

Wechselwirkung langsamer hochgeladener Ionen mit der Oberfläche von Ionenkristallen

René Heller

August 2009

Wissenschaftlich-Technische Berichte
FZD-5202009 · ISSN 1437-322X

WISSENSCHAFTLICH-TECHNISCHE BERICHTE



Forschungszentrum
Dresden Rossendorf

Wissenschaftlich-Technische Berichte
FZD-520
August 2009

René Heller

**Wechselwirkung langsamer hochgeladener
Ionen mit der Oberfläche von Ionenkristallen**

Wissenschaftlich-Technische Berichte
FZD-520
August 2009

René Heller

**Wechselwirkung langsamer hochgeladener
Ionen mit der Oberfläche von Ionenkristallen**

Wechselwirkung langsamer hochgeladener Ionen mit der Oberfläche von Ionenkristallen

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

vorgelegt von

René Heller
geboren am 02. März 1981 in Bautzen

Fakultät Mathematik und Naturwissenschaften
der Technischen Universität Dresden

2009

1. Gutachter: Prof. Dr. W. Möller

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

3. Gutachter: Prof. Dr. F. Aumayr

Datum des Einreichens der Arbeit: **12. Februar 2009**

Datum der öffentlichen Verteidigung: **30. Juni 2009**

Kurzfassung

In dieser Arbeit wird die Erzeugung permanenter Nanostrukturen durch den Beschuss mit langsamen ($v \leq 5 \cdot 10^5$ m/s) hochgeladenen ($q \leq 40$) Ionen auf den Oberflächen der Ionenkristalle CaF_2 sowie KBr untersucht. Die systematische Analyse der Probenoberfläche mittels Rasterkraft-Mikroskopie liefert detaillierte Informationen über den Einfluss von potentieller und kinetischer Projektilenergie auf den Prozess der Strukturierung.

Der individuelle Einfall hochgeladener Ionen auf der $\text{KBr}(001)$ -Oberfläche kann die Erzeugung monoatomar tiefer, lochartiger Strukturen -Nanopits- mit einer lateralen Ausdehnung von wenigen 10 nm initiieren. Das Volumen dieser Löcher und damit die Anzahl gesputterter Sekundärteilchen zeigt eine lineare Abhängigkeit von der potentiellen Energie der Projektile. Für das Einsetzen der Locherzeugung konnte ein von der Projektilgeschwindigkeit abhängiger Grenzwert der potentiellen Energie $E_{\text{pot}}^{\text{grenz}}(E_{\text{kin}})$ gefunden werden. Auf der Basis der defekt-induzierten Desorption durch Elektronen wurde unter Einbeziehung von Effekten der Defektagglomeration ein konsistentes mikroskopisches Modell für den Prozess der Locherzeugung konzipiert.

Für die $\text{CaF}_2(111)$ -Oberfläche kann die aus jüngsten Studien bekannte, individuelle Erzeugung hügelartiger Nanostrukturen -Nanohillocks- durch hochgeladene Ionen in dieser Arbeit auch für kleinste kinetische Energien ($E_{\text{kin}} \leq 150 \text{ eV} \times q$) verifiziert werden. Die potentielle Energie der einfallenden Ionen wird damit erstmalig zweifelsfrei als alleinige Ursache der Nanostrukturierung identifiziert. Zudem zeigt sich bei geringer Projektilgeschwindigkeit eine Verschiebung der potentiellen Grenzeenergie zur Hillock-Erzeugung. Im Rahmen einer Kooperation an der Technischen Universität Wien durchgeführte Simulationsrechnungen auf der Grundlage des inelastischen *thermal spike*-Modells zeigen, dass die individuelle Hillock-Erzeugung durch hochgeladene Ionen mit einer lokalen Schmelze des Ionenkristalls verknüpft werden kann.

Dem essentiellen Einfluss der Elektronenemission während der Wechselwirkung des hochgeladenen Ions mit der Oberfläche auf den Prozess der Nanostrukturierung wird in komplementären Untersuchungen zur Sekundärelektronenstatistik Rechnung getragen. Erstmals werden dabei Gesamtelektronenausbeuten für Isolatoroberflächen bei kleinsten Projektilgeschwindigkeiten ($v \leq 1 \cdot 10^5$ m/s) bestimmt. Für Geschwindigkeiten $v \leq 5 \cdot 10^4$ m/s findet sich für die Isolatoroberfläche in starkem Kontrast zu Metallen ein signifikanter Abfall der Elektronenausbeute mit sinkender kinetischer Energie. Mögliche Ursachen dieses Effektes werden auf der Grundlage unterschiedlicher Modelle diskutiert.

Abstract

In this thesis the creation of permanent nano structures induced by the impact of very slow ($v \leq 5 \cdot 10^5$ m/s) highly charged ($q \leq 40$) ions on the ionic crystal surfaces of CaF_2 and KBr is investigated. The systematic analysis of the samples surfaces by means of atomic force microscopy supplies information on the influence of the potential as well as the kinetic projectile energy on the process of structure creation.

The individual impact of highly charged ions on the $\text{KBr}(001)$ surface can initiate the creation of mono-atomic deep pit-like structures -nanopits- with a lateral size of a few 10nm. The volume of these pits and the corresponding number of sputtered secondary particles show a linear dependence on the projectiles potential energy. For the onset of pit formation a kinetic energy dependent threshold in the potential energy $E_{\text{pot}}^{\text{grenz}}(E_{\text{kin}})$ could be identified. Based on the defect-mediated desorption by electrons and by including effects of defect agglomeration a consistent model for the process of pit formation was drawn.

In this work the recently discovered creation of hillock-like structures by impact of highly charged ions on $\text{CaF}_2(111)$ surfaces could be verified for lowest kinetic energies ($E_{\text{kin}} \leq 150\text{eV} \times q$). For the first time the potential energy of impinging projectiles could be identified to be exclusively responsible for the creation of nano structures. Furthermore, a shift of potential energy threshold for hillock formation was observed for very small projectile velocities. Within the framework of cooperation with the Vienna University of Technology simulations based on the inelastic thermal spike model were performed, which allowed to interlink the individual hillock formation with a local melting of the ionic lattice.

The essential influence of electron emission during the interaction of the highly charged ions with the surface on the process of nano structuring was taken into consideration by complementary investigations of the secondary electron statistics. Thereby, total electron yields for an insulating surface at lowest projectile velocities ($v \leq 1 \cdot 10^5$ m/s) were determined for the first time. For velocities $v \leq 5 \cdot 10^4$ m/s a significant drop of the electron yield was observed for decreasing kinetic energy on the insulator representing a large contrast to metallic surfaces. Based on different models possible reasons for this effect are discussed.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	8
2	Grundlagen der HCI-Oberflächen-Wechselwirkung	10
2.1	Das <i>Potential</i> hochgeladener Ionen	10
2.2	Das klassische Barrieren-Modell	11
2.2.1	Überblick	11
2.2.2	Vom einfach geladenen Projektil zum hochgeladenen Ion	13
2.2.3	Bildladungseffekte und Potentialbarriere	14
2.2.4	Ladungstransfer und Abregungskanäle vor der Oberfläche	20
2.2.5	Peel-Off- und Side-Feeding-Prozesse	25
2.2.6	Gesamtelektronenausbeuten	26
2.2.7	Das Barrieren-Modell für Isolatoroberflächen	29
2.3	Potentieller Energieeintrag in die Oberfläche	32
2.4	Potentialsputtern	34
2.4.1	Das COULOMB-Explosions-Modell	35
2.4.2	Defekt-induzierte Desorption	36
2.5	Nanostrukturierung durch hochgeladene Ionen	37
3	Experimenteller Aufbau und Untersuchungsmethoden	40
3.1	Ionenerzeugung in der Dresden EBIT	41
3.2	Strahltransport im EBIT-Zweig	43
3.3	Ionenabbremung	44
3.4	Targetkammer und Experiment	45
3.4.1	Bestrahlungsexperimente	45
3.4.2	Sekundärelektronenstatistik	48
3.5	Überblick zur Raster-Kraft-Mikroskopie	52

4	Nanostrukturierung an Ionenkristall-Oberflächen	55
4.1	Nanopit-Formierung auf KBr(001)-Oberflächen	56
4.1.1	Vorbetrachtungen	56
4.1.2	Pit-Erzeugung bei Einzelionenbeschuss	57
4.1.3	Experimente bei erhöhter Ionenfluenz	68
4.1.4	Zusammenfassung	73
4.2	Hillock-Formierung auf CaF ₂ (111)-Oberflächen	73
4.2.1	Vorbetrachtungen	73
4.2.2	Experimentelle Ergebnisse	76
4.2.3	Diskussion der Ergebnisse	82
4.2.4	Zusammenfassung	85
4.3	Defekterzeugung und Phononenanregung	85
5	Sekundärelektronenstatistik	87
5.1	Analyse der Rohdaten	88
5.2	Experimentelle Ergebnisse und Diskussion	92
5.2.1	Balance der Emission vor und unter der Oberfläche	97
5.2.2	Der Trampolineffekt	98
5.2.3	Wiedereinfang von Elektronen	99
5.3	Zusammenfassung	100
6	Zusammenfassung und Ausblick	101
	Literaturverzeichnis	105

Kapitel 1

Einleitung

Die Wechselwirkung energetischer Ionen mit Festkörperoberflächen stellt aufgrund ihres hohen technologischen Anwendungspotentials seit mehr als 70 Jahren einen zentralen Forschungsschwerpunkt auf dem Gebiet der Materialwissenschaften dar. Die physikalischen Mechanismen der Ionen-Festkörper-Wechselwirkung sind intensiv untersucht worden und gelten zum heutigen Zeitpunkt als weitestgehend verstanden. Zahlreiche analytische Verfahren, wie beispielsweise die Rutherford-Rückstreu-Spektroskopie (RBS) sowie die Sekundärionenmassenspektrometrie (SIMS) beruhen auf diesen Grundlagen. Ein weiteres großes Einsatzgebiet insbesondere in der Mikro- und Nanotechnologie stellt die Modifizierung von Festkörpern und Festkörperoberflächen durch den Beschuss mit Ionen dar. Die Implantation von Ionen, das Ionensputtern und die Nanostrukturierung von Oberflächen finden hier weite Verbreitung.

Bis Mitte der 80er Jahre des vergangenen Jahrhunderts beschränkten sich diese Forschungen hauptsächlich auf schnelle, einfach geladene Ionen mit Energien im keV- und MeV-Bereich. Der Wechselwirkungsprozess mit der Festkörperoberfläche ist für solche Ionen im Wesentlichen durch deren Masse und kinetische Energie charakterisiert. Aus den, zur effektiven Strukturierung der Oberfläche notwendigen hohen Projektilgeschwindigkeiten, resultieren dabei nahezu immer Schäden in tiefer gelegenen Schichten des Festkörpers.

Ein relativ junges Forschungsgebiet stellt die Wechselwirkung hochgeladener Ionen mit Festkörperoberflächen dar. Hochgeladene Ionen (*highly charged ions*, HCI) besitzen vermöge ihrer Ladung q ein hohes Maß potentieller Energie, welche bei geringer Projektilgeschwindigkeit den Betrag der kinetischen Energie um ein Vielfaches übersteigen kann (siehe Abschnitt 2.1). Der Übertrag dieser Potentialenergie an den Festkörper vollzieht sich innerhalb weniger Atomlagen unter der Oberfläche und kann zur Erzeugung permanenter Nanostrukturen führen [1, 2]. Langsame hochgeladene Ionen besitzen damit die einzigartige Eigenschaft, Strukturen an der Materialoberfläche zu erzeugen, ohne dabei Schäden in tieferen Schichten des Festkörpers zu verursachen. Während experimentelle [3–5] sowie theoretische [6–9] Untersuchungen in den vergangenen Jahren zu einem stetig besseren Verständnis des Neutralisationsprozesses hochge-

ladener Ionen vor und unter der Oberfläche von Festkörpern führten, existieren für den Prozess der Nanostrukturierung zumeist nur phänomenologische Untersuchungen [10–12].

In der vorliegenden Arbeit wird die Erzeugung von Nanostrukturen auf Ionenkristalloberflächen durch den individuellen Einfall hochgeladener Xenon-Ionen untersucht. Dazu wurden an der Rossendorfer Zweiquellen-Ionenstrahlanlage Bestrahlungsexperimente mit langsamen Ionen durchgeführt. Eine systematische Charakterisierung der auf der Oberfläche erzeugten Nanostrukturen erfolgte durch Analyse der bestrahlten Proben mittels Raster-Kraft-Mikroskopie. Durch die Variation von Projektilgeschwindigkeit und Ladungszustand können die Einflüsse von potentieller sowie kinetischer Energie auf den Formierungsprozess analysiert werden.

Anhand der experimentellen Befunde dieser Arbeit werden für die Oberflächen der Ionenkristalle Kaliumbromid (KBr) und Calciumfluorid (CaF_2) konsistente Erklärungsmodelle für die Erzeugung von Nanostrukturen durch den potentiellen Energieeintrag vorgestellt. Die Emission von Elektronen während der HCI-Oberflächen-Wechselwirkung wird dabei als eine wesentliche Voraussetzung für die Nanostrukturierung identifiziert und in zusätzlichen Experimenten detailliert untersucht.

Die Struktur der vorliegenden Arbeit sei im Folgenden kurz erläutert:

In Kapitel 2 werden zunächst die Basisprozesse der Relaxation hochgeladener Ionen an Metall- und Isolatoroberflächen auf der Grundlage des klassischen Barrierenmodells erläutert. Zudem werden die Prozesse des Potentialsputterns und der Oberflächenstrukturierung, auf dem gegenwärtigen Erkenntnisstand der Literatur beruhend, diskutiert.

Die experimentelle Versuchsanordnung wird in Kapitel 3 vorgestellt. Neben der Ionenerzeugung und dem Strahltransport an der Rossendorfer Zweiquellen-Ionenstrahlanlage wird die Integration einer für die vorliegenden Experimente konzipierten Versuchsanordnung in die Experimentierkammer der Anlage beschrieben.

In Kapitel 4 werden die experimentellen Befunde zur Nanostrukturierung von KBr und CaF_2 durch hochgeladene Ionen präsentiert. Auf der Basis systematischer Studien der bestrahlten Proben mittels Raster-Kraft-Mikroskopie werden zwei Modellvorstellungen für die Nanopit-Erzeugung auf KBr sowie für die Hillockformierung auf CaF_2 erarbeitet.

Komplementäre Untersuchungen zur Sekundärelektronenemission während der HCI-Neutralisation vor Ionenkristalloberflächen werden in Kapitel 5 vorgestellt. Ein in diesen Studien erstmalig experimentell nachgewiesener Unterschied in der Sekundärelektronenausbeute auf Metall- und Isolatoroberflächen bei kleinsten Projektilgeschwindigkeiten wird anhand unterschiedlicher Erklärungsmodelle diskutiert.

Kapitel 2

Grundlagen der HCI-Oberflächen-Wechselwirkung

2.1 Das *Potential* hochgeladener Ionen

Die Wechselwirkung langsamer hochgeladener Ionen mit Festkörperoberflächen unterscheidet sich von der einfach geladener Projektile durch die Tatsache, dass zusätzlich zur kinetischen Energie des Projektils auch dessen potentielle Energie auf spezifischen Kanälen in die Oberfläche eingetragen wird. Die potentielle oder auch *interne* Energie eines hochgeladenen Ions ist dabei die Summe der Bindungsenergien E_B aller Elektronen, die dem ursprünglich neutralen Atom entzogen wurden, um zur Erzeugung des Ions mit dem Ladungszustand q zu führen

$$E_{\text{pot}} = \sum_{i=1}^q E_B^i. \quad (2.1)$$

Diese interne Energie kann, abhängig von der Ordnungszahl des Ions, für hinreichend hohe Ladungszustände Werte im Bereich von einigen 10keV bis hin zu 100keV annehmen. Abbildung 2.1 zeigt die potentiellen Energien für Argon-, Krypton- sowie Xenonionen als Funktion des Ladungszustandes.

Während der Wechselwirkung eines hochgeladenen Ions mit einem Festkörper wird ein Großteil dieser potentiellen Energie in einer sehr kurzen Zeit von nur wenigen fs auf ein räumlich begrenztes Volumen der Oberfläche von einigen nm³ übertragen. Die daraus resultierenden, teils sehr großen Energiedichten sind für hohe Ladungszustände mit dem Energieeintrag ultrakurzer Hochleistungs-Laserpulse oder extrem schneller (einfach geladener) Teilchen vergleichbar. Für sehr langsame hochgeladenen Ionen kann der Betrag der potentiellen Energie den der kinetischen deutlich übersteigen. Damit lassen sich Projektile erzeugen, die durch einen hohen (potentiellen) Energieeintrag Modifizierungen von Oberflächen erlauben, jedoch keine Schä-

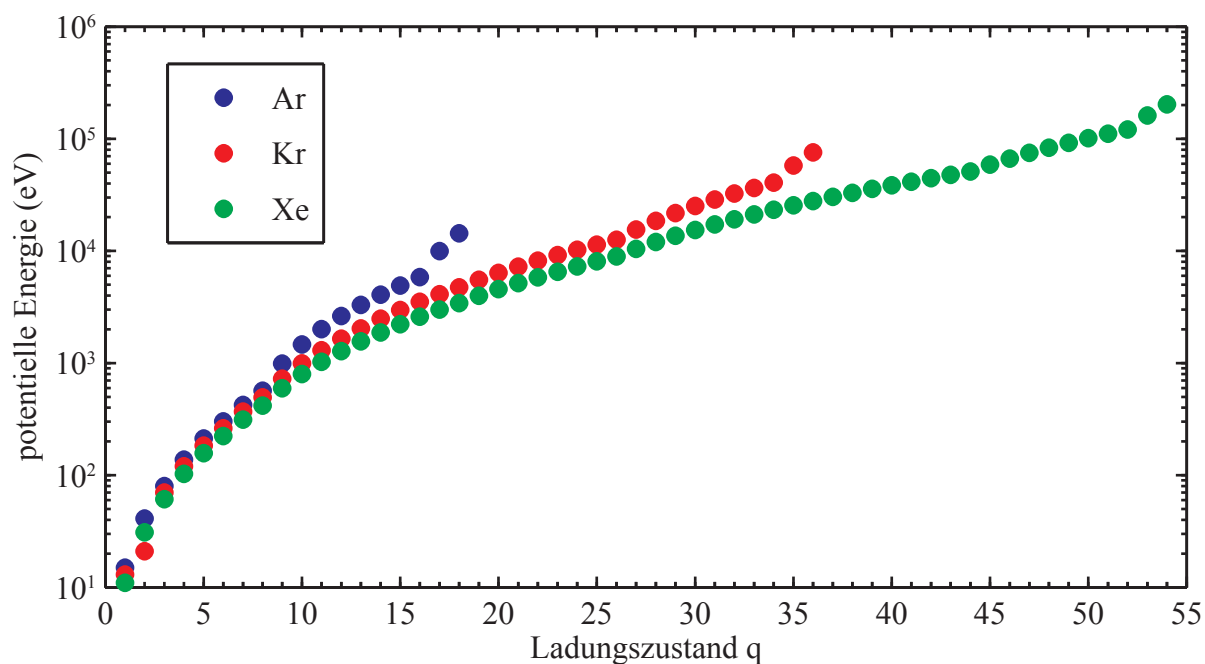


Abbildung 2.1: Potentielle Energie von Ar-, Kr- und Xe-Ionen als Funktion des Ladungszustandes nach Gl. (2.1).

den unter der Oberfläche hervorrufen. Letztere Eigenschaft macht hochgeladene Ionen zu einem vielversprechenden Instrument für zukünftige industrielle Anwendungen in der Mikro- und Nanostrukturierung von Oberflächen. Das Verständnis und die Modellierung der physikalischen Prozesse, die von der Neutralisation eines HCIs vor der Oberfläche bis hin zur Formierung von Nanostrukturen führen, sind die Hauptziele der Untersuchungen in der vorliegenden Arbeit.

2.2 Das klassische Barrieren-Modell

2.2.1 Überblick

Die Mechanismen, die zur Neutralisation langsamer hochgeladener Ionen vor Kristalloberflächen führen, sollen in diesem Abschnitt auf der Grundlage des erstmals von Burgdörfer *et al.* [6, 7] vorgeschlagenen, klassischen Barrieren-Modells (*classical over the barrier model*, COM) erläutert werden. Die Wechselwirkung ist in diesem Modell im Wesentlichen durch folgende Prozesse charakterisiert:

- Bildladungsbeschleunigung,
- Elektronentransfer zwischen Oberfläche und Ion,
- Verschiebung der atomaren Energieniveaus des Ions,

- Erzeugung hohler Atome vor der Oberfläche.

Abbildung 2.2 zeigt schematisch die genannten Prozesse. Das COM stellt ein rein klassisches Modell dar. Eine theoretische Behandlung der Problemstellung, die auf quantenmechanischen Berechnungen basiert, konnte bisher nicht erarbeitet werden. Zu komplex ist das Vielteilchensystem aus hochgeladenem Ion, dessen Elektronen und den Atomen und Elektronen der Oberfläche. Das Aufstellen eines HAMILTON-Operators, der alle in einem derartigen System auftretenden Wechselwirkungen exakt erfasst, stellt hierbei die schwierigste Herausforderung dar. Einfache theoretische Modelle lassen sich nur für nackte Kerne mit kleinen Kernladungszahlen und für große Abstände zur Oberfläche finden [13]. In quantenmechanischen *ab-initio*-Rechnungen [14–17] wird das Vielteilchensystem aus Projektil und Oberfläche meist durch ein effektives Ein-Elektronen-Potential approximiert. Damit lassen sich gegenwärtig lediglich generelle Abhängigkeiten wie die Variation von Übergangsraten mit dem Abstand zur Oberfläche aufzeigen. Einzelprozesse wie der sukzessive Übergang von Elektronen aus der Oberfläche zum Projektil können mit diesen Modellen bis zum gegenwärtigen Zeitpunkt nicht erklärt werden.

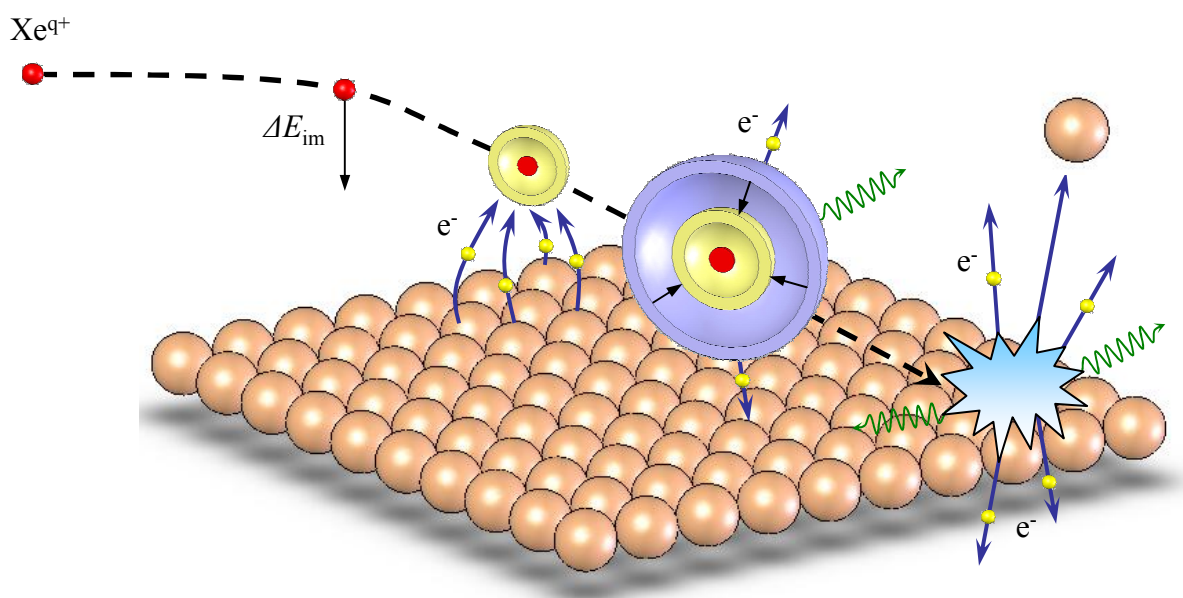


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung der Neutralisation eines hochgeladenen Ions vor einer Festkörperoberfläche.

Für die Reproduktion experimenteller Daten hat sich das teilweise sehr intuitive COM bisher als am zuverlässigsten erwiesen. Zahlreiche Vorhersagen dieses Modells konnten in den vergangenen Jahren im Experiment sowohl qualitativ als auch quantitativ bestätigt werden. Der erstaunliche Erfolg dieses Modells kann unter anderem darauf zurückgeführt werden, dass die Wechselwirkung zwischen hochgeladenem Ion und Kristalloberfläche durch zum Teil sehr hohe Quantenzahlen charakterisiert ist, was nach dem Korrespondenzprinzip den Übergang von der Quantenmechanik zur klassischen Betrachtungsweise rechtfertigt.

Die nachfolgenden Ausführungen zu den grundlegenden Prozessen, die im COM berücksichtigt werden, sind aus aktuellen Übersichtsartikeln [18–21] sowie zum Teil aus Arbeiten von Ducee [22, 23], Schippers [24] und Kost [25] entnommen. In seiner ursprünglichen Form wurde das COM für metallische Oberflächen konzipiert. Erst später wurde es auf Oberflächen von Isolatoren adaptiert [26]. Auf Unterschiede, die sich zu Isolatoroberflächen ergeben, wird am Ende dieses Abschnitts gesondert eingegangen (siehe Abschnitt 2.2.7). Die Bewegung des Projektils zur Oberfläche findet im Rahmen des COM mit Geschwindigkeiten $v \ll v_{\text{Bohr}}$ statt (adiabatische Näherung). Damit steht dem elektronischen System des Projektils stets ausreichend Zeit zur Verfügung, um sich auf die geänderten Potentiale durch die Annäherung an die Oberfläche anzupassen.

2.2.2 Vom einfach geladenen Projektil zum hochgeladenen Ion

Untersuchungen zur Neutralisation von Ionen vor Festkörperoberflächen lassen sich bis in die frühen Jahre der Quantenmechanik zurückdatieren [27, 28]. Dabei wurde erkannt, dass der Wechselwirkungsprozess unter anderem durch die Emission niederenergetischer Elektronen charakterisiert ist. Bereits in den fünfziger Jahren wurden durch Hagstrum erstmals Mechanismen zur potentiellen Elektronenemission (PE) vorgeschlagen [29, 30]. Für einfach geladene Ionen zeigte Hagstrum, dass interatomare AUGER-Übergänge mit zwei Elektronen aus dem Leitungsband der Metalloberfläche dominierend zum Neutralisationsprozess beitragen. Bei diesem Zwei-Elektronen-Prozess geht ein Elektron aus dem Leitungsband (nicht-resonant) in einen unbesetzten Projektilzustand über und überträgt dabei die Differenzenergie an ein zweites Leitungsbandelektron, das daraufhin die Austrittsarbeit aus der Oberfläche überwinden kann und ins Vakuum emittiert wird. Aus diesem Prozess resultierende Sekundärelektronenspektren spiegeln somit Informationen über die elektronische Struktur des Leitungsbandes der Oberfläche wieder (Oberflächenzustandsdichte) [31].

Für die Wechselwirkung zweifach geladener Ionen mit einer Metalloberfläche fand Hagstrum einen zweiten Kanal der Neutralisation. Zwei Elektronen aus dem Leitungsband der Oberfläche werden dabei resonant in unbesetzte Zustände des Ions transferiert und der so entstandene doppelt angeregte Projektilzustand relaxiert über einen Auto-Ionisations-Prozess unter Emission eines oder mehrerer Elektronen [32]. Die Natur dieser Prozesse wurde in den vergangenen Jahren detailliert untersucht und ist zum heutigen Zeitpunkt weitestgehend verstanden [33, 34].

Die Neutralisation hochgeladener Ionen ($q \gg 2$) an Oberflächen wurde erstmals von Hagstrum [35] und Arifov *et al.* [36] sowohl experimentell als auch theoretisch behandelt. In diesen Arbeiten wurde gezeigt, dass zwischen hochgeladenem Ion und Metalloberfläche ein Multi-Elektronen-Transfer stattfindet, aus dem ein mehrfach angeregtes neutrales Projektil hervorgeht, das durch sukzessive Relaxation über Auto-Ionisation und weitere Abregungskanäle zahlreiche Sekundärelektronen emittiert. Die Besetzung des Projektils mit Elektronen erfolgt dabei vor-

wiegend in Zustände mit hohen Quantenzahlen, sodass ein neutrales Atom entsteht, welches einen Großteil seiner Elektronen in äußeren Schalen trägt, wohingegen innere Schalen zum Teil unbesetzt bleiben. Diese Besetzungsinversion wird auch als hohles Atom (*hollow atom*, HA) bezeichnet [37]. Die Erzeugung und der Zerfall solcher hohlen Atome wurden anhand von Messungen der totalen Elektronenausbeute sowie der Elektronenenergieverteilung eingehend untersucht und verifiziert [38]. Dabei konnte gezeigt werden, dass die totale Elektronenausbeute niederenergetischer Elektronen für hohe Ladungszustände nicht, wie aus früheren Messungen [36] erwartet, linear mit der potentiellen Projektilenergie ansteigt. Vielmehr konnte erstmals für die H-artigen Ionen N^{6+} und O^{7+} gezeigt werden, dass während des Neutralisationsprozesses Innerschalenvakanzen entstehen können, die bis zum Auftreffen des Projektils auf der Oberfläche nicht vollständig rekombinieren und damit in die Oberfläche getragen werden, wo sie unter Emission schneller AUGER-Elektronen zerfallen [39]. Entsprechende Spektren schneller AUGER-Elektronen wurden daraufhin von zahlreichen Gruppen detailliert untersucht [40–44].

Neben den nichtstrahlenden AUGER-Übergängen in einem hohlen Atom stehen dem Projektil auch strahlende Relaxationskanäle zur Verfügung. Durch die Beobachtung verschiedener Satellitenlinien mittels hochaufgelöster Röntgenspektroskopie gelang es, die Existenz hohler Atome auch über diese Art der Abregung nachzuweisen [37, 45–47]. Komplementär dazu fanden sich weitere Hinweise zur Existenz des HA in Experimenten zur Untersuchung der Ladungszustandsverteilung von rückgestreuten Projektilen bei streifendem Ioneneinschuss [48].

2.2.3 Bildladungseffekte und Potentialbarriere

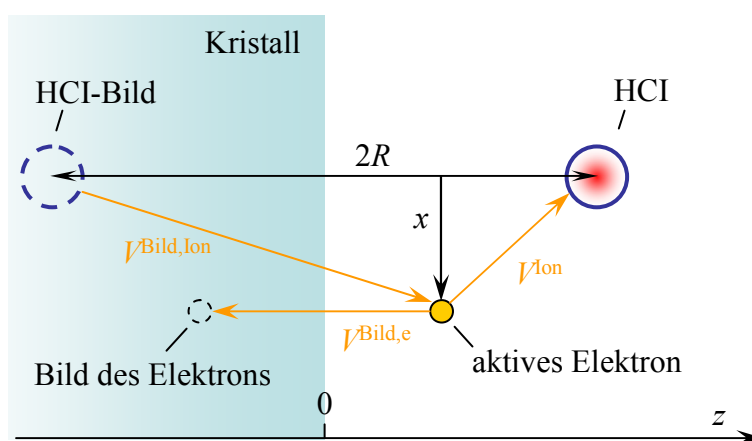


Abbildung 2.3: Komponenten des Barrierenpotentials und Veranschaulichung der Koordinatenachsen.

Bei der Annäherung eines Ions der Ladung q an eine leitende Oberfläche ist die erste Wechselwirkung, die das Ion erfährt, die Anziehung durch die in der Oberfläche induzierte Bildladung. Für die oben eingeführte Bedingung $v \ll v_{\text{Bohr}}$ ist es den Valenzbandelektronen im Metall möglich, der Bewegung des Ions instantan zu folgen, und die kollektive Elektronenbewegung kann

als klassisches Bildladungspotential betrachtet werden. Das Potential zwischen einem Ion im Abstand R zur Oberfläche und seiner Bildladung lautet damit

$$V_{\text{Ion} \leftrightarrow \text{Bild}}(R) = \frac{q^2}{4R}. \quad (2.2)$$

In allen folgenden Betrachtungen soll die z -Komponente normal auf der Oberfläche stehen. Die Oberfläche befindet sich bei $z = 0$. Die x -Komponente kennzeichnet die laterale Richtung entlang der Oberfläche (vgl. Abb. 2.3). Ein aktives Elektron zwischen der Oberfläche und dem Projektil erfährt neben dem Ionenpotential zusätzlich dessen Bildladungspotential sowie sein eigenes Bildladungspotential. Die Superposition dieser drei Potentiale führt zum klassischen Barrierenpotential

$$V^{\text{tot}}(x, z, R) = V_{\text{Ion}} + V_{\text{Ion}}^{\text{Bild}} + V_{\text{Elektron}}^{\text{Bild}} = -\frac{q}{\sqrt{(z-R)^2 + x^2}} + \frac{q}{\sqrt{(z+R)^2 + x^2}} - \frac{1}{4z}. \quad (2.3)$$

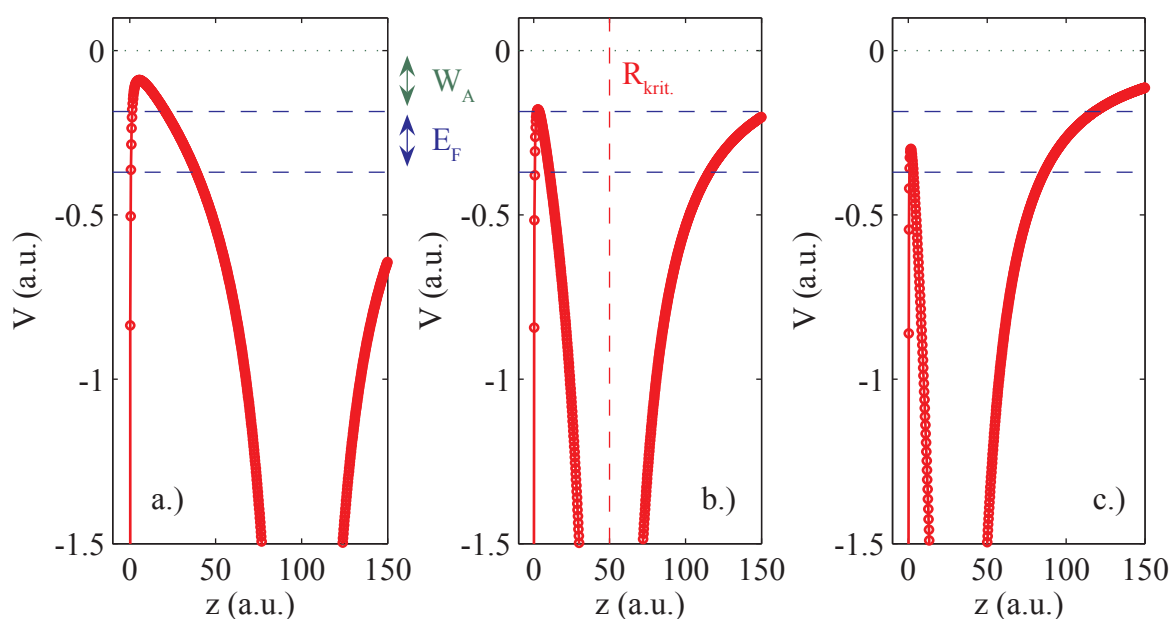


Abbildung 2.4: Nach Gl. (2.3) berechnetes Potential für ein aktives Elektron zwischen einem 40-fach geladenem Xe-Ion und einer Goldoberfläche im Abstand von 100 a.u. (a), 50 a.u. (b) und 30 a.u. (c) für $x = 0$. Für kleiner werdende Abstände senkt sich die Potentialbarriere zwischen Ion und Oberfläche. Bei $z = R_{\text{krit.}}$ unterschreitet die Barriere das FERMI-Niveau und es können Ladungsaustauschprozesse zwischen Oberfläche und Projektil eintreten.

Der Verlauf dieses Potentials ist in Abb. 2.4 für $x = 0$, d.h. entlang der Verbindungslinie zwischen Ion und Oberfläche für drei verschiedene Projektilabstände R dargestellt. Die Überlagerung der drei beschriebenen Potentiale führt zur Ausbildung einer Potentialbarriere zwischen

Projektile und Oberfläche. Diese Barriere stellt den Kern des COM dar. Die Abbildung lässt leicht erkennen, dass mit sinkendem Abstand des Projektils zur Oberfläche Breite und vor allem Höhe der Potentialbarriere sinken. Ab einem gewissen Abstand $R_{\text{krit.}}$ sinkt die Barriere unter das FERMI-Niveau der Oberfläche. Dieser kritische Abstand hängt dabei nur vom Ladungszustand des Projektils sowie von der Austrittsarbeit der Oberfläche ab und lässt sich damit über Gl. (2.3) bestimmen. Für ein Bildladungspotential, das zusätzlich die Plasmonendispersion an der Oberfläche berücksichtigt, erhält man nach Burgdörfer [6] in atomaren Einheiten

$$R_{\text{krit.}} \approx \frac{1}{2W_A} \sqrt{8q+2}, \quad (2.4)$$

beziehungsweise als zugeschnittene Größengleichung:

$$R_{\text{krit.}} [\text{\AA}] \approx \frac{20.4}{W_A[\text{eV}]} \sqrt{q+0.25}. \quad (2.5)$$

Wird dieser kritische Abstand unterschritten, können Elektronen aus dem Leitungsband der Oberfläche resonant in unbesetzte Zustände des Projektils transferiert werden (und umgekehrt). Zwar ist dies auch vor dem Erreichen des Fermi-niveaus über Tunnelprozesse möglich, jedoch sind die Wahrscheinlichkeiten zu klein, um diesen Mechanismus dominant zum Ladungsaustausch beitragen zu lassen [6, 7]. Der resonante Elektronentransfer ab $R_{\text{krit.}}$ erfolgt bevorzugt

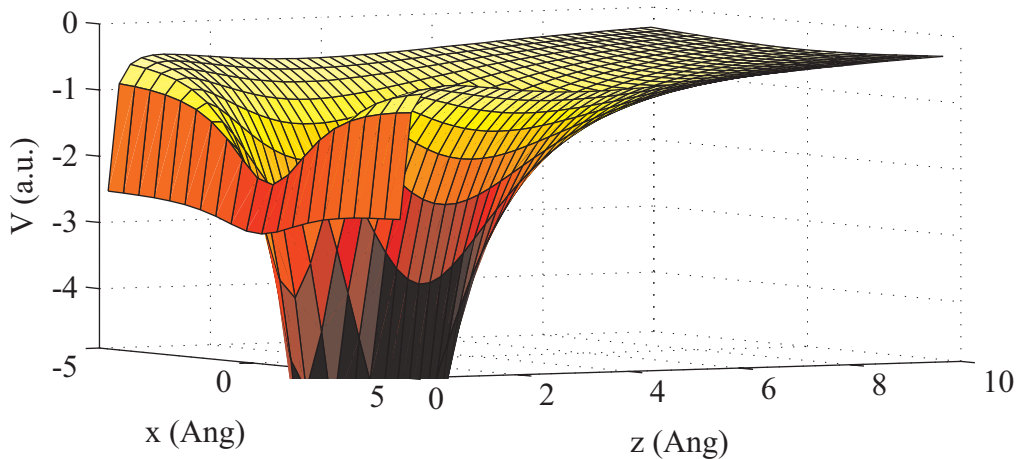


Abbildung 2.5: Nach Gl. (2.3) berechnetes Potential für ein Elektron eines 9-fach geladenen Projektils im Abstand von 2\AA zur Oberfläche. Der in Abb. 2.4 gezeigte Sattelpunkt zeigt in x -Richtung ein ausgeprägtes Minimum bei $x = 0$.

entlang der Verbindungslinie zwischen dem Projektil und der Oberfläche. Der Grund hierfür liegt in der speziellen Geometrie des Barrierenpotentials. Erweitert man die Darstellung des Potentials aus Abb. 2.4 um eine weitere Dimension (x) so zeigt sich, dass die Potentialbarriere in transversaler Richtung in einer Senke bei $x = 0$ liegt (siehe Abb. 2.5). Das Gesamtpotential zeigt

somit einen ausgeprägten Sattelpunkt und damit eine Minimalbarriere, über die Elektronenaustauschprozesse dominant stattfinden. Bevor auf die einzelnen Formen des Ladungsaustauschs zwischen Oberfläche und Projektil im Speziellen eingegangen wird, sollen hier noch zwei Besonderheiten erläutert werden, die sich aus dem Bildladungspotential des Projektils ergeben.

Bildladungsbeschleunigung

Durch die Wirkung des in Gl. (2.2) beschriebenen Bildladungspotentials wird das Projektil zur Metalloberfläche hin beschleunigt. Geht man in erster Näherung davon aus, dass bei Erreichen von $R_{\text{krit.}}$ ein instantaner Ladungsausgleich zur Neutralisation des Ions führt (statische Variante des COM = SCOM), so ergibt sich für den kinetischen Energiezuwachs des Ions:

$$\Delta E_{\text{kin}} = \int_{R_{\text{krit.}}}^{\infty} \frac{dV_{\text{Ion} \leftrightarrow \text{Bild}}}{dz} dz = \frac{q^2}{4R_{\text{krit.}}} \quad (2.6)$$

Mit $R_{\text{krit.}}$ aus Gl. (2.4) folgt:

$$\Delta E_{\text{kin}} \approx W_A \frac{q^2}{2\sqrt{8q+2}} \quad (2.7)$$

Für ein Xe^{40+} -Projektil, das auf eine Goldoberfläche ($W_A = 5.1 \text{ eV}$) trifft, ergibt sich so beispielsweise ein Energiezuwachs von $\Delta E_{\text{kin}} = 230 \text{ eV}$. Erweitert man die obige Annahme, dass bei $R_{\text{krit.}}$ ein instantaner Ladungsausgleich stattfindet und geht nun davon aus, dass ab $R_{\text{krit.}}$ eine sukzessive Neutralisation beginnt, so muss q in den Gleichungen (2.2) und (2.6) durch eine von z abhängige effektive Ladung $q_{\text{eff}}(z)$ substituiert werden. Zudem erfolgt nun die Integration in Gl. (2.6) über $R_{\text{krit.}}$ hinaus. In diesem modifizierten Wechselwirkungsbild (Stufenapproximation) findet sich für das betrachtete System Xe^{40+} auf Au ein Energiegewinn von $\Delta E_{\text{kin}} \approx 300 \text{ eV}$ [7]. Messungen von Aumayr *et al.* zeigen für eben dieses System einen experimentellen Wert von $\Delta E_{\text{kin}} = 400 \text{ eV} \pm 200 \text{ eV}$ [49].

