorauflösung, etc. mitberücksichtigt werden, mit den Modellprofilen gefaltet. In Abb. 4.4 sind die Ergebnisse einer solchen Simulation mit den in Abb. 4.1 angegebenen Schichtdicken und einem stöchiometrischen Verhältnis des Aluminiumoxids von  $Al_2O_3$  dargestellt. Als Modellverteilungen wurden Kastenprofile genommen und mit den oben erwähnten Auflösungsfunktionen gefaltet. Es sind schwarz die gemessenen, rot die simulierten Spektren aufgetragen. Dabei entsprechen die Profile jeweils ganz rechts den obersten Schichten. Es ist über die ganze Dicke der Probe eine sehr gute Übereinstimmung zu erkennen. Die Steigungen der Flanken lassen auf eine Obergrenze der Tiefenauflösung  $\Delta x$  schließen. An der Oberfläche (rech-

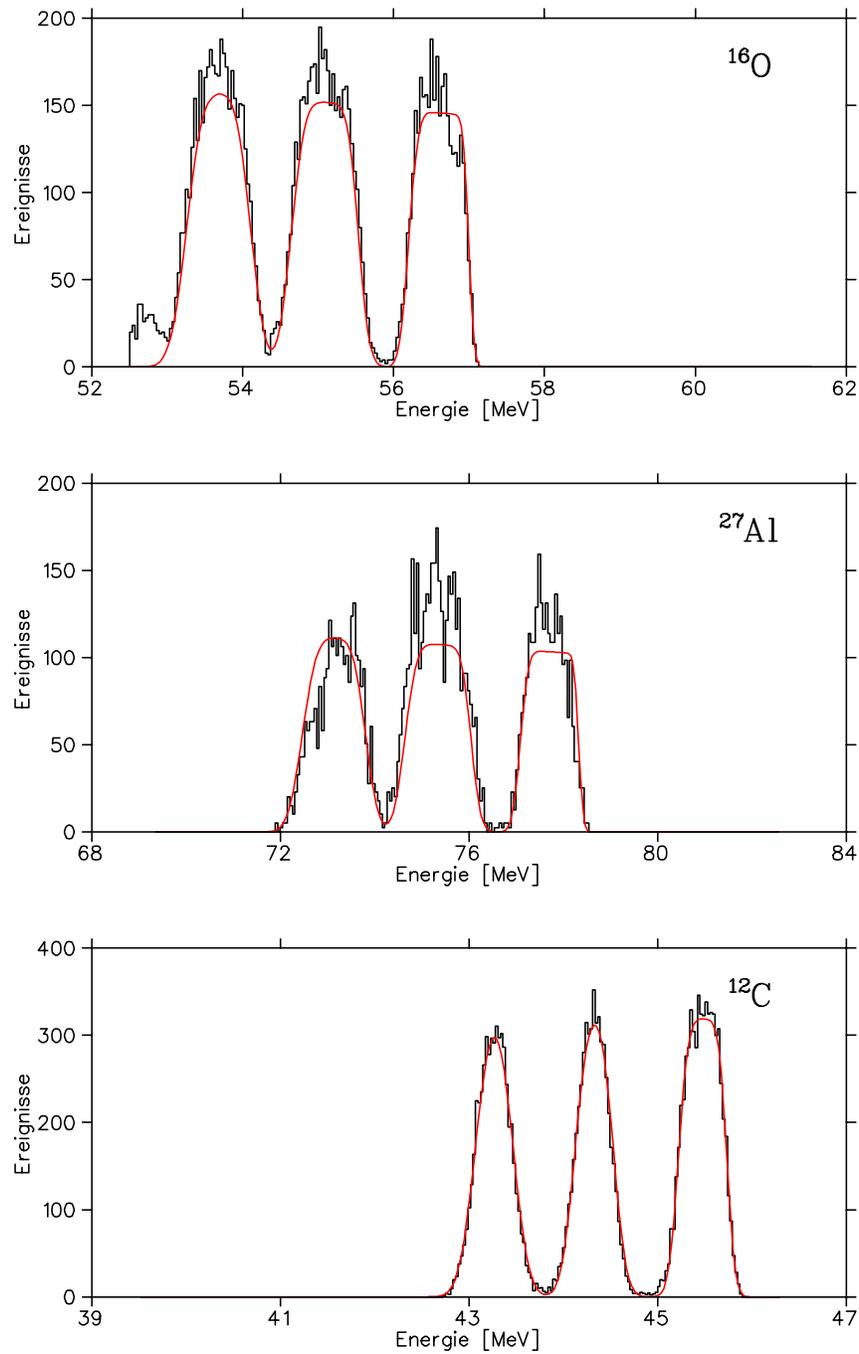


Abbildung 4.4: Spektren der  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{C}$ -Multischichtprobe (schwarz) und die Simulation (rot) mit dem Programm SIMNRA [May96].

te Kante im O-Spektrum) betrug sie bei dieser Messung  $\Delta x = 1,3$  nm. Eine Auflösung kleiner als 1 nm wäre alleine mit einem kleineren Einfallswinkel zu erreichen. Mit der Tiefe in der Probe nimmt die Breite der Flanken aufgrund von Energie- und Winkelstraggling kontinuierlich zu. Auch dieser Effekt wird durch das Programm zufriedenstellend beschrieben.

Bei der zweiten Methode wird das Tiefenprofil iterativ berechnet. Hierfür sei das Programm KONZERT [Ber93] der Münchner Q3D-Gruppe erwähnt. Dabei unterteilt man die komplette Schicht in dünne Scheibchen  $\Delta x_i$ . Für die erste Schicht  $\Delta x_0$  (Oberfläche) wird das Energieintervall der jeweiligen Ejektile berechnet und die Zählrate  $H_k$  aus den entsprechenden Energiespektren ausgelesen. In erster Näherung läßt sich die Zusammensetzung ( $n_i$ : stöchiometrischer Anteil des Elementes  $i$ ) in  $\Delta x_0$  folgendermaßen beschreiben:

$$n_1 : n_2 : \dots : n_k \sim \frac{H_1}{\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_1} : \frac{H_2}{\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_2} : \dots : \frac{H_k}{\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_k} \quad (4.1)$$

Für diese Komposition bestimmt man nun die Energieverluste von Projektil und Ejektile in der Schicht, korrigiert damit die Energieintervalle und erhält neue Zählraten, aus denen eine etwas andere Stöchiometrie resultiert. Diese Iteration konvergiert dann gegen die gemessene Zusammensetzung. Für  $\Delta x_1$  wird zunächst die