Aus der Existenz der Bildladungsbeschleunigung ergibt sich, dass bei Annäherung eines hochgeladenen Ions an eine Oberfläche eine senkrechte Minimalgeschwindigkeit v_{\perp}^{min} nicht unterschritten werden kann. Als zugeschnittene Größengleichung erhält man für diese [24]:

$$v_{\perp}^{\text{min}} \left[\frac{\text{m}}{\text{s}} \right] = 1.4 \cdot 10^4 \sqrt{\frac{\Delta E_{\text{kin}} [\text{eV}]}{m [\text{amu}]}} = 2.6 \cdot 10^4 q \left(\sqrt{R_{\text{krit.}} [\text{\AA}] m [\text{amu}]} \right)^{-1} \quad (2.8)$$

Hieraus lässt sich sofort eine maximale Dauer τ^{max} angeben, die dem Projektil ab Erreichen von $R_{\text{krit.}}$ für den Neutralisationsvorgang vor der Oberfläche zur Verfügung steht:

$$\tau^{\text{max}} [\text{s}] = 10^{-10} \frac{R_{\text{krit.}} [\text{\AA}]}{v_{\perp}^{\text{min}} \left[\frac{\text{m}}{\text{s}} \right]} = 3.8 \cdot 10^{-15} \left(R_{\text{krit.}} [\text{\AA}] \right)^{\frac{3}{2}} \sqrt{m [\text{amu}]} q^{-1} \quad (2.9)$$

Wäre es beispielsweise möglich, ein 40fach geladenes Xenonion im Experiment vor einer Goldoberfläche auf (nahezu) $E_{\text{kin}} = 0 \text{ eV}$ abzubremesen, so blieben diesem dennoch nur $\tau^{\text{max}} \approx 135 \text{ fs}$ vom Beginn des Neutralisationsvorganges bis zum Eintreffen auf der Oberfläche. Ob von einer Metalloberfläche überhaupt in einer so kurzen Zeit genügend Elektronen bereitgestellt werden können, war für Projektilen mit sehr hohem Ladungszustand lange Zeit eine ungeklärte Frage. Erst 1993 konnten Aumayr *et al.* im Experiment [49] nachweisen, dass für Th^{q+} -Projektilen bis zu den höchsten Ladungszuständen von $q = 80$ keine Sättigung der Sekundärelektronenausbeute mit wachsender Potentialenergie eintrat und somit aufzeigen, dass die Goldoberfläche in der Lage ist, auf einer fs-Zeitskala genügend Elektronen für den Neutralisationsprozess bereitzustellen. Für Isolaturoberflächen kann diese Frage zum Teil anhand der Messergebnisse der vorliegenden Arbeit beantwortet werden (siehe Kapitel 5).

Verschiebung der Energieniveaus

Eine weitere direkte Konsequenz des Bildladungspotentials ist die zunehmende Anhebung der atomaren Energieniveaus des Projektils mit sinkendem Abstand zur Oberfläche. Zusätzlich zu dem reinen COULOMB-Potential des Projektilkerns wirken auf Elektronen in gebundenen Zuständen das Bildladungspotential des Ions sowie sein eigenes Bildladungspotential. In erster Näherung kann die daraus resultierende Verschiebung der Energieeigenwerte störungstheoretisch betrachtet werden. Dabei wird die Summe der beiden Bildladungspotentiale als Störterm zum COULOMB-Potential betrachtet und für die Projektilniveaus gilt:

$$\varepsilon_n(z) = \varepsilon_n^\infty + \delta\varepsilon_n(z) = \varepsilon_n^\infty + \langle \Psi | V_{\text{Ion}}^{\text{Bild}} + V_{\text{Elektron}}^{\text{Bild}} | \Psi \rangle. \quad (2.10)$$

Dabei kennzeichnen Ψ und ε_n^∞ die ungestörten Wellenfunktionen bzw. Energieeigenwerte in großer Entfernung. Für letztere kann in Wasserstoffnäherung

$$\varepsilon_n^\infty = -\frac{1}{2} \left(\frac{q_{\text{eff},n}}{n} \right)^2 \quad (2.11)$$

angegeben werden, wobei $q_{\text{eff},n}$ über die Beziehung

$$q_{\text{eff},n} = q_{\text{nuk}} - \sum_{n'} S_{n,n'} a_{n'} \quad (2.12)$$

intraatomare Abschirmeffekte durch besetzte oder teilweise besetzte Innerschalen berücksichtigt (q_{nuk} - Kernladungszahl, $S_{n,n'}$ - SLATER Abschirm-Matrix, $a_{n'}$ - Besetzungszahlvektor). Es sei hier noch einmal bemerkt, dass eine störungstheoretische Betrachtung wie in Gl. (2.10) nur für kleine Störterme Gültigkeit besitzt. Für große Projektilabstände ($z > R_{\text{krit.}}$), d.h. wenn z größer als der Orbitalradius $\langle \Psi | r | \Psi \rangle$ ist, findet sich nach [50] für $\delta\varepsilon_n(z)$ die Lösung

$$\delta\varepsilon_n(z)[\text{eV}] \approx \frac{3.6(2q-1)}{z[\text{\AA}]} \quad (2.13)$$

Abbildung 2.6 zeigt die Verschiebung der Energieniveaus für das System Ne^{10+} auf Gold. Der kritische Abstand für dieses System ergibt sich nach Gl. (2.5) zu $R_{\text{krit.}} = 25 \text{ a.u.}$. An diesem Punkt befinden sich die Energieniveaus $n = 11$ bis $n = 14$ im Bereich des Leitungsbandes der Oberfläche, und Elektronen können resonant zum Projektil transferiert werden. Allgemein lassen sich die Zustände, in die der erste Elektronentransfer ab Erreichen von $R_{\text{krit.}}$ stattfinden kann, abschätzen durch:

$$W_A \leq \varepsilon_n(R_{\text{krit.}}) \leq W_A + E_F \quad (2.14)$$

W_A und E_F kennzeichnen dabei die Austrittsarbeit sowie die FERMI-Energie der Oberfläche. Mit Gl. (2.11) lassen sich die beteiligten Hauptquantenzahlen n für den ersten Elektronentransfer abschätzen zu:

$$q \sqrt{\frac{13.6 \text{ eV}}{W_A + \delta\varepsilon_n(R_{\text{krit.}}) + E_F}} < n < q \sqrt{\frac{13.6 \text{ eV}}{W_A + \delta\varepsilon_n(R_{\text{krit.}})}} \quad (2.15)$$

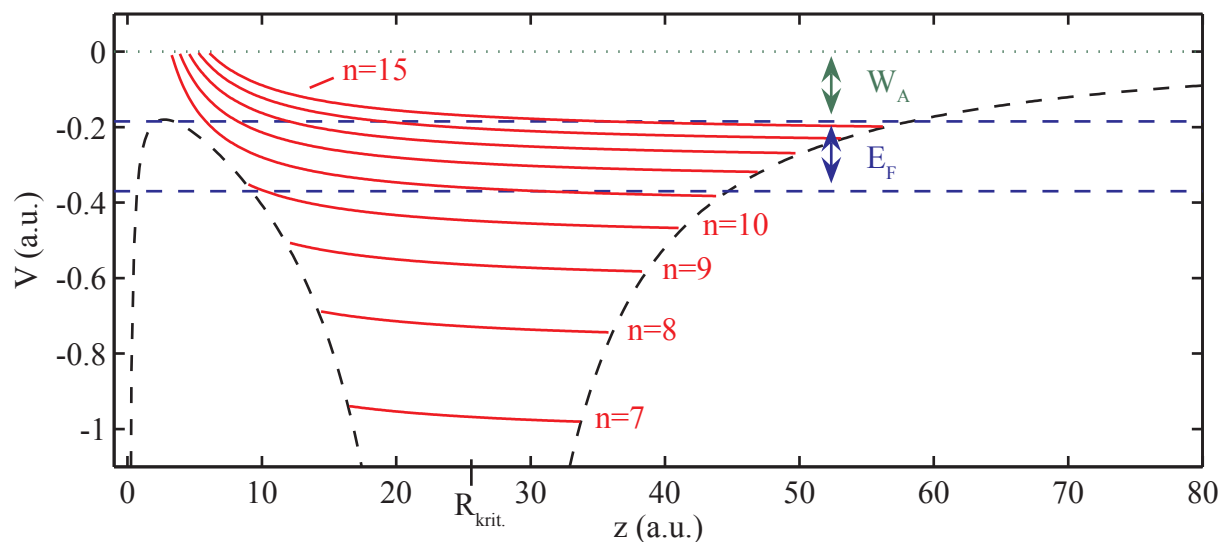


Abbildung 2.6: Verschiebung der Energieniveaus $n = 8$ bis $n = 15$ für ein 10fach geladenes Neon-Projektil vor einer Goldoberfläche. Zum Vergleich ist das Barrierenpotential für ein aktives Elektron eingezeichnet (unterbrochene Linie). Im Moment des Erreichens von $R_{\text{krit.}} = 25 \text{ a.u.}$ befinden sich die Energieniveaus $n = 11$ bis $n = 14$ energetisch in Höhe des Leitungsbandes und können über die Barriere hinweg Elektronen aufnehmen.

Durch den Transfer eines Elektrons vom Valenzband der Oberfläche in einen unbesetzten Projektilzustand der Hauptquantenzahl n verringert sich der Ladungszustand um eins zu $q' = q - 1$. Damit reduziert sich das Bildladungspotential des Projektils und es kommt zu einer Anhebung der Potentialbarriere. Aus Gl. (2.4) ergibt sich ein neuer kritischer Abstand $R'_{\text{krit.}}$ mit

$R'_{\text{krit.}} < R_{\text{krit.}}$. Erreicht das Projektil nun erneut $R'_{\text{krit.}}$, so kann ein weiteres Valenzbandelektron eingefangen werden. Da nun jedoch $\delta\varepsilon_n(R'_{\text{krit.}}) > \delta\varepsilon_n(R_{\text{krit.}})$ gilt, folgt aus Gl. (2.15):

$$n' < n. \quad (2.16)$$

Gleichzeitig verringert sich der Ladungszustand des Projektils wieder um eins und die Potentialbarriere erhöht sich erneut. Auf diese Art und Weise findet ein sukzessiver Elektronentransfer von der Oberfläche zum Ion statt, welcher schlussendlich zu dessen Neutralisation führt. Da die Neutralisation bei großen Hauptquantenzahlen n beginnt und sich nach innen fortsetzt, entsteht nach und nach ein neutrales Projektil, das einen Großteil seiner Elektronen in äußeren Schalen trägt, während innere Schalen unbesetzt bleiben (Besetzungsinversion). In Konsequenz entsteht ein hoch angeregtes hohles Atom. Die einzelnen Prozesse, die zum Ladungsaustausch zwischen Oberfläche und Projektil beitragen und die zur (teilweisen) Relaxation des Projektils führen, sollen im folgenden Abschnitt besprochen werden.

2.2.4 Ladungstransfer und Abregungskanäle vor der Oberfläche

Die im Projektil auftretenden Ladungsaustausch- und Relaxationsprozesse vor der Oberfläche können grundsätzlich in zwei Klassen eingeteilt werden:

- Ein-Elektronen-Prozesse und
- Zwei-Elektronen-Prozesse.

Zudem kann eine Klassifizierung in strahlende und nichtstrahlende Übergänge eingeführt werden. Ein Großteil dieser Prozesse wurde bereits im Rahmen der phänomenologischen Theorie von Hagstrum zur ioneninduzierten Elektronenemission beschrieben.

Ein-Elektronen-Prozesse

Zu den Ein-Elektronen-Prozessen zählen: die resonante Ionisation (RI), die resonante und quasi-resonante Neutralisation (RN, QRN), die strahlende Abregung (RD) sowie die kollektive Anregung (CE). Bei diesen Prozessen geht *ein* Elektron aus dem Projektil oder der Oberfläche von einem Anfangs- in einen Endzustand über. Der Übergang vollzieht sich dabei entweder resonant (ohne Energiegewinn) oder durch Energietransfer auf ein Photon beziehungsweise ein Plasmon. Abbildung 2.7 zeigt schematisch die benannten Prozesse.

Resonante und quasi-resonante Neutralisation (RN, QRN)

Bei diesem Prozess überwindet ein Elektron aus dem Leitungsband der Oberfläche die Potentialbarriere und geht in einen unbesetzten Zustand des Projektils gleicher Bindungsenergie über.

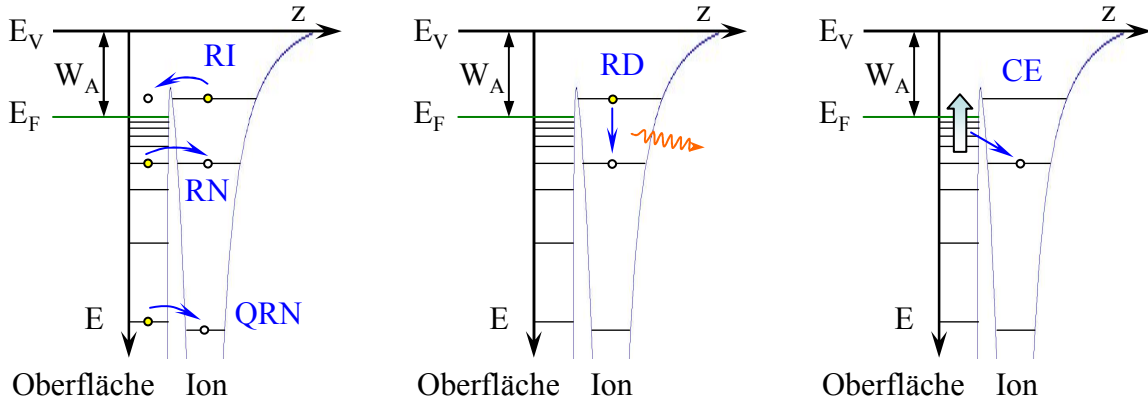


Abbildung 2.7: Schematische Darstellung der Ein-Elektronen-Prozesse während der Ionenneutralisation vor der Oberfläche: resonante Ionisation (RI), resonante Neutralisation (RN), quasi-resonante Neutralisation (QRN), strahlende Abregung (RD), kollektive Anregung (CE).

Dabei verringert sich der Ladungszustand des Projektils um eins. Der so entstandene angeregte Projektilzustand kann nachfolgend über Zwei-Elektronen-Prozesse (siehe unten) relaxieren. Eine Übergangsrate für RN oder genauer der resultierende Strom von Elektronen aus der Oberfläche in die Schale n des Projektils lässt sich nach Ducree *et al.* [22, 51] durch

$$I_n^{\text{RN}}(z) = \sigma(z) j_n(z) \quad (2.17)$$

bestimmen, wobei $\sigma(z)$ den geometrischen Querschnitt darstellt, der sich aus der Form des Potentialsattels ergibt. Die Stromdichte $j_n(z)$ wird von Ducree in der folgenden Form modelliert:

$$j_n(z) = \frac{1}{4} \int_{\max[V_b(R), \epsilon_{n-0.5}]}^{\min[-W_A, \epsilon_{n+0.5}]} \sqrt{2|E + V_b(R)|} \cdot D(E) dE. \quad (2.18)$$

Dabei kennzeichnet $V_b(R)$ die aktuelle Höhe der Potentialbarriere, $D(E)$ die Zustandsdichte der Elektronen im Leitungsband und $\epsilon_{n\pm 0.5}$ die Unschärfe des Energieniveaus n .

Die quasi-resonante Neutralisation verhält sich der RN ähnlich, wobei hier Anfangs- und Endzustand energetisch leicht versetzt sein können. QRN tritt meist bei sehr kleinen Projektil-Oberflächen-Abständen auf und involviert damit energetisch tief liegende Festkörperelektronen (vgl. Abb. 2.7).

Resonante Ionisation (RI)

Bei dem zur RN inversen Prozess wird ein Elektron aus einem angeregten Projektilzustand in einen energetisch gleich liegenden, unbesetzten Oberflächenzustand oberhalb des Leitungsbandes übertragen (siehe Abb. 2.7). Der Ladungszustand des Projektils erhöht sich dabei um eins. Als Übergangsrate (Elektronenstrom) für diesen Prozess findet sich nach Burgdörfer [6] und Ducree [22]:

$$I_n^{\text{RI}}(z) = \Theta(W_A + \epsilon_n(z)) P(z) v_n. \quad (2.19)$$

Dabei ist ν_n die klassische Umlauffrequenz eines Elektrons im jeweiligen Energieniveau n [6]

$$\nu_n = \frac{q_n^2(R)}{2\pi n^3} \quad (2.20)$$

und $P(z)$ lässt sich durch

$$P(z) \approx \frac{R_{\text{krit.}} - z}{R_{\text{krit.}}} \quad (2.21)$$

abschätzen. RI findet meist dann statt, wenn zuvor durch RN besetzte Energieniveaus durch die oben beschriebene Energieniveaushiftung über die FERMI-Kante angehoben werden.

Strahlende Abregung (RD)

Die strahlende Abregung stellt einen intraatomaren Übergang im Projektil dar, bei dem ein Elektron aus einem angeregten Anfangszustand E_i in einen energetisch tiefer gelegenen Endzustand E_f wechselt. Die dabei freiwerdende Energie wird gemäß

$$\hbar\omega = E_i - E_f \quad (2.22)$$

in Form eines Photons der Energie $\hbar\omega$ abgestrahlt. Für niedrig und intermediär geladene Projektile ist der Beitrag von RD zum Relaxationsprozess sehr gering. Typische Übergangsraten betragen 10^9 s^{-1} , wohingegen die Übergangsraten für nichtstrahlende Relaxationskanäle (siehe unten) um ca. 5 Größenordnungen höher liegen. Für sehr hohe Ladungszustände und Projektile mit hoher Kernladungszahl Z kann jedoch die RD-Rate vergleichbare Werte zu der nichtstrahlender Konkurrenzprozesse annehmen, da sie für wasserstoffartige Ionen zur vierten Potenz der Ladung proportional ist [52] (genauer zur vierten Potenz der Kernladungszahl, jedoch gilt für wasserstoffartige Ionen mit großem Z : $q \approx Z$). Trotz seiner geringen Quantenausbeute war es der RD Prozess, der experimentell einen ersten direkten Beweis zur Formierung hohler Atome vor der Oberfläche lieferte [37].

Kollektive Anregung (CE)

Dieser, auch Oberflächen-Plasmonen-Anregung genannte Prozess wurde erstmals von Apell vorgeschlagen [53]. Dabei wird durch den nichtresonanten Übergang eines Leitungsbandelektrons in einen energetisch tiefer liegenden Projektilzustand ein Energiebetrag in der Größenordnung der Oberflächenplasmonenenergie ($\approx 10 \text{ eV} \dots 20 \text{ eV}$) an das Leitungsband übertragen, was zu einer kollektiven Anregung führt. Für die Übergangsrate dieses Prozesses fand Apell:

$$R_{\text{CE}}[\text{s}^{-1}] \approx 10^{14} \cdot \left(\frac{4}{z [\text{\AA}]} \right)^3 \quad (2.23)$$

Zwei-Elektronen-Prozesse

Zwei-Elektronen-Prozesse sind AUGER-Elektronen-Übergänge, bei denen ein Elektron (nicht-resonant) zwischen Projektil und Oberfläche bzw. innerhalb des Projektils transferiert und gleichzeitig ein weiteres Elektron ins Vakuum emittiert wird. Dabei unterscheidet man zwischen: AUGER-Neutralisation (AN), Kern-AUGER-Neutralisation (CAN), AUGER-Abregung (AD) und Auto-Ionisation (AI). Eine schematische Darstellung der genannten Prozesse findet sich in Abb. 2.8. Die korrespondierenden Übergangsraten für derartige Prozesse sind vergleichsweise hoch, wodurch der Wechselwirkungsprozess zwischen Oberfläche und hochgeladenem Ion durch eine hohe Anzahl an Sekundärelektronen charakterisiert ist.

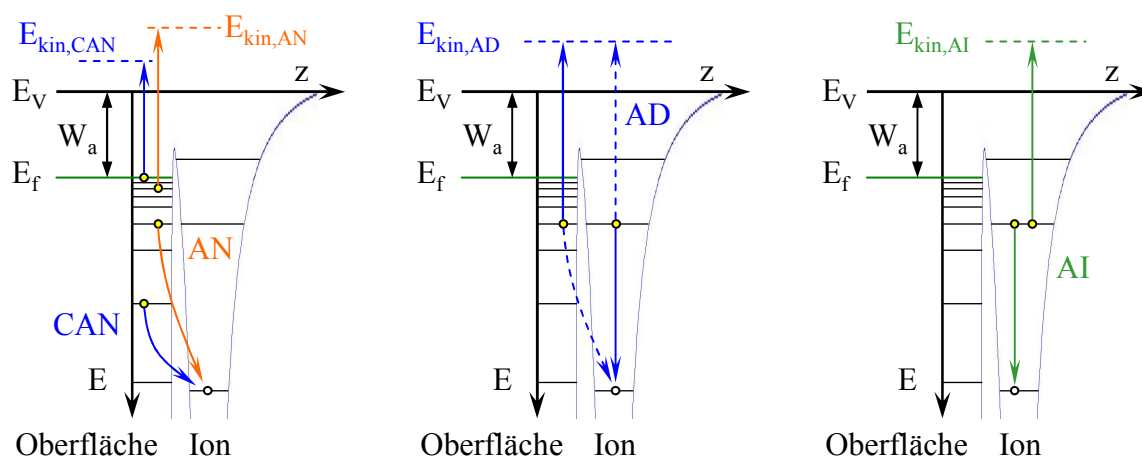


Abbildung 2.8: Schematische Darstellung der Zwei-Elektronen-Prozesse während der Ionenneutralisation vor der Oberfläche: AUGER-Neutralisation (AN), Kern-AUGER-Neutralisation (CAN), AUGER-Abregung (AD), Auto-Ionisation (AI). Unterbrochene Pfeile zeigen ununterscheidbare Prozesse.

AUGER-Neutralisation (AN)

An diesem Prozess sind zwei Elektronen aus dem Leitungsband der Metalloberfläche sowie ein energetisch tiefer liegender Projektilezustand beteiligt. Ein Leitungsbandelektron im Zustand E_i wechselt in einen unbesetzten Projektilezustand E_f und gibt dabei die Energiedifferenz an ein zweites Leitungsbandelektron ab. Der Ladungszustand des Projektils verringert sich dabei um eins. Ist die Energiedifferenz $|E_i - E_f|$ größer als die Austrittsarbeit W_A , so kann das zweite Elektron mit einer Maximalenergie von

$$E_{AN}^{\max} \leq |E_i - E_f| - W_A \quad (2.24)$$

ins Vakuum emittiert werden. Die Energieverteilung der durch AN emittierten Elektronen gibt somit ein direktes Bild der Oberflächenzustandsdichte der Leitungsbandelektronen wieder. Diese Tatsache stellt die Grundlage der von Hagstrum entwickelten Ionen-Neutralisations-Spektroskopie (INS) dar [31]. Wenn an Stelle eines Leitungsbandelektrons ein energetisch tiefer liegendes Elektron in einem atomartigen Festkörperzustand am AN Prozess beteiligt ist, so spricht

man von Innerschalen-AUGER-Neutralisation oder auch Kern-AUGER-Neutralisation.

AUGER-Abregung (AD)

Bei diesem der AN ähnlichen Prozess befindet sich eines der beteiligten Elektronen in einem angeregten Projektilzustand E_i , der energetisch im Leitungsband des Metalls liegt. Durch Wechselwirkung mit einem Leitungsbandedelektron kann dieser in einen Projektilzustand höherer Bindungsenergie E_f übergehen, wenn die Differenz $|E_i - E_f|$ größer als die Austrittsarbeit W_A ist. Nachfolgend wird (quantenmechanisch ununterscheidbar) entweder ein Elektron aus dem Leitungsband oder das zuvor angeregte Projektilelektron mit der Maximalenergie

$$E_{AD}^{\max} \leq |E_i - E_f| - W_A \quad (2.25)$$

ins Vakuum emittiert (vgl. Abb. 2.8). Auch bei diesem Prozess repräsentiert die Energieverteilung der emittierten Elektronen die Oberflächen-Zustandsdichte [54]. Im Gegensatz zur AN verbleibt der Ladungszustand des Projektils im AD-Prozess unverändert.

Auto-Ionisation (AI)

Dieser intraatomare AUGER-Übergang setzt ein mindestens zweifach angeregtes Projektil voraus. Ein Elektron aus einem mehrfach angeregten Anfangszustand E_i relaxiert in einen Endzustand höherer Bindungsenergie E_f und überträgt dabei die Energiedifferenz $|E_i - E_f|$ an ein zweites angeregtes Elektron, welches daraufhin mit der diskreten Energie

$$E_{AI} = |E_i - E_f| \quad (2.26)$$

emittiert wird. Der Ladungszustand des Projektils erhöht sich durch AI um eins.

Für die Übergangsraten der eben beschriebenen AUGER-Prozesse lassen sich aufgrund der komplexen Schalenstruktur des HA und zahlreicher quantenmechanisch verbotener Übergangskanäle nur schwer analytische Lösungen finden. Aus dem COWAN-Code [55] zur Berechnung atomarer AUGER-Übergangsraten lassen sich jedoch brauchbare Ergebnisse für die Relaxationsraten des HA extrahieren. Auch einfache Skalierungsregeln aus Quantenmechanik und Quantenelektrodynamik [56, 57] zeigen gute Übereinstimmungen mit dem Experiment. Burgdörfer *et al.* [7] finden als analytische Abschätzung für den Ladungsverlust des Projektils durch AUGER-Relaxation:

$$R_{n_i, n_f}^{\text{Auger}} [\text{s}^{-1}] \approx \frac{2.1 \cdot 10^{14}}{(n_i - n_f)^{3.46}} \quad (2.27)$$

Die Differenz der Quantenzahlen von Anfangs- und Endzustand im Nenner von Gl. (2.27) lässt leicht erkennen, dass die Relaxationsraten für wachsende $\Delta n = n_i - n_f$ schnell abnehmen und somit vorzugsweise Übergänge mit $\Delta n = 1$ stattfinden.

2.2.5 Peel-Off- und Side-Feeding-Prozesse

Ein Vergleich der AUGER-Abregungsraten aus Gl. (2.27) und der maximalen Zeit τ_{\max} vor der Oberfläche (Gl. (2.9)) lässt schnell erkennen, dass das hoch angeregte hohle Atom beim Auftreffen auf der Oberfläche nicht vollständig relaxiert sein kann. Auch die Raten für resonanten Ladungstransfer und Plasmonenanregung liegen in derselben Größenordnung (Gl. (2.17) und Gl. (2.23)). Es muss demnach davon ausgegangen werden, dass sich das Projektil zum Zeitpunkt des Auftreffens in einem nur teilweise relaxierten Zustand befindet und noch immer Innerschalenvakanzen besitzt.

In sehr geringem Abstand zur Oberfläche und während des ersten Kontaktes mit dieser können nun die Ortswellenfunktionen von Projektil- und Leitungsbandelektronen der Oberfläche überlappen. Schwach gebundene RYDBERG-Elektronen hoher Quantenzahlen, deren Orbitalradius $r_B = n^2/q$ (a.u.) größer als die charakteristische Abschirmlänge für Oberflächenplasmonen $\lambda_s = v_F/\omega_p$ [58] ist, unterliegen damit einer starken Streuung an Festkörperelektronen und werden vom HA abgestreift (*peeling off*, PO) [6, 7, 59, 60]. Für die Rate des *Peel-off* Prozesses findet man in einer semi-klassischen Beschreibung in [22, 51]:

$$I_n^{\text{PO}}(z) = a_n \cdot \frac{N_n^{\text{ol}}(z)}{T_n} \cdot \frac{2\pi \langle r \rangle_n}{L_n(z)} \cdot \Theta(\langle r \rangle_n - \lambda_s(z)). \quad (2.28)$$

Dabei kennzeichnen a_n die Besetzungszahl der n-ten Schale, T_n die Umlaufzeit eines Elektrons im RYDBERG-Zustand n, $\langle r \rangle_n$ den mittleren Orbitalradius, sowie $N_n^{\text{ol}}(z)$ den Überlappfaktor zwischen RYDBERG-Orbital und Jellium. Der Quotient $\frac{2\pi \langle r \rangle_n}{L_n(z)}$ wichtet die Basisrate um einen Korrekturfaktor, der die Reaktionszeit für das Abstreifen eines Elektrons berücksichtigt.

Der wachsende Überlapp zwischen Projektil- und Leitungsband-Orbitalen sowie die zunehmende Anhebung der Energieniveaus aufgrund der Bildladung (vgl. Abschnitt 2.2.3) rufen einen zweiten, zum PO-Mechanismus konkurrierenden Prozess hervor. Bei diesem auch *Side-Feeding* (SF) genannten Vorgang werden Vakanzen in inneren Schalen des Projektils direkt mit Elektronen aus den überlappenden Leitungsbandzuständen besetzt. Auch für diesen Übergang findet sich nach Ducree [22] in semiklassischer Betrachtung eine Ratengleichung der Form:

$$I_n^{\text{SF}}(z) = I_0^{\text{SF}} \cdot q \cdot N_n^{\text{vac}} \cdot N_n^{\text{ol}}(z) \cdot \left(\frac{n_{\text{loc}} + 1 - n_{\text{L}}}{n_{\text{loc}} + 1 - n} \right)^{3.46}. \quad (2.29)$$

Wieder steht $N_n^{\text{ol}}(z)$ für den Überlappfaktor zwischen den Orbitalvolumina von Projektil- und Leitungsband-Elektron. I_0^{SF} und N_n^{vac} kennzeichnen die Basisrate sowie die Anzahl der Vakanzen in der Schale n. Der letzte Term in Gl. (2.29) ist so modelliert, dass sich die SF-Raten bezüglich ihrer Skalierung mit Δn wie die AUGER-Raten in Gl. (2.27) verhalten. Δn ist dabei so geformt, dass sich für die L-Schale der Wert eins ergibt (n_{loc} - Zustand im Leitungsband aus dem der Transfer erfolgt).

2.2.6 Gesamtelektronenausbeuten

Die Ratengleichung

Die Gesamtheit aller oben eingeführten Prozesse, die zum Ladungsausgleich und zur (teilweisen) Relaxation des Projektils an einer Metalloberfläche beitragen, führt schlussendlich zu einer zeitlichen Entwicklung der Besetzungszahlen der Projektilniveaus a_n , die in Form einer Ratengleichung als

$$\frac{d}{dt}a_n = \Theta(A_n - a_n)I_n^{\text{RN}} - a_n I_n^{\text{RI}} + \omega_n^{\text{f}} \sum_{n'>n} \Gamma_{n',n} \omega_{n'}^{\text{i}} - 2\omega_n^{\text{i}} \sum_{n'<n} \Gamma_{n,n'} \omega_{n'}^{\text{f}} + \Theta(A_n - a_n)I_n^{\text{SF}} - a_n I_n^{\text{PO}} \quad (2.30)$$

geschrieben werden kann. A_n beschreibt dabei die maximale Besetzungszahl der Schale n . Die Ratengleichung berücksichtigt resonanten Einfang (I_n^{RN}) und Verlust (I_n^{RI}), Verlust und Zuwachs aufgrund von AUGER-Prozessen ($\Gamma_{n',n}, \Gamma_{n,n'}$), Elektronenverlust durch *Peel-off* Prozesse (I_n^{PO}) sowie Elektroneneinfang in innere Schalen über den *Side-feeding*-Mechanismus (I_n^{SF}). Für die AUGER-Prozesse finden sich Korrekturterme, die die Raten bezüglich der Anzahl an Elektronen in der finalen Schale (ω_n^{f}) beziehungsweise bezüglich der Ununterscheidbarkeit der Elektronen in der initialen Schale (ω_n^{i}) korrigieren [23].

Für die numerische Bestimmung der zeitlichen Entwicklung des Neutralisationsprozesses existieren verschiedene Lösungsansätze, die sich im Wesentlichen durch die Modellierung der Einzelprozessraten sowie in der zugrunde liegenden speziellen Form des COM unterscheiden. In der ursprünglichen Form des COM [6] wurde zur Modellierung der Besetzungszahlen auf ein einfaches System aus gekoppelten Ratengleichungen zurückgegriffen, in dem resonanter Ladungstransfer sowie AUGER-Übergänge berücksichtigt wurden. Bereits diese einfache Rechnung führte zu qualitativ guten Übereinstimmungen mit dem Experiment.

Ducree *et al.* erweiterten das klassische COM zu einem dynamischen Wechselwirkungsbild, das unter dem Namen DCOM (*dynamic COM*) und in einer erweiterten Version EDCOM (*extended dynamic COM*) in der Literatur zu finden ist [13,23,51,61,62]. In diesen Modellen wird das Konzept des diskreten Ladungstransfers aufgegeben und stattdessen zu einem kontinuierlichen Elektronenstrom übergegangen. Zudem werden in die Gleichungen zur Evolution des hohlen Atoms SF- und PO-Prozesse einbezogen (vgl. Gl. (2.30)). Im EDCOM wird zusätzlich zur Besetzung der Hauptschalen auch die Unterschalenstruktur des Projektils in die numerische Lösung integriert. Mit diesen verbesserten Modellierungen gelang es Ducree eindrucksvoll, experimentelle Ergebnisse zum Ladungsaustausch, zur Gesamtelektronenausbeute und zur Elektronenenergieverteilung in der Simulation zu verifizieren [23,61]. Auch Thomaschewski *et al.* fanden durch das Einbeziehen von SF- und PO-Prozessen in ihre Modellierungen der Ratengleichungen für das System aus Stickstoffionen und Goldoberfläche gute Übereinstimmungen zwischen Theorie und Experiment [63].

Einen quantenmechanisch exakten Zugang zur Abregungsdynamik angeregter Projektile vor Metalloberflächen stellt das *Close-Coupling*-Modell dar [64–67]. Verlässliche Ergebnisse können in dieser Beschreibung jedoch nur für einfach geladene und neutrale Projektile ermittelt werden. Eine Beschreibung der Neutralisationsdynamik unter der Oberfläche, d.h. insbesondere das Auffüllen von Innerschalenvakanzen, findet sich unter anderem im Kaskadenmodell von Stolterfoht *et al.* [68].

In aktuellen theoretischen Untersuchungen zur Neutralisationsdynamik hochgeladener Ionen vor Festkörperoberflächen werden die Wahrscheinlichkeitsdichten für die Projektilbewegung (Kinematik) und die Energieniveaubesetzung von Projektil und Oberflächenatomen (Elektronik) als gemeinsames Ensemble in Form einer LIOUVILLE-MASTER-Gleichung modelliert [8, 9, 69]. Damit können insbesondere für Isolatoroberflächen gute Übereinstimmungen zwischen Experiment und Simulation erzielt werden.

Gesamtelektronenausbeuten

Die vorwiegend nichtstrahlende Relaxation des hochgeladenen Projektils über AD und AI führt zur Emission zahlreicher Sekundärelektronen vor der Oberfläche. Zusätzlich werden über PO-Prozesse bei direktem Kontakt mit der Oberfläche weitere Elektronen ins Vakuum emittiert. Auch bei einer Verschiebung besetzter Energieniveaus (induziert durch Bildladungs- oder Abschirmeffekte IS, SS¹) des Projektils über das Vakuumniveau hinaus können Elektronen abgegeben werden. Nach dem Eindringen des Projektils in die Oberfläche werden verbleibende Innerschalenvakanzen über AUGER-Prozesse unter Emission schneller Elektronen aufgefüllt. Die Gesamtheit aller emittierten Elektronen wird als Potential-Emission (PE) bezeichnet. Sie sei im Folgenden mit γ_e^{PE} bezeichnet. Neben der potentiellen Energie besitzt jedes Projektil vermöge seiner endlichen Geschwindigkeit einen kinetischen Energiebetrag. Der Übertrag der kinetischen Projektilenergie auf Atome und Elektronen der Oberfläche führt (über anschließende Abregungsmechanismen) zu einer zweiten Komponente erzeugter Sekundärelektronen, der kinetischen Emission (KE) [70, 71]. Für die Gesamtheit aller erzeugten Sekundärelektronen gilt:

$$\gamma_e(E_{\text{kin}}, q) = \gamma_e^{\text{KE}}(E_{\text{kin}}) + \gamma_e^{\text{PE}}(E_{\text{kin}}, q). \quad (2.31)$$

Aus Untersuchungen mit einfach geladenen Ionen ist bekannt, dass KE erst ab dem Erreichen einer Mindestgeschwindigkeit v_{th} auftritt. Einfach ausgedrückt lässt sich diese Beobachtung damit erklären, dass der Energieübertrag von kinetischer Projektilenergie an ein Metallelektron mindestens den Betrag der Austrittsarbeit übersteigen muss, um zur Emission zu führen. Der

¹IS: engl. *image shift* (vgl. 2.2.3) / SS engl. *screening shift* (Verschiebung der Projektilniveaus durch partielle Abschirmung der Kernladung bei sukzessiver Neutralisation)

Betrag der Grenzgeschwindigkeit kann über die einfache Beziehung

$$v_{\text{th}} = \frac{1}{2} \left(\sqrt{1 + \frac{W_A}{E_F}} - 1 \right) \quad (2.32)$$

errechnet werden und beträgt für eine Goldoberfläche $v_{\text{th}} = 2.4 \cdot 10^5$ m/s [72, 73]. Die Frage, ob KE vom Ladungszustand des Projektils abhängt, konnte von Eder *et al.* geklärt werden [74, 75]. In diesen Untersuchungen zeigte sich lediglich eine geringe Abhängigkeit vom Ladungszustand für niedrig geladene Projektile. Im Falle hochgeladener Ionen kann der Einfluss des Ladungszustandes jedoch vernachlässigt werden.

Für $v > v_{\text{th}}$ findet sich ein linearer Zuwachs von γ_e^{KE} mit wachsender Projektilgeschwindigkeit [74]. Schlussendlich ergibt sich damit für den kinetischen Anteil der Elektronenemission:

$$\gamma_e^{\text{KE}}(E_{\text{kin}}) = \gamma_0^{\text{KE}} \Theta(v - v_{\text{th}}) v. \quad (2.33)$$

Für Projektilgeschwindigkeiten von v_{th} bis $1 \cdot 10^6$ m/s, ein Intervall, das auch die in der vorliegenden Arbeit verwendeten Projektilenergien abdeckt, fanden Eder *et al.* einen KE-Zuwachs der Elektronenausbeute von $\approx 2 \dots 4$ Elektronen [74]. Wie sich in Kap. 5 zeigen wird, betragen die PE-Elektronenausbeuten auf Gold für die hier verwendeten Projektile bis zu 200 Elektronen, sodass der Einfluss der kinetischen Energie nahezu vernachlässigt werden kann.

Die Abhängigkeit des PE-Anteils von der Projektilgeschwindigkeit lässt sich anhand experimenteller Studien über die empirische Beziehung

$$\gamma_e^{\text{PE}}(v) = \frac{\gamma_0^{\text{PE}}}{\sqrt{v}} + \gamma_{\infty} \quad (2.34)$$

beschreiben [49, 76]. Auch Modellrechnungen auf Grundlage des COM stützen diese Beziehung [60]. Der verringerten Relaxationszeit (für AD und AI) vor der Oberfläche mit wachsender Projektilgeschwindigkeit wird in Gl. (2.34) durch den Term $\frac{\gamma_0^{\text{PE}}}{\sqrt{v}}$ Rechnung getragen. Zusätzlich findet sich der geschwindigkeitsunabhängige Term γ_{∞} . Letzterer beschreibt Elektronenemission nahe und unterhalb der Oberfläche durch PO-, IS- und SS-Prozesse.

Zusammenfassend lässt sich für die Geschwindigkeitsabhängigkeit der Gesamtelektronenausbeute mit (2.33) und (2.34) folgender Ausdruck finden:

$$\gamma_e(v) = \gamma_0^{\text{KE}} \Theta(v - v_{\text{th}}) v + \frac{\gamma_0^{\text{PE}}}{\sqrt{v}} + \gamma_{\infty}. \quad (2.35)$$

Für die Abhängigkeit der PE vom Ladungszustand bzw. von der potentiellen Energie des Projektils lässt sich ebenfalls eine sehr einfache Skalierung finden. Erste Untersuchungen von Arifov *et al.* [36] ergaben einen linearen Anstieg der PE mit E_{pot} für Ladungszustände von $q \leq 8$. Für

höhere Ladungszustände zeigte sich jedoch eine Sättigung der Elektronenausbeute. Im Gegensatz zu niedrig geladenen Ionen ($q \leq 8$) weisen hochgeladenen Projektile zumeist Innerschalenvakanzen auf. Diese können im Allgemeinen (aufgrund der beschränkten Relaxationszeit) bis zum Auftreffen auf der Oberfläche nicht aufgefüllt werden (vgl. Abschnitt 2.2.3). Erst unter der Oberfläche werden innere Schalen aufgefüllt. Damit steht dem Projektil vor der Oberfläche nicht der gesamte Betrag der potentiellen Energie für PE zur Verfügung. Kurz *et al.* konnten zeigen, dass unter der Berücksichtigung ungefüllter Innerschalenvakanzen und unter der Einführung einer effektiv vor der Oberfläche zur Verfügung stehenden potentiellen Energie auch für hochgeladene Projektile das Konzept der linearen PE-Abhängigkeit Gültigkeit behält [60]. Als Funktion der realen Potentialenergie lässt sich ein einfacher Ausdruck der Form

$$\gamma_e^{\text{PE}}(E_{\text{pot}}) = (E_{\text{pot}})^{\beta} \quad (2.36)$$

angeben. Dabei liefert ein Exponent von $\beta \approx 0.5$ sowohl für Metall- als auch für Isolatoroberflächen die beste Übereinstimmung mit experimentellen Daten (vgl. Kapitel 5).

2.2.7 Das Barrieren-Modell für Isolatoroberflächen

Die in den vorangegangenen Abschnitten beschriebenen Mechanismen zur HCI Neutralisation vor Metalloberflächen behalten prinzipiell auch für Oberflächen von Isolatoren Gültigkeit. Aufgrund der geänderten Valenz- und Leitungsbandstruktur, der Bandlücke sowie der reduzierten Ladungsträgermobilität in Isolatoren ergeben sich jedoch teilweise signifikante Unterschiede, die im Folgenden erläutert werden sollen.