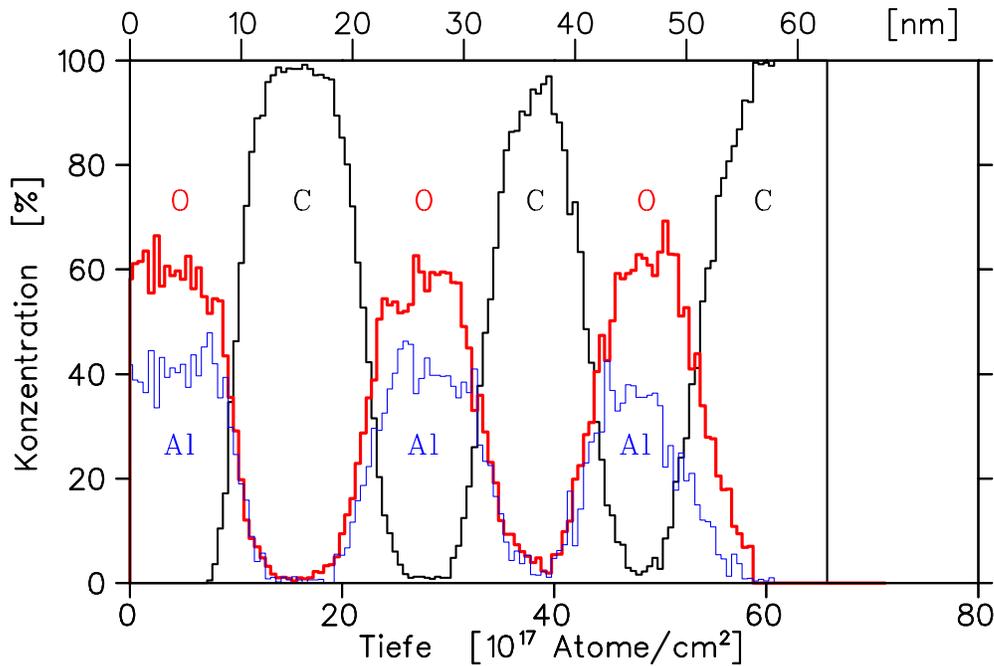


Abbildung 4.5: Iterativ berechnetes Tiefenprofil der  $Al_2O_3/C$ -Multischicht

gleiche Elementkomposition angenommen. Dann berechnet man unter Berücksichtigung der Energieverluste von Projektil und Ejektil in  $\Delta x_0$  und  $\Delta x_1$  wieder die entsprechenden Energieintervalle, liest die gemessenen Zählraten aus, erhält eine neue Zusammensetzung der Elemente usw. Das Ergebnis einer solchen Rechnung ist für die Vielfachsicht in Abb. 4.5 dargestellt. Es ist (bisher noch) keine Entfaltung der Spektren erfolgt. So ist auch der Überlapp der Schichten an den gemessenen Grenzen nicht als Vermischung der Elemente zu interpretieren, sondern auf die Tiefenauflösung zurückzuführen. Als Vorteil dieser Methode erweist sich die Tatsache, daß keine Modellprofile benötigt werden, man erhält direkt das gemessene Konzentrationsprofil, sei es auch noch so unstetig. Die Kombination aus beiden Methoden, Tiefenprofil und Schichtdicken aus KONZERD, die dann als Anfangswerte in SIMNRA verwendet werden, ermöglicht letztlich eine gute und schnelle Analyse.

## 4.4 Diskussion der Tiefenauflösung

Die Energie  $E_1$  eines in der Tiefe  $x$  herausgeschlagenen Probenatoms läßt sich aus der Rutherford-Streufelmeformel unter Berücksichtigung der Energieverluste von Projektil und Ejektil berechnen. Obwohl das Abbremsvermögen von der Geschwindigkeit der Ionen abhängt, sind die Energievariationen in den dünnen Schichten so gering, daß der spezifischen Energieverlust als konstant angenommen werden kann. Für O-Ionen, die von 2 MeV/Nukleon schnellen Kr-Projektilen unter einem Winkel von  $\Theta = 18^\circ$  gestreut werden (s. Abb. 4.6), beträgt  $E_1$ :

$$E_1 = k (E_0 - S_p l_1) - S_r l_2 \quad (4.2)$$

mit  $k = 4 \frac{M_p M_r}{(M_p + M_r)^2} \cos^2 \Theta$  : kinematischer Faktor, definiert den Energieübertrag auf das Ejektil  
 $l_1 = \frac{x}{\sin \alpha}$  : Weglänge des Projektils  
 $l_2 = \frac{x}{\sin \beta}$  : Weglänge des Ejektils  
 $S_{p/r}$  : Spez. Energieverlust von Projektil/Ejektil

Aufgrund von verschiedenen Effekten, die in folgenden diskutiert werden, streut die gemessene Energie um diesen theoretischen Wert. Anstatt einer scharfen Linie wird eine gaußförmige Verteilung um  $E_1$  mit der Halbwertsbreite  $\Delta E_1$  gemessen. Diese Energiebreite setzt sich aus mehreren Anteilen zusammen, die sich quadratisch überlagern:

$$\Delta E_1^2 = \sum_j \Delta E_j^2$$

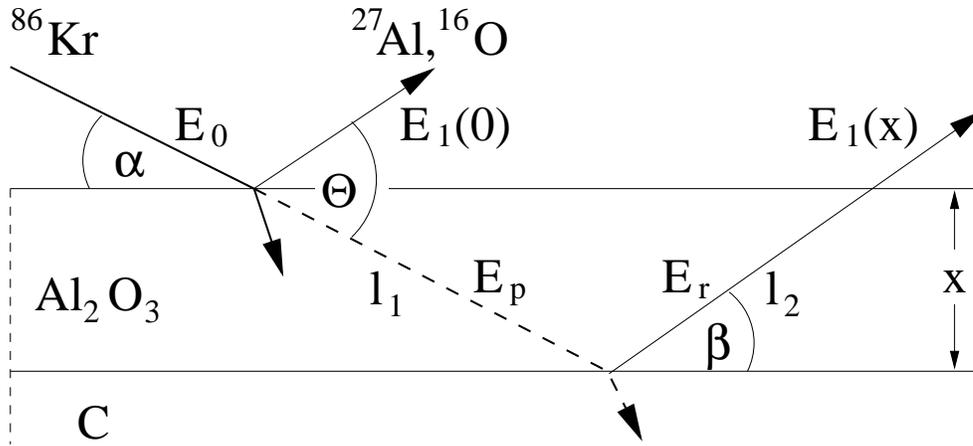


Abbildung 4.6: Variablenbenennung in diesem Kapitel

$E_0$ : Energie des Projektils vor der Probe,  $E_p$ : Energie des Projektils in der Tiefe  $x$ ,  $E_r$ : Energie des Ejektils in der Tiefe  $x$ ,  $E_1(x)$ : Energie des Ejektils außerhalb der Probe,  $\alpha$ : Einfallswinkel,  $\beta$ : Ausfallswinkel,  $\Theta = \alpha + \beta$ : Streuwinkel,  $l_1$ : Weglänge des Projektils,  $l_2$ : Weglänge des Ejektils.