Oberflächenpotentiale

In einem Metall befinden sich an der Oberfläche stets frei bewegliche Ladungsträger, die sich durch kollektive Bewegung im ioneninduzierten Potential ausrichten können und damit eine gleich große Spiegelladung aufbauen. In einem idealen Isolator hingegen sind keine freien Ladungsträger vorhanden, stattdessen wird die Oberfläche über lokalisierte Ladungen entsprechend der dielektrischen Funktion $\varepsilon(\omega, \vec{k}) > 1$ polarisiert [77]. In nichtdispersiver Näherung [78] kann die dielektrische Antwort des Isolators auf eine bewegte elektrische Ladung oberhalb der Oberfläche durch den Ausdruck

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_{\infty} + \frac{\varepsilon_0 - \varepsilon_{\infty}}{1 - (\omega/\omega_0)^2 - i(\omega/\omega_0)\zeta} \quad (2.37)$$

bestimmt werden. Darin enthalten sind der statische ($\varepsilon_0 = \varepsilon(0)$) und der optische ($\varepsilon_{\infty} = \varepsilon(\infty)$) Grenzfalle, die charakteristische Frequenz ω_0 sowie eine Dämpfungskonstante ζ [79]. Bewegt sich das einfallende Ion senkrecht auf die Oberfläche zu, wie es für alle in dieser Arbeit durch-

geführten Experimente der Fall ist, so kann $\varepsilon(\omega)$ in erster Näherung durch ε_0 approximiert werden [26]. In dieser Näherung wird das Bildladungspotential aus Gl. (2.2) zu einer Funktion von ε_0 der Form

$$V_{\text{Ion} \leftrightarrow \text{Bild}}(R) = \chi \frac{q^2}{4R} \quad (2.38)$$

mit der Suszeptibilität $\chi = \frac{(\varepsilon_0 - 1)}{(\varepsilon_0 + 1)}$. Für den Energiegewinn durch die Bildladungsbeschleunigung vor einer Isolatoroberfläche ergibt sich damit bei sukzessiver Ionisation (Stufenapproximation):

$$\Delta E_{\text{kin}} = \sum_{i=0}^{q-1} \chi \frac{(q-i)^2}{4} \left[\frac{1}{R_{\text{krit.}}(q-i)} - \frac{1}{R_{\text{krit.}}(q-i+1)} \right]. \quad (2.39)$$

Auch der kritische Abstand $R_{\text{krit.}}$ wird für Isolatoroberflächen zu einer von der Dielektrizität abhängigen Funktion. Nach Barany und Setterlind [80] findet sich:

$$R_{\text{krit.}}(q) = \frac{\sqrt{2q\varepsilon_0(7+\varepsilon_0)}}{(\varepsilon_0+1)W_A}. \quad (2.40)$$

Lokale Oberflächenladung

Der Transfer von Elektronen aus der Oberfläche zum Projektil hat für Metalle keine Auswirkung auf die mikroskopische Aufladung der Oberfläche. Sobald eine Ladung aus der Oberfläche entfernt ist wird diese aufgrund der guten Leitfähigkeit mit einer verschwindenden Zeitkonstante $\tau_q \sim v_F^{-1} \approx 10^{-17}$ s abgebaut (v_F - FERMI-Geschwindigkeit). Die im allgemeinen schlechte Leitfähigkeit in Isolatoren führt jedoch dazu, dass Oberflächenladungen nur mit einer endlichen Zeitkonstanten von $\tau_q \approx 10^{-7}$ s – 10^{-6} s abgebaut werden können. Diese übersteigt die typischen Wechselwirkungszeiten um bis zu 7 Größenordnungen. In Konsequenz bildet sich entlang der Trajektorie des einfallenden Ions eine positive Ladungsspur $Q_i(x_i, t)$ (vgl. Abb. 2.9). Die damit verbundene Linienladung bewirkt eine zusätzliche, abstoßende Kraft auf das Projektil und muss in die Berechnung für das Gesamtpotential einbezogen werden (s.u.). Für die mikroskopischen Aufladungen gilt:

$$Q_i(x_i, t) = Q_i(x_i) \exp \left\{ -\frac{t-t_i}{\tau_q} \right\}. \quad (2.41)$$

Zum Zeitpunkt t_i bilden sich am Ort x_i Ladungen $Q_i(x_i)$ und zerfallen mit der Zeitkonstante τ_q . Letzteres lässt sich aus der Leitfähigkeit σ sowie aus geometrischen Betrachtungen bestimmen. In [22] findet sich

$$\tau_q = \frac{2\varepsilon\varepsilon_0}{\sigma}. \quad (2.42)$$

Für den Spezialfall des senkrechten Ioneneinfalls und auf der Grundlage der Stufenapproximation des COM findet sich in [81] eine einfache Modellierung zur Bestimmung des abstoßenden

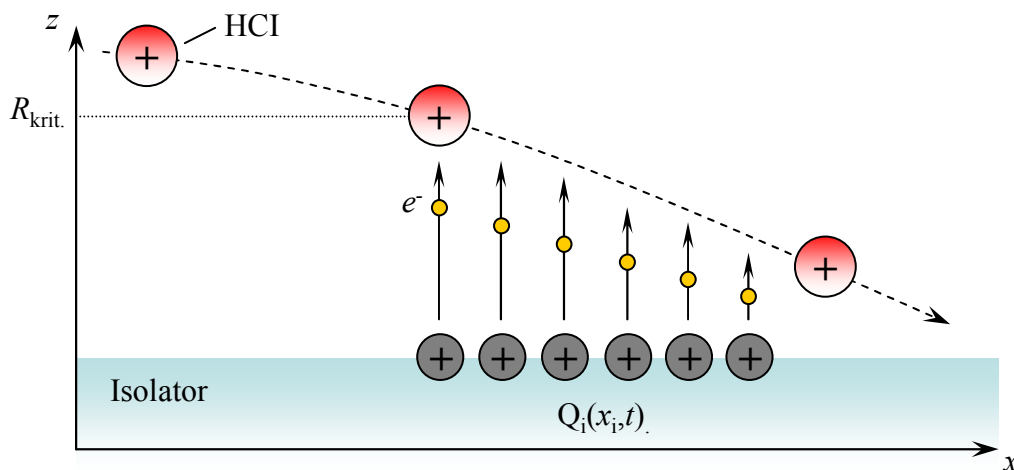


Abbildung 2.9: Schematische Abbildung zur Formierung einer lokalen Ladungsspur $Q_i(x_i, t)$ auf Isolatortoberflächen.

Potentials $V_{\text{decel.}}$ vermöge der Oberflächenladung. Hierbei wird angenommen, dass bei senkrechtem Einfall alle lokalen Ladungen Q_i in einem Punkt (dem senkrechten Eintreffpunkt des Ions) erzeugt werden und dort die Gesamtladung Q bilden. Das repulsive Potential $V_{\text{decel.}}$ kann somit als

$$V_{\text{decel.}} = \frac{Q}{z} \quad (2.43)$$

angegeben werden. Für den damit verbundenen kinetischen Energieverlust ergibt sich

$$\Delta E_{\text{decel.}} = - \sum_{i=0}^{q-1} \chi (q-i) Q \left[\frac{1}{R_{\text{krit.}}(q-i)} - \frac{1}{R_{\text{krit.}}(q-i+1)} \right]. \quad (2.44)$$

Für die sukzessive Neutralisation in der Stufenapproximation gilt $Q = i$. Dabei bleiben Autoionisationsprozesse, die zur Re-Ionisation des Projektils führen können unberücksichtigt². Durch die Suszeptibilität χ in Gl. (2.44) wird der Tatsache Rechnung getragen, dass die Isolatortoberfläche in unmittelbarer Umgebung der Ladung Q polarisiert wird und damit eine effektive Abschirmung von Q hervorruft. Der Gesamtenergiegewinn für ein Projektil vor der Oberfläche eines Isolators ergibt sich schlussendlich als Differenz von Gl. (2.39) und Gl. (2.44) zu

$$\Delta E_{\text{kin.}}^{\text{tot.}} = - \sum_{i=0}^{q-1} \chi \frac{(q-i)}{4} (q-5i) \left[\frac{1}{R_{\text{krit.}}(q-i)} - \frac{1}{R_{\text{krit.}}(q-i+1)} \right]. \quad (2.45)$$

Neben der Reduzierung der Bildladungsbeschleunigung bewirkt das Potential $V_{\text{decel.}}$ zusätzlich eine Verschiebung der Potentialbarriere zwischen Projektil und Oberfläche. Das Barrierenpo-

²Für eine exakte Bestimmung von $\Delta E_{\text{decel.}}$ müssten auch die AUGER-Übergangsraten in der Berechnung von Q berücksichtigt werden.

tential aus Gl. (2.3) ändert sich für einen Isolator in:

$$V(z, Q) = -\frac{q}{z-R} + \chi \left(\frac{q}{z+R} - \frac{1}{4z} - \frac{Q}{z} \right). \quad (2.46)$$

Demnach werden die Höhe der Potentialbarriere und damit auch $R_{\text{krit.}}(q, Q)$ zu einer Funktion der lokalen Oberflächenladung Q . Eine Bestimmung von $R_{\text{krit.}}(q, Q)$ aus Gl. (2.46) ist analytisch nicht mehr möglich und kann nur auf numerischem Wege erfolgen. Für einfache Modellrechnungen, insbesondere auf Halbleiteroberflächen, liefert jedoch bereits die Verwendung des (Q -unabhängigen) kritischen Abstandes aus Gl. (2.40) akzeptable Ergebnisse.

Numerische Simulationen, die dem Wechselwirkungsprozess zwischen hochgeladenem Ion und Isolatoroberfläche ein weit komplexeres Modell als das hier beschriebene zugrunde legen, finden sich unter anderem in [5, 9, 23, 26, 69]. Experimentelle Ergebnisse für den Wechselwirkungsprozess mit Isolatoren sind nur begrenzt verfügbar [4, 82–84]. Die Hauptursache hierfür stellen Unzulänglichkeiten dar, die sich aus der makroskopischen Aufladung der Isolatoroberfläche während der Bestrahlung mit Ionen ergeben. Nur für sehr kleine Ionenströme und unter gleichzeitigem Heizen der bestrahlten Probe können Aufladungseffekte reduziert werden. Insbesondere bei Alkalihalogenid-Kristallen kann bei hinreichend hoher Temperatur eine erhöhte Ionenleitung induziert werden, um makroskopische Aufladungen zu unterdrücken [83]. Für die Wechselwirkung von sehr langsamen ($E_{\text{kin}} < 500 \text{ eV}$) hochgeladenen Projektilen mit Isolatoroberflächen konnten, zum Teil erstmalig, in der vorliegenden Arbeit experimentelle Studien erarbeitet werden.

2.3 Potentieller Energieeintrag in die Oberfläche

Die Betrachtungen im vorangegangenen Abschnitt haben gezeigt, dass die Neutralisation hochgeladener Ionen vor Festkörperoberflächen im Wesentlichen durch Ladungsaustauschprozesse und die Emission zahlreicher Elektronen vor und unter der Oberfläche gekennzeichnet ist. Die ursprüngliche potentielle Energie des Projektils wird dabei sukzessive über zwei Hauptprozesse in die Oberfläche eingetragen:

- Der Transfer eines Elektrons von der Oberfläche in einen unbesetzten Projektilzustand hinterlässt in der Oberfläche eine Vakanz (elektronische Anregung), welche in darauf folgenden Prozessen aufgefüllt wird oder über kompliziertere Abregungskanäle relaxieren kann. Die dabei freiwerdende Energie verbleibt in der Oberfläche.
- Die durch nichtstrahlende Relaxation des Projektils emittierten Elektronen können in die Oberfläche eindringen und geben dort ihre Energie an das Kristallgitter ab.

In letzterem Punkt muss eine Fallunterscheidung für Elektronenemission vor und unter der Oberfläche vorgenommen werden. Für Projektilelektronen, die vor der Oberfläche emittiert werden, kann ohne Beschränkung der Allgemeinheit eine uniforme Winkelverteilung in alle Raumrichtungen angenommen werden. Damit wird die Hälfte dieser Elektronen in Richtung der Oberfläche emittiert und kann dort ihre Energie an den Kristall abgeben. Die andere Hälfte der Elektronen wird von der Oberfläche weg emittiert und steht dem Übertrag der potentiellen Energie vom Ion zur Oberfläche nicht mehr zur Verfügung. Auch für den Anteil unter der Oberfläche erzeugter Elektronen kann eine gleichverteilte Emission in alle Raumrichtungen angenommen werden. Hier tragen jedoch auch solche Elektronen zu einem Energieübertrag an den Kristall bei, die in Richtung Oberfläche zurück emittiert werden. Zwar verlassen diese die Oberfläche wieder, auf ihrem Weg vom Ort der Erzeugung bis zur Oberfläche deponieren sie jedoch einen Teil ihrer Energie über Streuprozesse im Kristall. Der genaue Betrag der deponierten Energie solcher Elektronen, die unter der Oberfläche erzeugt werden, hängt dabei in erster Linie von der mittleren freien Weglänge für Elektronen im Kristall sowie der Stärke der Elektron-Phonon-Kopplung des Gitters ab.

Es zeigt sich also, dass nicht der gesamte Betrag der potentiellen Projektilenergie in die Oberfläche eingetragen wird. Erste experimentelle Studien zum Energieeintrag hochgeladener Ionen in Oberflächen gehen auf Schenkel *et al.* [85] sowie auf Kentsch *et al.* [86,87] zurück. Über eine kalorimetrische Messmethode wurde von Kentsch *et al.* der Anteil der im Kristall deponierten potentiellen Energie ermittelt. Spätere, verfeinerte Messungen von Kost *et al.* [3] berücksichtigten neben der kalorimetrischen Messung der deponierten Potentialenergie auch den Anteil emittierter Potentialenergie aus zusätzlichen Messungen der Elektronenenergieverteilung emittierter Elektronen. Dabei wurde gezeigt, dass das Verhältnis zwischen deponierter und emittierter Potentialenergie nur schwach vom Ladungszustand des Projektils abhängt. Typische Werte für die Anteile deponierter und emittierter Potentialenergie finden sich in [3] für eine Kupferoberfläche und Argonprojekte mit Ladungszuständen von $q = 1 \dots 9$ als $E_{\text{dep}} \approx 0.6 \dots 0.8 \cdot E_{\text{pot}}$ und $E_{\text{emitt.}} \approx 0.2 \dots 0.4 \cdot E_{\text{pot}}$.

Eine detailliertere Beschreibung zum Energieeintrag hochgeladener Ionen in Festkörperoberflächen findet sich unter anderem in [25, 81, 87]. Für die in dieser Arbeit betrachteten Systeme aus hochgeladenen Xenonprojekten und verschiedenen Isolatoroberflächen existieren keine experimentellen Daten für die Balance zwischen deponiertem und emittiertem Anteil der potentiellen Energie während des Wechselwirkungsprozesses. Wie sich jedoch in Kapitel 4 zeigen wird, lassen sich die experimentellen Befunde der vorliegenden Arbeit am genauesten in Einklang mit den vorgestellten theoretischen Modellen bringen, wenn für den Anteil der deponierten Potentialenergie auf die Werte von Kost *et al.* [3] zurückgegriffen wird.

2.4 Potentialsputtern

Der (partielle) Eintrag der potentiellen Energie des hochgeladenen Ions in die Oberfläche vollzieht sich auf einem räumlich begrenzten Gebiet von nur wenigen nm^2 und, wie in Abschnitt 2.2.3 gezeigt, auf einer Zeitskala von einigen 10fs bis einigen 100fs. Mit potentiellen Energien im Bereich von einigen 10keV, wie sie in den hier verwendeten Xenonprojektile auftreten, ergibt sich damit eine extrem hohe Energiedichte ($10^{12}\text{W}/\text{cm}^2$ bis $10^{14}\text{W}/\text{cm}^2$). Auch die Dichte elektronischer Anregungen in der Oberfläche, verursacht durch Ladungstransfer zum Projektil, kann zum Teil sehr hohe Werte annehmen. Die Relaxation dieser elektronischen Anregungen sowie die Dissipation der eingetragenen potentiellen Energie können zu einem extremen Ungleichgewichtszustand des Kristallgitters führen. Im Verlauf der Relaxation kann der Energietransfer an einige Gitteratome so hoch werden, dass diese das Kristallgefüge verlassen und ins Vakuum emittiert werden. Der Prozess des Emittierens (Sputterns) von Atomen aus der Oberfläche aufgrund des potentiellen Energieeintrages aus einem hochgeladenen Ion wird als Potentialsputtern (PS) bezeichnet. Die gesputterten Teilchen müssen dabei nicht zwingend in neutraler Form emittiert werden. Sie können den Kristall auch als positiv oder negativ geladene Sekundärionen verlassen.

Schon Mitte der Siebziger Jahre fanden Radzhabov *et al.* [88] erste experimentelle Hinweise auf den Mechanismus des Potentialsputterns. Dabei konnte für den Beschuss von Silizium mit Argonionen eine starke Abhängigkeit der Sekundärionenausbeute vom Ladungszustand der Projektile festgestellt werden. In moderneren Untersuchungen zeigten Neidhart *et al.* [89, 90] mit Hilfe eines Quarzkristalloszillators für die Neutralteilchen-Emission beim Beschuss von Isolatorkristallen mit hochgeladenen Ionen ebenfalls eine starke Abhängigkeit der Sputterausbeute vom Ladungszustand der Projektile. Die durch Potentialsputtern hervorgerufenen Teilchenausbeuten übersteigen schon bei vergleichsweise geringen Ionenladungszuständen die Ausbeuten des kinetischen Sputterns³ mit einfach geladenen Projektile um ein Vielfaches.

Aus den vorangegangenen Überlegungen kann bereits ohne Kenntnis über den genauen Hergang des Sputtervorganges eine wesentliche Eigenschaft des Potentialsputterns abgeleitet werden: Um ein effektives Sputtern zu gewährleisten, müssen räumlich lokalisierte elektronische Anregungen vorhanden sein, die über Kopplung an das Kristallgitter relaxieren können. Demnach scheint es nicht verwunderlich, dass Potentialsputtern aus Metalloberflächen nicht (oder nur in geringem Maße) auftreten kann. Durch das Vorhandensein frei beweglicher Elektronen im Metallgitter können die durch das HCI induzierten elektronischen Anregungen instantan relaxieren, ohne dabei energetisch an das Kristallgitter zu koppeln. In Isolatoren hingegen, in denen keine freien Ladungsträger vorhanden sind, können elektronische Anregungen nur über Kopplung an das phononische System (Gitter) relaxieren.

³Bei dieser bekannten Form des Sputterns werden Atome des Kristalls aufgrund von elastischen und inelastischen Stößen mit dem Projektil aus dem Gitter entfernt.

Im Folgenden sollen zwei Modelle, die den Prozess des Potentialsputterns in einem mikroskopischen Bild beschreiben, erläutert und miteinander verglichen werden. Dabei handelt es sich um das COULOMB-Explosions-Modell sowie das Modell der defekt-induzierten Desorption. Letzteres soll in diesem Kapitel nur in seinen Grundzügen erläutert werden, da es in Kapitel 4 detaillierter und in modifizierter Form beschrieben und über die Grenzen des reinen Potentialsputterns hinaus auch zur Beschreibung der Nanostrukturierung des speziellen Systems aus Xe^{9+} -Ionen und der KBr-Oberfläche herangezogen wird. Trotz ihrer unterschiedlichen Ansätze fordern beide Modelle unabhängig voneinander, dass, wie oben bereits abgeleitet, Potentialsputtern grundsätzlich nur auf Isolatoroberflächen zum Tragen kommen kann.

2.4.1 Das COULOMB-Explosions-Modell

Im Rahmen des Modells der COULOMB-Explosion (CEM), das von Parilis *et al.* [91] für hochgeladene Ionen vorgeschlagen wurde, wird angenommen, dass die Neutralisation des HCI vor der Oberfläche zu einer Verarmung an Elektronen in unmittelbarer Umgebung der Einschlagstelle führt. Die gegenseitige COULOMB-Abstoßung der entstehenden Oberflächenionen kann daraufhin zum Ausstoß von Sekundärionen aus der positiv geladenen mikroskopischen Oberflächendomäne führen. Die durch die COULOMB-Explosion hervorgerufene Schock-Welle kann anschließend die Ablösung von weiterem Oberflächenmaterial initiieren (Emission von Atomen und Clustern). Damit erklärt das CEM nicht nur das verstärkte Sputtern von Sekundärionen sondern auch die Emission von Neutralteilchen. Abbildung 2.10 zeigt schematisch die beschriebenen Prozesse. Molekular-Dynamik-Simulationen zum CE-Prozess in Silizium [92] haben ge-

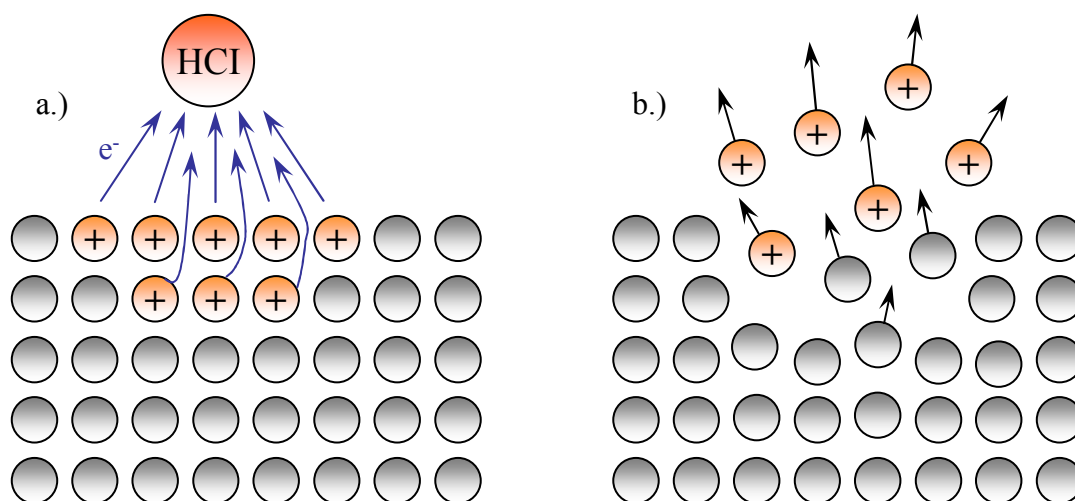


Abbildung 2.10: Schematische Abbildung zum Modell der COULOMB-Explosion. Lokale Ansammlung positiver Ladungen durch Elektronentransfer zum Projektil (a) sowie durch COULOMB-Repulsion und Schockwelle(n) hervorgerufene Emission von Sekundärionen und -atomen (b).

zeigt, dass während der HCI-Si-Wechselwirkung im Mittel 265 Siliziumionen in einer Halbku-

gel unmittelbar unter der Oberfläche erzeugt werden können. Die Neutralisation dieser Ionen durch Auffüllen mit Elektronen aus der Umgebung der Einschlagstelle vollzieht sich jedoch nicht schnell genug, sodass die in der Ladungsregion gespeicherte elektrostatische Repulsionsenergie eine Schockwelle auslösen kann. Letztere leitet einen Emissionsprozess ein, in dessen Folge eine kraterähnliche Struktur auf der Oberfläche zurückbleibt. Die MD-Simulationen aus [92] zeigen weiterhin, dass sich für die kinetische Energie der gesputterten Sekundärteilchen im Mittel Werte um 100 eV ergeben. Dieses Resultat wird, wie sich im Folgenden zeigen wird, einen der wesentlichen Gründe dafür darstellen, dass das CEM zur korrekten physikalischen Beschreibung des Potentialsputterns auf Isolatoroberflächen verworfen wurde [93]. Nur in einigen Spezialfällen, wie zum Beispiel dem PS von Kohlenwasserstoffverbindungen [94, 95], erweist sich das CEM als geeignete Beschreibung der experimentellen Beobachtungen (siehe auch [96]). Für die Beschreibung des PS-Prozesses auf Oberflächen von Ionenkristallen und Isolatoren mit starker Elektronen-Phonon-Kopplung hat sich das weitaus effektivere Modell der defekt-induzierten Desorption (*defect mediated sputtering*, DS) durchgesetzt [89, 90].

2.4.2 Defekt-induzierte Desorption

In Isolatoren mit starker Elektron-Phonon-Kopplung, d.h. in solchen Kristallen in denen Elektronen stark lokalisiert sind (Ionenkristalle, Kristalle mit stark kovalenter Bindung), können elektronische Anregungen aus der Relaxation des hochgeladenen Ions mit dem Gitter in Wechselwirkung treten und zur Erzeugung einfacher Kristalldefekte führen. Bei diesen Defekten handelt es sich zumeist um Gitterfehlstellen sowie Zwischengitteratome. Unter bestimmten Voraussetzungen (vgl. Kapitel 4.1) können diese Defekte ihre Position im Kristall wechseln und an die Oberfläche diffundieren. Die Annihilation dieser Defekte mit der Oberfläche führt dabei zur Neutralisation von Oberflächenatomen (genauer Oberflächenionen) wodurch diese ihre Bindung an den Kristall verlieren und ins Vakuum emittiert werden können.

Den einzigen kinetischen Energieübertrag, den desorbierte Atome bei dieser Form des Potentialsputterns erfahren, stellt der thermische Impulsübertrag durch benachbarte Oberflächenatome dar. Die Energieverteilung der gesputterten Sekundärteilchen sollte demnach die Form einer MAXWELL-BOLTZMANN-Verteilung mit Schwerpunkt bei der Oberflächentemperatur der Probe aufweisen. Da die Ursache des Sputterns im DS-Modell in der Neutralisation von Oberflächenionen liegt, ist zudem zu erwarten, dass Sekundärteilchen nahezu ausschließlich in neutraler Form von der Oberfläche emittiert werden.

Die Anzahl der durch den DS-Mechanismus emittierten Sekundärteilchen kann in erster Näherung als proportional zur Anzahl zuvor erzeugter Kristalldefekte betrachtet werden. Die Quantität letzterer wird ihrerseits ausschließlich durch die Anzahl elektronischer Anregungen aus der HCI-Relaxation bestimmt. Eine Erhöhung der Sekundärteilchenausbeute mit wachsender Potentialenergie der Projektile wird demnach auch in diesem Modell postuliert. In der Tat zeigt

sich experimentell für alle Isolatoren auf denen PS beobachtet wurde eine solche Abhängigkeit [89, 90, 97–99].

Aus den genannten Mechanismen lassen sich zwei essentielle Unterschiede zum CE-Modell ableiten:

- Das CE-Modell fordert einen hohen Anteil (positiver) Sekundärionen an der Gesamtheit aller gesputterten Teilchen, wohingegen im DS-Modell nahezu alle Sekundärteilchen in neutraler Form emittiert werden.
- Während im Rahmen der CE Sekundärteilchen mit relativ hohen kinetischen Energien im Bereich von einigen 10 eV bis 100 eV emittiert werden [92], sagt das DS-Modell eine Emission mit thermischen Energien im Bereich einiger meV voraus (abhängig von der Oberflächentemperatur).

Experimente zum PS von Alkalihalogeniden und SiO₂ bei Beschuss mit hochgeladenen Ionen haben gezeigt, dass weniger als 1 Prozent der totalen Sputterausbeute auf die Emission von Sekundärionen zurückgeht [100]. Zudem ergaben Untersuchungen mittels Flugzeit-Spektroskopie, dass die Energieverteilung der gesputterten Atome in der Tat einer MAXWELL-BOLTZMANN-Verteilung unterliegt [101]. Der Schwerpunkt dieser Verteilung konnte dabei, wie vom DS-Modell vorhergesagt, als die mittlere Temperatur an der Kristalloberfläche identifiziert werden. Beide Befunde konnten mit den Vorhersagen des CE-Modells nicht vereint werden und führten zu dem Schluss, dass für Isolatoren, die durch starke Elektron-Phonon-Kopplung charakterisiert sind, Potentialsputtern ausschließlich auf DS zurückzuführen ist.

2.5 Nanostrukturierung durch hochgeladene Ionen

Einen der wohl interessantesten Effekte der HCI-Festkörper-Wechselwirkung stellt, insbesondere in Hinblick auf technologische Prozesse, die Nanostrukturierung von Oberflächen dar [1]. Wie im vorangegangenen Abschnitt erläutert, initiiert die Neutralisation hochgeladener Ionen an Festkörperoberflächen eine Vielzahl elektronischer Anregungen, die unter bestimmten Voraussetzungen stark an das Kristallgitter koppeln können. Neben dem daraus resultierenden PS-Mechanismus kann der hohe Energieeintrag in die Oberfläche zu einer permanenten Umordnung im Kristallgefüge führen, wodurch an der Einschlagstelle des Ions eine strukturelle Änderung verbleibt. Da sich der Neutralisationsprozess auf einem räumlich begrenzten Gebiet von nur wenigen nm² vollzieht, lässt sich auch für die Größe der so erzeugten Nanostrukturen eine ähnliche Ausdehnung erwarten. Die explizite Form und Größe solcher Strukturen hängt dabei stark von der speziellen Wahl des Probenmaterials ab.

In der Literatur finden sich zahlreiche, zumeist phänomenologische Experimente zur Erzeugung von Nanostrukturen durch Beschuss mit hochgeladenen Ionen. Die Palette an untersuchten

Oberflächen erstreckt sich dabei über einen weiten Bereich von Isolatoren wie Saphir (Al_2O_3), SiO_2 und MICA⁴ [2, 10, 102, 103] sowie auf leitende Oberflächen von HOPG⁵ [11, 104, 105], Silizium [106, 107] und Gold [12, 108]. Dabei zeigen bis auf wenige Ausnahmen [12] nahezu alle Experimente eine wohl definierte Abhängigkeit der Größe der erzeugten Nanostrukturen von der potentiellen Energie, wohingegen der Einfluss der kinetischen Projektilenergie zumeist vernachlässigbar scheint. Konsistente Erklärungsmodelle, die den Vorgang vom Beginn der Neutralisation des HCI vor der Oberfläche bis hin zur Formierung einer individuellen Nanostruktur beschreiben, existieren jedoch bis auf zwei, im Folgenden beschriebene Spezialfälle, nicht bzw. nur in eingeschränkter Form.

Die Nanostrukturierung kristalliner Oberflächen (insbesondere von Ionenkristallen und Oxiden) durch Beschuss mit sehr schnellen Ionen (engl. *swift heavy ions*, SHI) ist seit mehreren Jahrzehnten Gegenstand experimenteller sowie theoretischer Untersuchungen und gilt zum heutigen Zeitpunkt als weitestgehend verstanden [109–111]. Dabei wird davon ausgegangen, dass durch den hohen Übertrag kinetischer Projektilenergie an den Kristall entlang der Trajektorie des einfallenden Teilchens Phasenübergänge im Kristall hervorgerufen werden können, welche in Konsequenz zu hügelartigen Ausstülpungen an der Oberfläche (engl. *hillocks*) führen können. Zudem konnte für diese Form der Nanostrukturierung ein Grenzwert der mittleren eingetragenen kinetischen Energie pro Weglänge ($|\frac{dE}{dx}|_{\min}$) gefunden werden [112, 113] (für CaF_2 beispielsweise 5 keV/nm [114]). Kinetische Energien zum Erreichen eines solchen Grenzwertes liegen, abhängig von der Projektilmasse, im Bereich von einigen 10 MeV bis einigen GeV. Für Projektilgeschwindigkeiten dieser Größenordnung beträgt die mittlere Ioneneindringtiefe je nach Probenmaterial mehrere 100 nm, wodurch die Nanostrukturierung der Oberfläche immer mit Schäden in tieferen Schichten verbunden ist.

Langsame hochgeladene Ionen mit kinetischen Energien von einigen keV besitzen hingegen nur Eindringtiefen von wenigen nm. Zudem erfolgt der Übertrag ihrer potentiellen Energie nahezu ausschließlich auf Gitteratome innerhalb der ersten Atomlagen der Oberfläche. Der damit verbundene (potentielle) Energieverlust pro Weglänge $\frac{dE_{\text{pot}}}{dx}$ kann für hohe Ladungszustände über den Betrag der oben genannten Grenzeenergie $|\frac{dE}{dx}|_{\min}$ für die Hillock-Formierung ansteigen. Demnach sollten hochgeladene Ionen vermöge ihrer potentiellen Energie ein ebenso effektives Werkzeug zur Formierung hillock-ähnlicher Strukturen darstellen wie *swift heavy ions*, jedoch mit dem entscheidenden Unterschied, keine Schäden in tieferen Atomlagen zu verursachen. In der Tat konnten El-Said *et al.* in jüngsten Untersuchungen eine Hillock-Formierung durch hochgeladene Ionen auf der CaF_2 -Oberfläche aufzeigen [115]. Dabei fand sich eine starke Abhängigkeit des Volumens der erzeugten Hillocks vom Ladungszustand der Projektile. Zudem konnte gezeigt werden, dass die Formierung von Hillocks erst ab einem bestimmten Grenzwert in der potentiellen Projektilenergie auftritt [116].

⁴MICA - nicht-leitende Kalium-Aluminium-Silikat-Verbindung: $\text{KAl}_2(\text{AlSi}_3)\text{O}_{10}(\text{OH})_2$ (Glimmer).

⁵engl.: highly orientated pyrolytic graphite - spezielle Kohlenstoff-Modifikation

Bei den von El-Said *et al.* durchgeführten Experimenten betrug die kinetische Energie der Ionen zwischen $4\text{keV} \times q$ und $10\text{keV} \times q$. Damit konnte nicht zweifelsfrei geklärt werden, ob die Erzeugung von Hillocks ausschließlich durch den potentiellen Energieeintrag in die Oberfläche hervorgerufen wurde, oder ob es zusätzliche kinetische Effekte gab, die am Prozess der Hillock-Formierung beteiligt sind. Zudem blieb die Frage offen, ob und wie sich eine Änderung der Projektilgeschwindigkeit auf den Grenzwert der potentiellen Energie auswirken würde. Um Antworten auf diese Fragen zu finden wurden im Rahmen dieser Arbeit in Kooperation mit der Arbeitsgruppe von Herrn Prof. Dr. Friedrich Aumayr der Technischen Universität Wien systematische Messungen zur Hillock-Formierung auf CaF_2 bei kleinsten Projektilgeschwindigkeiten durchgeführt. Mit diesen Messungen konnte eindeutig belegt werden, dass die Erzeugung von Hillocks ausschließlich auf Effekte des potentiellen Energieeintrags zurückzuführen ist und dass der Grenzwert der potentiellen Energie nur eine geringe Abhängigkeit von der Projektilgeschwindigkeit aufweist [117]. Eine detaillierte Beschreibung der durchgeführten Experimente, der gewonnenen Ergebnisse sowie des zugrunde liegenden Modells zur Hillock-Entstehung wird in Kapitel 4.2 vorgestellt.

Neben den Experimenten zur Nanostrukturierung der CaF_2 -Oberfläche konnte im Rahmen dieser Arbeit erstmals gezeigt werden, dass auch durch den Mechanismus der defekt-induzierten Desorption permanente Nanostrukturen in Form mono-atomar tiefer Löcher auf der Oberfläche eines Alkalihalogenidkristalles erzeugt werden können [118]. Um diese experimentellen Befunde zu erklären, wurde das ursprüngliche DS-Modell des Potentialspatters unter Einbeziehung von Effekten der Defekt-Agglomeration modifiziert. Ein detailliertes Bild dieser Theorie auf der Basis von Experimenten zur Bestrahlung von KBr mit langsamen hochgeladenen Xenonionen findet sich in Kapitel 4.1.

Kapitel 3

Experimenteller Aufbau und Untersuchungsmethoden

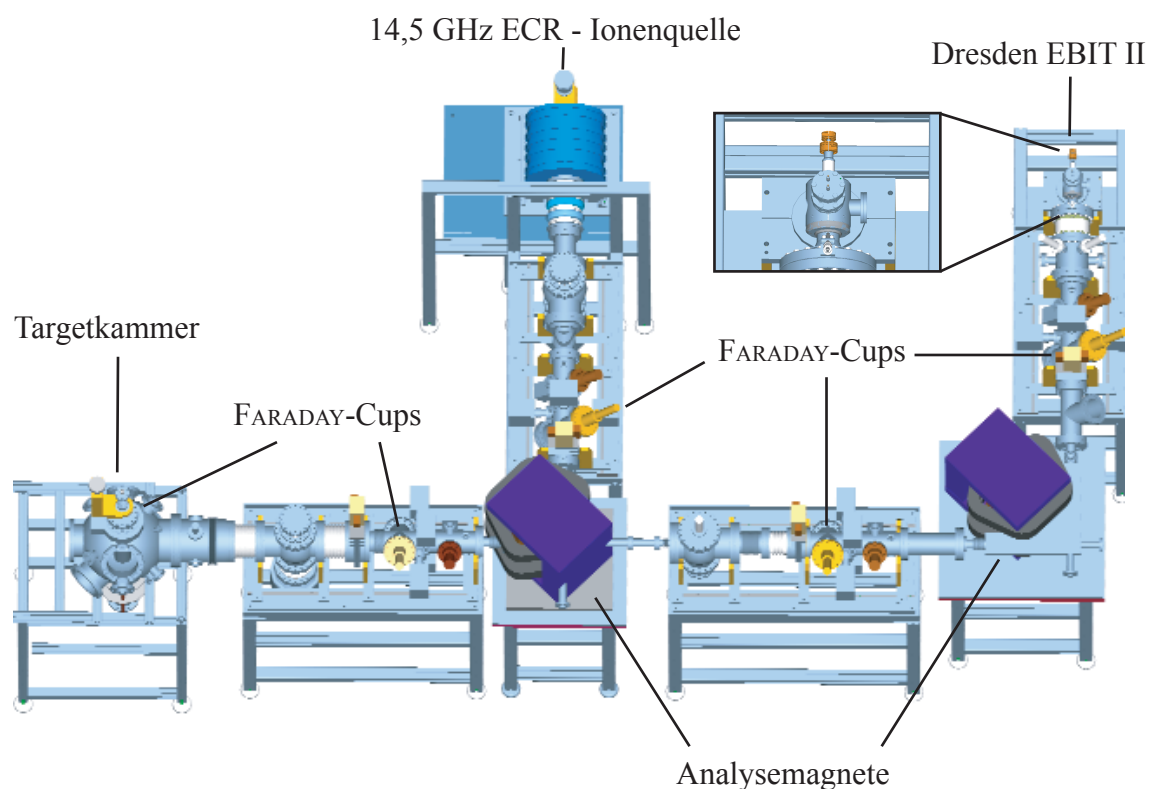


Abbildung 3.1: Zeichnung der Rossendorfer Zweiquellen-Ionenstrahlanlage.

Die in dieser Arbeit vorgestellten Experimente zur Nanostrukturierung von Festkörperoberflächen sowie zur Sekundärelektronenemission während der HCI-Oberflächen-Wechselwirkung wurden an der Zweiquellen-Ionenstrahlanlage des Forschungszentrums Dresden-Rossendorf durchgeführt. Diese Apparatur besteht aus zwei Strahlzweigen, die an eine 14.5 GHz-Elektronen-

Zyklotron-Resonanz-Ionenquelle (ECR) sowie an eine Elektronen-Strahl-Ionenquelle (EBIT) gekoppelt sind und in eine gemeinsame Targetkammer münden. Abbildung 3.1 zeigt den schematischen Aufbau der Anlage. Aufgrund der unterschiedlichen Wirkungsprinzipien beider Quellen ergeben sich unterschiedliche erreichbare Ladungszustände sowie unterschiedliche Ionenströme. Auch die Extraktionsenergien der Ionen aus ECR und EBIT unterscheiden sich. Eine weitere Besonderheit der Rossendorfer Zweiquellenanlage besteht in der Möglichkeit, das elektrische Potential des Strahlkanals gegenüber dem des Targets abzusenken (siehe Abschnitt 3.3). Damit kann die kinetische Energie der Ionen beim Erreichen des Targets stufenlos bis auf wenige 10eV gesenkt werden. So lassen sich Experimente realisieren, bei denen sich der Einfluss der kinetischen Projektil-Energie während der HCI-Festkörper-Wechselwirkung auf ein Minimum reduzieren lässt. Die Möglichkeit, Ionen mittleren Ladungszustandes aus einer ECR-Ionenquelle und hochgeladene Ionen aus einer Elektronenstrahl-Ionenquelle an einer Strahlanlage zu extrahieren, im Bedarfsfall abzubremsen und dem Experiment zugänglich zu machen, ist an der Rossendorfer Zweiquellenanlage einmalig und ermöglicht ein weites Spektrum an Experimenten zur Untersuchung der Ionen-Festkörper-Wechselwirkung. Im Folgenden sollen die für die Experimente der vorliegenden Arbeit relevanten Bestandteile der Anlage sowie der Aufbau der Experimentierkammer beschrieben werden. Eine detaillierte Beschreibung der Rossendorfer Zweiquellenanlage findet sich unter anderem in [25, 81, 119, 120]. Da für alle durchgeführten Experimente ausschließlich die Dresden EBIT zur Ionenerzeugung benutzt wurde, wird auf die Funktionsweise der ECR-Ionenquelle nicht explizit eingegangen. An dieser Stelle sei auf weitergehende Literatur zum Aufbau und zur Funktionsweise von ECR-Ionenquellen verwiesen [121–123].

Die Beobachtung sowie die Charakterisierung der in 4.1 und 4.2 vorgestellten Nanostrukturen erfolgt mittels Raster-Kraft-Mikroskopie. Auf dieses Verfahren zur topologischen Analyse von Oberflächenstrukturen im nm-Bereich soll in Abschnitt 3.5 eingegangen werden.

3.1 Ionenerzeugung in der Dresden EBIT

Die Erzeugung hochgeladener Ionen in der Dresden EBIT der Rossendorfer Zweiquellenanlage beruht auf dem Prinzip der Elektronenstoßionisation. Dabei werden anfänglich neutrale Atome in einem Elektronenstrahl hoher Energie sowie hoher Stromdichte durch Stöße mit Elektronen sukzessive ionisiert. Der Elektronenstrahl wird dabei durch eine Glühkathode erzeugt und von einem radialen Magnetfeld komprimiert. Die Erzeugung dieses Magnetfeldes kann auf zwei Arten realisiert werden:

- durch supraleitende Magnetspulen (kryogene EBIT) [124–126] oder
- durch Permanentmagnete (Raumtemperatur-EBIT) [127–129].

Die Dresden EBIT gehört letzterer Sorte an und erzeugt über ein Ringsystem von SmCo-Permanentmagneten ein uniformes axiales Magnetfeld von ca. 250 mT. Damit lassen sich Elektronenstrahlen mit Strömen von 20 mA – 30 mA auf ca. 200 μm Strahldurchmesser komprimieren, woraus sich Elektronenstromdichten von einigen 100 A/cm² ergeben. Für typische Elektronenenergien von 5 keV – 15 keV lassen sich damit beispielsweise Xenonionen mit Ladungszuständen bis $q = 44$ erzeugen. Die Ionenausbeute reicht dabei je nach gewünschtem Ladungszustand von einigen 1000 Ionen/s bis hin zu mehreren pA Teilchenstrom.

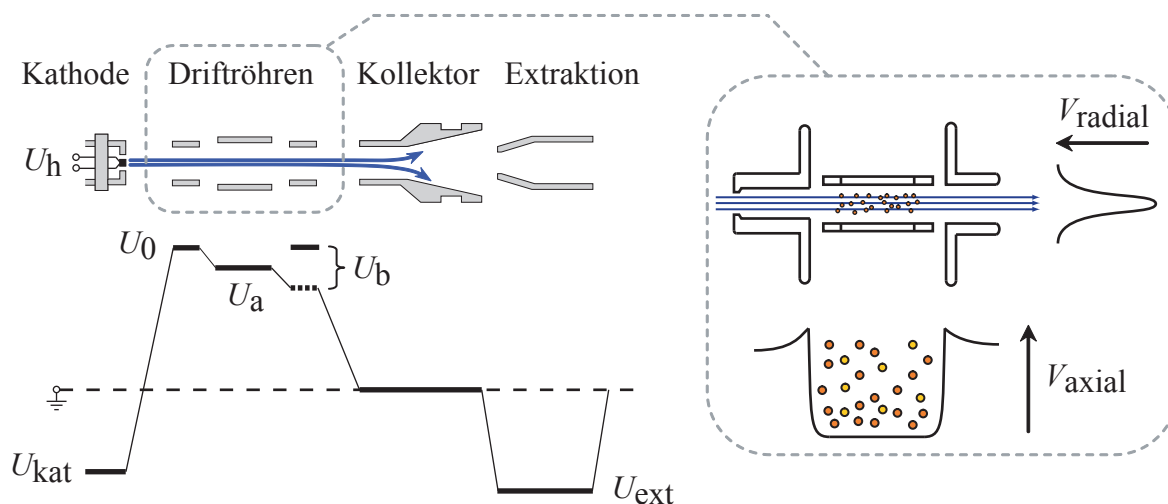


Abbildung 3.2: Schematisch dargestellte Potentialverläufe der Dresden EBIT.

Der Einschluss der Ionen in einer EBIT erfolgt elektrostatisch. Durch eine Anordnung mehrerer Driftröhrensegmente konzentrisch um den Elektronenstrahl kann eine Potentialmulde erzeugt werden, die die Ionen axial einschließt. In radialer Richtung werden die Ionen aufgrund der negativen Raumladung des Elektronenstrahls in der Falle gehalten. Abbildung 3.2 zeigt schematisch die Realisierung der Ionenfalle in der Dresden EBIT.

Die Extraktion der Ionen aus der Dresden EBIT wird durch kurzzeitiges Absenken des Potentials der dritten Driftröhre realisiert (vgl. Abb. 3.2). In diesem Zeitraum ist der axiale Einschluss nicht mehr gewährleistet und die Ionen werden aufgrund der gegebenen Potentialverhältnisse von Driftröhrenensemble, Elektronenkollektor und Extraktionselektrode aus der Falle in Richtung Strahlkanal beschleunigt. Die Einschlusszeit der Ionen vor dem Öffnen der Falle bestimmt maßgeblich den Schwerpunkt der Ladungszustandsverteilung in der Quelle [130]. Mit dieser Form der Ionenextraktion werden Ionenpulse mit einer typischen Pulslänge von 2 μs – 5 μs erzeugt. Eine alternative Extraktionsmethode stellt der so genannte Überlaufmodus dar. In diesem Regime wird mittels der Driftröhrensegmente eine in axialer Richtung asymmetrische Falle erzeugt, welche in Richtung Strahlkanal eine Potentialhöhe von nur wenigen Volt besitzt. Damit können Ionen, deren thermische Energie höher ist als die Potentialbarriere, die Quelle in axialer Richtung verlassen. Hieraus resultiert ein kontinuierlicher Ionenstrom. Ein expliziter Vergleich

zwischen gepulster Extraktion und Überlaufmodus ist in [119] gegeben. Für die Messungen der vorliegenden Arbeit wurde mit beiden Modi gearbeitet. Weiterführende Literatur zur Funktionsweise der Dresden EBIT findet sich unter anderem in [131–133].

3.2 Strahltransport im EBIT-Zweig

Nach der Extraktion der Ionen aus dem Driftröhrenbereich der EBIT über eine Extraktionselektrode (siehe Abb. 3.2) wird der Ionenstrahl durch eine elektrostatische Einzellinse fokussiert. Der Brennpunkt dieser Abbildung liegt dabei ca. 755 mm vom Zentrum der Quelle entfernt. An dieser Stelle befindet sich ein Blendensystem aus vier fahrbaren Schlitzblenden. Auf jeder Schlitzblende kann eine Strommessung durchgeführt werden, womit sich die Lage des Ionenstrahls im Strahlkanal abschätzen lässt. Eine erste Detektion der extrahierten Ionen erfolgt an einem FARADAY-Cup 85 mm hinter dem Brennpunkt in einem Abstand von 840 mm zur Quelle. Der Brennpunkt der Einzellinse ist gleichzeitig Brennpunkt eines sich anschließenden doppelt-fokussierenden Dipolmagneten. Dieser separiert den Ionenstrahl in seine einzelnen Ladungszustände und fokussiert ihn gleichzeitig auf ein zweites Schlitzsystem mit anschließendem FARADAY-Cup. Die Gesamtheit aller ionenoptischen Elemente für den Strahltransport im EBIT-Zweig ist in Abbildung 3.3 schematisch dargestellt.

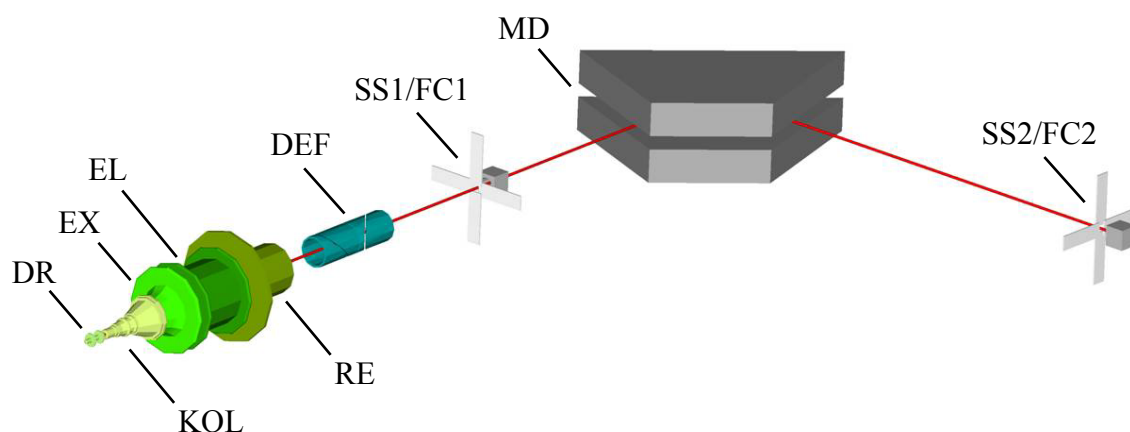


Abbildung 3.3: Schema zur Ionenoptik am EBIT-Zweig der Rossendorfer Zweiquellenanlage. Zur besseren Übersicht sind Größen und Positionen der einzelnen Elemente nicht maßstabsgerecht dargestellt. Bezeichnungen: DR-Driftröhrenensemble, KOL-Elektronenkollektor, EX-Extraktionselektrode, EL-Einzelinsensegment, RE-Ringelektrode auf Beamlinepotential, MD-Dipolmagnet, SS1/FC1/SS2/FC2-Schlitzsysteme und FARADAY-Cups 1/2.

Für den Weitertransport des Ionenstrahls in die Targetkammer befindet sich 550 mm hinter dem zweiten FARADAY-Cup eine weitere elektrostatische Einzellinse, die den Strahl in den Brennpunkt des Abbremsystems vor der Targetkammer fokussiert. Letztere bildet den Strahl schlussendlich auf einen Strahlfleck von ca. 3 mm Durchmesser auf dem Target ab. Die Transmission

der Ionen vom EBIT-Zweig bis in die Targetkammer erreicht dabei typische Werte von bis zu 95 Prozent. Zur erneuten Kontrolle der Strahlposition befindet sich vor der Targetkammer ein weiteres Schlitzsystem aus vier fahrbaren Blenden. Für etwaige Korrekturen befinden sich entlang des gesamten Strahlkanals verschiedene magnetische Steerer mit denen der Strahl im Bedarfsfall in horizontaler sowie in vertikaler Richtung abgelenkt werden kann.

3.3 Ionenabbremmung

Die Ionenerzeugung in der EBIT erfolgt im Bereich der mittleren Driftröhre, welche sich auf dem Potential $U_{\text{Quelle}} = U_0 - U_a$ befindet (vgl. Abb. 3.2). Aus der Quelle extrahierte Ionen besitzen demzufolge beim Durchgang durch den Strahlkanal eine kinetische Energie von

$$E_{\text{kin}} = q \cdot U_{\text{Quelle}}. \quad (3.1)$$

Für ein 40fach geladenes Xenonion ergibt sich damit bei einem typischen Quellenpotential von $U_{\text{Quelle}} = 4500\text{V}$ eine kinetische Energie von $E_{\text{kin}} = 180\text{keV}$, welche dem 4.7-fachen seiner potentiellen Energie ($E_{\text{pot}} = 38.5\text{keV}$) entspricht. In Untersuchungen zur HCI-Oberflächen-Wechselwirkung könnten damit beobachtete Effekte nicht zweifelsfrei einer der beiden Energien zugeschrieben werden. Für Experimente in denen der Einfluss der potentiellen Projektilenergie untersucht werden soll, ist es daher unabdingbar, die Ionen vor dem Auftreffen auf der Oberfläche auf niedrige kinetische Energien abzubremmen. Um dies zu realisieren wäre es denkbar, das Target auf ein Potential $U_{\text{Target}} \leq U_{\text{Quelle}}$ zu setzen. Damit ergäbe sich für die Geschwindigkeit der Ionen beim Auftreffen auf das Target eine kinetische Energie von

$$E_{\text{kin}} = q \cdot (|U_{\text{Quelle}}| - |U_{\text{Target}}|). \quad (3.2)$$

Die teils hochempfindlichen Messinstrumente, welche für das Experiment mit dem Target verbunden sind, müssten bei dieser Form der Ionenbremsung auch auf die Hochspannung U_{Target} gebracht werden. Eventuell auftretende Blindströme oder Überschläge könnten dabei die Messungen verfälschen oder gar zur Zerstörung der Geräte führen. Zudem würde eine Abbremsung der Ionen am Target zu einer starken Aufweitung des Ionenstrahls führen. Um diese experimentellen Unzulänglichkeiten zu vermeiden, wurde an der Rossendorfer Zweiquellenanlage ein Konzept der Ionenabbremmung gewählt, bei dem das Target auf Erdpotential verbleibt. Zur Abbremsung der Ionen werden hierbei der komplette Strahlkanal sowie beide Quellen auf eine negative Hochspannung U_{Brems} gebracht. Für die Restenergie der Ionen am Target ergibt sich mit dieser Methode

$$E_{\text{kin}} = q \cdot (|U_{\text{Quelle}}| - |U_{\text{Brems}}|). \quad (3.3)$$

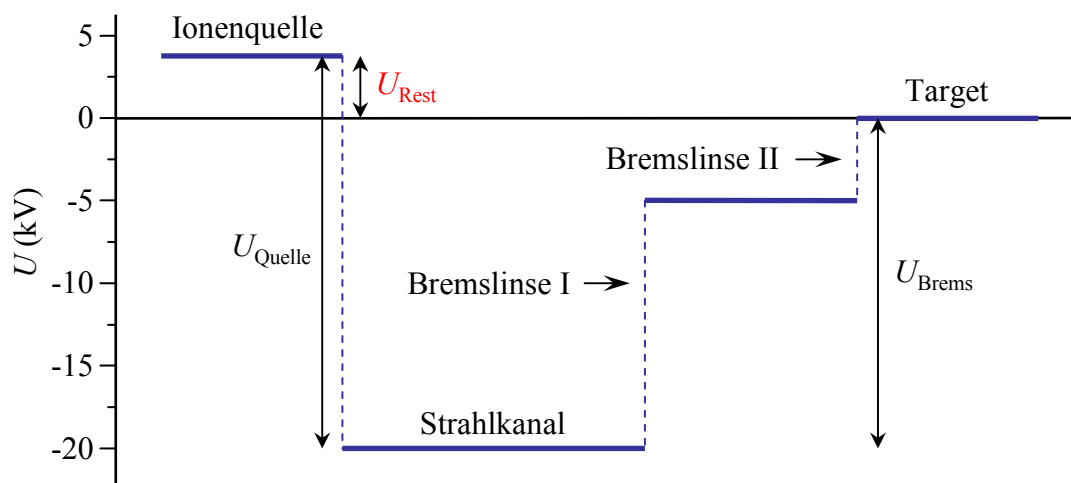


Abbildung 3.4: Schematisch dargestellte Potentialverhältnisse der Rossendorfer Zweiquellenanlage zur Abbremsung der Ionen vor dem Target.

Abbildung 3.4 zeigt schematisch die beschriebenen Potentialverhältnisse im Bremsfall. Der Potentialsprung zwischen Strahlkanal und Target würde ohne geeignete Gegenmaßnahmen zu einer starken Aufweitung des Ionenstrahls führen. Um dies zu vermeiden, werden die Ionen durch ein Bremslinsensystem in zwei Stufen zu je 3 Segmenten abgebremst und gleichzeitig auf das Target fokussiert. Mit dieser Anordnung gelingt es, einen gleichmäßigen Feldverlauf zu erzeugen, welcher die Ionen ohne Strahlaufweitung abbremst. Für sehr kleine kinetische Energien kann sich für die zweite Bremsstufe eine recht kurze Brennweite von wenigen cm ergeben. Aus diesem Grund lässt sich die zweite Bremsstufe in axialer Richtung verschieben und kann dabei je nach eingestellter Restenergie im Abstand zum Target variiert werden. Mit diesem Konzept der Ionenbremsung können an der Rossendorfer Zweiquellenanlage kinetische Restenergien von unter $10\text{ eV} \times q$ realisiert werden.

3.4 Targetkammer und Experiment

3.4.1 Bestrahlungsexperimente

Für die in dieser Arbeit vorgestellten Experimente zur Oberflächenmodifizierung durch hochgeladene Ionen wurde ein spezieller Targethalter für Bestrahlungsexperimente konzipiert und in die Targetkammer der Zweiquellenanlage integriert. Abbildung 3.5 zeigt den Aufbau der Experimentierkammer mit Targethalter. Die Targetkammer ist in Form eines Ultra-Hoch-Vakuum-(UHV) Kugelrezipienten mit einem Innendurchmesser von 394 mm gestaltet und über mehrere radial angeordnete CF¹-Standard-Flansche von außen zugänglich. Die Ankopplung an den Strahlkanal erfolgt über einen 200 mm CF-Flansch, in dessen Innerem die zweite Stufe des Ab-

¹engl.: con-flat flange

bremssystem (6) integriert ist (vgl. Abschnitt 3.3). Über einen weiteren 200mm CF-Flansch ist die Targetkammer mit einer zum Strahlkanal axialen Transferkammer (2) verbunden. Eine magnetisch geführte Transferstange (1) ermöglicht einen Targettransfer zwischen den beiden Kammern, ohne dabei das Vakuum in der Experimentierkammer zu zerstören. Nach dem Transfer kann die Experimentierkammer über einen UHV-Schieber (3) von der Transferkammer getrennt werden. Die Vakuumerzeugung erfolgt in beiden Kammern durch den Einsatz von Turbo-Molekularpumpen (5). Damit lässt sich ein Basisdruck von ca. $5 \cdot 10^{-10}$ mbar realisieren.

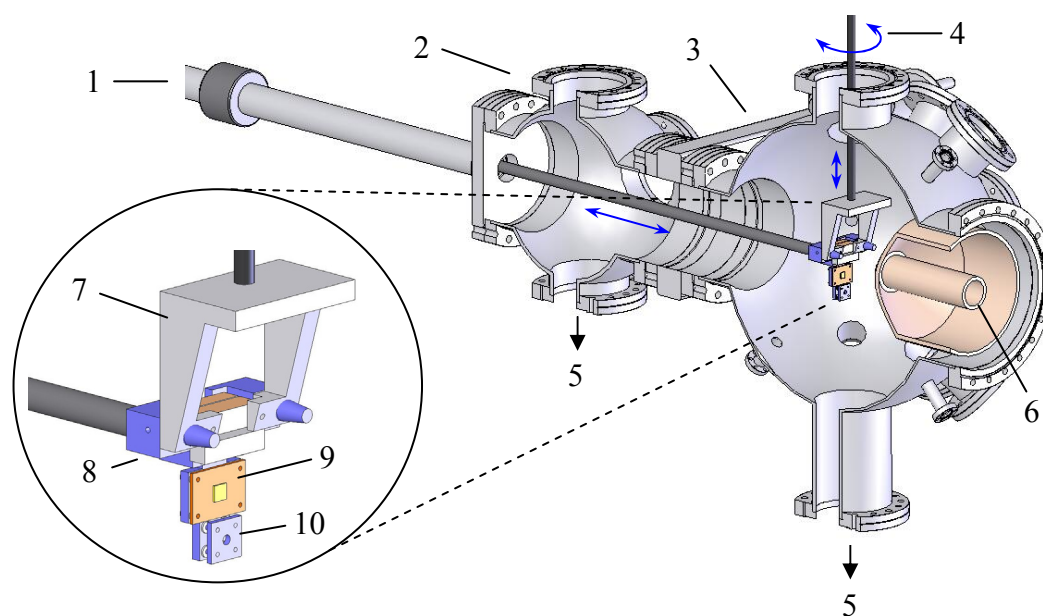


Abbildung 3.5: Experimenteller Aufbau für Bestrahlungsexperimente an der Rossendorfer Zweiquellenanlage: (1) Transferstab, (2) Transferkammer, (3) UHV-Schieber, (4) 4-Achsen-Manipulator, (5) Vakuumpumpen, (6) Bremslinsegment, (7) Targethalter-Aufnahme, (8) Targethalter, (9) resistiver Heizer, (10) FARADAY-Cup mit Blende.

Zur exakten Positionierung der Probe in der Kammer wird ein 4-Achsen-Manipulator (4) welcher über einen 100mm CF-Flansch von oben in die Kammer mündet verwendet. Über externe Schrittmotoren lassen sich damit rechnergestützt Höhe, laterale Position sowie Winkel des Targets im sub-mm Bereich einstellen. Am unteren Ende der Manipulatorstange ist die Tagetaufnahme (7) befestigt. Sie wurde so konzipiert, dass im Gegensatz zu herkömmlichen Experimenten nicht nur die Probe transferiert werden kann sondern das gesamte Experiment. Motivation für diese Art des Aufbaus war die Notwendigkeit, Änderungen am Experiment für unterschiedliche Arten der Bestrahlung extern vornehmen zu können, ohne dabei die Targetkammer belüften zu müssen. In die Targetaufnahme sind zwei Löcher eingebracht die der Aufnahme der Haltebolzen des Experimentträgers (8) dienen. Die elektrische Kontaktierung zwischen Targetaufnahme und Experimentträger erfolgt über einen hochvakuum-verträglichen SubD-Steckverbinder, welcher dem Experiment zusätzlichen Halt in der Aufnahme verleiht.

An dem T-förmig gestalteten Experimentträger ist ein Bor-Nitrid-Heizer (9) angebracht, auf dessen Vorderseite die $1 \times 1 \text{ cm}^2$ große Probe über einen Haltebügel fixiert ist. Damit lässt sich die Probe auf bis zu 1000°C aufheizen. Ein Temperatur-Controller (Lakeshore 340) ermittelt über einen Pt-1000-Widerstand am Experimentträger die aktuelle Targettemperatur und regelt im Bedarfsfall die Heizleistung nach. Die damit erreichbare Temperaturstabilität beträgt weniger als 10mK.

Durch eine elektrische Kontaktierung des Haltebügels kann der einfallende Ionenstrom auf der Probe über einen angeschlossenen ladungssensitiven Verstärker detektiert werden. Damit lassen sich kleinste Ionenpulse von $Q \geq 100 \text{ fC}$ mit einem Fehler von $\pm 30\%$ registrieren. Da bei einer Ionenstrommessung auf der Probe keine Sekundärelektronenemission berücksichtigt wird, müsste das Messsignal um die Anzahl emittierter Elektronen korrigiert werden. Um diese Unzulänglichkeit zu umgehen wird das Pulshöhensignal des Verstärkers vor Beginn der Messung über einen FARADAY-Becher mit Sekundärelektronenunterdrückung bestimmt und das später auf der Probe gemessene Signal auf diesen Wert normiert. Im unteren Teil des Experimentträgers, in einem vertikalen Abstand von ca. 15 mm zur Probe befindet sich eine elektrisch isoliert angebrachte Kreisblende (10) mit einem Durchmesser von $d = 5 \text{ mm}$. Vor Beginn einer Bestrahlung kann diese über die z-Achse des Targetmanipulators in die Kammermitte gefahren werden, um den Ionenstrahl hinsichtlich lateraler Ausdehnung und Intensität zu optimieren. Hierfür werden die Anteile des einfallenden Ionenstroms auf die Blende und die dahinter liegende Metallfläche verglichen und die Targetposition hinsichtlich maximaler Transmission durch die Blende optimiert. Aus der Abhängigkeit des Transmissionsstromes von der Position der Kreisblende lässt sich in einfacher Weise das laterale Profil des Ionenstrahls bestimmen. Nach der Optimierung des Strahls kann das Experiment um 25 mm nach unten gefahren werden, und die Bestrahlung beginnt. Durch ein periodisches Verfahren der lateralen Targetposition während der Bestrahlung (Rastern) kann die effektive Auftreff-Fläche der Ionen auf der Probenoberfläche vergrößert werden. Damit vereinfacht sich eine spätere Suche des Strahlflecks im Raster-Kraft-Mikroskop. Über die gesamte Bestrahlungsdauer wird der Ionenstrom auf der Oberfläche der Probe an einem Messrechner protokolliert und die aktuelle Ionenfluenz bestimmt.

Zusätzlich zu dem in diesem Abschnitt vorgestellten experimentellen Aufbau für Bestrahlungsexperimente wurde für die Messungen in Kapitel 5 eine an der Technischen Universität Wien entwickelte Apparatur zur Bestimmung der Sekundärelektronenstatistik in die Targetkammer der Rossendorfer Zweiquellenanlage integriert. Bei diesen Messungen wurde zudem ein modifizierter Targethalter eingesetzt. Auf den folgenden Seiten soll auf diese experimentellen Umbauten detailliert eingegangen werden.

3.4.2 Sekundärelektronenstatistik

Abbildung 3.6 zeigt die an der Technischen Universität Wien entwickelte Messapparatur zur Bestimmung der Elektronenstatistik [134, 135] in Kombination mit einem, eigens für Messungen bei kleinsten Projektilgeschwindigkeiten entwickelten Targethalter. Die Integration beider Komponenten in die Targetkammer der Rossendorfer Zweiquellenanlage ist im linken Teil von Abb. 3.6 dargestellt.

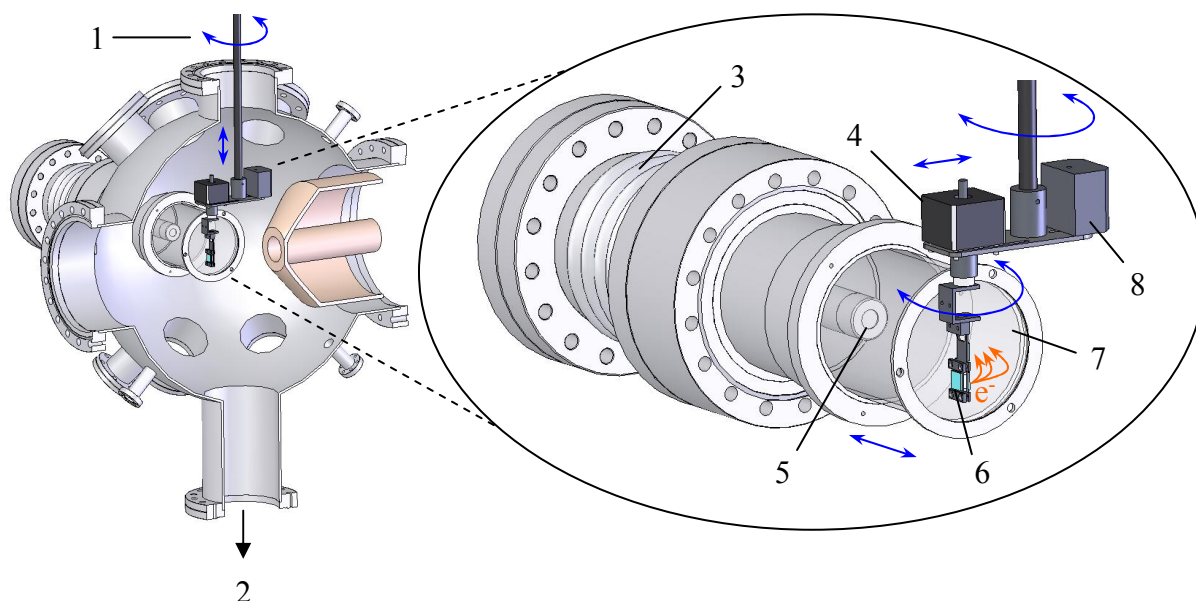


Abbildung 3.6: Experimentalaufbau zur Messung von Elektronen-Statistik-Spektren aus Oberflächen bei Beschuss mit hochgeladenen Ionen. (1) 4-Achsen-Manipulator, (2) Vakuumpumpe, (3) Keramikisolator, (4) UHV-Schrittmotor, (5) Oberflächenbarrierendetektor, (6) Targetaufnahme, (7) Absauggitter, (8) Gegengewicht.

Sekundärelektronen aus dem Relaxationsprozess eines HCI werden durch das positive Potential U_{Gitter} eines Absauggitters (7) von der Probenoberfläche (6) abgesaugt und anschließend auf einen, mit der positiven Hochspannung U_{det} vorgespannten Oberflächenbarrierendetektor (5) beschleunigt. Jedes Elektron besitzt so beim Auftreffen auf den Detektor eine kinetische Energie von

$$E_{\text{det}} = e \cdot U_{\text{det}} + E_{\text{em}}, \quad (3.4)$$

wobei e die Elementarladung des Elektrons kennzeichnet. E_{em} stellt die Primärenergie des Elektrons aus dem Relaxationsprozess dar. Für typische Absaugspannungen von $U_{\text{det}} = 25 \text{ kV}$ sowie Elektronenenergien E_{em} von einigen eV (vgl. Kapitel 2) gilt $e \cdot U_{\text{det}} \gg E_{\text{em}}$ und Gl. (3.4) vereinfacht sich zu

$$E_{\text{det}} = e \cdot U_{\text{det}}. \quad (3.5)$$

Der Prozess der Elektronenemission eines HCI an der Oberfläche vollzieht sich innerhalb weniger fs bis ps [6, 7], einer Zeitspanne, die das zeitliche Auflösungsvermögen des Detektors ($\sim \mu\text{s}$) deutlich unterschreitet. In der Konsequenz werden alle n emittierten und zum Detektor beschleunigten Elektronen einer einzelnen HCI-Neutralisation als *ein* Ereignis der Energie $n \cdot E_{\text{det}}$ registriert. Die Anzahl emittierter Sekundärelektronen kann damit aus der Pulshöhe (genauer aus der Fläche unter dem Ladungspuls) des Detektorsignals für jedes Projektil individuell bestimmt werden. Für die experimentelle Bestimmung der Gesamtelektronenausbeute bei fester potentieller sowie kinetischer Energie wäre demnach nur ein einziges Ion notwendig. Da die Anzahl der während der HCI-Relaxation emittierten Elektronen jedoch einer statistischen Streuung unterliegt, werden die Pulshöhensignale aller einfallenden Ionen im Detektionssystem erfasst und über einen Analysator in ein Pulshöhenspektrum überführt. Als Resultat einer solchen Messung ergibt sich schlussendlich die Häufigkeitsverteilung der Sekundärelektronenausbeuten, welche im Folgenden mit dem Begriff Sekundärelektronenstatistik, kurz SES bezeichnet sei.

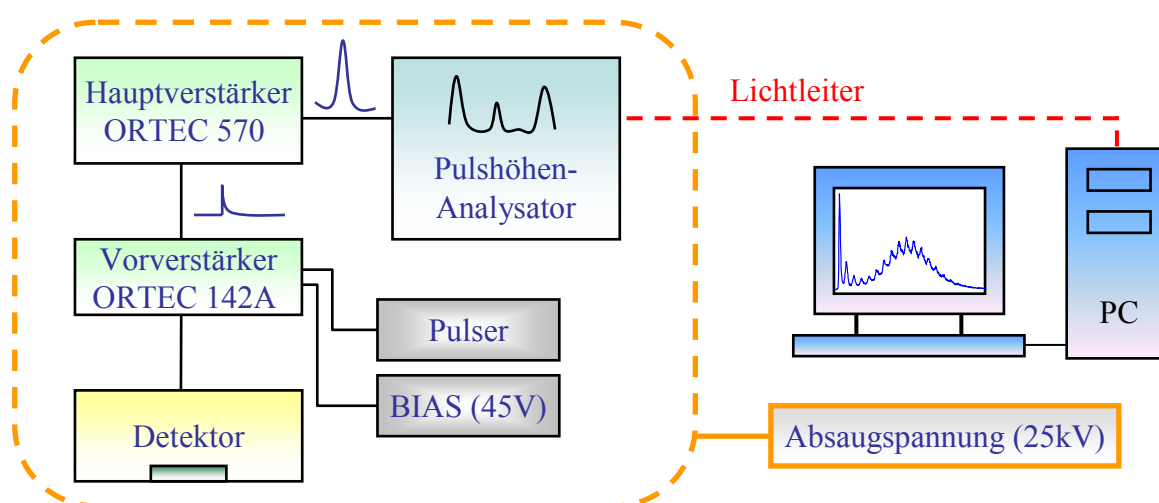


Abbildung 3.7: Schematischer Aufbau der Messelektronik zur Messung von Elektronenstatistik-Spektren.

Abbildung 3.7 zeigt eine schematische Darstellung der verwendeten Detektionselektronik. Das Signal des Detektors wird in einem Vorverstärker (Ortec 142A) zu einem „Dreiecks“-Puls geformt und gelangt daraufhin in den Hauptverstärker (Ortec 570), welcher es in einen asymmetrischen GAUSS-Peak wandelt. Das linear verstärkte Signal wird anschließend in einem Pulshöhenanalysator mit integriertem Vielkanalanalysator in ein Pulshöhenspektrum überführt, welches optisch entkoppelt zum Mess-PC übertragen wird. Die in Abb. 3.7 eingezeichnete Absaugspannung entspricht der oben beschriebenen, positiven Vorspannung U_{det} . Eine Bias-Spannung von +45 V wird über den Vorverstärker an den Detektor übertragen und gewährleistet dort eine effektive Absaugung der Ladungswolke. Für Kalibrierungs- und Testzwecke kann das Detektorsignal durch diskrete Spannungspulse einer Pulsereinheit ersetzt werden.

In Abb. 3.6 ist zu erkennen, dass die Position der Probe nicht mit der Rotationsachse des 4-Achsenmanipulators (1) und damit auch nicht mit der Kammermitte übereinstimmt. Der Grund hierfür liegt in der elektrostatischen Wirkung der (positiven) Gitterspannung U_{Gitter} auf die Trajektorien langsamer Ionen auf der Wegstrecke zwischen der letzten Bremslinsensektion und der Probe. Positiv geladene Projektilionen erfahren aufgrund dieses Potentials eine abstoßende Kraft, die zu einer Krümmung ihrer Trajektorien führt. Für ungebremste Ionen ($E_{\text{kin}} = 4.5 \text{ keV} \times q$) ergibt sich für diese Krümmung bei einer typischen Gitterspannung von $U_{\text{Gitter}} = 200 \text{ V}$ ein Versatz des Auftreffpunktes der Projektile auf der Probe von $\leq 1 \text{ mm}$ in Bezug auf die ungestörte Strahlachse. Aus dieser geringen Versetzung resultieren keine Beeinträchtigungen für das Experiment, da der Ionenstrahl ($d \approx 2 \text{ mm}$) bei einer Probengröße von $1 \text{ cm} \times 1 \text{ cm}$ vollständig auf die Probe trifft. Betrachtet man jedoch Ionen, deren kinetische Energie nur 200 eV beträgt, so ergibt sich bei unveränderter Gitterspannung eine Versetzung der Projektilflugbahnen von mehreren cm. Eine in der Kammermitte platzierte Probe könnte somit nicht mehr von Projektilionen getroffen werden. Durch den für die vorliegenden Experimente gewählten Versatz der Probe in Bezug auf die Kammermitte (vgl. Abb. 3.6) lässt sich die Position der Probe, durch einfache Verdrehung des Manipulators (1), der geänderten Strahltrajektorie anpassen. Für jede kinetische Projektilenergie, und damit für jeden Versatz der Ionentrajektorie, kann so ein Manipulatorwinkel gefunden werden, für welchen ein mittiges Auftreffen der Projektile auf der Probenoberfläche gewährleistet ist.

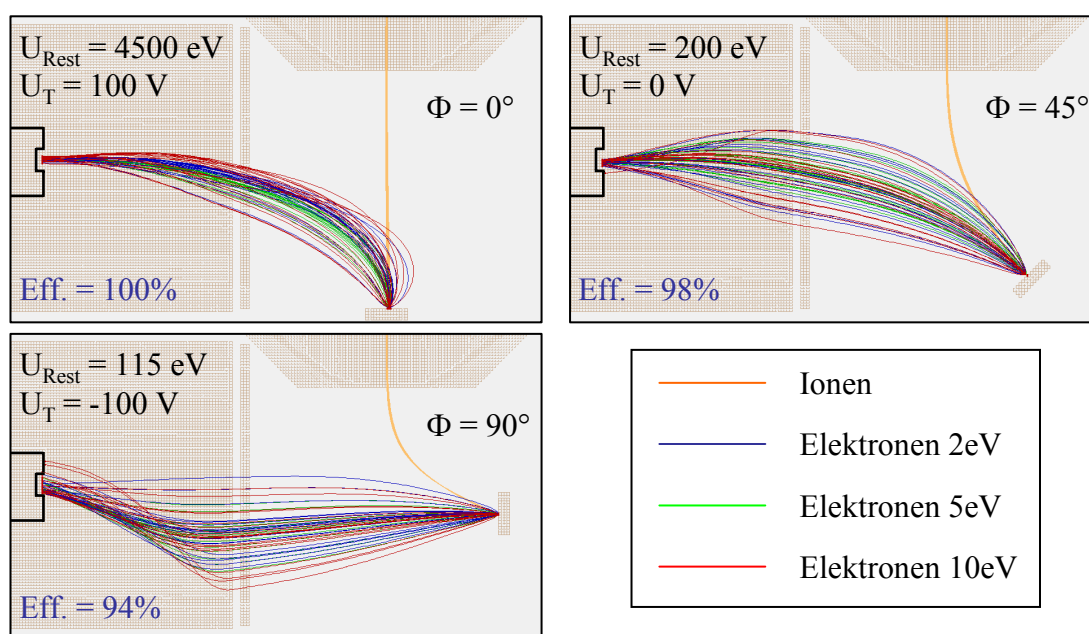


Abbildung 3.8: SIMION-Simulationen zur Berechnung der Trajektorien von Sekundärelektronen für verschiedene kinetische Projektilenergien. Durch die positive Spannung am Absaug-Gitter werden Ionen mit sinkender Geschwindigkeit immer stärker abgelenkt und die Targetposition muss entsprechend korrigiert werden. Der sich dabei verändernde Abstand zwischen Target und Gitter wirkt sich zudem auf die Absaugeffizienz aus (siehe Text).

Mit dem Softwarepaket SIMION 8.0 wurden Simulationsrechnungen der Ionen- und Elektronentrajektorien für den vorgestellten Experimentaufbau durchgeführt. Ergebnisse dieser Simulationen für Projektile unterschiedlicher kinetischer Energie (U_{Rest}) sind in Abb. 3.8 dargestellt. In der Simulation wurde der Auftreffpunkt der Ionen auf der Probe bestimmt, und anschließend als Startpunkt für Elektronen unterschiedlicher Energie (2 eV, 5 eV, 10 eV) verwendet. Für die simulierte Emission dieser Elektronen wurde dabei eine Kosinus-Verteilung bezüglich des Emissionswinkels angenommen. Wie oben beschrieben zeigt sich in Abb. 3.8 mit sinkender Projektilgeschwindigkeit eine zunehmende Ablenkung des Primärstrahls (orange) und die Notwendigkeit, die Position der exzentrisch angebrachten Probe über den Manipulatorwinkel (Φ) zu korrigieren. Der Ort der Elektronenerzeugung (Auftreffpunkt der Ionen auf der Probe) hängt demnach von der Projektilgeschwindigkeit ab. Die damit einhergehende Änderung des Abstandes zwischen Absauggitter und Probe wirkt sich maßgeblich auf die Trajektorien der Sekundärelektronen aus. Aus der Simulation geht hervor, dass für Elektronen hoher Energie sowie für Elektronen, die unter hohem Winkel zur Oberflächennormalen emittiert werden, eine Fokussierung auf den Detektor für große Abstände zum Gitter nicht mehr realisiert werden kann. Durch das Anlegen eines geeigneten Potentials an die Probe (U_T) lässt sich die Fokussierung der Elektronen auf den Detektor zwar positiv beeinflussen, eine Verringerung der Absaugeffizienz² bei großen Manipulatorwinkeln, d.h. bei niedrigen Projektilgeschwindigkeiten, lässt sich jedoch nicht gänzlich unterbinden (vgl. Abb. 3.8).

Für sehr kleine Projektilgeschwindigkeiten ($E_{\text{kin}} \leq 100 \text{ eV} \times q$) kann die Ablenkung des Ionenstrahls vermöge des Gitterpotentials ($U_{\text{Gitter}} = 200 \text{ V}$) nicht mehr durch eine Verstellung des Manipulatorwinkels kompensiert werden, d.h. auch bei dem im Experiment maximal einstellbaren Manipulatorwinkel von $\Phi = 90^\circ$ trifft der Ionenstrahl nicht auf die Probe. Nur durch eine Verringerung von U_{Gitter} ist es möglich auch langsamste Ionen auf die Probe zu fokussieren. Aus einer Verringerung der Gitterspannung folgt jedoch unweigerlich eine Reduzierung der Absaugeffizienz, wodurch im Experiment bestimmte Sekundärelektronenausbeuten bei niedrigsten Projektilgeschwindigkeiten verfälscht würden.

Um Sekundärelektronenausbeuten langsamer HCl im Experiment dennoch exakt bestimmen zu können, wurde speziell für kleinste Projektilgeschwindigkeiten ein modifizierter experimenteller Aufbau konzipiert. Für diesen, in Abb. 3.9 dargestellten Aufbau wurde an das letzte Segment der Bremslinse eine zusätzliche Endblende (3) mit einer Öffnung von $d = 3 \text{ mm}$ und einem Außendurchmesser von 70 mm angebracht. An diese kann über eine externe Spannungsversorgung das Potential U_{EB} angelegt werden. Auf einer über dem Probenhalter befestigten Kreisscheibe wurden zudem zwei Metallelektroden (2) angebracht, die die Probe in Form eines Vorhanges umschließen. Beide Elektroden (Vorhang 1 und Vorhang 2) sind elektrisch voneinander isoliert befestigt und können mit den Spannungen U_{V1} bzw. U_{V2} beschaltet werden. Auch in dieser Mo-

²Als Absaugeffizienz wird das Verhältnis zwischen der Anzahl auf den Detektor treffender Elektronen zu der Anzahl aller an der Oberfläche emittierter Elektronen bezeichnet.

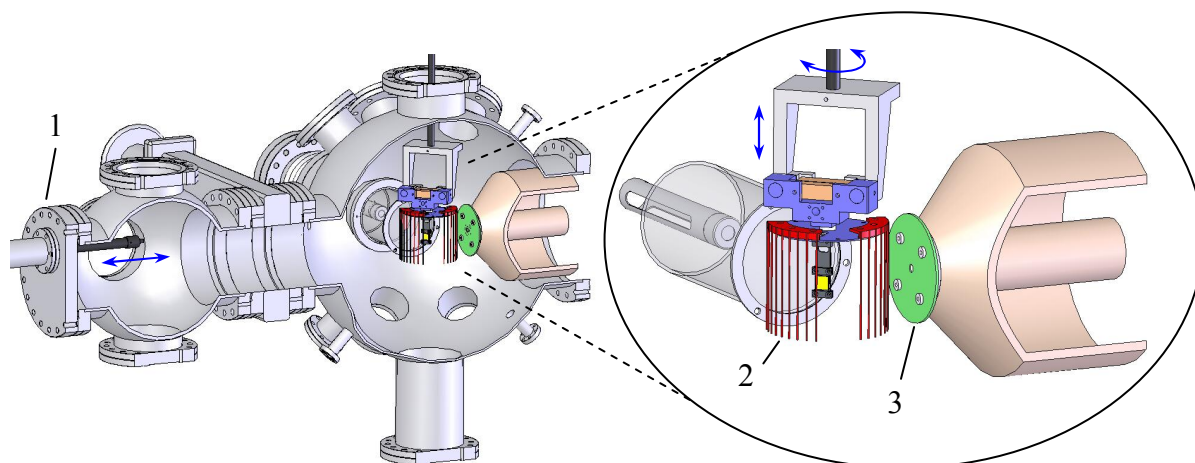


Abbildung 3.9: Modifizierter Experimentalaufbau zur Bestimmung von Elektronenstatistik-Spektren bei kleinsten kinetischen Projektilenergien. (1) Exzentrischer Transferarm, (2) Gitter-Elektroden zur gezielten Feldformierung für optimale Elektronenabsaugung, (3) Feldformierungselektrode zur Absaugunterstützung.

difikation des Probenhalters ist die Probe gegenüber der Manipulatorachse versetzt angebracht. Aufgrund der durch die Vorhänge 1 und 2 verursachten größeren Ausdehnung des Probenhalters musste zudem ein exzentrischer Transferarm (1) verwendet werden, um einen ungehinderten Transport des Targethalters in die Transferkammer der Anlage zu ermöglichen.

In dieser Geometrie des experimentellen Aufbaus wird die Trajektorie der Sekundärelektronen nicht mehr ausschließlich durch die Parameter Gitterspannung U_{Gitter} und Probenpotential U_T festgelegt, sondern kann über die geeignete Wahl der Potentiale U_{EB} , U_{V1} und U_{V2} beeinflusst und hinsichtlich optimaler Absaugeffizienz variiert werden. In umfangreichen SIMION-Simulationen ließen sich damit für kinetische Projektilenergien bis zu wenigen eV Parametersätze für U_{Gitter} , U_T , U_{EB} , U_{V1} sowie U_{V2} finden, die zu Absaugeffizienzen von nahezu 100% führten.

3.5 Überblick zur Raster-Kraft-Mikroskopie

Das Funktionsprinzip der von Binnig, Quate und Gerber [136] entdeckten Raster-Kraft-Mikroskopie (*Atomic Force Microscopy*, AFM) ist in Abbildung 3.10 dargestellt. Dabei wird eine, an einem Biegebalken (*cantilever*) befestigte Siliziumspitze in engen Kontakt mit der zu untersuchenden Oberfläche gebracht. Die Summe aus statischen (VAN-DER-WAALS-) sowie elektrostatischen (COULOMB-) Kräften zwischen den Atomen der Oberflächen und der Spitze bewirkt eine normale sowie eine laterale Kraftkomponente auf den Cantilever, die zu dessen Verbiegung führen. Diese Verbiegung kann in erster Näherung als proportional zur Gesamtkraft angenommen werden.

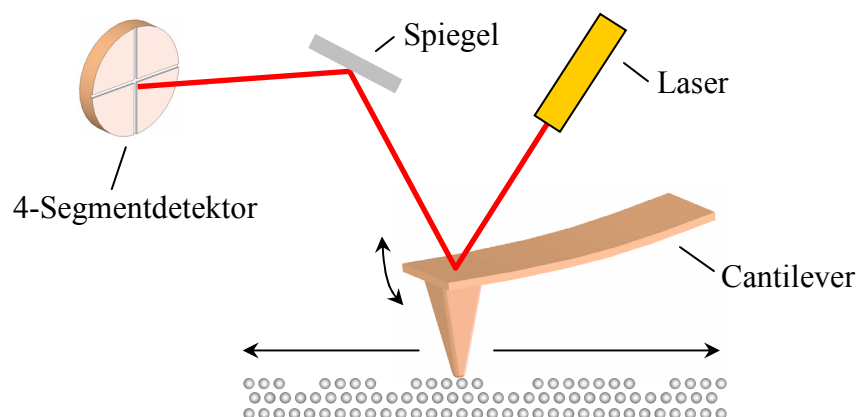


Abbildung 3.10: Schematischer Aufbau eines Raster-Kraft-Mikroskopes.

Die Position der Probe lässt sich durch einen xyz-Piezoaktor in alle Raumrichtungen mit einer Auflösung im sub-nm Bereich verfahren. Durch eine periodische Bewegung des Piezos in lateraler Richtung (xy) kann die Spitze damit über die Oberfläche gerastert werden und diese punktweise abtasten. Die Rückseite des Cantilevers wird von einem feinfokussierten Laserstrahl beleuchtet, welcher über einen Spiegel auf einen 4-Segment-Photodetektor reflektiert wird (vgl. Abb. 3.10). Die Auslenkung des Cantilevers moduliert so eine Intensitätsverschiebung zwischen den einzelnen Segmenten des Photodetektors. Aus dieser Intensitätsverschiebung kann die Kraft zwischen Probe und Spitze bestimmt werden. Diese Kraft wird als Eingangsgröße in einen Regelkreis aufgenommen, welcher die vertikale Position (z) der Probe über den Piezo regelt. Die Höhe der Probe wird dabei so geregelt, dass die auf dem Photodetektor gemessene Kraft konstant bleibt. Die aktuell eingestellte z -Position des Piezos wird zusammen mit der lateralen Position der Probe protokolliert und liefert somit ein topologisches Bild der Oberfläche.

Aufgrund der endlichen Krümmung der Spitze³ stellen gemessene AFM-Aufnahmen immer eine Faltung zwischen der echten Oberflächentopographie und der Spitzenform dar. Die Entstehung lateraler Bildfehler aufgrund der Wechselwirkung der Spitze mit Atomen an Stufenkanten ist in Abb. 3.11 schematisch dargestellt. Für die in dieser Arbeit verwendeten Silizium-Spitzen wurde vom Hersteller ein nomineller Spitzenradius von $r \approx 7 \text{ nm}$ angegeben. Für typische Bildgrößen von $1000 \text{ nm} \times 1000 \text{ nm}$ und beobachtete Strukturen von einigen 10 nm Größe können Effekte der Faltung mit der Spitze daher als klein angenommen werden.