#### 4.4.1 Beitrag des Strahls

Die Energie der Projektile wird durch Schlitze hinter dem letzten Dipolmagneten bestimmt. Dessen Dispersion beträgt  $D=3,3 \times 10^{-4}(\Delta E/E)/\text{mm}$ . Bei diesem Experiment wurden die Energieslitze auf 1,16 mm gefahren, was zu einer **Energiebreite des Strahls** von  $\Delta E_0/E_0 = 3,9 \times 10^{-4}$  führt.

Die Ableitung von Gl. 4.2 nach  $E_0$  ergibt:

$$dE_1 = k dE_0 \quad (4.3)$$

und somit als Beitrag zur Auflösung:

$$\frac{\Delta E_{E_0}}{E_1} \approx \frac{\Delta E_0}{E_0} = 3,9 \times 10^{-4} \quad (4.4)$$

Eine weitere Verbreiterung erzeugt die **Winkelbreite** des Strahls, die zu einer Variation des Einfallswinkels und somit auch des Streuwinkels führt. Sie wird durch Schlitze direkt hinter dem Zyklotron geregelt und betrug beim Experiment  $\Delta\alpha = 0,634 \text{ mrad}$ . Aus Gl. 4.2 erhalten wir für die Variation von  $\alpha$ :

$$\Delta E_\alpha = \pm k \left( S_p \frac{x}{\sin \alpha} \cot \alpha - 2(E_0 - S_p \frac{x}{\sin \alpha}) \tan \Theta \right) \Delta \alpha \quad (4.5)$$

und somit die Energieauflösung an der Oberfläche:

$$\frac{\Delta E_\alpha}{E_1} = \pm 2 \tan \Theta \Delta \alpha = 4,2 \times 10^{-4} \quad (4.6)$$

und in einer Tiefe von  $x = 10,5 \text{ nm}$ :

$$\frac{\Delta E_\alpha}{E_1} = \pm \left( \frac{S_p \frac{x}{\sin \alpha}}{E_0 - S_p \frac{x}{\sin \alpha}} \cot \alpha - 2 \tan \Theta \right) \Delta \alpha = 3,3 \times 10^{-4} \quad (4.7)$$

### 4.4.2 Beitrag der Probe

Die Tatsache, daß der elektronische Energieverlust ein statistischer Prozeß ist, impliziert alleine schon eine Energieverteilung. Für ihre Halbwertsbreite bei hohen Geschwindigkeiten gab Bohr [Boh48] folgende Abschätzung an:

$$\Delta E_{es} = \sqrt{8 \ln 2 \cdot 4\pi e^4 Z_p^2 Z_t \frac{x}{\sin \alpha}} \quad (4.8)$$

Streng genommen gilt diese Gleichung nur für sehr hohe Geschwindigkeiten, bei denen der Kern nackt ist, es werden also keine vom Projektilkern gebundenen Elektronen mitberücksichtigt. So ist diese Abschätzung lediglich als eine obere Grenze anzusehen. Es ist sowohl die **Energieverluststreuung** (energy straggling) des Projektils, die sich über den kinematischen Faktor  $k$  auf das Ejektil überträgt, als auch die des Rückstoßions zu berücksichtigen (obwohl die letztere gegenüber der ersteren vernachlässigbar klein ist):

$$\Delta E_{es} = \sqrt{8 \ln 2 \cdot 4\pi e^4 Z_t \left( k^2 Z_p^2 \frac{x}{\sin \alpha} + Z_r^2 \frac{x}{\sin \beta} \right)} \quad (4.9)$$

Bei der  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Schicht muß zwischen der Kernladung des Rückstoßteilchens  $Z_r$  und des Probenmaterials  $Z_t$ , die sich als Mittelung über die Kernladungen der Konstituenten errechnet ( $Z_t = (2Z_{\text{Al}} + 3Z_{\text{O}})/5$ ), unterschieden werden.

Für die erste Aluminiumoxidschicht ergibt das eine Halbwertsbreite der O-Energieverteilung von

$$\frac{\Delta E_{es}}{E_1} = 19,7 \times 10^{-4} \quad (4.10)$$

Einen weiteren Beitrag zur Energieauflösung liefert die **Kleinwinkelstreuung** (angular straggling). Der in Abb. 4.6 geradlinig gezeichnete Weg von Projektil und Ejektil ist eine Mittelung über die tatsächlichen Trajektorien, die durch kleine Richtungsänderungen aufgrund der Wechselwirkung mit den Probenatomen geprägt werden. Abb. 4.7 veranschaulicht etwas übertrieben diesen Effekt. Er setzt sich aus einem kinematischen und einem lateralen Anteil zusammen. Der kinematische beruht auf einer Winkelaufweitung, die zu einer Streuwinkelvariation führt, während der laterale Anteil seine Ursache in der Weglängendifferenz der Teilchen, und somit einem Energieverlustunterschied, findet. Da die laterale Aufspreizung nur aufgrund der Winkelaufweitung zustande kommt, sind diese zwei Effekte voneinander abhängig. Dennoch wird bei ihrer Beschreibung diese Tatsache vernachlässigt und die Energieverbreiterung als Summe zweier unabhängiger, quadratischer Terme betrachtet. Den Ausführungen von [Pas91] folgend resultiert für den Beitrag durch die Kleinwinkelstreuung:

$$\Delta E_{as} = \left\{ (-2E \tan \Theta \Delta \phi)^2 + (S(E) \Delta w \cot \alpha)^2 \right\}^{1/2} \quad (4.11)$$

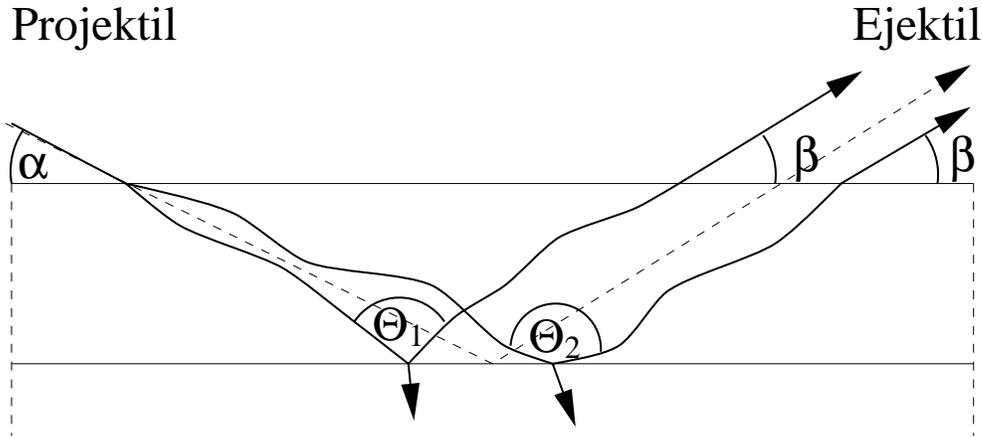


Abbildung 4.7: Auswirkung der Kleinwinkelstreuung auf die Energiemessung

$\Delta\phi$  und  $\Delta w$  sind die Halbwertsbreiten der Winkel- und der lateralen Aufspreizung der Projektiltrajektorien.