Für lochartige Strukturen wie sie in Kapitel 4.1 untersucht werden ergibt sich aus der Faltungsfunktion von Spitzenform und tatsächlichem Oberflächenprofil ein Fehler in der lateralen Ausdehnung welcher in einer einfachen MATLAB-Routine zu $\approx 10\%$ abgeschätzt werden konnte. Das Volumen der in Kapitel 4.1 vorgestellten Nanostrukturen wird durch direkte 2-dimensionale Integration der AFM-Aufnahme ermittelt. Der aus der Faltungsfunktion resultierende Fehler für das ermittelte Volumen ergibt sich dabei zu $\pm 10 \text{ nm}^3$. Für gemessene Volumina

³Bei einer idealen Spitze wäre nur ein einziges Atom an deren Ende in Kontakt mit der Oberfläche.

von $30\text{nm}^3 - 110\text{nm}^3$ folgen daraus relative Fehler von $10\% - 30\%$. Wie sich in Kapitel 4.1 zeigen wird, beträgt der rein statistische Fehler des Strukturvolumens zum Teil bis zu 60% , sodass Fehler aus der Faltungsfunktion als klein betrachtet werden können und in der Analyse nicht gesondert betrachtet werden.

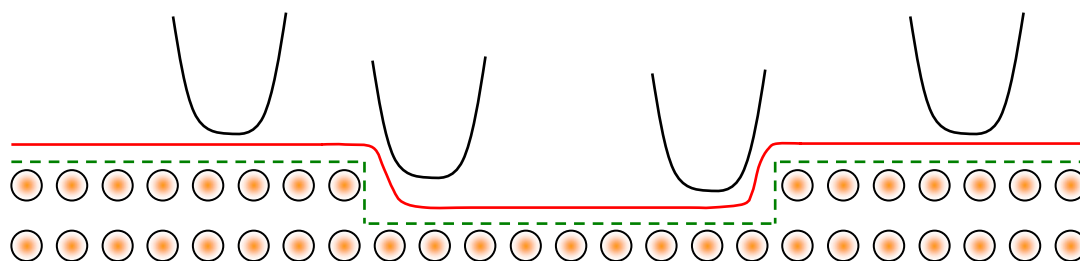


Abbildung 3.11: Schematische Darstellung zur Entstehung lateraler Bildfehler bei der Raster-Kraft-Mikroskopie. Durch den endlichen Spitzenradius treten neben den Oberflächenatomen auch Atome von Stufenkanten in Wechselwirkung mit der Spitze und erzeugen so eine Kantenverrundung in der AFM-Aufnahme (rote Linie). Das tatsächliche Profil der Oberfläche ohne Abbildungsfehler ist als unterbrochene Linie eingetragen.

Die oben beschriebene Messmethode, bei der die AFM-Spitze in Kontakt mit der Oberfläche gebracht wird und die auftretenden Kräfte *direkt* gemessen werden, ist in der Literatur unter dem Namen Kontakt-Modus zu finden. Eine weitere Form der AFM-Messung stellt der so genannte Nicht-Kontakt-Modus dar. In diesem Modus wird die Spitze oberhalb der Oberfläche über einen zusätzlichen Piezokristall in eine harmonische Schwingung versetzt deren Frequenz nahe an der Resonanzfrequenz des Cantilevers liegt. Durch die auftretenden Kräfte zwischen Spitze und Oberfläche wird die harmonische Schwingung gestört und es kommt, abhängig vom Abstand zwischen Spitze und Oberfläche, zu einer Frequenzverschiebung. Diese Frequenzverschiebung wird, analog zur Kraft im Kontakt-Modus, als Eingangsgröße für eine Regelung des z-Piezos genutzt und über eine Änderung der vertikalen Probenposition konstant gehalten. Der Nicht-Kontakt-Modus stellt eine sehr präzise, jedoch auch weitaus komplexere Messmethode dar, die insbesondere zur Auflösung von Strukturen atomarer Größenordnung geeignet ist. Die Messungen der vorliegenden Arbeit wurden ausschließlich im Kontakt-Modus durchgeführt.

Die Ausführungen zur Raster-Kraft-Mikroskopie in diesem Abschnitt stellen lediglich einen Überblick über die grundlegenden Mechanismen dieser Analyseverfahren dar. Die konsequente Weiterentwicklung seit ihrer Entdeckung hat die AFM-Technologie zu einem der meist genutzten Analyseverfahren in der modernen Oberflächenphysik gemacht und dabei eine Vielzahl an Spezialformen für die jeweiligen Einsatzgebiete hervorgebracht. Für weiterführende Informationen zu dieser Thematik sei an dieser Stelle auf die Quellen [137–140] verwiesen.

Kapitel 4

Nanostrukturierung an Ionenkristall-Oberflächen

In diesem Kapitel sollen experimentelle Ergebnisse sowie zugrunde liegende Modelle zur Strukturierung von Ionenkristall-Oberflächen durch den Beschuss mit hochgeladenen Ionen vorgestellt werden. Wie bereits in Abschnitt 2.2 gezeigt werden konnte, ergeben sich aus der eingeschränkten Leitfähigkeit in Isolatoren zum Teil erhebliche Unterschiede in der HCI-Oberflächen-Wechselwirkung im Vergleich zu Metallen. Durch die HCI-Neutralisation hervorgerufene elektronische Anregungen können in Ionenkristallen nicht schnell genug relaxieren und koppeln stark an das phononische System. Der damit verbundene Energieübertrag an das Kristallgitter kann Strukturänderungen auf einer Größe von wenigen nm hervorrufen. Diese lassen sich als permanente Nanostrukturen auf der Oberfläche beobachten.

In Abschnitt 4.1 werden experimentelle Ergebnisse zur Erzeugung loch-artiger Nanostrukturen auf der Oberfläche des Alkalihalogenidkristalls Kaliumbromid (KBr) vorgestellt. Zudem wird auf ein in dieser Arbeit konzipiertes Modell auf der Basis der defekt-induzierten Desorption durch Elektronen eingegangen.

Abschnitt 4.2 beschäftigt sich mit der Erzeugung hügel-artiger Nanostrukturen auf der Oberfläche des Erdalkalihalogenides CaF_2 . Für diese, in Kooperation mit der Technischen Universität Wien durchgeführten Experimente, wird das von Toulemonde [141] entwickelte modifizierte *thermal spike*-Modell vorgestellt.

Die Mechanismen der Defekterzeugung sowie der Phononenanregung für die Oberflächen von KBr und CaF_2 werden als Ursachen für die spezifische Art der Nanostrukturierung durch hochgeladene Ionen in Abschnitt 4.3 miteinander verglichen.

4.1 Nanopit-Formierung auf KBr(001)-Oberflächen

4.1.1 Vorbetrachtungen

Bereits seit Beginn des vergangenen Jahrhunderts ist bekannt, dass die Behandlung von Alkalihalogeniden mit ionisierender Strahlung sehr effektiv zur Formierung von Defekten im Kristallgitter beiträgt [142–145]. In den 70er, 80er und 90er Jahren wurde zudem erkannt, dass die Bestrahlung dieser Kristalle mit Elektronen [146, 147], mit (einfach geladenen) Ionen [148, 149] sowie mit ultraviolettem Licht [150, 151] Strukturänderungen an der Materialoberfläche hervorrufen kann. Aufgrund ihrer einfachen kristallographischen Struktur stellen Alkalihalogenide ein Modellsystem für die Wechselwirkung ionisierender Strahlung mit Festkörperoberflächen dar.

Erste systematische Untersuchungen zum Potentialputtern von Alkalihalogenidkristallen (NaCl, LiF) mit hochgeladenen Ionen wurden von Aumayr *et al.* [98, 99] durchgeführt. Hierfür wurde eine Quarz-Mikro-Balance-Technik [152] eingesetzt, die es ermöglichte sehr präzise Sputterraten in Abhängigkeit von der kinetischen sowie der potentiellen Projektilenergie zu gewinnen. In den Experimenten zeigten sich zum Teil sehr hohe Sputterraten von bis zu mehreren 100 Atomen pro einfallendem hochgeladenen Ion. Solch hohe Sputterraten waren bis dahin von keinem anderen Probenmaterial bekannt. Die Sputterrate zeigte zudem eine starke Abhängigkeit von der potentiellen Energie der Ionen, wohingegen für die kinetische Projektilenergie nur ein geringer Einfluss nachgewiesen werden konnte. Die gefundenen Ergebnisse konnten auf der Grundlage der defekt-induzierten Desorption für Elektronen (*electron stimulated desorption*, ESD) erklärt werden.

In den Experimenten von Aumayr *et al.* wurden ausschließlich polykristalline Proben verwendet, sodass die ebenfalls aus der ESD bekannten Effekte der lokalen Oberflächenstrukturierung bei Elektronenbeschuss nicht untersucht werden konnten. Zudem wurden die Experimente bei relativ hohen Ionenfluenzen von $10^{13} - 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ durchgeführt, wodurch ein eventueller Beitrag kollektiver Effekte nicht ausgeschlossen werden konnte.

Auf den folgenden Seiten werden Raster-Kraft-Mikroskopie-Studien der KBr(001)-Oberfläche nach Beschuss mit hochgeladenen ($q = 3 \dots 34$) Xenonionen bei niedriger Ionenfluenz vorgestellt. Es wird gezeigt, dass der *individuelle* Einschlag eines HClIs zur Formierung nanometergroßer, lochartiger Strukturen mit einer Tiefe von nur einer Atomlage führt. Erstmals konnten dabei Gesamtsputterraten quantitativ aus AFM-Aufnahmen unter gleichzeitiger Beobachtung der morphologischen Oberflächenmodifizierung bestimmt werden. Aus den Ergebnissen lassen sich starke Anhaltspunkte finden, die eine Agglomeration von Defekten in komplexe Defektzentren nahe legen. Die Ergebnisse dieser Studie wurden in dem Fachjournal *Physical Review Letters* veröffentlicht und sind in [118] zu finden.

4.1.2 Pit-Erzeugung bei Einzelionenbeschuss

Für die vorliegenden Experimente wurden KBr-Einkristalle der Firma *Korth Kristalle GmbH* in 001-Richtung an Luft gespaltet. Als Ergebnis der Spaltung ergeben sich Proben mit einer Größe von $1\text{ cm} \times 1\text{ cm}$ und einer Stärke von ca. 1 mm. Anschließend wurden die Proben auf dem in Abschnitt 3.4.1 beschriebenen Targethalter befestigt und über die Transferkammer in die Experimentierkammer der Rossendorfer Zweiquellenanlage transferiert. In dieser wurden die Kristalle für ca. eine Stunde auf eine Temperatur von 450°C geheizt, um eventuelle Kontaminationen von der Probe zu desorbieren. Die Bestrahlungen selbst wurden bei Raumtemperatur durchgeführt. Hochgeladene Xenonionen aus der Dresden EBIT wurden über das Bremssystem der Anlage auf die gewünschte kinetische Energie gebracht und als kreisrunder Strahlfleck von ca. 2 mm Durchmesser auf der Probe abgebildet. Um die bestrahlte Fläche auf der Probe zu vergrößern und damit eine spätere Strahlflecksuche im AFM zu erleichtern, wurde die Probe während der Bestrahlung mit einer Amplitude von $3\text{ mm} \times 3\text{ mm}$ periodisch in lateraler Richtung bewegt. Alle vorgestellten Bestrahlungen wurden unter normalem Ioneneinfall, d.h. unter einem Auftreffwinkel von 90° zur Oberfläche durchgeführt. Nach typischen Ionenfluenzen von $5 \cdot 10^9\text{ cm}^{-2}$ bis $2 \cdot 10^{13}\text{ cm}^{-2}$ und Ionenströmen zwischen $1 \cdot 10^5$ Ionen/s und $5 \cdot 10^8$ Ionen/s wurden die Proben über die Transferkammer zurück an Luft transferiert und unverzüglich in ein UHV-AFM der Firma *Omicron NanoTechnology GmbH* mit einem Basisdruck von $1 \cdot 10^{-11}$ mbar geschleust. Die Oberflächentopographie der bestrahlten Proben wurde mittels Raster-Kraft-Mikroskopie im Kontakt-Modus untersucht (vgl. Abschnitt 3.5). Dabei wurden kommerzielle Siliziumspitzen mit einem nominellen Spitzenradius von $\approx 7\text{ nm}$ benutzt und typische Kräfte von $2\text{ nN} - 3\text{ nN}$ zwischen Spitze und Probe eingestellt.

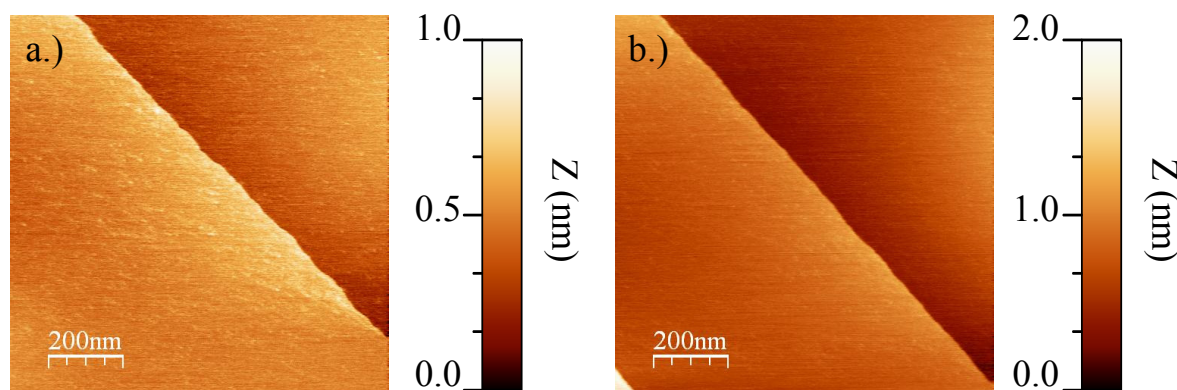


Abbildung 4.1: Kontakt AFM-Aufnahmen von unbestrahlten KBr-Oberflächen nach dem Spalten an Luft. (a) Terrasse mit monoatomarer Stufe, (b) Terrassen mit Mehrfachstufen.

Abbildung 4.1 zeigt AFM-Aufnahmen einer unbestrahlten KBr(001)-Oberfläche. Nach dem Spalten besteht diese aus atomar flachen Terrassen mit typischen Ausdehnungen von bis zu $1\text{ }\mu\text{m} \times 1\text{ }\mu\text{m}$, welche durch Stufen mit einer Höhe von einer (Abb. 4.1a) bzw. mehreren Atomlagen (Abb. 4.1b) separiert sind. Aus den AFM-Messungen lässt sich für ein-atomare Stufen

eine absolute Höhe von ≈ 0.35 nm ermitteln. Ein Vergleich mit dem nominellen Netzebenenabstand von $a_0/2 = 0.33$ nm [153] verdeutlicht die hohe Präzision der Messapparatur.

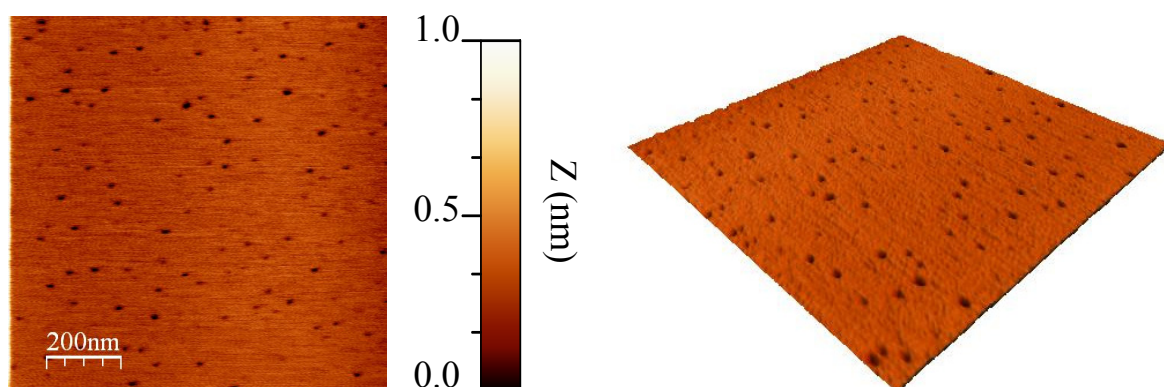


Abbildung 4.2: Kontakt-AFM-Aufnahme der KBr-Oberfläche nach Beschuss mit Xe^{25+} -Ionen der kinetischen Energie $E_{\text{kin}} = 40$ keV und einer Fluenz von $\Phi = 8 \cdot 10^9$ cm^{-2} .

In einem ersten Untersuchungsschritt wurde die KBr-Oberfläche mit Xe^{25+} -Ionen mit einer kinetischen Energie von 40 keV und einer Ionenfluenz von $\approx 8 \cdot 10^9$ cm^{-2} bestrahlt. Abbildung 4.2 zeigt eine typische AFM-Aufnahme der Oberfläche nach der Bestrahlung. Statistisch verteilt auf der Oberfläche finden sich Löcher mit einer lateralen Ausdehnung von 10 nm bis 20 nm und einer einheitlichen Tiefe von ca. 0.3 nm - 0.4 nm, also genau einer Atomlage. Diese lochartigen Strukturen seien im folgenden mit dem englischen Begriff *Nanopit* oder kurz *Pit* bezeichnet. Abbildung 4.3a zeigt das eindimensionale Profil eines solchen Nanopits.

Derartige Profile wurden auf mehreren AFM-Aufnahmen für alle gesichteten Nanopits aufgenommen und statistisch ausgewertet. Teil (a) und Teil (b) von Abbildung 4.3 zeigen die daraus resultierenden Verteilungen von Pit-Breite sowie Pit-Tiefe. Beide Größen zeigen eine GAUSS-förmige Häufigkeitsverteilung. Für die Breite der Pits findet sich ein Schwerpunkt von $d \approx 17$ nm sowie eine mittlere Abweichung¹ von $\Delta d \approx 6$ nm. Analog lässt sich für die Tiefe ein Schwerpunkt der Verteilung bei $t \approx 0.4$ nm finden. Dies entspricht im Rahmen der Messunsicherheit der Tiefe einer Atomlage.

In Abbildung 4.2 finden sich auf einer Fläche von $1 \mu\text{m}^2$ ca. 70-80 Nanopits. Ein Vergleich mit der verwendeten Ionenfluenz von $8 \cdot 10^9$ Ionen/ cm^2 ($\hat{=} 80$ Ionen/ μm^2) legt die Vermutung nahe, dass jedes einzelne einfallende Ion zur Formierung eines individuellen Pits führt. Durch eine systematische Analyse zahlreicher AFM-Aufnahmen an verschiedenen Stellen innerhalb des Strahlflecks konnte dieser Befund bestätigt werden. Die gewählte niedrige Ionenfluenz und die damit verbundene geringe Trefferdichte erlaubt es zudem kollektive Effekte, die durch den wiederholten Einschlag zweier oder mehrerer Ionen an der selben Stelle der Oberfläche hervorgerufen werden, auszuschließen. Demnach müssen die Ursachen der Pit-Entstehung ausschließlich im lokalen Energieübertrag zwischen Projektil und Oberfläche zu finden sein.

¹Breite der Gauss-Verteilung bei halber Höhe (FWHM, vgl. Abb. 4.3).

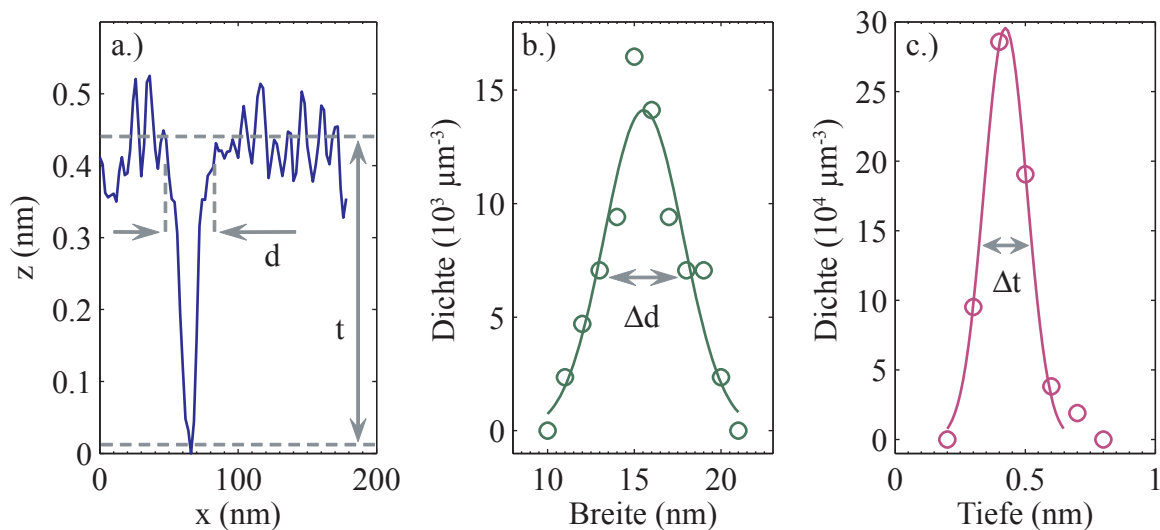


Abbildung 4.3: Charakterisierung von Nanopits auf KBr nach Beschuss mit Xe^{25+} mit $E_{\text{kin}} = 40 \text{ keV}$: Oberflächenprofil (a) sowie Breiten- und Tiefenverteilung der Nanopits (b,c).

Um eine mögliche Abhängigkeit der Pit-Formierung von der potentiellen Energie der Ionen zu erhalten, wurden in einem nächsten Schritt zahlreiche Bestrahlungen mit verschiedenen Ladungszuständen durchgeführt. Die kinetische Energie wurde dabei konstant bei $E_{\text{kin}} = 40 \text{ keV}$ gehalten. Für jede einzelne Probe wurden analog zur obigen Beschreibung zahlreiche AFM-Aufnahmen an unterschiedlichen Stellen innerhalb des Strahlflecks aufgenommen und hinsichtlich der Größe sowie der Anzahl der erzeugten Pits statistisch ausgewertet. Aus den AFM-Aufnahmen wurde zudem das Volumen jedes einzelnen Pits bestimmt (vgl. Abschnitt 3.5) und daraus die Anzahl der fehlenden (gesputterten) Atome errechnet.

Abbildung 4.4 zeigt die gefundenen Ergebnisse. Für Ladungszustände von $q = 15 - 34$ zeigt sich ein linearer Anstieg des Pit-Volumens und der damit verbundenen Sputterrate mit wachsender Potentialenergie von 30 nm^3 auf 100 nm^3 bzw. von 900 Atomen/Ion auf 2900 Atome/Ion . Die Fehlerbalken repräsentieren die Standardabweichung zum Mittelwert des bestimmten Volumens aus der statistischen Verteilung über eine Anzahl von jeweils mindestens 100 Pits. Interessanterweise zeigte die Analyse der einzelnen Pit-Profile zudem, dass der lineare Anstieg des Pit-Volumens ausschließlich auf eine laterale Vergrößerung der Pits zurückgeht. Für die Pit-Tiefe wurde bei allen verwendeten Ladungszuständen ein Schwerpunkt bei genau einer Atomlage ermittelt. Wie in Abschnitt 3.5 erläutert ergeben sich aus dem endlichen Radius der AFM-Spitze Einschränkungen im lateralen Auflösungsvermögen der AFM-Apparatur. Für die verwendeten Spitzen mit einem Radius von ca. 7 nm errechnet sich für eine konstante Pit-Tiefe von einer Monolage ein systematischer Fehler des Pit-Volumens zu $\approx 10 \text{ nm}^3$. Für das kleinste nachweisbare Pit-Volumen ergibt sich ein Wert von 10 nm^3 .

Für die Ladungszustände $q = 5$ und $q = 10$ zeigten sich auf den bestrahlten Probenoberflächen keine Pits, d.h. die Oberflächenstruktur der Proben blieb nach der Bestrahlung der einer unbe-

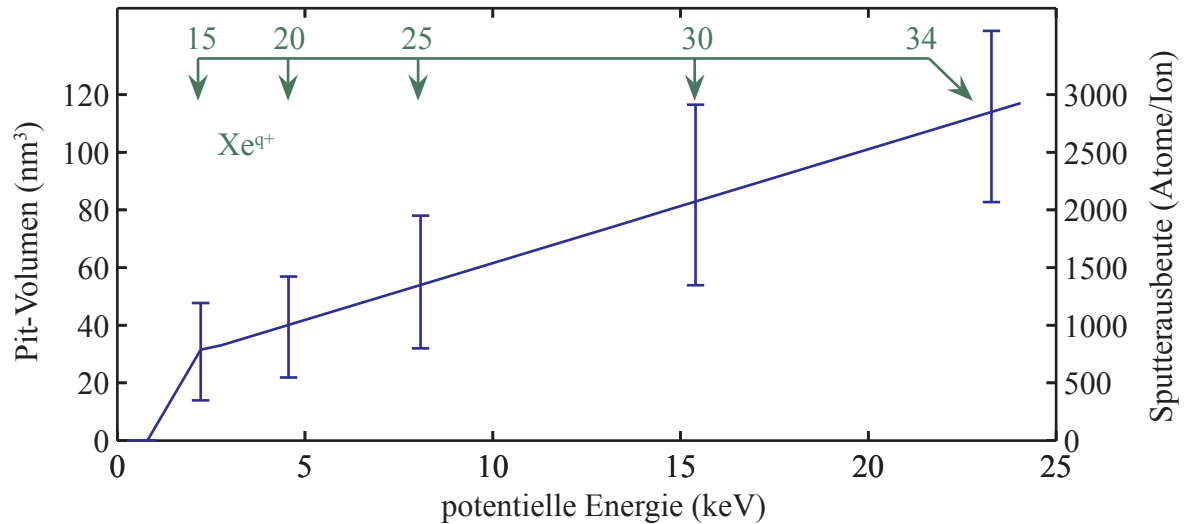


Abbildung 4.4: Volumen der durch Ionenbeschuss erzeugten Nanopits auf KBr in Abhängigkeit von der potentiellen Energie der Xe-Projektile. Die rechte Skala zeigt die aus dem Volumen berechneten korrespondierenden Sputter-Ausbeuten (K + Br- Atome).

handelten Probe. In Abb. 4.4 ist dies durch ein Pit-Volumen von $V = 0 \text{ nm}^3$ sowie eine damit einhergehende Sputterrate von 0 Atomen/Ion angedeutet. Eine lineare Extrapolation des Pit-Volumens aus den gefundenen Werten für $q \geq 15$ in Abb. 4.4 deutet jedoch darauf hin, dass für $q = 5$ und $q = 10$ Pits mit einem Volumen zwischen 20 nm^3 und 27 nm^3 erzeugt werden sollten, welche innerhalb des Auflösungsvermögens des AFMs nachweisbar sein sollten. Im Experiment hingegen konnten auch bei wiederholter Bestrahlung auf unterschiedlichen Proben keine Pits nachgewiesen werden. Für den Prozess der Pit-Formierung scheint demnach ein Mindestmaß an potentieller Projektilenergie von $E_{\text{pot}}^{\text{grenz}} \approx 1 - 2 \text{ keV}$ notwendig zu sein.

Aus der Extrapolation der Pit-Volumina in Abb. 4.4 für $q \geq 15$ gegen $E_{\text{pot}} = 0$ sollte sich der rein kinetische Anteil der Gesamtputterrate bestimmen lassen. Eine solche Extrapolation führt auf eine Sputterrate von $\Gamma(E_{\text{pot}} = 0) \approx 550 \text{ Atome/Ion}$ bzw. zu einem korrespondierenden Pit-Volumen von $V(E_{\text{pot}} = 0) \approx 22.5 \text{ nm}^3$. Einfache Rechnungen mit dem Programmcode TRIM2005 [154] ergeben jedoch für einfach geladene Xenonionen der kinetischen Energie $E_{\text{kin}} = 40 \text{ keV}$ eine Sputterrate von nur 5 Atomen/Ion, welche einem Pit-Volumen $< 1 \text{ nm}^3$ entspricht und damit um zwei Größenordnungen unter dem extrapolierten Wert aus Abb. 4.4 liegt. Da alle Bestrahlungen bei konstanter kinetischer Energie durchgeführt wurden, kann der lineare Anstieg der Gesamtputterrate ausschließlich auf die wachsende potentielle Energie der Ionen zurückgeführt werden. Der beobachtete Offset der Sputterrate, welcher den kinetischen Anteil der Sputterrate deutlich übersteigt, deutet jedoch darauf hin, dass ein effektives Potentialputtern nur infolge eines gewissen kinetischen Energieeintrages stattfinden kann. Die resultierenden Pit-Volumina hängen demnach von der potentiellen Energie des Projektils ab, der Prozess der Pit-Formierung wäre jedoch ohne das Vorhandensein kinetischer Energie gar nicht

erst möglich. Ein solcher Synergismus zwischen Projektilgeschwindigkeit und Potentialenergie konnte erstmals von Hayderer *et al.* für die Deutung von Gesamtsputterraten auf MgO_x gezeigt werden und wird in der Literatur unter dem Namen *kinetically assisted potential sputtering* (KAPS) geführt [97]. Das mikroskopische Bild dieses Mechanismus, in spezieller Adaption auf den KBr-Kristall soll im Anschluss ausführlicher erläutert werden.

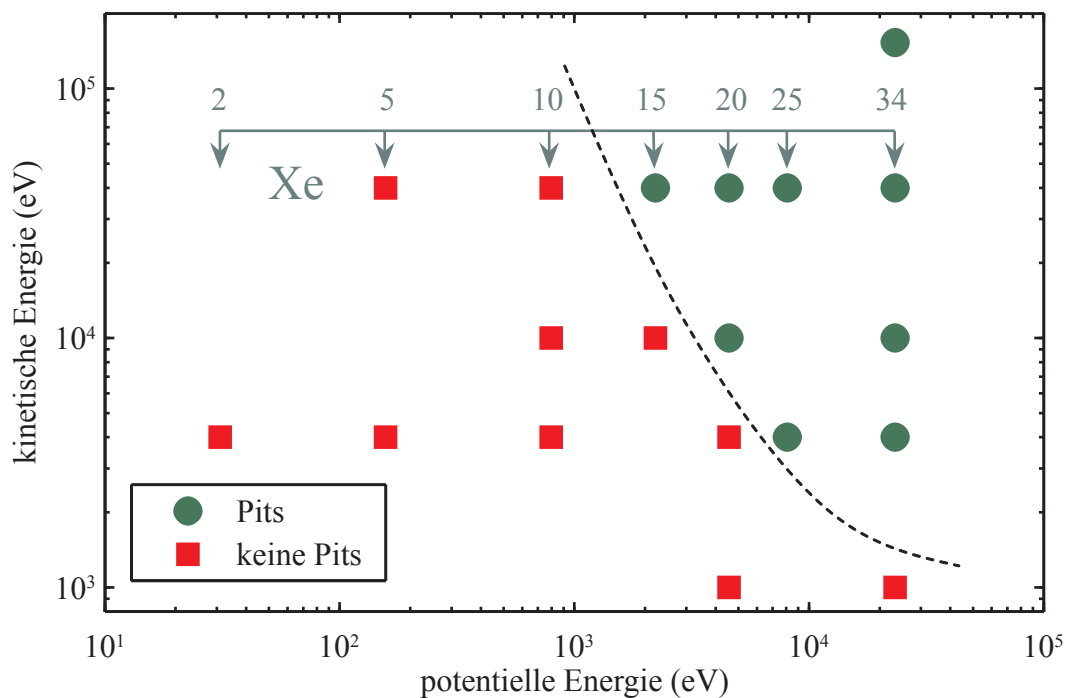


Abbildung 4.5: Phasendiagramm zur Nanopit-Formierung durch Xe-Ionen auf KBr in Abhängigkeit von der potentiellen sowie der kinetischen Projektilenergie. Die obere Skala kennzeichnet die korrespondierenden Xe-Ladungszustände.

Um ein detaillierteres Bild über den Einfluss der kinetischen Energie auf die Pit-Erzeugung zu erlangen, wurden die oben beschriebenen Bestrahlungen bei den kinetischen Energien $E_{\text{kin}} = 1 \text{ keV}, 4 \text{ keV}, 10 \text{ keV}, 153 \text{ keV}$ wiederholt. Ein besonderes Interesse galt dabei dem Grenzwert der potentiellen Energie für die Pit-Erzeugung, welcher bei $E_{\text{kin}} = 40 \text{ keV}$ als $E_{\text{pot}}^{\text{grenz}}(40 \text{ keV}) \approx 1 - 2 \text{ keV}$ identifiziert wurde. Die Ergebnisse dieser Experimente sind in Abb. 4.5 in einem Phasendiagramm der kinetischen und potentiellen Ionenenergie zusammengefasst. Quadratische Symbole kennzeichnen dabei solche Punkte, für die die untersuchten Proben nach der Bestrahlung keine Oberflächenveränderung, d.h. insbesondere keine Nanopits, aufwiesen. Punkte im Phasendiagramm, die zur Erzeugung wohldefinierter Pits auf der bestrahlten Oberfläche führten, sind in Abb. 4.5 durch runde Symbole dargestellt. Eindrucksvoll zeigt sich eine signifikante Verschiebung des Grenzwertes für die Pit-Formierung hin zu höheren Ladungszuständen bei sinkender kinetischer Energie der Ionen. Für $E_{\text{kin}} = 10 \text{ keV}$ lässt sich ein Grenzwert zwischen den Ladungszuständen $q = 15$ und $q = 20$ bzw. $E_{\text{pot}}^{\text{grenz}}(10 \text{ keV}) \approx 3 \text{ keV}$ finden, wohingegen eine kinetische Energie von $E_{\text{kin}} = 4 \text{ keV}$ einen Grenzwert von $E_{\text{pot}}^{\text{grenz}}(4 \text{ keV}) \approx 7 \text{ keV}$ liefert. Für die

kinetische Energie $E_{\text{kin}} = 1 \text{ keV}$ war es auch mit dem höchsten verfügbaren Ladungszustand von $q = 34$ nicht möglich, Pits auf der bestrahlten Oberfläche zu erzeugen. Für die höchste verwendete kinetische Energie von $E_{\text{kin}} = 153 \text{ keV}$ konnte eine Bestrahlung nur für $q = 34$ durchgeführt werden. Experimente mit niedrigeren Ladungszuständen dieser Geschwindigkeit lassen sich nur durch eine Beschleunigung der Ionen von der Quelle zur Probe realisieren und sind damit an der Rossendorfer Zweiquellenanlage, welche ausschließlich für das Abbremsen von Ionen konzipiert wurde, nicht durchführbar.

Um die experimentellen Befunde zur Formierung individueller Pits durch HCI-Beschuss auf der KBr-Oberfläche in ein mikroskopisches Bild zu überführen, ist es zweckmäßig, zunächst näher auf die bereits in Abschnitt 2.4.2 angesprochenen Mechanismen der defekt-induzierten Desorption auf Ionenkristalloberflächen einzugehen.

Die sukzessive Neutralisation eines hochgeladenen Ions vor der Oberfläche erzeugt zahlreiche Elektronen-Lochpaare sowie Elektronen-Fehlstellen (Löcher) im Valenzband des Kristallgitters. Im Einzelnen werden dabei durch resonante Neutralisation hauptsächlich Löcher in der Nähe der Fermikante erzeugt („kalte Löcher“), wohingegen bei kleinen Projektil-Oberflächen-Abständen und beim Eindringen des HCI in die Oberfläche AUGER-Neutralisation zur Erzeugung von Elektronen-Lochpaaren führt (vgl. Abschnitt 2.2.4). Resonante Neutralisation unter der Oberfläche aus energetisch tief liegenden Festkörperzuständen führt zur weiteren Produktion von Löchern („heiße Löcher“) [98].

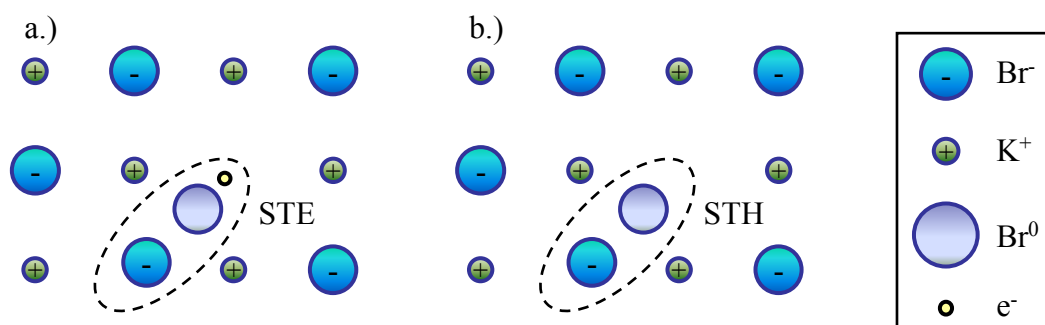


Abbildung 4.6: Schematische Darstellung der elektronischen Anregungen *self-trapped exciton*-STE (a) und *self-trapped hole*-STH (b) am Beispiel des KBr-Kristallgitters.

Die Grundidee des DS-Modells, das ursprünglich für das Sputtern von Isolatoroberflächen bei Beschuss mit Elektronen und ultraviolettem Licht entwickelt wurde, beruht auf der Tatsache, dass in Isolatorkristallen Elektronen-Lochpaare stark an das phononische System koppeln und an selbst-induzierten atomaren Gitterverlagerungen gefangen werden können [147, 155–158]. Eine solche elektronische Anregung, die sich aus einem Elektron-Lochpaar und einer deformierten Gitterstelle zusammensetzt, ist in Abb. 4.6a dargestellt und wird als *self trapped exciton* (STE) bezeichnet. Der Prozess der Anlagerung des Elektron-Lochpaares an die selbst-induzierte Gitterverschiebung wird in dieser Nomenklatur *self-trapping* genannt [159–161].

Tritt an die Stelle des Elektron-Lochpaares ein ungepaartes Loch so spricht man von einem *self-trapped hole* (STH) (Abb. 4.6b). Durch den Einfang eines Elektrons kann ein STH zu einem STE konvertieren. Dieser Vorgang ist besonders dann sehr wahrscheinlich, wenn es sich bei dem einfangenden Loch um ein „heißes Loch“ handelt, da die Elektronendichte in der Mitte des Valenzbandes im Allgemeinen sehr hoch ist [98].

Bei Raumtemperatur zerfallen STEs quasi-instantan in ein separiertes Frenkel-Paar, bestehend aus einem F- und einem H-Zentrum. Ein F-Zentrum ist dabei ein Elektron, welches den Gitterplatz einer Halogenvakanz einnimmt, und als H-Zentrum bezeichnet man ein negativ geladenes Halogenmolekül an der Gitterstelle eines Halogenions [162]. F- und H-Zentren werden in der Literatur oft unter dem gemeinsamen Begriff Farbzentren gefunden. Dieser Begriff hat sich historisch entwickelt und beruht auf der Tatsache, dass solche Zentren spezifische Absorptionsbanden im sichtbaren Wellenlängenbereich besitzen und damit transparente Ionenkristalle verfärben [142].

Wie kann nun die Erzeugung von Farbzentren in der Nähe der Kristalloberfläche die Prozesse des Sputterns sowie der Nanopit-Erzeugung einleiten? Die Antwort auf diese Frage liegt in der Mobilität der F- und H-Zentren. Aktiviert durch thermische Gitterschwingungen können F- und H-Zentrum unabhängig voneinander im Kristall ihre Gitterpositionen wechseln und zur Oberfläche diffundieren. Diese Diffusionsprozesse finden auf einer μs -Zeitskala statt und zeigen eine starke Temperaturabhängigkeit. Erreicht ein H-Zentrum die Oberfläche, so kann das dabei entstehende Halogen-Adatom aufgrund der Gitterbewegung des Kristalls mit thermischen Energien ins Vakuum emittiert werden [101, 163]. Bei diesem Prozess bleibt die Oberflächentopologie unverändert, d.h. die Oberfläche befindet sich nach der Halogendesorption wieder im (001)-Zustand.

Etwas komplexer gestaltet sich die Rekombination eines F-Zentrums mit der Oberfläche: Das Elektron des F-Zentrums kann ein Alkaliion der Oberfläche neutralisieren, wodurch dieses seine (ionische) Bindung zum Kristallgefüge verliert [101]. Dabei entsteht jedoch nicht wie bei der Rekombination des H-Zentrums ein Adatom, sondern vielmehr ein neutrales Atom, welches sich nicht auf, sondern in der Oberfläche, umgeben von Ionen, befindet. Um die verbleibende VAN-DER-WAALS-Bindung an seine Nachbaratome (genauer: Nachbarionen) zu überwinden und damit ins Vakuum emittiert zu werden, benötigt ein solches Atom einen höheren Energieübertrag aus Gitterschwingungen, das heißt eine hinreichend hohe Temperatur der Oberfläche. Ist die Oberflächentemperatur nicht hoch genug um eine thermische Desorption des Alkaliatoms einzuleiten, so bildet sich im Verlauf der Bestrahlung eine metallische Schicht an der Oberfläche des Ionenkristalls [164–167]. Für schwere Primärteilchen, d.h. insbesondere für Ionen, ist der Impulstransfer vom Projektil an die Oberflächenatome während des Einschlags jedoch zumeist hoch genug, um dem Gitter einen hinreichend hohen Energiebetrag für die anschließende Desorption des Alkaliatoms zu übertragen [98]. Damit erfolgt die Desorption an

der Kristalloberfläche stöchiometrisch. Der Gesamtprozess der defekt-induzierten Desorption ist in Abb. 4.7 schematisch zusammengefasst.

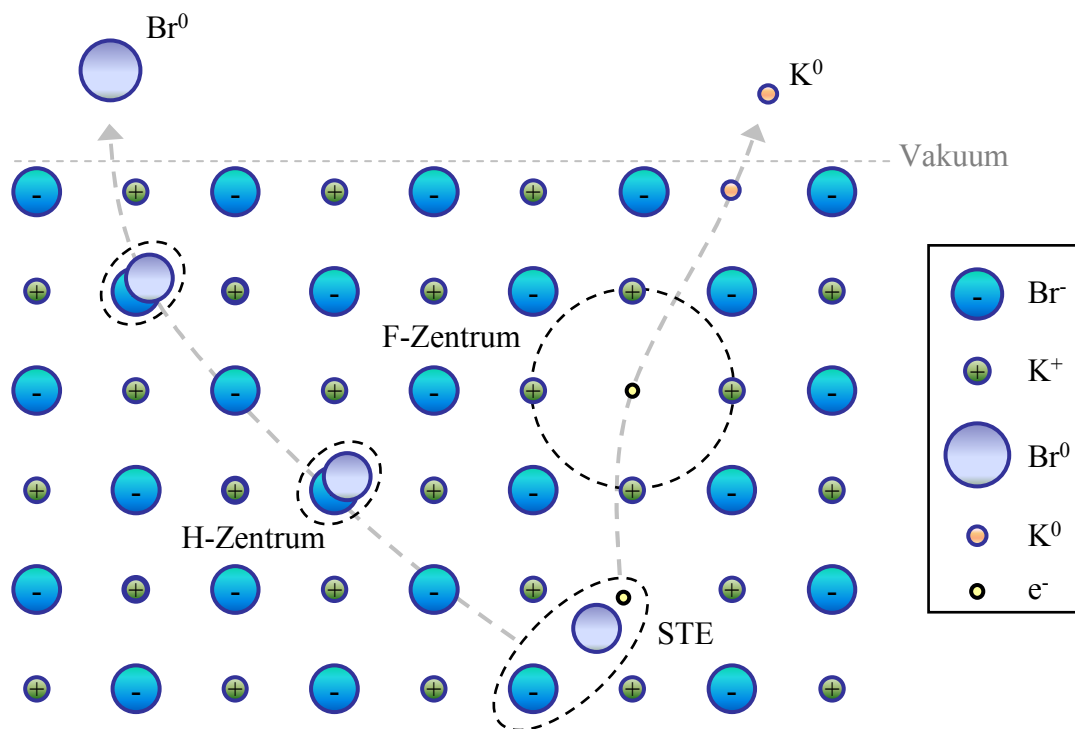


Abbildung 4.7: Schema zum Zerfall eines STE in ein F- und ein H-Zentrum mit anschließender Desorption an der Oberfläche am Beispiel von KBr. Dieses Schema stellt die Basis des Modells der defekt-induzierten Desorption dar.