Die Winkelaufweitung von Projektilen in einer Tiefe  $x$  eines Materials mit der atomaren Dichte  $N_t$  wird von Winterbon [Sig74] beschrieben durch:

$$\Delta\phi = \frac{4Z_p Z_t e^2}{(E_0 + E_1)a (\pi a^2 N_t l)^{0.62}} \quad (4.12)$$

$E_0$  und  $E_1$  stehen für die Energie der Projektile an der Oberfläche und in der Tiefe  $x$ ,  $a$  ist der Thomas-Fermi-Abschirmradius aus Gl. 2.9 und  $l$  bezeichnet die Weglänge in der Probe.

Eine Abschätzung für die laterale Aufspreizung gibt Sigmund [Mar75] an:

$$\Delta w = \frac{\Delta\phi l}{\Lambda} \quad (4.13)$$

mit dem Skalierungsfaktor  $\Lambda=1,8$  für dickere Schichten.

In der ersten Aluminiumoxidschicht ergibt das für die Winkelaufspreizung:

$$\Delta\phi(Kr) = 2,09 \text{ mrad} \quad \text{und} \quad \Delta\phi(O) = 0,7 \text{ mrad}$$

und somit für die Halbwertsbreiten der Beiträge von Kr und O:

$$\frac{\Delta E_{as}(Kr)}{E_1} = 10,5 \times 10^{-4} \quad (4.14)$$

$$\frac{\Delta E_{as}(O)}{E_1} = 4,5 \times 10^{-4} \quad (4.15)$$

Als drittes trägt die **Homogenität** der Probe zur Energieauflösung bei. Obwohl der Strahl nur einen Durchmesser von 1,6 mm hatte, erzeugte er auf der Probe durch den flachen Einfallswinkel einen Strahlfleck von über 15 mm Länge. Oberflächenrauigkeiten und Schichtdickeninhomogenitäten in diesem Bereich führen dann folglich zu Fehlern bei der Tiefenbestimmung. Nach Angaben der Probenhersteller kommt es zu Dickenvariationen von 5 – 10 %. Die Beiträge zur Energieauflösung wurden mit einer Inhomogenität von 7,5 % berechnet.

$$\Delta E_{dx} = k \left( S_p \frac{dx}{\sin \alpha} \right) + S_r \frac{dx}{\sin \beta} \quad (4.16)$$

Dies ergibt an der Oberfläche:

$$\frac{\Delta E_{dx}}{E_1} = 11,6 \times 10^{-4} \quad (4.17)$$

und in 10,5 nm Tiefe:

$$\frac{\Delta E_{dx}}{E_1} = 12,45 \times 10^{-4} \quad (4.18)$$

Zuletzt muß noch ein Effekt diskutiert werden, dessen quantitative Bestimmung leider einem Ausfall des Zyklotrons zum Opfer fiel. Es handelt sich hierbei um die **Ladungszustandsabhängigkeit** der Ejektile. Findet die Streuung in großer Tiefe statt, so ist es egal, mit welcher Ladung die Ionen starten, sie werden sich umladen, eine Gleichgewichtsverteilung annehmen, so daß der Anteil des detektierten Ladungszustandes von der Schichttiefe unabhängig wird. Anders verhält es sich jedoch bei aus der Oberfläche oder kleiner Schichttiefe gestreuten Ejektile. Ihnen fehlt der Bereich zum Umladen, ihre Ladungsverteilung unterscheidet sich von der Gleichgewichtsverteilung. Dies führt zu einer fehlerhaften Normierung der Zählrate aus der oberflächennahen Schicht. Dollinger [Dol98a] untersuchte die Ausbeute von C-Rückstoßionen beim Beschuß einer Graphitschicht mit 1 MeV/Nukleon schnellen Ni-Ionen. Er fand für die Ladungszustände  $4^+$  und  $5^+$  hohe Zählraten an von der Oberfläche kommenden Ionen, die dann mit der Tiefe exponentiell auf einen Gleichgewichtswert abfielen, während die Ausbeute an Ionen mit der Ladung  $6^+$  nahe der Oberfläche stark anstieg. Da die Ejektile in dem hier beschriebenen Experiment noch schneller waren, ist anzunehmen, daß sich dieser Effekt sogar noch stärker bemerkbar machen müßte. Eine quantitative Analyse wird aber erst in einer der folgenden Strahlzeiten erfolgen.

### 4.4.3 Beitrag durch die Geometrie

Die Energie der Rückstoßteilchen hängt vom Streuwinkel ( $E_r \sim \cos^2 \Theta$ ), bei festem Einfallswinkel  $\alpha$  vom Austrittswinkel  $\beta$  ab (mit  $\alpha + \beta = \Theta$ ). Eine Variation  $\Delta\beta$  von  $\beta$  führt zu einer Verbreiterung der Ejektilenergie:

$$\Delta E_\beta = \pm \left( 2k \left( E_0 - S_p \frac{x}{\sin \alpha} \right) \tan \Theta \right) \Delta\beta \quad (4.19)$$

(Variable wie in Gl. 4.2 und Abb. 4.6)

Bei einer **Winkelöffnung** von  $\Delta\beta = 3^\circ$ , wie in dem Experiment eingestellt, ergäbe das eine Energieauflösung von 3,4 % in den Q3D-Spektren, einen unakzeptablen Wert. Dieses Problem wird mit Hilfe von Multipolelementen ionenoptisch gelöst. Man betrachte hierfür die Energie des Rückstoßatoms an der Oberfläche:

$$E_1 = kE_0 = 4 \frac{M_p M_t}{(M_p + M_t)^2} E_p \cos^2 \Theta \quad (4.20)$$

Die Entwicklung dieser Gleichung um den mittleren Streuwinkel  $\Theta$  ergibt für die Winkelabhängigkeit des Energieübertrags den Ausdruck:

$$\frac{\Delta E_1}{E_1} = -2 \tan \Theta \Delta\Theta + (\tan^2 \Theta - 1) \Delta\Theta^2 + \frac{4}{3} \tan \Theta \Delta\Theta^3 + \dots \quad (4.21)$$