Eine weitere Besonderheit zur Annihilation des F-Zentrums mit der Oberfläche konnte von Puchin *et al.* [163] gefunden werden. In APES-Rechnungen (*adiabatic potential energy surface*) konnte gezeigt werden, dass für den Neutralisationsprozess des Alkaliions durch das Elektron des F-Zentrums eine Energiebarriere existiert, die den Prozess unterbindet. Zudem wurde gezeigt, dass ein F-Zentrum mit einem Elektron im 2p-angeregten Zustand (F^* -Zentrum) genügend Energie besitzt, um diese Potentialbarriere zu überwinden. Aus den Rechnungen ging weiter hervor, dass die F^* -Annihilation bevorzugt an niederdimensionalen Stellen der Oberfläche stattfindet. Dabei handelt es sich um Stellen, wie Stufen, Knicke, Ecken, d.h. solche Stellen der Oberfläche, an denen lokal die Anzahl nächster Nachbarn des Alkaliatoms reduziert ist.

Mit diesen Ergebnissen ließen sich die experimentellen Befunde zur Elektronenbestrahlung deuten, welche aufzeigten, dass während der Bestrahlung monoatomar tiefe Löcher auf der Oberfläche entstehen, die mit zunehmender Bestrahlungsdosis wachsen. Dem Modell von Puchin *et al.* folgend rekombiniert ein an die Oberfläche diffundierendes F^* -Zentrum bevorzugt entlang einer Kante eines bereits existierenden Loches, wodurch dieses an Größe zunimmt. Damit konnten erstmals auch die im Experiment beobachteten oszillierenden Sekundärteilchenströme erklärt und ein Zusammenhang mit der Oberflächenstruktur aufgestellt werden. Zu Be-

ginn der Bestrahlung, wenn wenige Löcher an der Oberfläche vorhanden sind, ist zugleich auch die Anzahl niederdimensionaler Oberflächenstellen (Kanten der Löcher) sehr gering. Im Verlauf der Bestrahlung wachsen die Löcher und das Verhältnis von Kanten zur Gesamtoberfläche steigt an, wodurch bei gleich bleibendem Primärstrom der Sekundärteilchenstrom ansteigt. Sobald jedoch ein Großteil der ersten Monolage des Kristalls desorbiert ist, nimmt die Anzahl an Kanten wieder ab bis die erste Monolage komplett entfernt ist und Löcher auf der zweiten Monolage entstehen, welche die Kantendichte wieder erhöhen.

Damit konnten die Rechnungen von Puchin *et al.* auch die bekannte „schichtweise“ Desorption auf Alkalihalogenid-Oberflächen bei Elektronenbeschuss erklären [168]. Solange Kanten in der ersten Monolage des Kristalls vorhanden sind, werden F^* -Zentren bevorzugt an diesen rekombinieren (und damit desorbieren), anstatt neue Löcher in der zweiten Monolage zu erzeugen.

Ein entscheidender Punkt, der in diesem Bild nicht erklärt werden konnte, war die Erzeugung der ersten Löcher zu Beginn der Bestrahlung, d.h. zu einem Zeitpunkt an dem die Anzahl niederdimensionaler Oberflächenstellen sehr klein (idealerweise Null) ist². Sowohl Such *et al.* [169] als auch Kolodziej *et al.* [170] schlugen vor, dass mehrere F/F^* -Zentren an der Oberfläche zu so genannten X-Zentren agglomerieren könnten. Diese Ansammlung von F/F^* -Zentren hätte genügend Energie, um den Desorptionsprozess von Alkaliatomen auch ohne das Vorhandensein einer niederdimensionalen Oberflächenstelle zu initiieren. Zugleich merkten Such *et al.* jedoch an, dass die Dichte der F/F^* -Zentren an der Kristalloberfläche zu gering sei, um diesen Prozess dominant zur Erzeugung der ersten Löcher beitragen zu lassen. Die Hauptursache hierfür ist dabei jedoch nicht in einer zu geringen F/F^* -Produktionsrate begründet, sondern vielmehr in der Tatsache, dass die Erzeugung entlang der gesamten Trajektorie des Elektrons durch den Kristall erfolgt. Die Wahrscheinlichkeit, dass zwei oder mehrere F/F^* -Zentren die Oberfläche im selben räumlichen Gebiet erreichen, ist dadurch zu gering, um zu einer Produktion von X-Zentren in geeignetem Maße beizutragen.

Im Falle hochgeladene Ionen kann jedoch jedes einfallende Projektil als eine Punktquelle von Elektronen mit Energien im Bereich einiger eV bis weniger keV betrachtet werden. Da die Neutralisation auf einer fs-Zeitskala und auf einem räumlich begrenzten Gebiet von wenigen nm³ stattfindet, ergibt sich eine Elektronenstromdichte, die die der einfachen Elektronenbestrahlung um ein Vielfaches übersteigt. Durch die quasi-simultane Erzeugung mehrerer F/F^* -Zentren direkt an der Oberfläche des Kristalls stellt die Diffusion von Defekten an die Oberfläche keine Voraussetzung an die Desorption mehr dar. Aufgrund der hohen Dichte erzeugter F/F^* -Zentren vermöge der HCI-Neutralisation, ergibt sich damit (in starkem Kontrast zur ESD) eine hohe Wahrscheinlichkeit der Agglomeration von Defekten am Ort des Ioneneinschlags. Wie oben beschrieben können X-Zentren ohne das Vorhandensein niederdimensionaler Stellen an der Oberfläche eine direkte Desorption von Oberflächenatomen bewirken und damit zur Entstehung

²Gleiches gilt auch für den Beginn der Desorption der zweiten und jeder weiteren Monolage.

eines individuellen Nanopits führen.

Die geschilderten Mechanismen sind in Abb. 4.8 schematisch zusammengefasst: Bei dem Prozess der ESD werden F^* -Zentren entlang der gesamten Elektronentrajektorie erzeugt, diffundieren an die Oberfläche und können dort an den Kanten bereits vorhandener Löcher desorbieren (a). Bei der HCI-Neutralisation werden zahlreiche F/F^* -Zentren mit einer hohen Dichte direkt an der Oberfläche des Kristalls erzeugt und können zu X -Zentren agglomerieren (b). X -Zentren können unter Emission neutraler Atome individuelle Nanopits auf der 001-Oberfläche erzeugen (c).

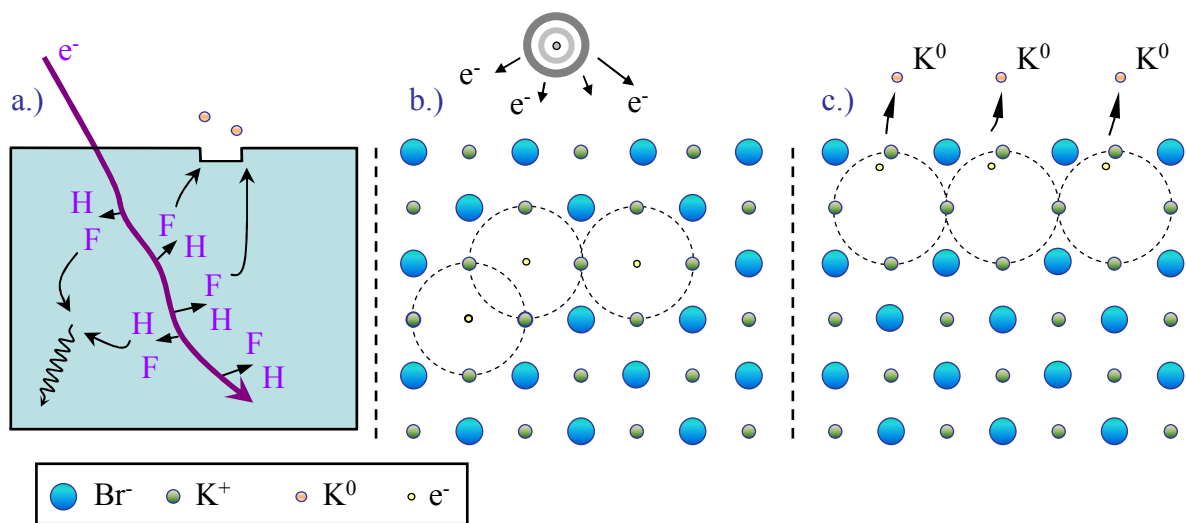


Abbildung 4.8: Schematische Veranschaulichung der diffusionsgetriebenen Desorption durch Elektronenbestrahlung (a) und der durch Defektagglomeration (b) hervorgerufenen Desorption bei Beschuss mit hochgeladenen Ionen. Die Vereinigung mehrerer F -Zentren in ein X -Zentrum (siehe Text) führt zur kollektiven Desorption von Oberflächenatomen (c).

Die Nichtexistenz von Nanopits unterhalb des Grenzwertes der potentiellen Energie $E_{\text{pot}}^{\text{grenz}}$ (vgl. Abb. 4.4) legt die Schlussfolgerung nahe, dass für die Initiierung der Defektagglomeration in X -Zentren und damit der Pit-Erzeugung eine Mindestanzahl an F/F^* -Zentren pro Fläche notwendig ist.

Unter der Voraussetzung, dass die Anzahl emittierter Sekundärelektronen linear mit der potentiellen Projektilenergie anwächst, kann in erster Näherung angenommen werden, dass auch die Anzahl erzeugter F/F^* -Zentren am Einschlagpunkt des Ions eine solche lineare Abhängigkeit aufweist. Wird weiterhin angenommen, dass ein Großteil dieser Zentren über die oben genannten Mechanismen zur Desorption führt, so kann das lineare Wachstum von Pit-Volumen sowie Sputterraten in Abb. 4.4 verstanden werden. Die Annahme eines linearen Zuwachses der Sekundärelektronenausbeute mit der potentiellen Energie ist, wie in Kapitel 2 Gl. (2.36) gezeigt, nicht exakt. Vielmehr zeigt sich durch den Exponenten $\beta = 0.5$ in Gl. (2.36) eine Sättigung der Elektronenausbeute für hohe Ladungszustände. Für diese verschiebt sich jedoch zugleich die Energieverteilung der emittierten Sekundärelektronen zu höheren Energien, da zunehmend

Innerschalenvakanzen über AUGER-Prozesse gefüllt werden. Eine höhere mittlere Elektronenenergieverteilung geht jedoch auch mit einer höheren mittleren Anzahl erzeugter F/F*-Zentren einher. Damit sollte sich die Sättigung der Gesamtelektronenausbeute kompensieren und die oben eingeführte Annahme einer linearen Abhängigkeit der Anzahl erzeugter Defekte von der potentiellen Projektilenergie in erster Näherung rechtfertigen lassen.

Unabhängig von der Neutralisation an der Oberfläche weist jedes Ionen-Projektil eine gewisse Eindringtiefe in den Kristall auf und erzeugt damit, analog zur Betrachtung von Elektronen, Elektronen-Lochpaare und damit F/F*-Zentren entlang seiner Trajektorie. Für Xenonionen mit einer kinetischen Energie von $E_{\text{kin}} = 40 \text{ keV}$ lässt sich aus TRIM-Simulationen [154] eine mittlere Eindringtiefe von $\approx 50 \text{ nm}$ sowie eine Gesamtzahl erzeugter Frenkel-Paare entlang der Trajektorie von ≈ 500 bestimmen. Die Annahme, dass ein signifikanter Anteil der so erzeugten F/F*-Zentren an die Oberfläche diffundiert und dort effektiv zur Desorption beiträgt, könnte zu einer Erklärung des beschriebenen Offsets in Abb. 4.4 beitragen.

Eine weitaus plausiblere Erklärung für den beobachteten Offset lässt sich jedoch aus der Arbeit von Krok *et al.* [171] ableiten. In dieser Studie zur Bestrahlung von KBr mit einfach geladenen Ionen mit hoher Dosis konnte festgestellt werden, dass die Schicht-für-Schicht-Desorption, wie sie für Elektronen beobachtet wurde, verschwand und stattdessen eine Desorption in einem Multilagenmodus auftrat. Dabei beginnt eine Erzeugung von Pits (und damit eine Desorption) der zweiten und dritten Atomlage noch bevor die erste Monolage komplett desorbiert ist. Dieses zur ESD konträre Verhalten wurde über die weitaus höhere Masse der Ionenprojektele gedeutet. Dabei wird angenommen, dass durch den Impulsübertrag vom Projektil auf Oberflächenatome Verlagerungen im Kristallgefüge erzeugt werden können, die als bevorzugte Rekombinationsorte für diffundierende F*-Zentren agieren. Da bei kontinuierlicher Bestrahlung auch solche Stellen der Oberfläche von Ionen getroffen werden, an denen bereits Teile der ersten Atomlage desorbiert sind, kann durch diese „selbst-induzierten“ Gitterverlagerungen auf der freiliegenden zweiten Monolage ein erneuter Desorptionsprozess einsetzen.

Für den hier betrachteten Fall hochgeladener Ionen wird, wie oben beschrieben, eine hohe Anzahl von Defekten direkt an der Oberfläche des Kristalls erzeugt, wodurch über den Prozess der Defektagglomeration eine direkte Desorption eingeleitet wird. Zusätzlich entstehen jedoch auch hier zweifelsfrei Störungen im Kristallgefüge durch den Übertrag kinetischer Energie vom Projektil auf die Atome der Kristalloberfläche. Da die Erzeugung dieser Verlagerungen in einem räumlichen Gebiet hoher F/F*-Dichte (erzeugt durch den HCI-Neutralisationsprozess) stattfindet, steht auch für solche F/F*-Zentren, die nicht an einer Agglomeration beteiligt sind, ein möglicher Kanal der Desorption zur Verfügung. Der Übertrag kinetischer Energie an den Kristall führt damit zu einer positiven Stimulation des Desorptionsprozesses und schlussendlich zu einer Erhöhung der Sputterraten bzw. der Pit-Volumina. In diesem Bild lässt sich der aus Abb. 4.4 gefundene Offset der Sputterraten und der daraus abgeleitete Synergismus zwischen den

beiden Projektilenergien verstehen.

In modifizierter Form erlaubt diese Argumentation auch eine vorsichtige qualitative Interpretation der gefundenen Verschiebung von $E_{\text{pot}}^{\text{grenz}}$ in Abb. 4.5. Dazu wird die Annahme eingeführt, dass die Agglomeration von F/F*-Zentren in komplexere X-Zentren bevorzugt an Kristallverlagerungen (hervorgerufen durch kinetischen Energieübertrag vom Projektil an die Oberfläche) stattfindet. Unter dieser Annahme kann eine Argumentation für die Verschiebung von $E_{\text{pot}}^{\text{grenz}}$ folgendermaßen konstruiert werden: Bei niedriger kinetischer Projektilenergie ist der Impulsübertrag an Atome der Oberfläche und damit die Anzahl erzeugter Gitterverlagerungen gering. Demnach stehen den F/F*-Zentren aus dem HCI-Neutralisationsprozess nur wenige „Kondensationszentren“ für eine Agglomeration in X-Zentren zur Verfügung. Eine hinreichend hohe Agglomeration, die einen Desorptionsprozess einleitet, lässt sich in diesem Fall nur durch eine Erhöhung der Anzahl an F/F*-Zentren respektive eine Erhöhung des Ladungszustandes, realisieren. Für hohe Projektilgeschwindigkeiten hingegen ist der Impulsübertrag an das Gitter und demnach die Anzahl erzeugter Kristallverlagerungen hoch, und die Formierung von X-Zentren sollte auch bei geringer Anzahl an F/F*-Zentren, d.h. bei niedrigem Ladungszustand begünstigt sein.

4.1.3 Experimente bei erhöhter Ionenfluenz

Auf der Grundlage der Defektagglomeration von F/F*-Zentren in komplexe X-Zentren können sowohl die individuelle Pit-Formierung durch Einzelbeschuss mit hochgeladenen Ionen als auch die in Abschnitt 4.1.2 experimentell gefundenen Abhängigkeiten der Sputterrate und des Pit-Volumens von der potentiellen Projektilenergie qualitativ erklärt werden. Um die Formierung von X-Zentren als Ursache der Desorption zweifelsfrei experimentell zu unterlegen, wurden in einem weiteren Schritt Bestrahlungsexperimente bei erhöhter Ionenfluenz durchgeführt. Hierfür wurden Xenonionen der Ladungszustände $q = 3$ sowie $q = 25$ mit einer kinetischen Energie von $E_{\text{kin}} = 40 \text{ keV}$ ausgewählt. Für diese Kombination aus Ladungszustand und kinetischer Energie ist anhand der Ergebnisse aus Abb. 4.5 bekannt, dass der Einzelionenbeschuss, d.h. die Bestrahlung bei niedriger Fluenz ($\Phi \leq 1 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$), für $q = 3$ keine Pit-Formierung hervorruft, wohingegen für $q = 25$ die individuelle Erzeugung von Pits durch jedes eintreffende Projektil beobachtet werden konnte.

In Abb. 4.9 sind AFM-Aufnahmen der KBr-Oberfläche nach der Bestrahlung mit den genannten Projektilionen bei einer Ionenfluenz von $\Phi = 2 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ für $q = 3$ sowie $\Phi = 1 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ für $q = 25$ dargestellt. Diese Fluenzen sind, verglichen mit den verwendeten Fluenz in Abschnitt 4.1.2, für $q = 3$ um drei und für $q = 25$ um eine Größenordnung erhöht. Bemerkenswerterweise zeigt Abb. 4.9, dass bei dieser erhöhten Fluenz nun auch die Bestrahlung mit Xe^{3+} -Ionen zur Erzeugung wohldefinierter Pits an der KBr-Oberfläche führt. Ein detaillierter Blick auf die Oberflächenaufnahmen zeigt zudem signifikante Unterschiede zwischen beiden Bestrahlungen:

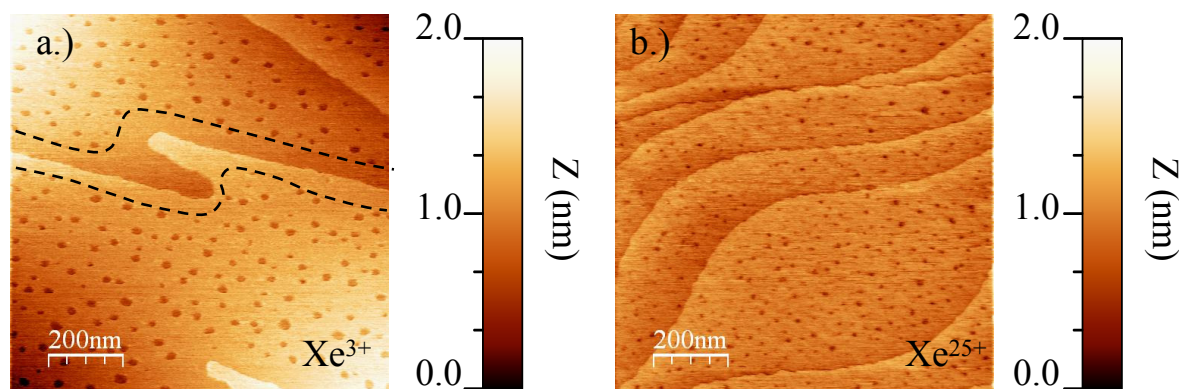


Abbildung 4.9: Kontakt-AFM-Aufnahmen der KBr Oberfläche nach Bestrahlung mit Xe^{3+} (a) und Xe^{25+} (b) bei erhöhter Ionenfluenz ($\Phi = 2 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ für Xe^{3+} und $\Phi = 1 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ für Xe^{25+}). Während im Fall von Xe^{3+} entlang existierender Terrassenkanten keine Pits erzeugt werden (unterbrochene Linie), zeigen die durch Xe^{25+} erzeugten Pits eine zufällige Verteilung auf der Oberfläche, unabhängig von deren Topographie (siehe Text).

- Die durch den Beschuss mit Xe^{3+} -Ionen hervorgerufenen Pits weisen im Vergleich zu der mit Xe^{25+} bestrahlten Oberfläche eine deutlich größere laterale Ausdehnung auf, und auch die Verteilung der Pit-Größen unterliegt einer stärkeren Variation.
- Für Xe^{3+} liegt die Anzahl erzeugter Pits auf der Oberfläche um ca. 3 Größenordnungen unter dem Wert der verwendeten Ionenfluenz.
- In der Umgebung existierender Terrassenstufen findet sich für Xe^{3+} eine ca. 50nm-100nm breite Zone in der keine Pits zu beobachten sind, wohingegen die mit Xe^{25+} bestrahlte Probe eine gleichverteilte Bedeckung mit Pits, insbesondere auch an Terrassenstufen, zeigt.
- Während die Tiefe der durch Xe^{3+} erzeugten Pits einen einheitlichen Wert von einer Monolage aufweist, zeigen sich auf der mit Xe^{25+} bestrahlten Probe zwei Arten von Pits, deren Tiefe entweder einer oder zweier Monolagen entspricht.

Um eine Quantifizierung der gefundenen Ergebnisse zu erlangen, wurde für beide Proben eine statistische Analyse der Pit-Profile, wie in Abschnitt 4.1.2 beschrieben, durchgeführt. Die Resultate dieser Analysen sind in Abb. 4.10 zusammengefasst. Zum Vergleich sind für die Bestrahlung mit Xe^{25+} die Verteilungsfunktionen von Pit-Breite und Pit-Tiefe aus einer Bestrahlung mit sehr geringer Fluenz ($\Phi \leq 1 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$) in Form unterbrochener Linien eingefügt.

Die Breite der erzeugten Nanopits aus der Xe^{3+} -Bestrahlung weist Werte zwischen 10 nm und 40 nm auf und besitzt einen Schwerpunkt bei $27 \text{ nm} \pm 8 \text{ nm}$. Im Vergleich dazu findet sich für den Schwerpunkt der Breitenverteilung für Xe^{25+} ein Wert von 17 nm, der mit dem aus der Bestrahlung mit niedriger Ionenfluenz vergleichbar ist ($\approx 15 \text{ nm}$, vgl. Abb. 4.3). Für die Tiefenverteilungen der erzeugten Pits findet sich für die mit Xe^{3+} bestrahlte Probe ein Wert von

0.4 nm, entsprechend einer Atomlage. Die Tiefenverteilung der durch den Beschuss mit Xe^{25+} erzeugten Pits zeigt zusätzlich eine zweite Komponente bei 0.8 nm, die der Tiefe von zwei Atomlagen entspricht.

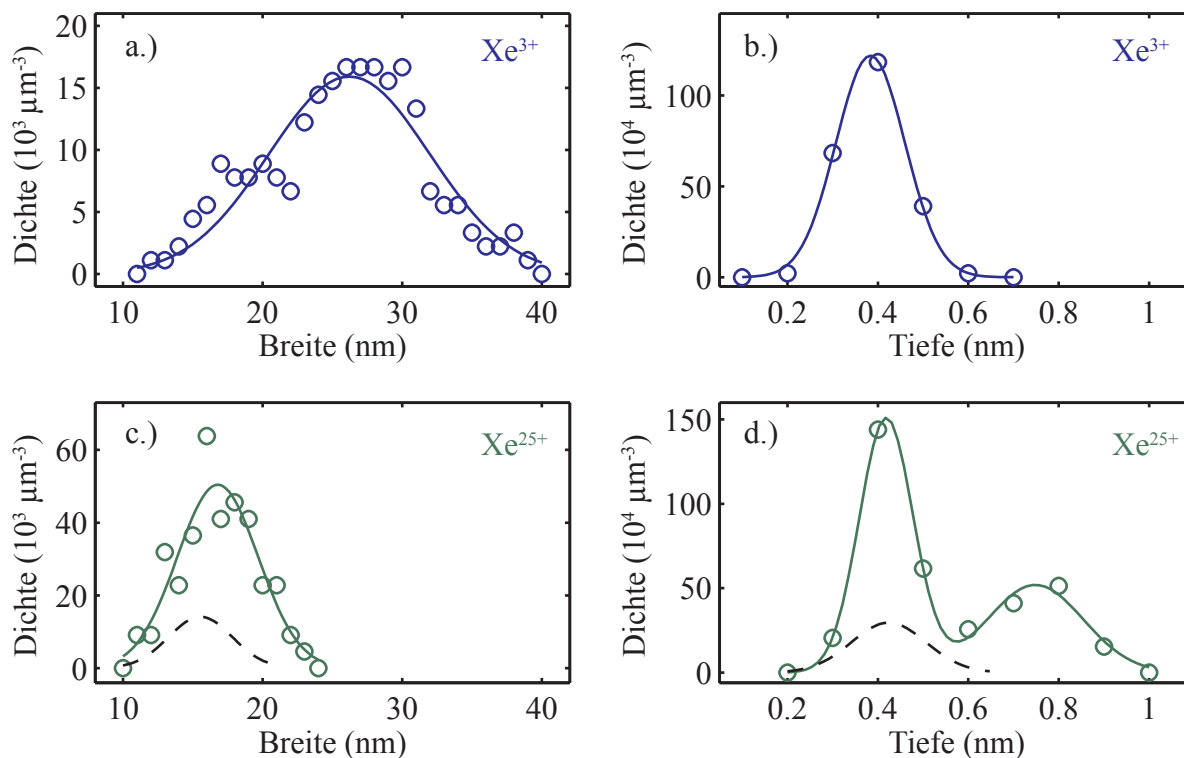


Abbildung 4.10: Breiten- und Tiefenverteilungen der erzeugten Nanopits auf KBr nach Bestrahlung mit Xe^{3+} (a,b) und Xe^{25+} (c,d) bei erhöhter Fluenz ($\Phi = 2 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ für Xe^{3+} , $\Phi = 1 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ für Xe^{25+}). Die Fluenz für Xe^{25+} ist 200 Mal niedriger als die für Xe^{3+} gleichzeitig jedoch ca. 100 Mal höher als für die oben gezeigten Einzeltreffer-Bestrahlungen. Die unterbrochenen Linien in den Graphen für Xe^{25+} zeigen die korrespondierenden Verteilungsfunktionen für Bestrahlung mit niedriger Fluenz ($\Phi < 1 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$).

Die signifikant breitere Verteilung der lateralen Pit-Ausdehnung, das Nichtvorhandensein von Pits in der Umgebung von Terrassenstufen und die fehlende Übereinstimmung von Ionenfluenz und Anzahl erzeugter Pits stellen eindeutige Indikatoren dafür dar, dass die Pit-Formierung durch Bestrahlung mit Xe^{3+} bei hoher Fluenz auf einen diffusionsgetriebenen kollektiven Prozess zurückzuführen ist. Jedes Xe^{3+} -Ion besitzt, unabhängig von seinem Ladungszustand, eine endliche Eindringtiefe in den Kristall und erzeugt analog zur ESD entlang seiner Trajektorie F/F^* -Zentren. Die Diffusion dieser Zentren zur Oberfläche und die anschließende Rekombination führen auf oben beschriebenem Wege zur Erzeugung von Pits, deren Größe aufgrund der bevorzugten Annihilation von F^* -Zentren an Kanten im Verlauf der Bestrahlung anwächst. Die Größe eines einzelnen Pits hängt dabei nur davon ab, wieviele F^* -Zentren diesen im Laufe der Bestrahlung erreicht haben und unterliegt damit dem stochastischen Prozess der Diffusion. Schlussendlich resultiert hieraus die im Experiment beobachtete starke Variation der Pit-Breite.

Die bevorzugte Desorption des F^{*}-Zentrums an existierenden Kanten stellt zudem auch die Ursache für das Fehlen von Pits in der Umgebung von Terrassenstufen dar, da ein F^{*}-Zentrum, das die Oberfläche in unmittelbarer Nähe einer Terrassenstufe erreicht, bevorzugt an dieser Kante desorbieren wird, anstatt einen neuen, individuellen Pit zu erzeugen. Dies konnte bereits von Kolodziej *et al.* für die Bestrahlung von KBr mit Elektronen beobachtet werden [170].

Zusammenfassend zeigt die Analyse der Oberfläche aus Abb. 4.9 für die Bestrahlung mit Xe³⁺ unter hoher Fluenz eindeutig einen diffusionsgetriebenen, zur ESD analogen, Prozess auf. Der kollektive Charakter dieses Prozesses, d.h. die Tatsache, dass für die Erzeugung eines einzelnen Nanopits mehrere F^{*}-Zentren aus unterschiedlichen Ionentrajektorien an die Oberfläche diffundieren müssen, begründet zudem das Ausbleiben von Nanopits bei Einzelteilchenbeschuss wie in Abschnitt 4.1.2.

Die Bestrahlung der KBr-Oberfläche mit Xe²⁵⁺ bei erhöhter Ionenfluenz zeigt im Vergleich zum Einzelionenbeschuss (unterbrochene Linie in Abb. 4.10) nur einen wesentlichen Unterschied: Neben den Pits mit einer Tiefe von einer Monolage treten nun auch solche Pits auf, deren Tiefe zwei Atomlagen beträgt. Schwerpunkt und Variation der Breitenverteilung weisen jedoch nur eine geringfügige Vergrößerung auf. Im Rahmen des in Abschnitt 4.1.2 eingeführten Modells der Defektagglomeration hängt die Größe der auf der Kristalloberfläche erzeugten Nanopits ausschließlich von der Anzahl der an der Oberfläche erzeugten F/F^{*}-Zentren und damit von der potentiellen sowie indirekt (Offset) von der kinetischen Energie des Projektils ab. Eine Abhängigkeit von Diffusion und Ionenfluenz verschwindet, im Gegensatz zur ESD, in diesem Modell jedoch gänzlich. Als Konsequenz einer erhöhten Ionenfluenz steigt die Wahrscheinlichkeit, dass ein Ion die Oberfläche in einem Gebiet trifft, an dem zuvor schon ein anderes Ion die Formierung eines Nanopits initiiert hat. In diesem Fall sollte im Rahmen des Modells der Defektagglomeration ein neuer Pit gleicher Größe innerhalb des bereits bestehenden erzeugt werden, sodass in Konsequenz ein Pit ungeänderter Ausdehnung jedoch mit doppelter Tiefe entstünde. Diese Beschreibung spiegelt die experimentellen Befunde aus Abb. 4.10 exakt wieder.

Das Verhältnis von monoatomar tiefen Pits zu solchen mit doppelt atomarer Tiefe liest sich in Abb. 4.10d als 3:1 ab. In einer einfachen Monte-Carlo Simulation mit dem Programmpaket MATLAB wurde das Verhältnis der Anzahl einfacher und doppelt tiefer Pits als Funktion des Überlappfaktors α zwischen den Pit-Flächen untersucht. In der Simulation wird für ein Ion ein statistischer Eintreffpunkt bestimmt und protokolliert. Am Ort des Einschlags wird ein quadratischer Pit mit einer zufälligen Größe von 17 ± 6 nm erzeugt³. Für jedes weitere eintreffende Ion wird überprüft, ob am Ort des Eintreffens bereits ein Pit vorhanden ist. Ist dies der Fall und ist zudem der Überlapp der Flächen von vorhandenem Pit und neuem größer als der Überlappfaktor α so wird der bereits vorhandene Pit in einen neuen Pit doppelter Tiefe überführt. Das Ergebnis einer solchen Simulation ist für $\alpha = 20\%$ in Abb. 4.11 dargestellt. Für

³Experimentelle Werte für die individuelle Piterzeugung bei niedriger Fluenz aus Abb. 4.3.

diesen Überlappfaktor liefert die Simulation für das Verhältnis von monoatomar zu diatomar tiefen Pits einen Wert von 3.3:1. Zudem ergibt sich aus der Modellrechnung für die verwendete Ionenfluenz von $\Phi = 1 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ eine Gesamtanzahl von $565 \text{ Pits}/\mu\text{m}^2$. Durch Abzählen in 4.10d findet sich ein experimenteller Wert von ca. $530 \text{ Pits}/\mu\text{m}^2$. Trotz der einfachen Annahme quadratischer Pits liefert die Simulation damit eine sehr genaue Übereinstimmung mit dem Experiment.

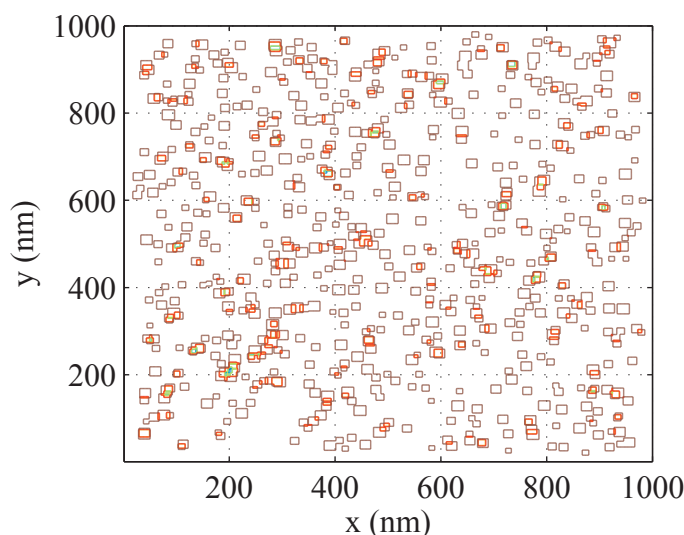


Abbildung 4.11: Einfache Monte-Carlo-Simulation zur Erzeugung doppelt-atomar tiefer Nano-Pits bei erhöhter Ionenfluenz für einen Überlappfaktor von $\alpha = 20\%$. Quadrate die in der Abbildung zu mehr als 20% überlappen werden in der Simulation als Pits doppelter Tiefe registriert. Das Verhältnis zwischen monoatomar und diatomar tiefen Pits spiegelt mit 3.3:1 die experimentellen Befunde aus Abb. 4.10d sehr gut wieder.

Aus den Ergebnissen der Simulation sowie den experimentellen Befunden geht hervor, dass der Einschlag eines Xe^{25+} -Ions nicht nur dann die Formierung eines neuen Pits doppelter Tiefe initiiert wenn das Ion direkt in einen bereits existierenden Pit trifft, sondern auch wenn der Überlapp der erzeugten Pits mehr als 20% beträgt. Durch eine einfache Überlegung anhand der Messergebnisse aus Abb. 4.10d kann diese Annahme bestätigt werden: Würden nur solche Ionen die direkt innerhalb eines vorhandenen Pits auf die Oberfläche treffen zur Erzeugung eines Pits doppelter Tiefe führen, dann sollten Projektile die *nur* in der unmittelbaren Nähe eines existierenden Pits eintreffen zu einer signifikanten Verbreiterung der Pitgröße führen. Im Experiment ist jedoch nur eine unwesentliche Verschiebung der mittleren Pitbreite im Vergleich zum Einzelioneneinschuss festzustellen (vgl. unterbrochene Linie in Abb. 4.10c).

Eine mögliche Ursache für die beobachtet Erzeugung von Pits mit doppelter Tiefe bei erneutem Ioneneinschlag in unmittelbarer Umgebung eines vorhandenen Pits kann in der Tatsache begründet sein, dass für Defekte die durch den erneuten Ioneneinschlag in der zweiten, dritten, u.s.w. Atomlage der Oberfläche entstehen, unter dem existierenden Pit vorhandene Kristallversetzungen aus der ersten HCI-Neutralisation als Senken für die Defektagglomeration agieren.

Eine Desorption innerhalb des bereits vorhandenen Pits wäre damit wahrscheinlicher als die an der Oberfläche des Kristalls.

Einen weiteren experimentellen Befund zur Untermauerung des Modells der Defektagglomeration stellt die Tatsache dar, dass die Pit-Erzeugung unter Xe^{25+} -Beschuss eine gänzliche Unabhängigkeit von der Oberflächentopologie aufweist. Selbst in unmittelbarer Umgebung von existierenden Terrassenstufen lassen sich Pits auf der bestrahlten Probe finden. Würde die Diffusion von Defekten einen wesentlichen Beitrag zum Prozess der Pit-Formierung leisten, könnten entlang solcher Stufen keine Pits nachgewiesen werden.

Aus den gezeigten experimentellen Ergebnissen geht demnach zweifelsfrei hervor, dass die individuelle Formierung von Nanopits durch hochgeladene Ionen in der Tat auf die simultane Erzeugung zahlreicher Defekte am Auftreffpunkt des Ions und deren Agglomeration in komplexe X-Zentren zurückzuführen ist. Zudem zeigen die Experimente, dass auch niedrig geladene Ionen, deren potentielle Energie für die Formierung individueller Pits zu gering ist, bei geeignet hoher Fluenz über kollektive, diffusionsgetriebene Prozesse eine Strukturierung der Oberfläche hervorrufen können.

4.1.4 Zusammenfassung

Es konnte experimentell gezeigt werden, dass der Einschlag hochgeladener Xe-Ionen auf der $\text{KBr}(001)$ -Oberfläche zur individuellen Formierung von Nanopits führt. Für die Erzeugung dieser Nanopits konnte eine minimale potentielle Energie $E_{\text{pot}}^{\text{grenz}}$, die ihrerseits von der Projektilgeschwindigkeit abhängt, identifiziert werden. Auf der Basis der defekt-induzierten Desorption für Alkalihalogenide konnte ein Modell abgeleitet werden, das vom komplexen Prozess der HCl -Neutralisation vor der Oberfläche über die Erzeugung und Agglomeration elektronischer Defekte bis hin zur Desorption von Neutralteilchen und damit zur Formierung individueller Nanopits führt. Den Kern dieses Modells bildet die bereits aus Experimenten zur ESD vorhergesagte Erzeugung von X-Zentren an der Kristalloberfläche, die in dieser Arbeit aus komplementären Experimenten mit erhöhter Ionenfluenz nachgewiesen werden konnte.

4.2 Hillock-Formierung auf $\text{CaF}_2(111)$ -Oberflächen

4.2.1 Vorbetrachtungen

Als ein weiteres Probenmaterial für das Studium der Nanostrukturierung durch die Neutralisation hochgeladener Ionen wurde die (111) -Oberfläche des Erdalkalihalogenides Kalziumfluorid untersucht. CaF_2 kristallisiert in einem typischen Fluoridgitter. Dabei bilden die Kalziumionen ein kubisch-flächenzentriertes Gitter, bei dem die Fluoridionen in den 8 Tetraederlücken lie-

gen. Damit ist jedes Fluoridion von 4 Kalziumionen umgeben und jedes Kalziumion seinerseits von 8 Fluoridionen. Der Netzebenenabstand im CaF_2 -Kristall beträgt $a_0 = 0.546 \text{ nm}$ [153]. Die (111)-Ebene stellt die natürliche Spaltrichtung des CaF_2 -Kristalls dar.

In jüngsten Studien von El-Said *et al.* konnte gezeigt werden, dass der Beschuss der $\text{CaF}_2(111)$ -Oberfläche mit hochgeladenen Ionen zur individuellen Formierung hügelartiger Erhebungen, sog. Hillocks, mit einem Durchmesser von einigen 10 nm und einer Höhe von 0.5 nm bis 1.5 nm führt [115]. Zudem wurde beobachtet, dass das Volumen der erzeugten Hillocks stark von der potentiellen Energie der Projektile abhing. El-Said *et al.* zeigten weiter, dass für die Hillock-Erzeugung ein Mindestmaß potentieller Energie von $E_{\text{pot}}^{\text{grenz}} \approx 14 \text{ keV}$ notwendig ist [116]. Im Experiment wurde dieser Grenzwert für Xenonionen zwischen den Ladungszuständen $q = 28$ und $q = 30$ und für Argonionen zwischen den Ladungszuständen $q = 17$ und $q = 18$ gefunden. Wie bereits in Abschnitt 2.5 angedeutet, ist die Erzeugung hügelartiger Strukturen auf der CaF_2 -Oberfläche aus Bestrahlungen mit schweren, einfach geladenen Ionen hoher kinetischer Energie (MeV-GeV) bekannt (SHI, vgl. S. 38) [112, 113]. Für SHIs ist die mittlere, an das Kristallgitter abgegebene, kinetische Energie pro Weglänge so hoch, dass ein lokales Schmelzen des Kristalls entlang der Ionentrajektorie eingeleitet werden kann. Durch das lokale Schmelzen stülpt sich Material aus der Oberfläche heraus, erstarrt instantan und bildet so permanente Nanostrukturen - Hillocks. Um ein lokales Schmelzen des Kristalls und damit die Erzeugung von Hillocks an der Oberfläche einleiten zu können, muss der kinetische Energieeintrag des Projektils pro Weglänge hoch genug sein, um die Schmelzenergie des Kristallgitters von 0.55 eV/Atom [172] zu übersteigen. In der Literatur findet sich für die $\text{CaF}_2(111)$ -Oberfläche ein Mindestenergieverlust von 5 keV/nm zur Initiierung der Hillockformierung auf oben genanntem Wege [114]. Dieser Energieverlust beinhaltet zwei Beiträge: einen nuklearen Energieverlust von $S_n = 500 \text{ eV/nm}$ sowie einen Energieverlust durch elektronische Anregungen von $S_e = 4500 \text{ eV/nm}$. Während S_n einem direkten Energietransfer an die Gitteratome entspricht, beschreibt S_e ein Maß für die Anregung des elektronischen Systems im Kristall. Letzteres trägt aufgrund der starken Elektron-Phonon-Kopplung im Ionenkristall auf indirektem Wege zu einer effektiven Heizung des Gitters bei. Die beschriebenen Formalismen zur lokalen Schmelze durch kinetischen Energieübertrag finden sich in der Literatur unter der englischen Bezeichnung *inelastic thermal spike model* ([173] und darin enthalten Quellen).

Durch Adaption dieses Modells gelang es El-Said *et al.* auch die Hillock-Formierung durch langsame hochgeladene Ionen auf CaF_2 mit einem lokalen Schmelzen der Oberfläche zu verknüpfen. Zwar ist die kinetische Energie dieser Projektile (einige keV) viel zu gering, um den kritischen Energieverlust von 5 keV/nm auch nur annähernd zu erreichen, der Transfer potentieller Energie vom Projektil in die Oberfläche findet jedoch auf einem räumlich so begrenzten Gebiet statt, dass die damit einhergehende Energiedichte die Schmelzenergie des Kristalls am Einschlagpunkt des Ions übersteigen kann.

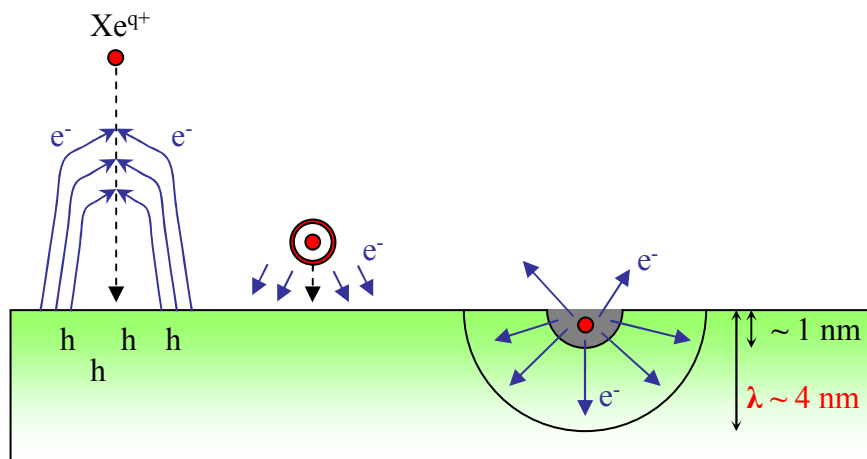


Abbildung 4.12: Schema zur Neutralisation eines hochgeladenen Ions vor der CaF_2 -Oberfläche mit anschließender Emission niederenergetischer Elektronen. Aus dem *thermal spike*-Modell für SHIs ist die mittlere freie Weglänge solcher Elektronen bekannt. Damit kann das Volumen einer Halbkugel berechnet werden, in die die potentielle Energie des Projektils deponiert wird.

Abbildung 4.12 zeigt einen schematischen Einblick in das von Lemell und Toulemonde [141] vorgeschlagene modifizierte *thermal spike*-Modell. Für die bereits vor der Oberfläche einsetzende Relaxation des hohlen Atoms und die damit verknüpfte Emission von Elektronen wird eine Gesamtzeit von wenigen fs angenommen. Für kinetische Projektilenergien von wenigen keV dringt das Ion in dieser Zeit bis zur vollständigen Relaxation ca. 1 nm in den Kristall ein. Als Quelle der Elektronenemission in den Kristall wird demnach eine Halbkugel mit einem Radius von 1 nm um den Eintreffpunkt auf der Oberfläche betrachtet (vgl. Abb. 4.12). Weiter wird angenommen, dass die in diesem Volumen erzeugten Elektronen homogen in alle Raumrichtungen des Kristalls emittiert werden. Auf diese Weise wird ein signifikanter Teil der Elektronen in Richtung Oberfläche emittiert und kann diese verlassen. Hieraus resultiert, dass nicht der gesamte Betrag der potentiellen Energie durch Elektronen an das Kristallgitter übertragen werden kann. Aus kalorimetrischen Messungen von Kost *et al.* [3] lässt sich der Anteil im Kristall deponierter, potentieller Energie zu einem Wert von $\approx 50\% \pm 20\%$ abschätzen. Elektronen, die aus der „Relaxationszone“ in Richtung Kristall emittiert werden, verteilen ihre Energie mit einer charakteristischen Zeitkonstante von $\tau_e \approx 100\text{fs}$ durch inelastische Elektron-Phonon-Streuung an die umliegenden Atome des Gitters.

In analoger Betrachtungsweise zum *thermal spike*-Modell für SHIs überträgt jedes in den Kristall emittierte Elektron $2/3$ seiner kinetischen Energie auf einer mittleren freien Weglänge λ_d an das Gitter. Unter der idealisierten Annahme, dass alle aus der Relaxation des HClIs hervorgegangenen Elektronen eine vergleichbare kinetische Energie besitzen, lässt sich eine Halbkugel mit einem Radius von $\lambda_d \approx 4\text{nm}$ konstruieren, in die der Energiebetrag $E_{\text{dep}} = 0.67 \cdot 0.5 \cdot E_{\text{pot}}$ eingetragen wird. In dieser Hemisphäre befinden sich $N_A \approx 8.5 \cdot 10^3$ Atome. Um einen Prozess des lokalen Schmelzens einleiten zu können, muss der Energieeintrag an das Kristallgitter den

Wert von $\varepsilon = 0.55 \text{ eV/Atom}$ übersteigen [172]. Über die Beziehung

$$\varepsilon = \frac{0.67 \cdot 0.5 \cdot E_{\text{pot}}}{N_A} \quad (4.1)$$

findet sich damit eine potentielle Mindestenergie von $E_{\text{pot}} \approx 14 \text{ keV}$. Diese zeigt, trotz der zum Teil stark idealisierten Annahmen des Modells, eine verblüffende Übereinstimmung mit dem im Experiment gefundenen Grenzwert $E_{\text{pot}}^{\text{grenz}}$ zur Hillock-Formierung. Die Annahme einer einheitlichen kinetischen Elektronenenergie und damit einer einheitlichen mittleren freien Weglänge sowie die Unkenntnis über den exakten Anteil der deponierten Potentialenergie stellen die beiden größten Fehlerquellen der obigen Modellrechnung dar. El-Said *et al.* geben daher in [116] für $E_{\text{pot}}^{\text{grenz}}$ einen Fehler von $\pm 50 \%$ an.

Die Experimente von El-Said *et al.* wurden bei kinetischen Projektilenergien von 280 keV - 460 keV durchgeführt. Abhängig vom Ladungszustand der verwendeten Projektilionen wiesen damit potentielle und kinetische Energie die gleiche Größenordnung auf, wodurch nicht zweifelsfrei nachgewiesen werden konnte, dass die Formierung der beobachteten Hillocks an der CaF_2 -Oberfläche ausschließlich Mechanismen der HCl-Neutralisation zuzuschreiben ist. Zwar findet sich im oben beschriebenen Modell keine Abhängigkeit von der Projektilgeschwindigkeit, sodass davon ausgegangen werden kann, dass eine Hillock-Formierung auch ohne das Vorhandensein kinetischer Energie stattfinden sollte, ein experimenteller Beweis hierfür konnte in [115, 116] jedoch nicht gegeben werden.

Um die potentielle Energie als alleinige Ursache für die Hillock-Erzeugung auf CaF_2 experimentell zu bestätigen und eventuell vorhandene Einflüsse der Projektilgeschwindigkeit auf den Formierungsprozess zu studieren, wurden im Rahmen dieser Arbeit in Kooperation mit der Technischen Universität Wien Bestrahlungen bei geringsten kinetischen Energien durchgeführt. Die Analyse der bestrahlten Proben im Raster-Kraft-Mikroskop und die gewonnenen Ergebnisse sollen auf den folgenden Seiten vorgestellt und diskutiert werden. Auf der Grundlage dieser Ergebnisse wurden an der Technischen Universität Wien Simulationsrechnungen zum modifizierten *thermal spike*-Modell durchgeführt, denen ein weitaus komplexeres Bild als das oben beschriebene zugrunde liegt. Eine Diskussion dieser Modellrechnungen sowie ein Vergleich mit den experimentell gefundenen Ergebnissen wird in Abschnitt 4.2.3 vorgestellt. Die Ergebnisse der in diesem Abschnitt beschriebenen Experimente wurden in der Fachzeitschrift *Physical Review Letters* veröffentlicht [117].

4.2.2 Experimentelle Ergebnisse

Für die vorliegenden Experimente wurden CaF_2 -Einkristalle der Firma *Korth Kristalle GmbH* verwendet. Diese wurden in analoger Vorgehensweise zu Abschnitt 4.1.2 in (111)-Richtung an Luft gespaltet und als $1 \text{ cm} \times 1 \text{ cm}$ große und ca. 1 mm starke Proben auf dem in Abschnitt 3.4.1

beschriebenen Targethalter befestigt und über die Transferkammer in die Experimentierkammer der Rossendorfer Zweiquellenanlage transferiert. In dieser wurden die Kristalle zur Reinigung der Oberfläche für ca. eine Stunde auf eine Temperatur von 150°C geheizt. Die Bestrahlungen selbst wurden bei einer Temperatur von 50°C - 60°C durchgeführt, da sich auf CaF_2 im Gegensatz zu KBr für niedrige Temperaturen teils sehr starke Aufladungen der Oberfläche durch den Ionenbeschuss ergeben.

Hochgeladene Xenonionen aus der Dresden EBIT wurden auch für diese Bestrahlungen über das Bremssystem der Anlage auf die gewünschte kinetische Energie gebracht und als kreisrunder Strahlfleck von ca. 2 mm Durchmesser auf der Probe abgebildet. Um die bestrahlte Fläche auf der Probe zu vergrößern und damit eine spätere Strahlflecksuche im AFM zu erleichtern, wurde die Probe während der Bestrahlung mit einer Amplitude von $3\text{ mm} \times 3\text{ mm}$ periodisch in lateraler Richtung bewegt. Zudem lassen sich mit dieser Methode punktuelle Aufladungen der Oberfläche durch den Ionenstrahl unterdrücken. Alle Bestrahlungen wurden unter einem Auftreffwinkel von 90° zur Oberfläche durchgeführt. Nach typischen Ionenfluenzen von $2 \cdot 10^9\text{ cm}^{-2}$ bis $2 \cdot 10^{10}\text{ cm}^{-2}$ wurden die Proben über die Transferkammer zurück an Luft transferiert und anschließend im Raster-Kraft-Mikroskop analysiert. Die Analyse der Oberflächen der bestrahlten Proben erfolgte im Kontakt-AFM-Modus (vgl. Abschnitt 3.5).

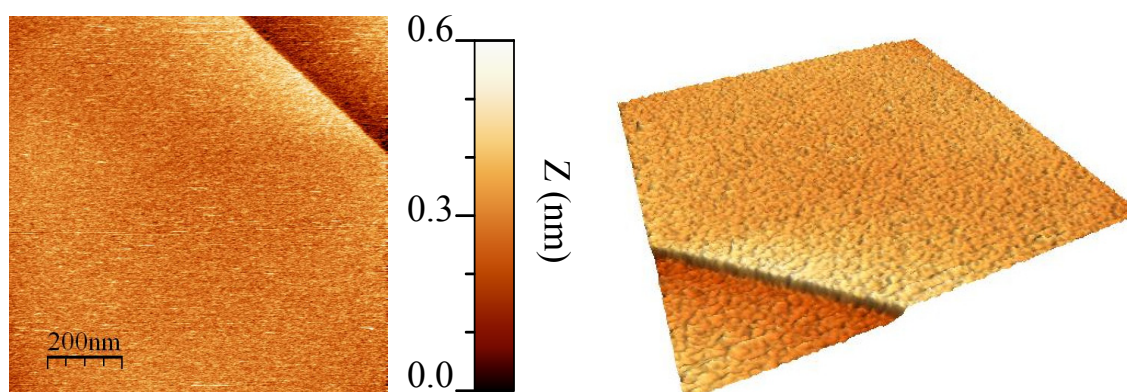


Abbildung 4.13: Kontakt-AFM-Aufnahme einer unbestrahlten CaF_2 -Oberfläche nach dem Spalten an Luft.

Die CaF_2 -Oberfläche bildet nach dem Spalten an Luft fluorterminierte atomar ebene Terrassen mit typischen Ausdehnungen von einigen $100\text{ nm} \times 100\text{ nm}$, die durch mono- bzw. multiatomare hohe Stufen voneinander getrennt sind. Abbildung 4.13 zeigt die Oberflächentopographie einer unbestrahlten CaF_2 -Probe nach dem Spalten an Luft. Die Höhe der abgebildeten Terrassenstufe lässt sich zu $\approx 0.3\text{ nm}$ bestimmen und zeigt innerhalb der Messauflösung der AFM-Apparatur eine gute Übereinstimmung mit dem in der Literatur angegebenen Wert ($a_0/2 \approx 0.27\text{ nm}$, vgl. Abschnitt 4.2.1).

Die Oberfläche der CaF_2 -Probe nach einer Bestrahlung mit Xe^{33+} bei einer kinetischen Energie von $E_{\text{kin}} = 2000\text{ eV} \times q$ sowie einer Fluenz von $\Phi = 9 \cdot 10^9\text{ cm}^{-2}$ ist in Abb. 4.14 dargestellt.

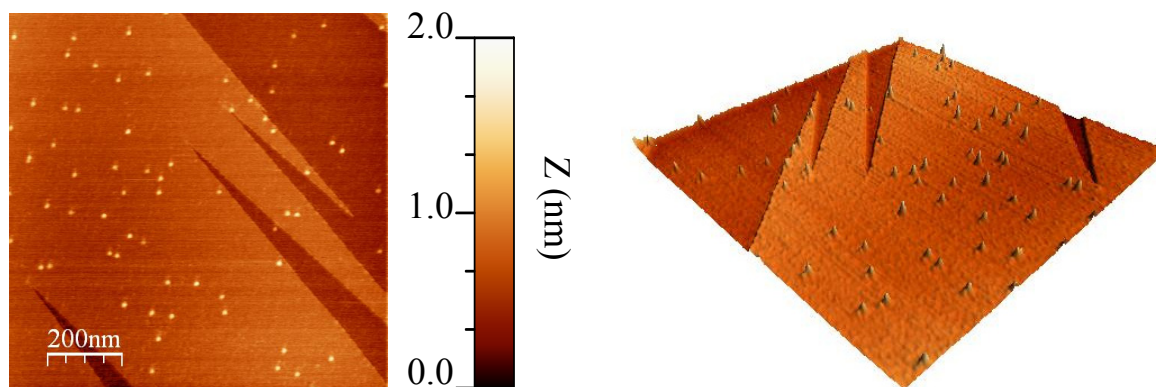


Abbildung 4.14: Kontakt-AFM-Aufnahme der CaF_2 -Oberfläche nach Bestrahlung mit Xe^{33+} -Ionen mit $E_{\text{kin}} = 2000 \text{ eV} \times q$ und einer Fluenz von $\Phi = 9 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$.

Gleichverteilt auf der Oberfläche finden sich Hillocks mit einem mittleren Durchmesser von $d \approx 20 \text{ nm}$ und einer Höhe von $h \approx 1 \text{ nm}$. Durch einfaches Abzählen ergibt sich aus Abb. 4.14 für die Anzahl erzeugter Hillocks pro Fläche ein Wert von $\approx 70 \mu\text{m}^{-2}$. Eine Mittelung über mehrere AFM-Aufnahmen an unterschiedlichen Stellen des Strahlflecks bestätigt diesen Wert. Ein Vergleich mit der Ionenfluenz von $\Phi = 9 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$ zeigt, dass auch für CaF_2 jedes einfallende hochgeladene Ion zur Erzeugung eines individuellen Hillocks beiträgt. Aufgrund der geringen Ionenfluenz kann zudem jeglicher Beitrag kollektiver Effekte an der Hillockerzeugung ausgeschlossen werden.

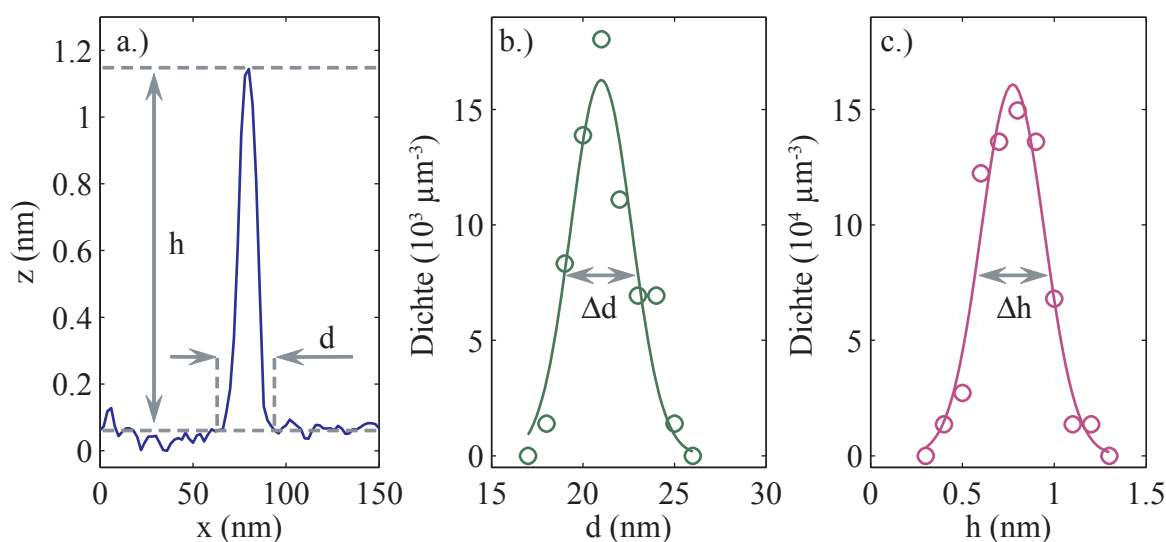


Abbildung 4.15: Charakterisierung von Nanohillocks auf CaF_2 nach Bestrahlung mit Xe^{33+} -Ionen mit $E_{\text{kin}} = 2000 \text{ eV} \times q$; Oberflächenprofil (a) sowie Breiten- und Höhenverteilung der erzeugten Hillocks (b,c).

Aus der statistischen Analyse der Linienprofile von Hillocks an verschiedenen Oberflächenstellen innerhalb des Strahlflecks lassen sich die aus Abb. 4.14 abgeschätzten Werte für Hillock-Durchmesser und -Höhe präzisieren und hinsichtlich ihrer Verteilung quantifizieren. Das Re-

sultat einer solchen Analyse ist in Abb. 4.15 zusammengefasst. Teil (a) der Abbildung zeigt exemplarisch das typische Linienprofil eines Hillocks. Aus den Verteilungsfunktionen von Durchmesser und Höhe der erzeugten Hillocks (Abb. 4.15b,c) finden sich für die Schwerpunkte Werte von $d = 21 \text{ nm}$ und $h = 0.8 \text{ nm}$. Die mittleren Abweichungen beider Messgrößen lassen sich zu $\Delta d = 5 \text{ nm}$ und $\Delta h = 0.4 \text{ nm}$ ablesen (FWHM).

Um ein detailliertes Bild über die Hillock-Erzeugung bei verschiedenen potentiellen und kinetischen Projektilenergien zu erlangen, wurden für zahlreiche Kombinationen aus beiden Energien Bestrahlungen durchgeführt und in der oben beschriebenen Weise statistisch ausgewertet. Das Hauptinteresse galt dabei der Lage des Grenzwertes der Hillock-Formierung $E_{\text{pot}}^{\text{grenz}}$ sowie der Größe (genauer dem Volumen) der erzeugten Hillocks. Für Bestrahlungen bei einer kinetischen Energie von $E_{\text{kin}} = 1500 \text{ eV} \times q$, einer um den Faktor 7 geringeren Geschwindigkeit als bei den von El-Said *et al.* durchgeführten Experimenten, zeigte sich dabei überraschenderweise, dass eine Hillock-Formierung bereits für Projektilladungszustände von $q = 28$ eintrat. In [116] konnte diese bei einer kinetischen Energie von $10 \text{ keV} \times q$ ausschließlich für Ladungszustände $q \geq 30$ beobachtet werden.

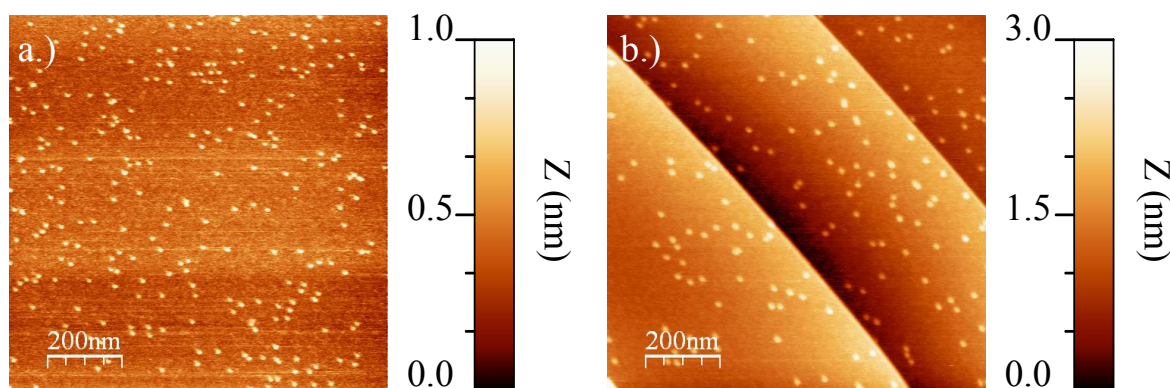


Abbildung 4.16: Kontakt-AFM-Aufnahmen der CaF₂-Oberfläche nach Bestrahlung mit Xe²⁸⁺ (a) und Xe³⁶⁺ (b) bei einer kinetischen Energie von $1500 \text{ eV} \times q$. Deutlich lässt sich eine Vergrößerung der Hillocks mit wachsendem Ladungszustand erkennen. Eine quantitative Analyse ist in Abb. 4.17 gezeigt.

Abbildung 4.16 zeigt AFM-Aufnahmen der CaF₂-Oberfläche nach Bestrahlung mit Xenonionen der Ladungszustände $q = 28$ (a) sowie $q = 36$ (b) bei der kinetischen Energie $E_{\text{kin}} = 1500 \text{ eV} \times q$. Wie auch bei El-Said *et al.*, zeigt sich mit wachsendem Ladungszustand eine Vergrößerung von Hillock-Durchmesser und Hillock-Höhe.

Um dies zu quantifizieren sind in Abb. 4.17 die Verteilungsfunktionen beider Größen graphisch aufgetragen. Für $q = 28$ finden sich eine mittlere Hillock-Höhe von $h = 0.55 \text{ nm} \pm 0.15 \text{ nm}$ sowie ein mittlerer Hillock-Durchmesser von $d = 20 \text{ nm} \pm 4 \text{ nm}$. Ein Vergleich mit $q = 36$ liefert Werte von $h = 0.8 \text{ nm} \pm 0.3 \text{ nm}$ und $d = 24 \text{ nm} \pm 6 \text{ nm}$.

Mit der Intention, eine Hillock-Formierung auch für kleinste kinetische Energien nachzuweisen, wurden in einem weiteren Untersuchungsschritt Bestrahlungen bei $E_{\text{kin}} = 150 \text{ eV} \times q$ unter

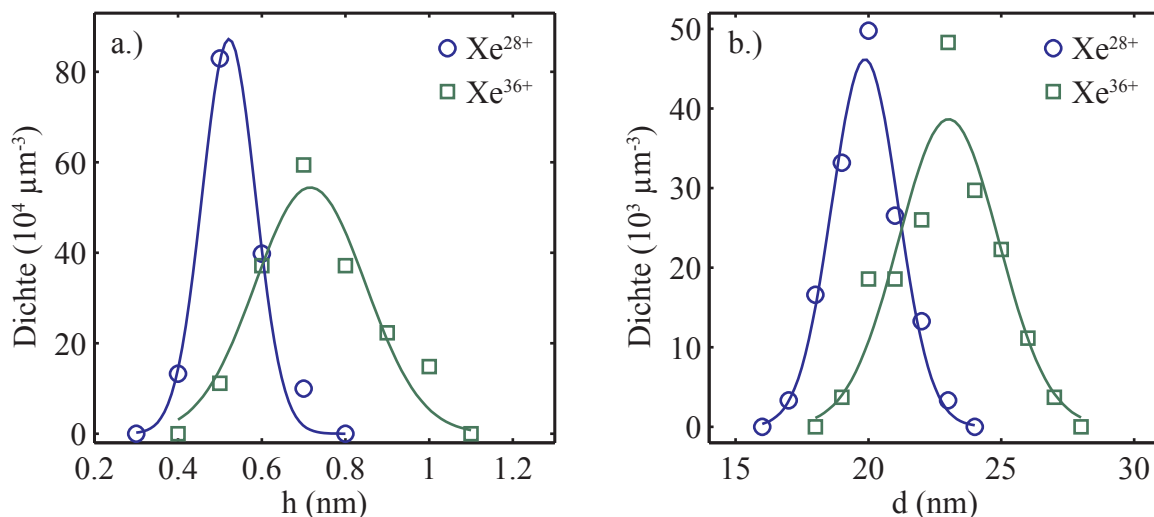


Abbildung 4.17: Höhen- und Beitenverteilungen von Nanohillocks auf CaF₂ nach Beschuss mit Xe²⁸⁺ und Xe³⁶⁺. Die kinetische Energie beträgt für beide Projektile 1500 eV × q (vgl. Abb. 4.16).

Variation der potentiellen Projektilenergie durchgeführt. Die Ergebnisse dieser Messreihe sind in Abb. 4.18 dargestellt. In der Tat zeigt sich, dass auch bei dieser geringen Geschwindigkeit für hinreichend hohe Ladungszustände eine Erzeugung von Hillocks beobachtet werden kann. Damit wurde erstmalig zweifelsfrei gezeigt, dass die Formierung individueller Hillocks auf der CaF₂-Oberfläche ausschließlich auf den potentiellen Energieeintrag hochgeladener Ionen zurückgeführt werden kann.

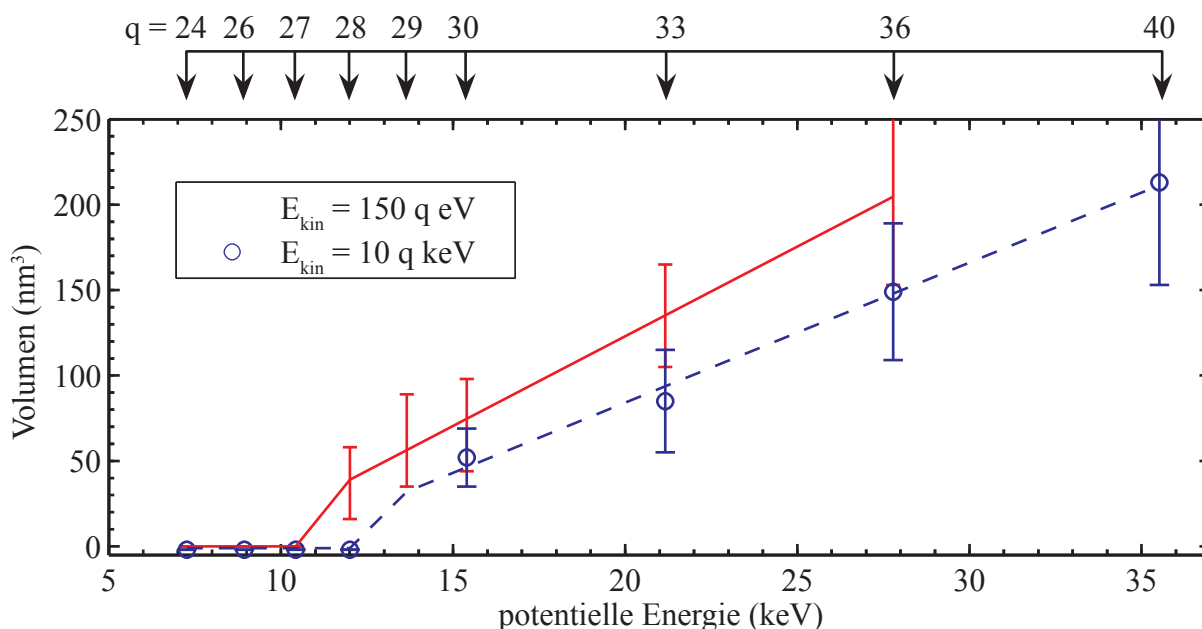


Abbildung 4.18: Hillock-Volumen nach Beschuss der CaF₂-Oberfläche mit Xe-Ionen als Funktion der potentiellen Projektilenergie. Rote Symbole zeigen Messwerte aus dieser Arbeit bei $E_{\text{kin}} = 150 \text{ eV} \times q$, blaue Symbole kennzeichnen Messwerte aus [116] für $E_{\text{kin}} = 10 \text{ keV} \times q$.

Ein Vergleich mit den ebenfalls in Abb. 4.18 eingetragenen Resultaten von El-Said *et al.* für eine kinetische Energie von $E_{\text{kin}} = 10 \text{ keV} \times q$ zeigt zwei geringfügige, aber dennoch messbare Unterschiede für beide Projektilgeschwindigkeiten auf:

- Der Grenzwert der potentiellen Energie zur Hillockformierung findet sich für die kinetische Energie $E_{\text{kin}} = 150 \text{ eV} \times q$ zwischen den Ladungszuständen $q = 27$ und $q = 28$, wohingegen eine Hillockerzeugung bei $E_{\text{kin}} = 10 \text{ keV} \times q$ erst für Ladungszustände $q \geq 30$ beobachtet wird.
- Für Ladungszustände, die zur Formierung von Nanohillocks bei beiden kinetischen Energien führen, finden sich für $E_{\text{kin}} = 150 \text{ eV} \times q$ signifikant größere Hillockvolumina als bei $E_{\text{kin}} = 10 \text{ keV} \times q$.

Eine explizite Abhängigkeit des Hillock-Volumens von der Projektilgeschwindigkeit wurde exemplarisch für den festen Ladungszustand $q = 33$ untersucht und ist in Abb. 4.19 dargestellt. Wie schon von El-Said *et al.* für hohe kinetische Energien gezeigt [116], kann auch bei niedrigsten Projektilgeschwindigkeiten keine signifikante Abhängigkeit des Hillock-Volumens von der kinetischen Energie beobachtet werden. Ein zum Vergleich eingetragener Messpunkt aus [116] zeigt jedoch, wie bereits aus Abb. 4.18 abgeleitet werden konnte, dass die Hillocks bei unverändertem Ladungszustand und sehr hoher kinetischer Energie ein geringfügig kleineres Volumen aufweisen.

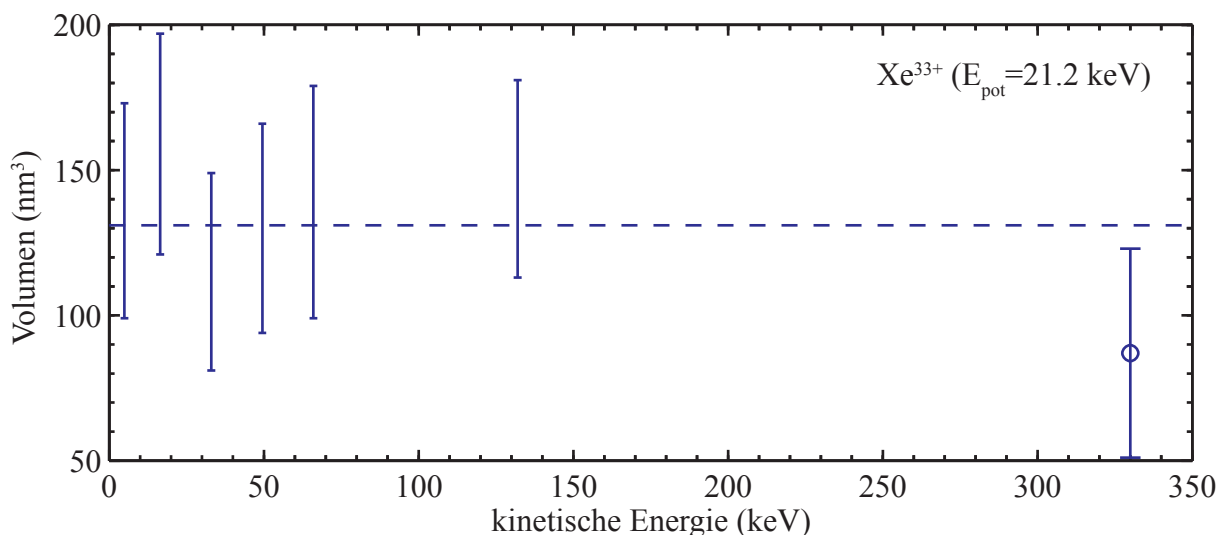


Abbildung 4.19: Hillock-Volumen nach Beschuss der CaF₂-Oberfläche mit Xe³³⁺-Ionen als Funktion der kinetischen Energie. Zum Vergleich ist für eine sehr hohe kinetische Energie ein Messwert aus [116] angegeben.

Die Ursachen für die im Experiment beobachtete Verschiebung von $E_{\text{pot}}^{\text{grenz}}$ bei veränderter Projektilgeschwindigkeit sowie die teilweise kontra-intuitive Verringerung des Hillock-Volumens

bei hoher kinetischer Energie sollen im Folgenden auf der Grundlage detaillierter Simulationsrechnungen erläutert werden. Die Basis für diese Simulationen stellt das oben eingeführte *inelastic thermal spike*-Modell für SHIs dar. Die Adaption dieses Modells auf hochgeladene Ionen wurde im Vergleich zu der in 4.2.1 vorgestellten Vorgehensweise für die Erklärung der aktuellen Befunde jedoch weitestgehend verfeinert.

4.2.3 Diskussion der Ergebnisse

Eine der wesentlichen Vereinfachungen der in Abschnitt 4.2.1 vorgestellten Adaption des *inelastic thermal spike*-Modells auf die Wechselwirkung hochgeladener Ionen mit der CaF_2 -Oberfläche stellt die Annahme einer Gleichverteilung für die kinetische Energie der in den Kristall emittierten Sekundärelektronen dar. Zudem repräsentiert die Annahme einer Punktquelle als Erzeugungsort aller emittierten Elektronen ein stark idealisiertes Bild. Beide Annahmen waren jedoch notwendig, um auf einfachem Wege eine Halbkugel mit dem Radius λ_d zu konstruieren, die es ermöglichte, eine Abschätzung über die Anzahl der Atome zu treffen, auf die der eingetragene Anteil der potentiellen Projektilenergie verteilt wird (vgl. Abb. 4.12 S. 75).

Den aktuellen Modellrechnungen [117] liegt eine vollständige Simulation der HCI-Relaxation auf der Grundlage des *extended classical over-the-barrier*-Modells zugrunde. Dabei wird sowohl vor als auch unter der Oberfläche emittierten Elektronen Rechnung getragen [69]. Damit ist jedem Elektron ein individueller Ort der Erzeugung sowie eine individuelle kinetische Energie zugeordnet. In einem weiteren Rechenschritt wird für jedes Elektron eine Transportrechnung durch das Kristallgitter aufgestellt. Elastische und inelastische Elektron-Phonon-Streuungen werden dabei berücksichtigt, und die an den Kristall abgegebene Energie wird als Funktion des Ortes bestimmt. In der Simulation wird der Transport eines Elektrons durch den Kristall als eine klassische Zick-Zack-Trajektorie approximiert. Richtungsänderungen entlang dieser Trajektorie werden durch stochastisch auftretende, elastische und inelastische Streuungen verursacht. Zwischen zwei aufeinander folgenden Streuungen legt das Elektron dabei im Mittel die Wegstrecke λ_{tot} zurück, die sich über die Beziehung

$$\frac{1}{\lambda_{\text{tot}}} = \frac{1}{\lambda_e} + \frac{1}{\lambda_{\text{in}}} \quad (4.2)$$

aus der mittleren elastischen (λ_e) und inelastischen (λ_{in}) freien Weglänge zusammensetzt. Die Streuwahrscheinlichkeiten werden in der Simulation aus optischen Daten für CaF_2 [174] sowie aus der Extrapolation der dielektrischen Funktion in die Energie-Impuls-Ebene berechnet [175]. Inelastische Stoßprozesse führen zu einem Energieverlust ΔE des primären Elektrons und initiieren die Erzeugung eines Sekundärelektrons der Energie $\Delta E - E_b$, wobei E_b die Bindungsenergie des Sekundärelektrons kennzeichnet. Die Trajektorien der durch diesen Mechanismus erzeugten Kaskadenelektronen werden in analoger Betrachtungsweise zum Transport von Pri-

märelektronen in der Simulation hinsichtlich des Energietransfers an das Gitter ausgewertet.

Für die elastische Streuung eines Elektrons am Gitter, genauer am elektronischen System des Gitters, wird in der Simulation, über den Prozess der Elektron-Phonon-Kopplung, jedem Streuprozess eine endliche Wahrscheinlichkeit zur Anregung eines Phonons der Energie $E_{\text{ph}} \approx 0.06 \text{ eV}$ zugeschrieben. Tritt eine Phononenanregung auf, so wird der Ort dieser Anregung protokolliert und die Anregungsenergie zum thermischen Energieübertrag an den Kristall addiert.

Aus den Simulationen geht hervor, dass niederenergetische Primärelektronen ($E_{\text{kin}} \leq 300 \text{ eV}$) weitaus effektiver zu einer lokalen Heizung des Kristalls beitragen, als Innerschalen-AUGER-Elektronen hoher Primärenergie. Die Ursache hierfür findet sich in der höheren Wahrscheinlichkeit elastischer Streuung bei niedriger Energie. Die Berechnungen der mittleren freien Weglängen für elastische und inelastische Stoßprozesse aus optischen Daten für CaF₂ [174,175] zeigen, dass für niedrige Primärenergien $\lambda_{\text{in}} \gg \lambda_{\text{e}}$ gilt, für schnelle Elektronen ($E_{\text{kin}} \geq 300 \text{ eV}$) jedoch beide Weglängen eine vergleichbare Größe annehmen [141]. Aus der inversen Beziehung 4.2 folgt damit für langsame Elektronen $\lambda_{\text{tot}} \approx \lambda_{\text{e}}$, wohingegen für hohe Primärenergie λ_{e} und λ_{in} zu gleichen Teilen zu λ_{tot} beitragen. Niederenergetische Elektronen sind demnach einer hohen Anzahl elastischer Streuungen und damit einer hohen Anzahl erzeugter Phononenanregungen auf kleinem Volumen unterworfen. Für schnelle Elektronen ist zwar der Absolutbetrag der an den Kristall übertragenen Energie größer, aufgrund der höheren freien Weglänge verteilt sich diese jedoch auf einen weiten Bereich um den Ort der Elektronenerzeugung.

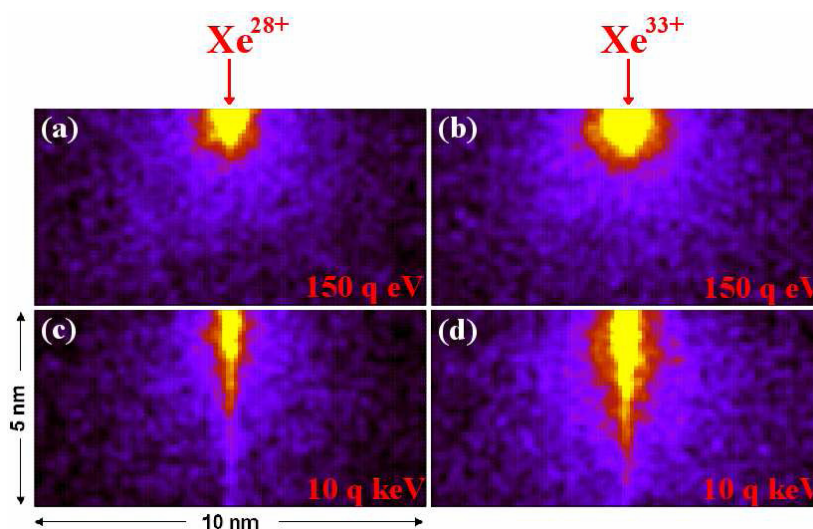


Abbildung 4.20: Simulationsrechnung zur Deposition der potentiellen Energie in CaF₂ bei Beschuss mit Xe²⁸⁺ und Xe³³⁺ für verschiedene Einschussenergien. Gelbe Bereiche kennzeichnen Orte, an denen die Energiedichte hoch genug ist, um ein lokales Schmelzen des Kristallgitters zu initiieren. Entnommen aus [117].

Das Ergebnis einer vollständigen Simulationsrechnung für Xenonionen der Ladungszustände $q = 28$ und $q = 33$ bei kinetischen Energien von $E_{\text{kin}} = 150 \text{ eV} \times q$ sowie $E_{\text{kin}} = 10 \text{ keV} \times q$ ist in Abb. 4.20 dargestellt. Die Abbildung zeigt für Probenbereiche von je $5 \text{ nm} \times 10 \text{ nm}$ die

im Kristall deponierte Energiedichte als Funktion des Ortes in Form einer Farbskala. Helle Bereiche entsprechen dabei Orten hoher Energiedichte, dunkle Bereiche solchen niedriger Energiedichte. In gelb eingezeichneten Bereichen übersteigt die Energiedichte den zur lokalen Schmelze erforderlichen Betrag von 0.55 eV/Atom . Die geometrische Form dieser „heißen Schmelzzonen“ zeigt dabei eine starke Abhängigkeit von der potentiellen sowie der kinetischen Projektilenergie. Während sich für langsame Projektile ($E_{\text{kin}} = 150 \text{ eV} \times q$) eine nahezu hemisphärische Schmelzzone zeigt, resultiert der potentielle Energieeintrag durch Projektile hoher kinetischer Energie ($E_{\text{kin}} = 10 \text{ keV} \times q$) in einer Verzerrung der Schmelzzone, die der Form einer Kerzenflamme gleicht. Aus Abb. 4.20 geht weiter hervor, dass sowohl eine Verringerung des Ladungszustandes als auch eine Erhöhung der Projektilgeschwindigkeit zu einer Verkleinerung der Schmelzzone führt.

Für alle in der Simulation untersuchten Ladungszustände und Projektilgeschwindigkeiten, mit Ausnahme von $q = 28$, $E_{\text{kin}} = 10 \text{ keV} \times q$ (Abb. 4.20(c)), konnte im Experiment die Erzeugung von Hillocks an der Kristalloberfläche nachgewiesen werden. Ein Blick auf die Volumina der Schmelzzonen in Abb. 4.20(a,b,d) zeigt, dass diese das Volumen der Einheitszelle des Kristalls signifikant übersteigen. So beträgt das Schmelzvolumen in Abb. 4.20(a) beispielsweise $\approx 2.5 \text{ nm}^3$ und entspricht ca. 15 Einheitszellen bzw. 100 Atomen. Für Abb. 4.20(c) hingegen beträgt der Durchmesser der Schmelzzone nur $\approx 0.5 \text{ nm}$ und liegt damit im Bereich der Ausdehnung einer Elementarzelle. Nur wenn die Schmelzzone die Größe einer Einheitszelle übersteigt, kann jedoch die für den vergleichsweise langsamen⁴ (ns) Prozess des Schmelzens erforderliche kritische Energiedichte für einen hinreichend langen Zeitraum aufrecht erhalten werden. Für kleinere Schmelzzonen (Abb. 4.20(c)) dissipiert die eingetragene Energie offenbar zu schnell und unterbindet damit den Schmelzprozess.

Die Resultate der vorliegenden Simulation spiegeln eindrucksvoll die experimentellen Beobachtungen wieder. Der Einfluss der kinetischen Energie auf die Verschiebung von $E_{\text{pot}}^{\text{grenz}}$ sowie auf das Hillock-Volumen bei konstantem Ladungszustand lässt sich demnach auf eine Vergrößerung der Schmelzzone bei niedriger Projektilgeschwindigkeit zurückführen. Die Modellrechnungen erklären somit das Zusammenspiel zwischen potentieller und kinetischer Projektilenergie, ohne dabei letztere als Voraussetzung für die Hillock-Erzeugung zu klassifizieren. In Einklang mit den experimentellen Befunden kann damit die potentielle Ionenenergie zweifelsfrei als alleinige Ursache für die Hillock-Formierung auf CaF_2 angesehen werden.

Bemerkenswert ist zudem, dass die Elektronentransportrechnung, die einen wesentlichen Bestandteil der Simulation darstellt, ohne die Annahme einer expliziten Kristallstruktur durchgeführt wurde. Einflüsse der Gitterstruktur auf die Trajektorien der Elektronen bleiben somit unberücksichtigt. Da die Ergebnisse der Simulation jedoch auch unter der Annahme eines

⁴Der Vergleich bezieht sich auf die Relaxation des hochgeladenen Ions (fs) sowie die Deposition der potentiellen Energie durch Sekundärelektronen in den Kristall (ps).

strukturlosen Mediums beste Übereinstimmung mit dem Experiment zeigen, kann davon ausgegangen werden, dass der Kristallstruktur ein untergeordneter Einfluss auf den Prozess der Hillock-Formierung beizumessen ist. Mit der Zielsetzung eines noch realistischeren Modells sollte die Berücksichtigung der Kristallstruktur dennoch eine Herausforderung für zukünftige Berechnungsmodelle sein.

4.2.4 Zusammenfassung

Aus den experimentellen Befunden der vorliegenden Arbeit sowie aus den an der Technischen Universität Wien durchgeführten Simulationsrechnungen konnte gezeigt werden, dass die Erzeugung permanenter Nanostrukturen durch den Beschuss der CaF_2 -Oberfläche mit hochgeladenen Ionen ausschließlich auf die Deposition potentieller Energie zurückgeführt werden kann. Die Simulationen der ortsabhängigen, deponierten Energiedichte weist darauf hin, dass die Ursache der Hillock-Formierung in einer lokalen Schmelze des Kristallgitters liegt. Aus der berechneten Form der Schmelzzonen lassen sich die im Experiment gefundenen Verschiebungen des Grenzwertes zur Hillock-Erzeugung $E_{\text{pot}}^{\text{grenz}}$ und des Hillock-Volumens bei unterschiedlichen Geschwindigkeiten ableiten.