Abb. 4.8, links, stellt die Streuwinkelabhängigkeit der Rückstoßenergie für unseren Fall der Streuung von Kr an O unter  $\Theta = 18^\circ$  für eine extrem dünne Schicht und eine Öffnung der Winkelschlitze von  $17^\circ - 20^\circ$  dar. Die Krümmung der Linie ist dabei aus didaktischen Gründen etwas übertrieben. Die eingezeichnete Tangente entspricht dem linearen Term der Entwicklung. Diese Winkelabhängigkeit kann, insofern der Winkel genau genug gemessen wird, rechnerisch im nachhinein korrigiert werden. Besser geht es mit Hilfe der Ionenoptik, indem man einen Quadrupol, M II in Abb. 3.3, benutzt. Dieser Quadrupol besitzt die Eigenschaft, daß er in horizontaler Richtung fokussiert. Die defokussierende Wirkung in vertikaler Richtung wird dadurch vermieden, daß der Quadrupol M I am Ort von M II einen Fokus in Y-Richtung erzeugt, d.h. der Strahl hat nur eine minimale vertikale Ausdehnung. Rückstoßteilchen, die unter einem Winkel, für den der Spektrograph eingestellt ist, gestreut werden, durchqueren den Quadrupol zentral (mittlere durchgezogene Linie in Abb. 3.3), werden also von M II nicht beeinflusst. Ejektile, die unter einem anderen Winkel gestreut wurden, verlaufen auf Trajektorien mit anderen Ablenkradien (äußere, durchgezogene Linien in Abb. 3.3). Ohne den Quadrupol würden sie aufgrund ihrer verschiedenen Energien rechts und links von der Zentraltrajektorie die Fokalebene kreuzen. Sie passieren M II aber in einem Bereich, in dem er in horizontaler Richtung fokussierend wirkt und werden etwas zum Zentrum hin verschoben. Die Wirkung dieses Versatzes ist in Abb. 4.8 in der Mitte dargestellt. Der lineare Term der Winkelabhängigkeit

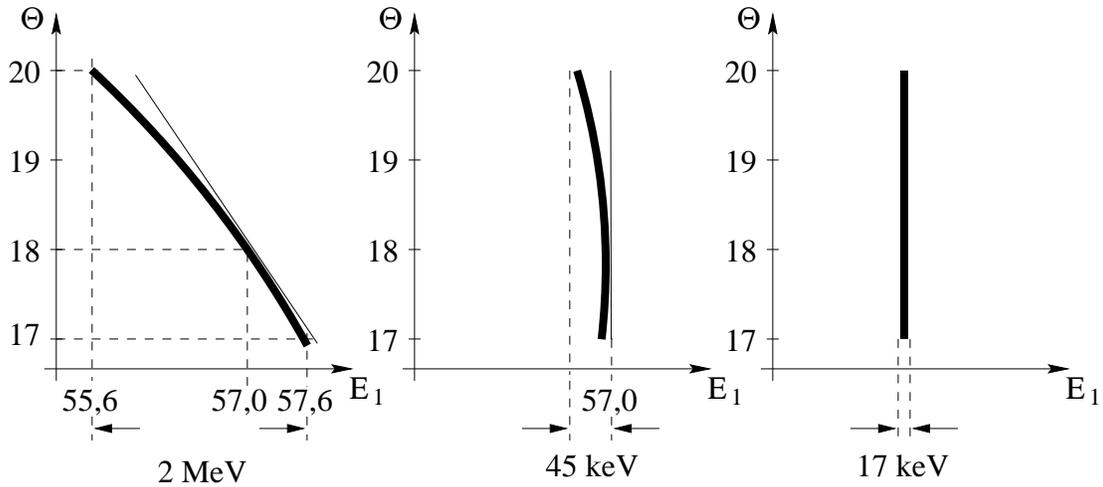


Abbildung 4.8: Korrektur der Streuwinkelabhängigkeit von  $E_r$ .

Links: Kinematik der Reaktion  $^{16}\text{O}(^{86}\text{Kr}, ^{16}\text{O})^{86}\text{Kr}$  bei einem Streuwinkel von  $\Theta = 18^\circ$  und einer Einschußenergie von  $E_0 = 120 \text{ MeV}$ .

Mitte: Korrektur 1. Ordnung durch den Quadrupol M II (s. Abb. 3.3).

Rechts: Korrektur höherer Ordnung durch Multipolelemente oder rechnerisch.

ist eliminiert, anstelle der Energiebreite von  $\Delta E_{\Delta\Theta} = 2 \text{ MeV}$  ist nur noch eine Breite von  $\Delta E_{\Delta\Theta} = 45 \text{ keV}$  zu sehen, was dem zweiten Term in Gl. 4.21 entspricht. Auch dieser kann mit Hilfe der Multipole MI – MIII oder aber off-line bei der Analyse rechnerisch korrigiert werden, so daß schließlich nur noch ein vernachlässigbar kleiner Anteil ( $\Delta E_1/E_1 \approx 2 \times 10^{-5}$ ) übrigbleibt (Abb. 4.8 rechts, die Breite entspricht der intrinsischen Auflösung des Detektors). Die kinematische Korrektur bewirkt also, daß alle Teilchen eines Isotops, die aus der gleichen Tiefe kommen, egal unter welchem Streuwinkel sie herausgeschlagen wurden, mit der gleichen Position in der Fokalebene gemessen werden. Und da bei der elastischen Rückstreuung diese Winkelabhängigkeit nicht die Ladung oder Masse des Ejektils beinhaltet, werden **alle Elemente richtig korrigiert**.

Ein Beitrag von der Winkelakzeptanz bleibt jedoch erhalten. Die Korrektur erfolgt richtig für eine horizontale Winkelvariation. Der Raumwinkel wird aber auch durch eine Öffnung in vertikaler Richtung definiert. Diese betrug bei dem Experiment  $\Delta\phi = \pm 1,5^\circ$ . Der effektive Streuwinkel errechnet sich nun aus diesen zwei Winkeln:

$$\cos \Theta_{eff} = \cos \phi \cos \Theta \quad (4.22)$$

Die Winkelabweichung  $\Delta\Theta = \Theta_{eff} - \Theta$  aufgrund der vertikalen Öffnung hat einer Verbreiterung der gemessenen Energie der Rückstoßteilchen zur Folge:

$$\begin{aligned} \frac{\Delta E_\Theta}{E_1} &= \left( -2 \tan \Theta + \frac{S_r \frac{x}{\sin \beta}}{k (E_0 - S_p \frac{x}{\sin \alpha})} \right) \Delta\Theta \\ &= 6,8 \times 10^{-4} \end{aligned} \quad (4.23)$$

Der letzte Beitrag zur Energieverbreiterung durch die Geometrie betrifft die **Ausdehnung des Strahlflecks**. Aus der Sicht des Spektrographen hat er eine Breite  $b'$  von

$$b' = \frac{\sin \beta}{\sin \alpha} b$$

Die Ionenoptik projiziert dieses Bild mit einem Maßstab von  $M = 1:0,94$  in die Fokalebene. Mit der bekannten Dispersion  $D$  des Q3D läßt sich diese Objektbreite  $b = 1,6$  mm in eine Energiebreite umrechnen:

$$\begin{aligned} \frac{\Delta E_b}{E_1} &= 2 \frac{M}{D} \frac{\sin \beta}{\sin \alpha} b \\ &= 6,4 \times 10^{-4} \end{aligned} \quad (4.24)$$

#### 4.4.4 Beitrag des Detektorsystems

Der Q3D-Spektrograph, wie jedes andere abbildende Gerät, projiziert das Objekt mit **ionenoptischen Abbildungsfehlern**. Es wurde versucht, diese Fehler zu minimieren, z.B. durch die Begrenzung der Winkelakzeptanz, um die Randfelder der Magnete, in denen die größten optischen Fehler auftreten, nicht auszuleuchten. Dennoch bleibt immer noch ein Beitrag. Frühere Untersuchungen ergaben dafür einen Wert von:

$$\frac{\Delta E_{io}}{E_1} = 1,33 \times 10^{-4} \quad (4.25)$$

Letztendlich trägt noch die **intrinsische Ortsauflösung** des Fokalebenen-detektors zur Energiebreite bei. Wie schon in Kap. 3.4 beschrieben, wurde sie mit Hilfe einer Blende direkt von dem Eintrittsfenster zum Detektor bestimmt und ergab:

$$\frac{\Delta E_{det}}{E_r} = 3 \times 10^{-4} \quad (4.26)$$

### 4.4.5 Die Tiefenauflösung

Die verschiedenen Beiträge (s. Tab. 4.2) zur Energieverbreiterung werden nun quadratisch aufsummiert. Das Ergebnis für die totale Energieauflösung lautet:

$$\frac{\Delta E_T}{E_1} = 16,3 \times 10^{-4} \quad \text{an der Oberfläche} \quad (4.27)$$

$$\frac{\Delta E_T}{E_1} = 28,2 \times 10^{-4} \quad \text{in einer Tiefe von 10,5 nm} \quad (4.28)$$

Die Tiefenauflösung  $\Delta X(x)$  ist direkt mit der energetischen Breite  $\Delta E_T(x)$  der Energieverteilung der Rückstoßionen verknüpft:

$$\Delta X(x) = \frac{\Delta E_T}{S_{eff}} \quad (4.29)$$

mit einem effektiven spezifischen Energieverlust  $S_{eff}$ , der die Abbremsung von Projektil  $S_p$  und Ejektil  $S_r$  pro nm angibt:

$$S_{eff} = k \frac{S_p}{\sin \alpha} + \frac{S_r}{\sin \beta} \quad (4.30)$$

Für das beschriebene Beispiel der ERDA-Untersuchung einer Aluminiumoxid-schicht ergibt das eine theoretische Tiefenauflösung von 1,5 nm an der Oberfläche und 2,5 nm in einer Tiefe von 10,5 nm. In Abb. 4.9 sind die von der Tiefe abhängigen Beiträge für eine  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Schicht dargestellt.

Diese Werte können mit den gemessenen Spektren verglichen werden. Durch Anpassen von Gaußkurven an die Flanken der ersten O-Schicht in Abb. 4.4 erhält man die experimentelle Halbwertsbreite. Sie betrug in diesem Fall 1,3 nm an der Oberfläche und 2,7 nm am Schichtende. Trotz der vielen Näherungen und Abschätzungen ist die Übereinstimmung erstaunlich gut. Da nun die Frage, wie sich die Tiefen- bzw. Energieauflösung zusammensetzt, geklärt ist, kann man sich Gedanken zur Optimierung der dazu beitragenden Parameter machen.

### 4.4.6 Optimierung der Tiefenauflösung

Die theoretischen Berechnungen der Tiefenauflösung wurden mit dem Programm DEPTH [Szi94] gemacht, das nach den oben beschriebenen Methoden die Energieauflösung in Abhängigkeit der Tiefe für folgende Effekte berücksichtigt: Winkel- und Energiebreite des Strahls, Energiestraggling, Kleinwinkelstreuung, geometrische Fehler (für uns = 0, da die kinematische Korrektur im Programm nicht mitberücksichtigt werden kann) und die Energieauflösung des Detektorsystems. Es stellte sich dabei heraus, daß die effektivste Methode, die Tiefenauflösung nahe der Oberfläche zu verbessern, die **Maximierung von  $S_{eff}$**  ist. Hierzu liefert der Term des Projektils den weitaus größeren Beitrag. Das führt zu der Forderung nach **schweren Projektilen**, Einschußenergien, bei denen der **spezifische**

rel. Fehler $\Delta E_{...}/E_1$	Oberfläche ( $\times 10^{-4}$ )	$x = 10,5$ nm ( $\times 10^{-4}$ )	Quelle des Fehlers
$\Delta E_{E_0}$	3,9	3,9	Energiebreite des Strahls
$\Delta E_{\alpha}$	4,2	3,3	Winkelbreite des Strahls
$\Delta E_{es}$		19,7	Energiestraggling
$\Delta E_{as}(Kr)$		10,5	Kleinwinkelstreuung von Kr
$\Delta E_{as}(O)$		4,5	Kleinwinkelstreuung von O
$\Delta E_{dx}$	11,6	12,5	Inhomogenität der Probe
$\Delta E_{\Theta}$	6,8	6,8	Winkelakzeptanz in $\phi$
$\Delta E_b$	6,4	6,4	Ausdehnung des Strahlflecks
$\Delta E_{io}$	1,33	1,33	Ionenoptik des Spektrographen
$\Delta E_{det}$	3,0	3,0	intrinsische Ortsauflösung des FED
<b><math>\Delta E_T</math></b>	<b>16,3</b>	<b>28,3</b>	<b>Totale Energieauflösung</b>

<b><math>\Delta X_{theo}</math></b>	<b>1,5</b>	<b>2,5</b>	<b>theor. Tiefenauflösung in nm</b>
<b><math>\Delta X_{exp}</math></b>	<b>1,3</b>	<b>2,7</b>	<b>exp. Tiefenauflösung in nm</b>

Tabelle 4.2: Einzelbeiträge zur Energieauflösung von O-Ionen aus der ersten Schicht der  $Al_2O_3/C$ -Vielfachschicht.

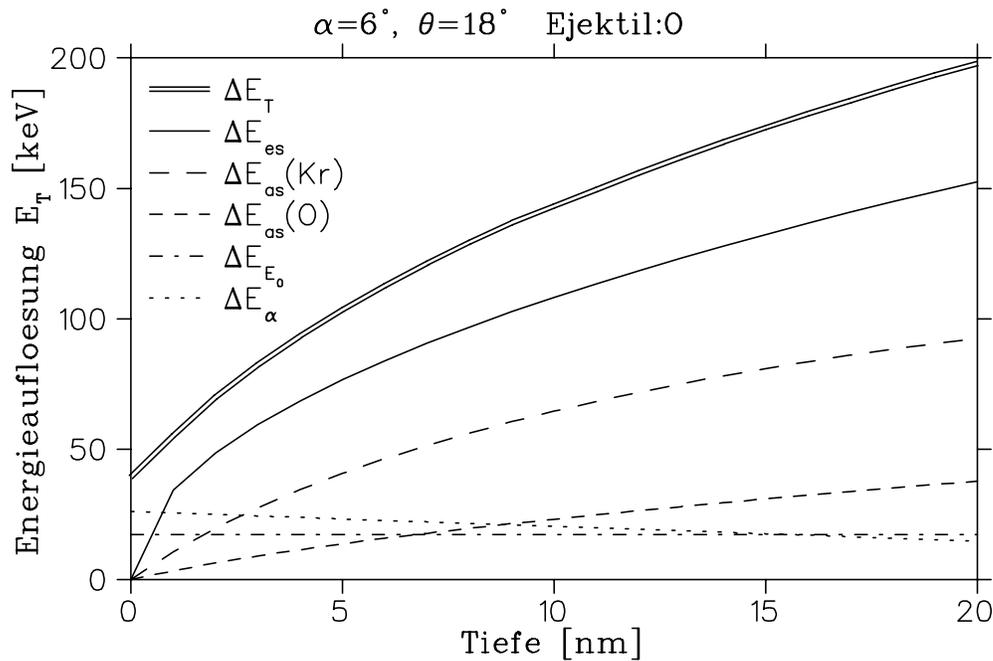


Abbildung 4.9: Beiträge der tiefenabhängigen Komponenten der Energieauflösung als Funktion der Tiefe in einer  $Al_2O_3$ -Schicht.

**Energieverlust am größten** ist ( $1 - 3$  MeV/Nukleon), und **kleinen Einfallswinkeln**, um die Weglänge des Projektils pro nm Tiefe möglichst groß zu machen. Da das Ejektil nur wenig zur Auflösung beiträgt, ist bei der Suche nach dem optimalen Ausfallswinkel  $\beta$  der Fehler durch die Strahlfleckausdehnung  $\Delta E_b \sim \sin \beta$  dominierend. Seine Minimierung erfordert kleine Werte,  $\beta \leq \alpha$ , was implizit auch die Forderung nach **kleinen Streuwinkeln**  $\Theta$  beinhaltet. Damit werden gleichzeitig alle Fehler, die durch eine  $\Theta$ -Variation zustandekommen, so auch der durch die Kleinwinkelstreuung, klein gehalten, da in erster Ordnung  $\Delta E_r \sim \tan \Theta \Delta \Theta$  gilt (s. Gl. 4.21).

Abb. 4.10 zeigt die Tiefenauflösung als Funktion der Tiefe für ein optimiertes Sy-

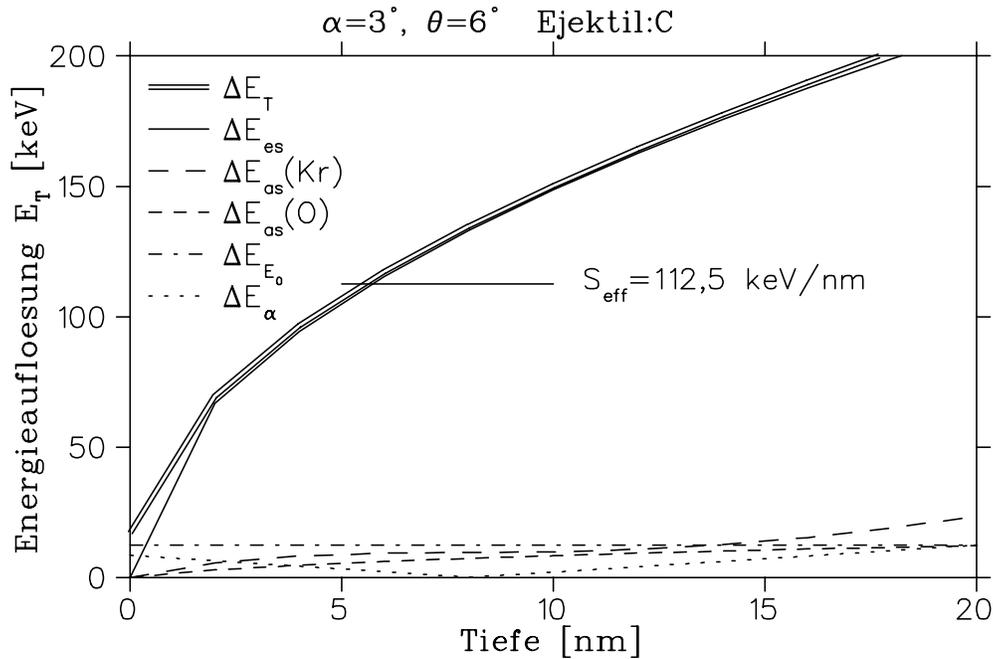


Abbildung 4.10: Beiträge zu einer optimierten, oberflächennahen Tiefenauflösung für die folgenden Rahmenbedingungen. Projektil: Xe, Einschussenergie  $E_0=250$  ( $\pm 0,05$ ) MeV, Einfallswinkel  $\alpha=3^\circ$  ( $\pm 0,03^\circ$ ), Streuwinkel  $\Theta=6^\circ$  ( $\pm 0^\circ$ ), Probe: Graphit

stem. Es handelt sich dabei um Xe-Ionen mit 250 MeV in einer Graphitschicht. Es wurde eine glatte Oberfläche angenommen und die Fehler der Strahlfleckausdehnung  $\Delta E_b$  und des effektiven Streuwinkels bei der kinematischen Korrektur  $\Delta E_\Theta$  nicht mitberücksichtigt. Bei dieser Geometrie,  $\alpha = \beta = 3^\circ$ , sind ab einer Tiefe von ca. 1,5 nm alle Fehler bis auf den des Energiestraggings vernachlässigbar. Die Forderung, den effektiven Energieverlust  $S_{eff}$  durch große Weglängen des Projektils pro nm Tiefe zu maximieren, führt zu dieser *Dominanz des Energiestraggings*. Zwar könnte man diesen Beitrag durch leichtere Projektile verringern, jedoch

überwiegt die Tiefenauflösung betreffend der größere spezifische Energieverlust der schweren Ionen. An der Oberfläche ist demnach eine Tiefenauflösung von 0,2 nm erreichbar, was unter dem Netzebenenabstand der einzelnen Graphitschichten liegt. Es müßte demnach möglich sein, einzelne Monolagen aufzulösen, was Dollinger kürzlich [Dol98b] demonstriert hat. Als waagrechte Linie ist der effektive Energieverlust  $S_{eff} = 112,5$  keV/nm des Systems Xe-C eingezeichnet. Dessen Schnittpunkt mit der Kurve der totalen Energieauflösung  $\Delta E_T$  kennzeichnet die Tiefe, bis zu der die Auflösung kleiner als 1 nm ist.

## 4.5 Grenzen der Isotopentrennung

Bei der Konzipierung des Fokalebeneendetektors galten andere Spezifikationen als sie für ERDA-Messungen relevant sind. Er wurde für Energien von 10 – 30 MeV/Nukleon gebaut und sollte in einem Massenbereich von  $A = 4 - 30$  eine gute Massentrennung, Orts- und Winkelauflösung aufweisen sowie hohe Zählraten verarbeiten. Dafür war der Szintillatorstab eine sehr gute Lösung. Er hat allerdings für ERDA-Anforderungen einen Nachteil. Mit steigender Masse der Ejektile wird die Trennung benachbarter Isotope immer schlechter, die Abweichung von der Linearität zwischen Ladungszahl  $Z$  des Projektils und der Lichtausbeute nimmt zu. Die Ursache dieses Effektes liegt im sogenannten 'quenching'. Wenn ein leichtes Ion in den Szintillator eindringt, so werden Elektronen durch das Projektilpotential angeregt und emittieren beim Zerfall Licht. Die Anzahl der Anregungsprozesse ist dabei proportional zur Kernladungszahl. Mit steigendem  $Z$  tritt aber eine Abweichung von dieser Linearität ein, der Prozeß gerät in eine Sättigung, d.h. es werden nahezu alle Nachbarschaftselektronen angeregt. Trotz größer werdendem  $Z$  steigt die Lichtausbeute in diesem Bereich immer langsamer an, die Signalhöhen benachbarter Elemente unterscheiden sich immer weniger und sind nicht mehr zu trennen. In Abb. 4.11 links sind die E- (X-Achse) und  $\Delta E$ -Signale (Y-Achse) für eine dicke Probe bestehend aus  $^{59}\text{Co}$ ,  $^{56}\text{Fe}$ ,  $^{28}\text{Si}$  und  $^{27}\text{Al}$  simuliert. Der Effekt ist deutlich zu erkennen: während die Al- und Si-Ionen sichtlich verschieden große Szintillatorwerte liefern, unterscheiden sich die Fe- und Co-Signale kaum und überlappen. Das Quenching-Problem begrenzt die Anwendbarkeit des Szintillators zur Isotopentrennung auf einen Massenbereich bis etwa Schwefel. Durch Verwendung einer Ionisationskammer kann diese Grenze etwas nach oben verschoben werden, jedoch verliert man dabei die gute Zeit- und damit auch die gute Winkelauflösung. Halbleiterdetektoren mit einer Länge von 1 m sind nur mit großem Aufwand zu bauen.

Die Isotopentrennung über die Flugzeit macht mit zunehmender Masse der Ejektile ebenfalls Probleme. Im allgemeinen haben schwerere Elemente mehrere stabile Isotope, die dann alle in der Probe vorhanden sind. Ist die Probe dick, so gelangen zudem auch die tieferen Ladungszustände in die Fokalebene, wenn das Ion eine Energie von  $\Delta E = 2E\Delta q/q$  verloren hat. Wie schon erwähnt, wird die Flugzeit

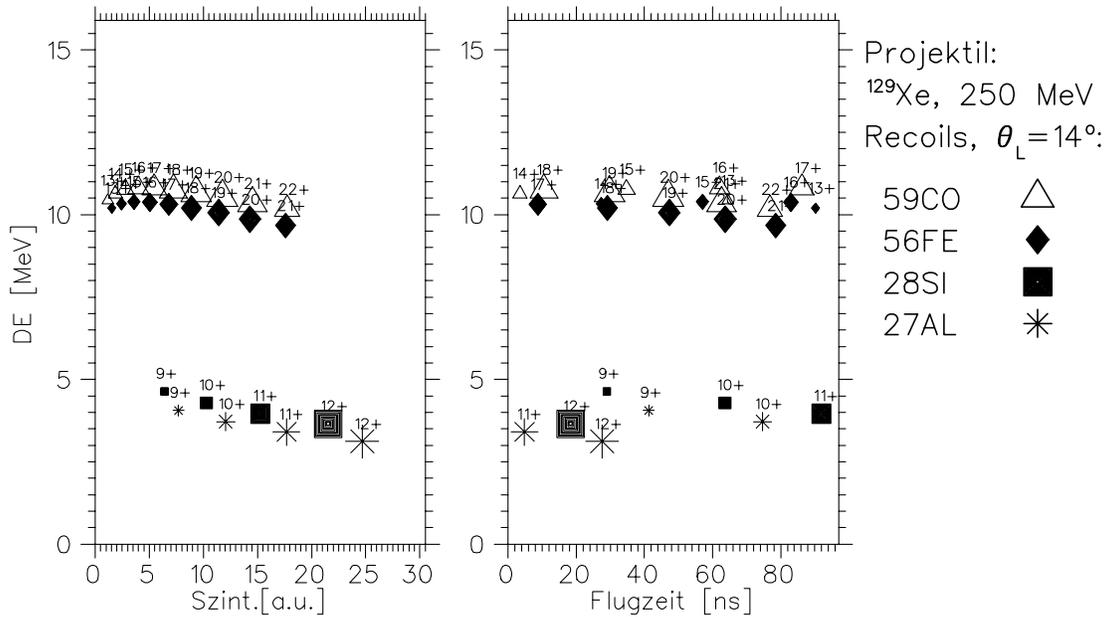


Abbildung 4.11: *Simulation der Detektorsignale für eine mit 250 MeV Xe-Ionen beschossene dicke Probe aus Fe, CO, Si und Al. Die Größe der Symbole ist proportional zur Häufigkeit des Ladungszustandes.*

invers gemessen, das Szintillatorsignal startet und der Nulldurchgang der Zyklotronfrequenz stoppt die Zeitmessung. Die Frequenz liegt im Bereich 10 – 20 MHz, was zu Zeitintervallen von ca. 50 – 100 ns führt. Ionen gleicher Masse, aber verschiedenen Ladungszustandes und Energie (weil aus anderer Tiefe herausgeschlagen), können sich in ihrer Flugzeit durch den Magnetspektrographen durchaus um mehr als das Zyklotronintervall unterscheiden. Das führt bei schweren Elementen und dicken Proben zu einer Mehrdeutigkeit in der Messung. Ionen, deren Flugzeit sich um ein Vielfaches der Zeitdifferenz zwischen zwei Nulldurchgängen der Zyklotronfrequenz unterscheiden, können dann unter Umständen das gleiche Zeitsignal haben. In Abb. 4.11 rechts ist die Flugzeit (X-Achse) gegen das Energieverlustsignal (Y-Achse) aus der Vieldrahtkammer aufgetragen. Dabei wurde eine Zyklotronfrequenz von 10 MHz angenommen, das entspricht einer Zeitdifferenz von 100 ns zwischen zwei Nulldurchgängen. Die Flugzeiten der Co-Ionen beträgt bei dieser Magnetfeldeinstellung für den Ladungszustand  $21^+$  326 ns, für  $16^+$  schon 423 ns und für  $13^+$  sogar 518 ns. Dazu kommt noch Fe  $20^+$  mit 325 ns. Diese vier Zustände erscheinen auf der Flugzeitachse auf nahezu gleicher Höhe und sind nicht zu trennen, da die Zeitmessung modulo des Pulsabstandes der Zyklotronfrequenz erfolgt, was in den vier Fällen zu Zeiten von 26 ns, 23 ns, 18 ns und 25 ns führt. Im Fall von Si und Al dagegen sind alle Ladungszustände separiert.