4.3 Defekterzeugung und Phononenanregung

Anhand der Ergebnisse aus 4.1 und 4.2 zeigt sich eindrucksvoll die Komplexität der Relaxationsmechanismen hochgeladener Ionen vor und unter der Oberfläche von Isolatoren, die zur Erzeugung von Strukturen im Nanometerbereich führen. Gleichzeitig werfen die vorgestellten Beobachtungen jedoch eine fundamentale Frage auf:

Wie können identische Projektile durch die Relaxation an den sehr ähnlichen Ionenkristallen KBr und CaF_2 zur Erzeugung so unterschiedlicher, in Bezug auf ihre Form sogar komplementärer, Nanostrukturen führen?

Die Antwort auf diese Frage kann nach gegenwärtigem Erkenntnisstand nur spekulativ formuliert werden. Die Ähnlichkeit beider Isolatoren beschränkt sich bei genauerer Betrachtung auf die Tatsache, dass beide Kristalle ein Ionengitter bilden. Stöchiometrie und Kristallstruktur unterscheiden sich jedoch zum Teil sehr stark. Beide Isolatoren weisen als Ionenkristall eine starke Elektron-Phonon-Kopplung auf. Tatsächlich ist es diese Kopplung, die eine der wesentlichen Grundlagen sowohl für die Erzeugung von Nanopits auf KBr als auch für die Formierung von Hillocks auf CaF_2 darstellt. Während die starke Elektron-Phononkopplung für KBr als Ursache der Defekterzeugung identifiziert wurde, stellt sie im Falle von CaF_2 eine Voraussetzung für die Anregung von Phononen dar.

Durch die HCl-Neutralisation hervorgerufene elektronische Anregungen können jedoch auch

im CaF_2 -Kristall durch *self-trapping* (vgl. Abschnitt 2.5 S. 37) zur Erzeugung von Farbzentren führen. Andererseits können in den KBr-Kristall emittierte Sekundärelektronen aus dem Relaxationsprozess ohne Zweifel ebenfalls elastischer Streuung am Gitter unterliegen und so die Anregung von Phononen initiieren. Beide Mechanismen, sowohl die Defekterzeugung als auch die Phononenanregung, können demnach in beiden Kristallsystemen durch die Neutralisation des hochgeladenen Ions hervorgerufen werden.

Die Ursache für den bevorzugten Mechanismus der Defekterzeugung in KBr sowie die bevorzugte Phononenanregung in CaF_2 kann möglicherweise in der Kristallstruktur beider Systeme gefunden werden. Die Erzeugung einfacher Defekte (Zwischengitteratome, Leerstellen) scheint in einem einfachen NaCl-Gittertyp (KBr) wahrscheinlicher als in einem komplexen, kubisch-flächenzentrierten Gitter mit 8 gefüllten Tetraederlücken (CaF_2). Untersuchungen zur Defekterzeugung durch Elektronenbeschuss von Erdalkali-Halogenid-Verbindungen zeigen in der Tat für die Erzeugung von Frenkelpaaren weitaus komplexere Mechanismen auf als für den einfachen Fall der Alkali-Halogenide [176, 177]. Für die Erzeugungsrate stabiler F-H-Paare fanden Williams *et al.* (für Erdalkali-Halogenide) einen um bis zu zwei Größenordnungen niedrigeren Wert als für die Erzeugungsrate primärer STEs [178]. Eine mögliche Ursache dieser Beobachtungen konnten Tanimura *et al.* angeben, indem sie zeigten, dass die Formierung stabiler F-H-Paare in Erdalkali-Halogenid-Kristallen nur durch die Wechselwirkung zweier benachbarter elektronischer Anregungen initiiert werden kann [179] (siehe auch [162]). Bei gleichbleibender Primärteilchendosis werden demnach in KBr signifikant mehr Farbzentren erzeugt als unter der Oberfläche von CaF_2 wodurch sich der beobachtete Unterschied in der Art der Nanostrukturierung qualitativ deuten ließe.

Unter der Annahme, dass in beiden Ionenkristallen Mechanismen von Defekterzeugung und Phononenanregung parallel zueinander auftreten, lässt sich die Vermutung aufstellen, dass die Balance beider Prozesse über die Wahl von kinetischer sowie potentieller Projektilenergie beeinflusst werden könnte. In der Konsequenz würde dies bedeuten, dass die Art erzeugter Nanostrukturen auf der Oberfläche (Nanopit oder Hillock) von der Wahl der Projektilparameter abhinge. Weiterführende Experimente zum detaillierten Verständnis der Balance zwischen Defekterzeugung und Phononenanregung sind Gegenstand aktueller Untersuchungen an der Rosendorfer Zweiquellenanlage.

Kapitel 5

Sekundärelektronenstatistik

Aus den experimentellen Befunden in Kapitel 4 sowie aus den Vorbetrachtungen in Kapitel 2 geht hervor, dass die Emission von Elektronen vor und unter der Oberfläche eine Schlüsselrolle für die Erzeugung permanenter Oberflächenstrukturen durch HCI-Beschuss einnimmt. Die Anzahl erzeugter Elektronen, deren Energieverteilung sowie der Ort ihrer Erzeugung zeigen dabei einen zum Teil erheblichen Einfluss auf den Prozess der Nanostrukturierung. Ein detailliertes Verständnis der Sekundärelektronenemission stellt demnach eine Voraussetzung für die theoretische Beschreibung des Strukturierungsprozesses dar. Experimentelle Studien zur Emission von Sekundärelektronen aus der HCI-Neutralisation beschränken sich jedoch weitestgehend auf metallische Oberflächen [36, 38–44, 49, 76]. Für Isolatoroberflächen, insbesondere für die in Abschnitt 4.2 untersuchte CaF_2 -Oberfläche, konnten Meissl *et al.* in jüngsten Untersuchungen [180] erstmalig Gesamtelektronenausbeuten für Ionen höchster Ladungszustände ($q \leq 68$) bestimmen.

In ihren Experimenten konnten Meissl *et al.* einen kontinuierlichen Zuwachs der Gesamtelektronenausbeute mit wachsendem Projektilladungszustand aufzeigen. Entgegen bisheriger Vermutungen konnte dabei keine Sättigung der Elektronenemission bei hohen potentiellen Energien beobachtet werden. Für die Elektronenausbeuten von CaF_2 und LiF fanden sich zudem mit der (111)-Oberfläche von Gold vergleichbare [135] Absolutwerte. Aus kombinierten Messungen der Gesamtelektronenausbeute bei verschiedenen Projektilgeschwindigkeiten ($4 \cdot 10^5$ m/s bis $9 \cdot 10^5$ m/s) sowie bei verschiedenen Eintreffwinkeln wurde weiter gezeigt, dass der potentielle Anteil der Elektronenemission (im Gegensatz zu Gold) keine signifikante Winkelabhängigkeit aufwies. Auch in Bezug auf die Normalkomponente der Projektilgeschwindigkeit konnte für die Isolatoroberfläche kein wesentlicher Einfluss auf die potentielle Elektronenemission beobachtet werden. Auf der Grundlage der gefundenen Ergebnisse sowie aus Simulationsrechnungen zum Elektronentransport im Kristall [181] schlussfolgerten Meissl *et al.*, dass für die untersuchten Isolatoren der Anteil unter der Oberfläche erzeugter AUGER-Elektronen auf indirektem Wege einen wesentlich größeren Beitrag zur Gesamtelektronenausbeute leistet als für Metallo-

berflächen. Aufgrund der im Vergleich zu Metallen sehr hohen inelastischen freien Weglänge niederenergetischer Elektronen im Ionenkristall können Kaskadenelektronen (aus der Streuung von primären AUGER-Elektronen am Gitter) nahezu ungehindert an die Oberfläche gelangen und damit zu einer signifikanten Erhöhung der Gesamtelektronenausbeute beitragen.

Anhand der experimentellen Ergebnisse von Meissl *et al.* konnte nicht geklärt werden, ob die beobachtete Invarianz der potentiellen Elektronenemission gegenüber Geschwindigkeit und Auftreffwinkel auch für kleinste kinetische Projektilenergien ($\leq 4 \cdot 10^5$ m/s) zu erwarten ist. Um diese Frage zu beantworten, wurden im Rahmen der vorliegenden Arbeit in einer weiteren Kooperation mit der Technischen Universität Wien experimentelle Studien zur Sekundärelektronenemission mit gebremsten Ionen an der Rossendorfer Zweiquellenanlage durchgeführt. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sowie eine qualitative Diskussion der Resultate sollen in diesem Kapitel vorgestellt werden.

Der experimentelle Aufbau zur Bestimmung der Sekundärelektronenstatistik bei der Wechselwirkung langsamer, hochgeladener Ionen mit Ionenkristalloberflächen wurde bereits in Abschnitt 3.4.2 vorgestellt. Auf den für das Experiment essentiellen Einfluss der Elektronenabsaugeffizienz wurde anhand quantitativer Modellrechnungen eingegangen. Zudem wurde eine spezielle Modifizierung des Messaufbaus für die Messung von Sekundärelektronenausbeuten bei kleinsten kinetischen Projektilenergien ($E_{\text{kin}} \leq 30 \text{ eV} \times q$) beschrieben.

Die Evaluierung von Elektronenemissions-Verteilungsfunktionen (Elektronenstatistiken) aus den experimentellen Messdaten ist in Abschnitt 5.1 beschrieben.

Eine Darstellung der im Experiment bestimmten Elektronenausbeuten als Funktion von Ladungszustand und Projektilgeschwindigkeit erfolgt in Abschnitt 5.2. Zudem werden die gefundenen Resultate auf der Basis unterschiedlicher Erklärungsmodelle interpretiert und anschließend in Abschnitt 5.3 zusammengefasst.

5.1 Analyse der Rohdaten

In Abschnitt 3.4.2 S. 49 wurde gezeigt, dass mit der vorgestellten Messapparatur neben der absoluten Sekundärelektronenausbeute γ auch die Statistik der Elektronenemission untersucht werden kann. Damit lassen sich die Wahrscheinlichkeiten W_n für die Emission von n Elektronen während der Neutralisation eines HCI vor der Oberfläche bestimmen. Die Verknüpfung von γ und W_n ist dabei über die Beziehung

$$\gamma = \sum_{n=1}^{\infty} nW_n \quad (5.1)$$

gegeben, wobei die Wahrscheinlichkeiten W_n der Bedingung

$$\sum_{n=0}^{\infty} W_n \equiv 1 \quad (5.2)$$

genügen.

Abbildung 5.1 zeigt ein gemessenes Pulshöhenspektrum (blaue Kreise) der Sekundärelektronenemission von Xe^{10+} -Ionen bei der Wechselwirkung mit der (001)-Oberfläche von KBr. Die Absaugspannung U_{det} (vgl. Abschn. 3.4.2 S. 48) wurde für diese Messung auf einen festen Wert von +25 kV eingestellt. Für die ganzzahligen Vielfachen $n = 5 \dots 18$ dieser Spannung finden sich im Messspektrum GAUSSförmige Peaks, die zu einer gemeinsamen Verteilungsfunktion mit Schwerpunkt bei 275 keV ($11e \cdot U_{\text{det}}$) überlagern. Die Wechselwirkung eines Xe^{10+} -Ions mit der KBr-Oberfläche führt demnach im Mittel zur Emission von 11 Elektronen (γ), kann jedoch in einzelnen Fällen auch die Emission von nur 5 Elektronen oder bis zu 17 Elektronen hervorrufen. In erster Näherung entsprechen dabei die Höhen der einzelnen Peaks (genauer die Flächen unter den Peaks) im Spektrum den Wahrscheinlichkeiten W_n für die Emission von n Elektronen.

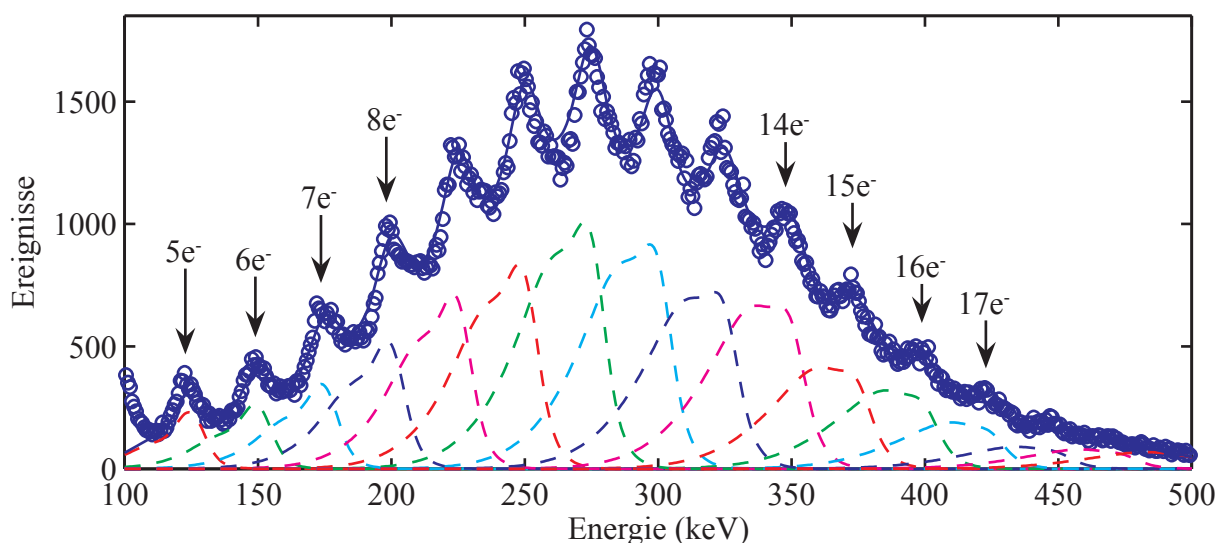


Abbildung 5.1: Beiträge der individuellen Mehr-Elektronen-Ereignisse (unterbrochene Linien) zu einem gemessenem Elektronenstatistik-Spektrum (blaue Kreise) für Xe^{10+} -Einfall auf KBr. Die durchgezogene blaue Linie stellt die Summe der einzelnen Mehr-Elektronen-Ereignisse dar. Die Flächen unter den individuellen Beiträgen entsprechen den Wahrscheinlichkeiten für das Eintreten des jeweiligen Ereignisses (vgl. Abb. 5.2).

Der Abstand der einzelnen Peaks in Abb. 5.1 beträgt 25 keV, d.h. $e \cdot U_{\text{det}}$. Bei einer Energieauflösung des Detektors von $\Delta E_{\text{Det}} \approx 6 \text{ keV}$ sollten sich demnach alle Peaks einzeln auflösen lassen und nicht, wie beobachtet, zu einer Gesamtverteilung überlagern. Die Ursache für diese Beobachtung kann der endlichen Rückstreuwahrscheinlichkeit eines Elektrons im Detektor zugeschrieben werden [182]. Ein Elektron, das aufgrund elastischer Stöße zurück zur Detek-

toroberfläche reflektiert und anschließend ins Vakuum emittiert wird, überträgt nur einen Teil seiner Energie ($E_0 = 25 \text{ keV}$) an den Detektor. Für die im Detektor deponierte Energie kann eine GAUSSförmige Verteilung mit dem Schwerpunkt $k \cdot E_0 = 0.6 \cdot 25 \text{ keV}$ und der Halbwertsbreite $\Delta E_R \approx 12 \text{ keV}$ angenommen werden [183]. Für die Wahrscheinlichkeit der Rückstreuung eines Elektrons findet sich in der Literatur für den verwendeten Oberflächenbarrieredetektor ein Wert von $p = 15\%$ [184].

Um dem Einfluss der Elektronenrückstreuung auf die Form des experimentell bestimmten Pulshöhenspektrums und damit auf die Wahrscheinlichkeiten W_n Rechnung zu tragen, wird das gemessene Spektrum $S(E)$ durch eine Linearkombination der normierten Funktionen $F_n(E)$ approximiert:

$$S(E) = \sum_{n=0}^{n_{\max}} C_n F_n(E). \quad (5.3)$$

Jedes $F_n(E)$ entspricht dabei dem individuellen Beitrag eines n -Elektronenereignisses zum Gesamtspektrum. Ohne die Rückstreuung von Elektronen im Detektor ergäbe sich für die Form der $F_n(E)$ eine einfache GAUSSfunktion mit dem Schwerpunkt $n \cdot 25 \text{ keV}$ und der Halbwertsbreite des Detektors $\Delta E_{\text{det}} \approx 6 \text{ keV}$. Unter Berücksichtigung rückgestreuter Elektronen hingegen lassen sich $F_n(E)$ als eine Summe individueller Einzelpeaks $f_n(E, E_m, \Delta E_m)$ über die Beziehung

$$F_n(E) = \sum_{m=0}^n P_n(m) f_n(E, E_m, \Delta E_m) \quad (5.4)$$

darstellen [185]. Die Funktionen $f_n(E, E_m, \Delta E_m)$ sind normierte GAUSSverteilungen, die der Rückstreuung von $m = 0, 1, 2, \dots, n$ Elektronen im Detektor entsprechen. Für den Schwerpunkt und die Halbwertsbreite dieser Funktionen finden sich daher:

$$E_m = n \cdot 25 \text{ keV} - m \cdot k \cdot 25 \text{ keV} = n \cdot 25 \text{ keV} - m \cdot 15 \text{ keV} \quad (5.5)$$

sowie

$$\Delta E_m = \sqrt{(\Delta E_{\text{Det}})^2 + m (\Delta E_R)^2}. \quad (5.6)$$

Die in Gl. (5.4) auftretenden Wichtungsfaktoren $P_n(m)$ geben die Wahrscheinlichkeit für die Rückstreuung von m Elektronen aus einer Gruppe von n Elektronen an. Bei konstanter Einzelrückstreuwahrscheinlichkeit ($p=15\%$) ergibt sich für diese die Binomialverteilung

$$P_m(n) = \binom{n}{m} p^m (1-p)^{n-m}. \quad (5.7)$$

Da die Funktionen $F_n(E)$ über die Beziehung

$$\int_0^{\infty} F_n(E) dE \equiv 1 \quad (5.8)$$

normiert sind, folgt, dass die Koeffizienten C_n in Gl. (5.3) den Flächen unter den einzelnen n -Elektronenbeiträgen entsprechen. Bis auf einen konstanten Faktor a geben diese wiederum die Wahrscheinlichkeiten W_n aus Gl. (5.1) wieder:

$$W_n = a \cdot C_n; \quad a = \text{konst.} \quad \forall n. \quad (5.9)$$

Experimentell gemessene Spektren $S(E)$ lassen sich demnach durch geeignete Wahl der Fitparameter C_n sowie der Skalierungskonstanten a auf oben beschriebene Weise rekonstruieren, wodurch eine exakte Bestimmung der Wahrscheinlichkeiten W_n ermöglicht wird. Der so erhaltene Fit ist für das obige Beispiel (Xe^{10+} auf KBr) als blaue Linie in Abb. 5.1 eingezeichnet und weist eine nahezu perfekte Übereinstimmung mit den Messdaten auf. Die individuellen Beiträge der n -Elektronenereignisse ($C_n \cdot F_n(E)$) sind als unterbrochene Linien in Abb. 5.1 eingetragen.

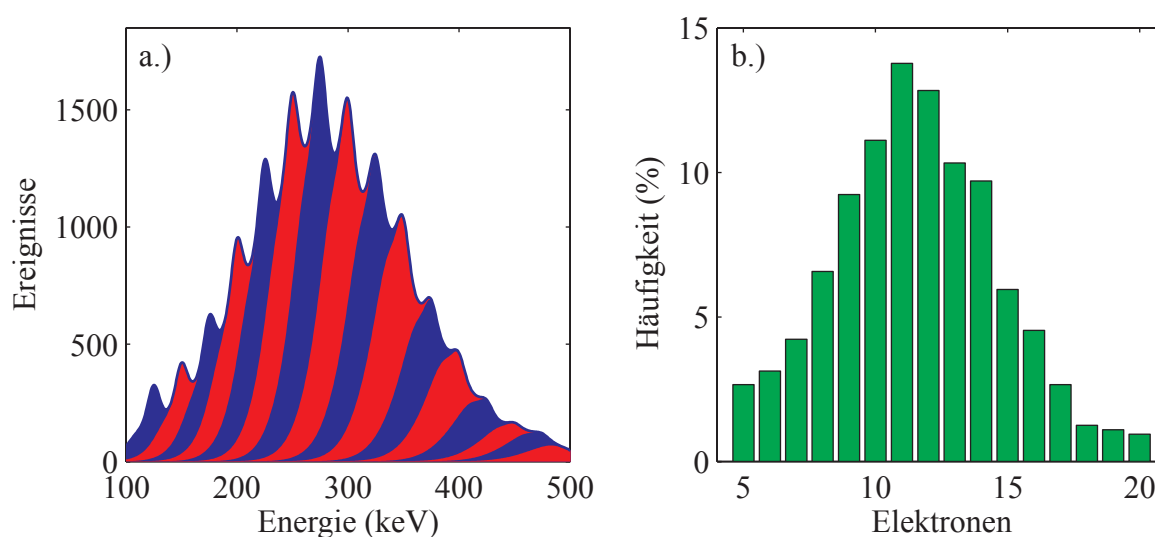


Abbildung 5.2: Entfaltung des Elektronen-Statistik-Spektrums aus Abb. 5.1. Anteile der akkumulierten Mehr-Elektronen-Beiträge zum Gesamtspektrum (a) sowie entfaltete Wahrscheinlichkeitsverteilung der Mehr-Elektronen-Beiträge (b).

Abbildung 5.2 zeigt die Ergebnisse der Fitroutine für die Messung aus Abb. 5.1. In Teil (a) der Abbildung ist die Superposition der Einzelpieks der n -Elektronenereignisse zum Gesamtspektrum dargestellt. Dabei zeigt sich anschaulich, dass jede Peakhöhe der Multiplizität n signifikant durch Beiträge der benachbarten Peaks $n+1, n+2, \dots$ beeinflusst wird. Die aus der Fitroutine resultierende Häufigkeitsverteilung der Sekundärelektronenemission ist in Abb. 5.2b dargestellt. Aus der Abbildung geht deutlich hervor, dass die in erster Näherung betrachtete Abschätzung der Emissionwahrscheinlichkeiten W_n aus den Peakhöhen des Spektrums nicht der tatsächlichen Verteilung entspricht (vgl. Abb. 5.1). Obwohl sich die ermittelten Wahrscheinlichkeitsverteilungen in einem direkten Vergleich der beiden Methoden unterscheiden, zeigen dennoch beide den gleichen Schwerpunkt der Verteilung bei $n=11$ Elektronen. Für Experimente zur reinen Bestimmung der mittleren Gesamtelektronenausbeute (γ) ist demnach eine Evaluierung der Messdaten

auf oben beschriebenem Wege nicht zwingend erforderlich.

5.2 Experimentelle Ergebnisse und Diskussion

In einem ersten Untersuchungsschritt wurden für die in Kapitel 4 untersuchten Oberflächen der Ionenkristalle KBr sowie CaF_2 Gesamtelektronenausbeuten als Funktion des Ladungszustandes bei fester kinetischer Projektilenergie bestimmt. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sind zusammen mit den Elektronenausbeuten auf der (111)-Oberfläche von Gold in Abb. 5.3 dargestellt. Da die Sekundärelektronenausbeuten von Au aus der Literatur mit hoher Genauigkeit bekannt sind [76], wurde in den vorliegenden Untersuchungen für jede Messung auf einer Isolatoroberfläche eine Vergleichsmessung auf Au bei unveränderten Parametern durchgeführt. Somit konnte ein eventueller Einfluss der Absaugeffizienz auf die Bestimmung der Elektronenausbeute stets vermieden werden (vgl. Abschnitt 3.4.2 S.51).

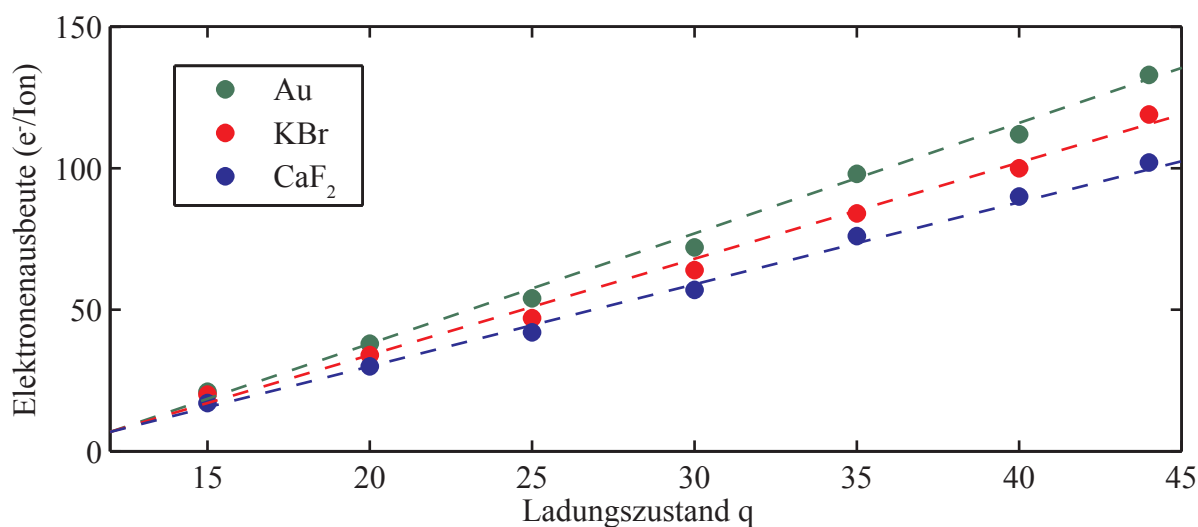


Abbildung 5.3: Sekundärelektronenausbeuten auf Au, KBr und CaF_2 bei Beschuss mit Xe-Ionen als Funktion des Ladungszustandes bei fester kinetischer Energie ($E_{\text{kin}} = 4 \text{ keV}$).

Mit wachsendem Ladungszustand zeigt sich in Abb. 5.3 sowohl für Au als auch für beide Ionenkristalloberflächen ein stetiger linearer Zuwachs der Elektronenausbeute. Zudem weisen die Absolutwerte der Elektronenausbeuten auf KBr und CaF_2 eine mit Au vergleichbare Größe auf. Auch für die in diesen Untersuchungen eingestellte kinetische Projektilenergie von $E_{\text{kin}} = 4 \text{ keV}$ ($v = 7.7 \cdot 10^4 \text{ m/s}$), eine um den Faktor 10 geringere Energie als in den Messungen von Meissl *et al.* [180], findet sich für die Isolatoroberfläche keine Sättigung der Elektronenausbeute bei hohen Ladungszuständen.

Die unerwartet hohen Elektronenausbeuten auf der Ionenkristalloberfläche lassen sich nach Meissl *et al.* [180] über den erhöhten Anteil unter der Oberfläche erzeugter Elektronen zur

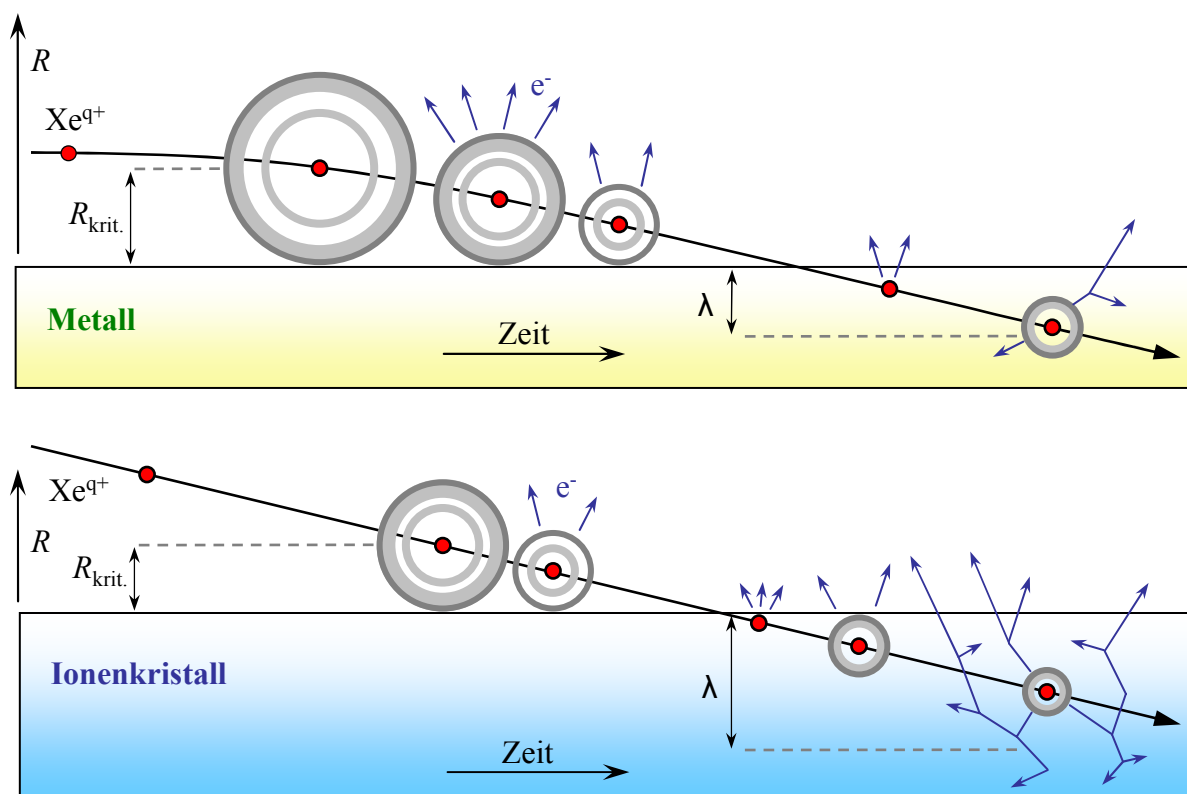


Abbildung 5.4: Schematische Darstellung zur Sekundärelektronenerzeugung vor und unter der Oberfläche von Metallen und Ionenkristallen. Aufgrund des geringeren kritischen Abstandes ($R_{\text{krit.}}$) sowie der höheren mittleren freien Weglänge (λ), tragen unter der Oberfläche erzeugte Elektronen für Ionenkristalle wesentlich stärker zur Gesamtelektronenausbeute bei.

Gesamtelektronenausbeute deuten. Abbildung 5.4 zeigt die Unterschiede der Sekundärelektronenemission vor und unter der Oberfläche eines Metalls sowie eines Ionenkristalls. Aufgrund der höheren Austrittsarbeit der Isolatoroberfläche erfolgt der erste resonante Elektronentransfer von der Oberfläche zum Projektil erst in einem deutlich kleineren Abstand zur Oberfläche als im Falle einer Metalloberfläche (vgl. Gl. (2.4) S.16) und es folgt:

$$R_{\text{krit.}}^{\text{Metall}} > R_{\text{krit.}}^{\text{Isolator}}. \quad (5.10)$$

Einem mit der Metalloberfläche wechselwirkenden HCI steht damit mehr Zeit für die Aufnahme von Elektronen sowie die sich anschließende (teilweise) Relaxation vor der Oberfläche zur Verfügung. Für den Anteil vor der Oberfläche emittierter Sekundärelektronen γ_{vor} kann demnach die Beziehung

$$\gamma_{\text{vor}}^{\text{Metall}} > \gamma_{\text{vor}}^{\text{Isolator}} \quad (5.11)$$

angenommen werden. Aus der höheren Relaxationszeit eines HCI vor der Metalloberfläche folgt zudem, dass die Abregung des Projektils beim Erreichen der Oberfläche weiter fortgeschritten ist, als für ein identisches Projektil beim Erreichen einer Isolatoroberfläche. Der unter

der Oberfläche zur Verfügung stehende Restbetrag der potentiellen Energie ist demnach für einen Isolator höher als für ein Metall.

Das Abstreifen von Elektronen über *Peel-Off*-Prozesse beim Eintritt des Projektils in die Oberfläche und der Einfang von Elektronen über den *side-feeding*-Prozess führen zur Erzeugung einer zweiten Generation des hohlen Atoms unter der Oberfläche, dessen Relaxation zur weiteren Emission von Elektronen führt (vgl. Abschnitt 2.2.5 S.25). Unter der Oberfläche emittierte Elektronen besitzen durch die Abschirmung des freien Elektronengases im Metall eine sehr kurze mittlere freie Weglänge λ . Für einen Ionenkristall kann letztere jedoch aufgrund der hohen Bandlücke die Größenordnung der mittleren *Eindringtiefe*¹ des Projektils annehmen. Zusätzlich ist die Erzeugung von Kaskadenelektronen aus der inelastischen Streuung primärer AUGER-Elektronen am Gitter im Ionenkristall, vermöge der starken Elektron-Phonon-Kopplung, stärker ausgeprägt als unter der Oberfläche eines Metalles (siehe auch Abschnitt 4.2.3 S.82). Auch für diese Kaskadenelektronen gilt $\lambda^{\text{Isolator}} > \lambda^{\text{Metall}}$. Für die Anzahl der Elektronen, die die Oberfläche verlassen und damit einen effektiven Beitrag zur Gesamtelektronenausbeute leisten findet sich aus der angeführten Argumentation schlussendlich:

$$\gamma_{\text{unter}}^{\text{Metall}} < \gamma_{\text{unter}}^{\text{Isolator}}. \quad (5.12)$$

Ein Vergleich der Abschätzungen (5.11) und (5.12) zeigt in Anbetracht der experimentellen Befunde aus Abb. 5.3, dass die unterschiedliche Balance von γ_{vor} und γ_{unter} für die Oberflächen eines Metalls und eines Ionenkristalls offenbar zu in etwa gleichen Gesamtelektronenausbeuten für beide Oberflächen führt.

Eine Quantifizierung der Beiträge vor und unter der Oberfläche erzeugter Elektronen zur Gesamtausbeute ist mit der vorgestellten Versuchsanordnung nicht möglich. Aus einer Gegenfeldanalyse der von der Probenoberfläche emittierten Elektronen konnte jedoch eine einfache Elektronenenergieverteilung abgeleitet werden, die einen qualitativen Hinweis für die Richtigkeit der obigen Argumentation erbrachte. Für diese Messung wurde das Potential des Absauggitters U_{Gitter} abgeschaltet und anschließend unter gleichzeitiger Protokollierung der Elektronenausbeute am Detektor auf negative Spannungen bis einige 10 V eingestellt. Bei gegebener Gitterspannung erreichen nur solche Elektronen den Detektor, deren Energie den Betrag $e \cdot U_{\text{Gitter}}$ übersteigt. Für steigende Gitterspannung sinkt demnach die Anzahl am Detektor ankommender Elektronen. Die Ableitung dieser Funktion stellt die Energieverteilung der emittierten Elektronen dar.

Das Ergebnis einer solchen Messung ist in Abb. 5.5 am Beispiel von Xe^{30+} -Ionen für die Relaxation an Au und CaF_2 dargestellt. Während für CaF_2 ein Großteil der Elektronen mit vergleichsweise niedrigen Energien ($E_e \leq 10 \text{ eV}$) von der Oberfläche emittiert wird, zeigt die Ener-

¹Die Eindringtiefe bezeichnet an dieser Stelle den Abstand zur Oberfläche in dem die Relaxation des HCI abgeschlossen ist.

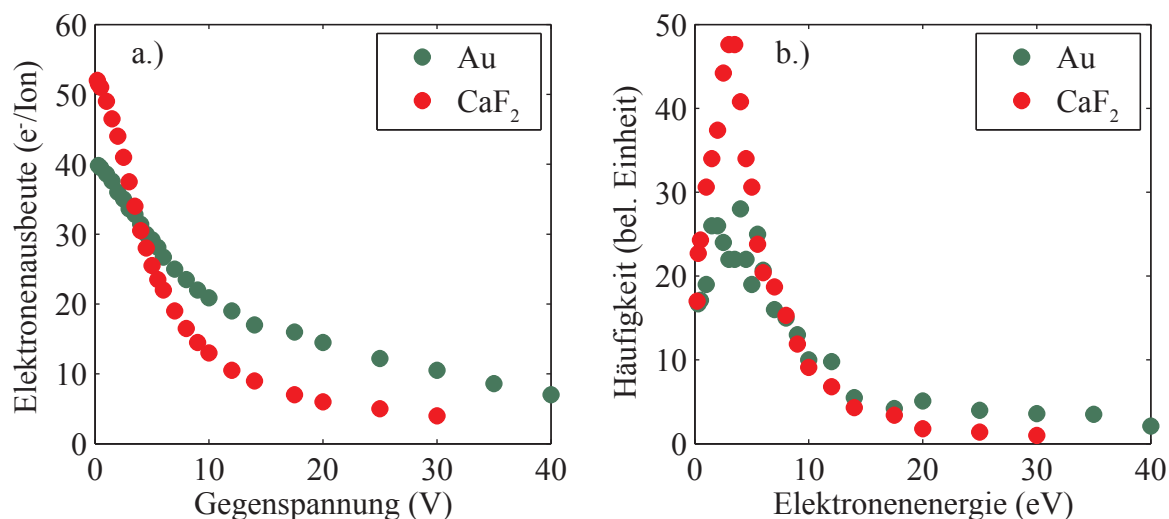


Abbildung 5.5: Einfache Gegenfeldanalyse für Sekundärelektronen aus dem Beschuss von Au und CaF₂ mit Xe³⁰⁺-Ionen. Abnahme der Elektronenausbeute mit wachsender Gegenspannung (a) sowie resultierende Elektronenenergieverteilung (b).

gieverteilung der von der Au-Oberfläche emittierten Elektronen signifikante Beiträge höherer Energie. Im Rahmen der oben eingeführten Argumentation können aufgrund der längeren Relaxationszeit vor der Metalloberfläche mehr AUGER-Übergänge stattfinden, als vor der Oberfläche des Ionenkristalls. Insbesondere Übergänge in intermediäre Schalen (L,M,N) führen dabei zur Emission schneller Elektronen ($E_e \geq 10$ eV). Für den Ionenkristall finden solche Übergänge vermöge des reduzierten kritischen Abstandes ($R_{\text{kirt.}}$) erst unterhalb der Oberfläche statt. Dabei erzeugte Elektronen verlieren entlang ihrer Trajektorie zur Oberfläche einen Teil ihrer Energie durch elastische sowie inelastische Stöße mit dem Gitter und werden demnach mit einer reduzierten Energie ins Vakuum emittiert. Die in Abb. 5.5 beobachtete Verschiebung der Energieverteilung zu niedriger Energie für die Isolatoroberfläche kann somit als indirekter Beweis für die obigen Ausführungen betrachtet werden.

Mit der Zielsetzung, ein detaillierteres Bild über die Balance der Elektronenemission vor und unter der Oberfläche zu erlangen, wurde in einem weiteren Untersuchungsschritt die Abhängigkeit der Gesamtelektronenausbeute von der Projektilgeschwindigkeit bei festem Ladungszustand untersucht. Dabei konnten erstmalig Sekundärelektronenausbeuten auf einer Isolatoroberfläche für niedrigste Projektilgeschwindigkeiten ($v \leq 1 \cdot 10^5$ m/s) experimentell bestimmt werden. Abbildung 5.6 zeigt das Ergebnis einer solchen Untersuchung für die Wechselwirkung von Xe⁴⁰⁺-Ionen mit den Oberflächen von Au und LiF. Für die Au-Oberfläche zeigt sich ein Anstieg der Elektronenausbeute mit sinkender Projektilgeschwindigkeit gemäß der aus dem COM bekannten (vgl. Abschnitt 2.2.6 Gl. (2.34)) Beziehung

$$\gamma_e^{\text{PE}}(v) = \frac{\gamma_0^{\text{PE}}}{\sqrt{v}} + \gamma_\infty. \quad (5.13)$$

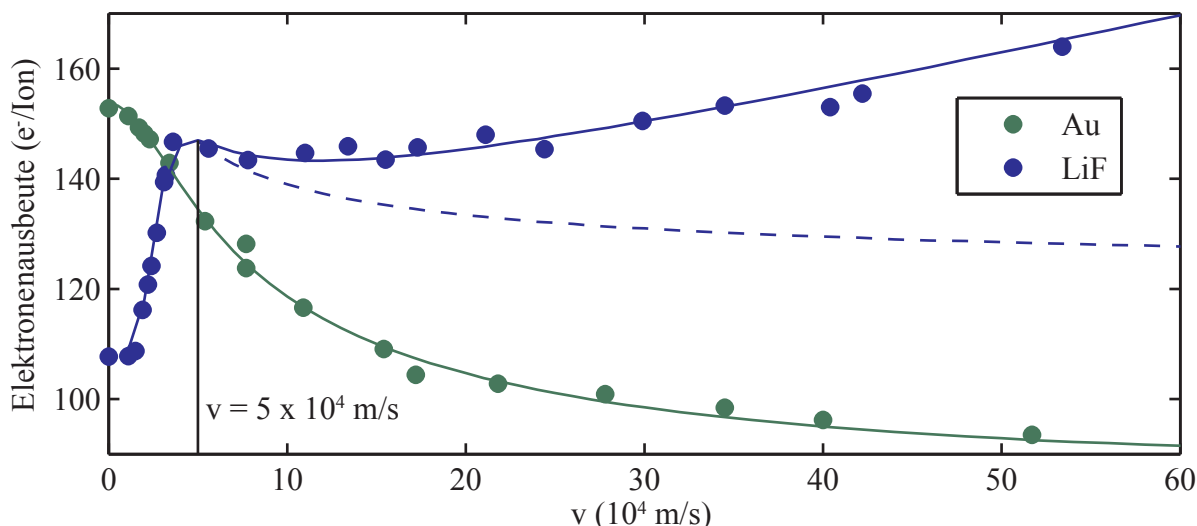


Abbildung 5.6: Sekundärelektronen-Ausbeuten auf LiF und Au bei Beschuss mit Xe^{40+} Ionen in Abhängigkeit von der Projektilgeschwindigkeit. Durchgezogene Linien kennzeichnen einen Fit der Messdaten mit den im Text angegebenen Fitparametern. Der potentielle Anteil der Elektronenausbeute ist für LiF als unterbrochene Linie eingezeichnet (siehe Text). Für Geschwindigkeiten $v < 5 \cdot 10^4$ m/s zeigt sich für die Isolatoroberfläche eine signifikante Abnahme der Elektronenausbeute.

Dabei findet sich für die Konstanten $\gamma_0^{\text{PE}} = 175$ und $\gamma_\infty = 65$ die beste Übereinstimmung mit den experimentellen Daten. Für kleinste Projektilgeschwindigkeiten ($v \leq 1 \cdot 10^4$ m/s) tritt in Abb. 5.6 eine Sättigung der Elektronenausbeute auf, als deren Ursache zweifelsfrei der Effekt der Bildladungsbeschleunigung identifiziert werden kann². Ein zusätzlicher Beitrag kinetischer Elektronenemission bei hohen Projektilgeschwindigkeiten lässt sich in Abb. 5.6 für die Goldoberfläche nicht identifizieren. Diese Beobachtung steht in Einklang mit experimentellen Studien von Eder *et al.* [74], in denen für Projektilgeschwindigkeiten bis $6 \cdot 10^5$ m/s eine kinetische Emission von weniger als 3 Elektronen beobachtet wurde. Für die in Abb. 5.6 gezeigten Elektronenausbeuten von bis zu $150 e^-/\text{Ion}$ kann letzterer Beitrag demnach unberücksichtigt bleiben.

Für Ionenkristalle sollte der Beitrag unter der Oberfläche erzeugter Elektronen aus dem kinetischen Energieübertrag an das Gitter, in analoger Betrachtung zur potentiellen Elektronenemission unter der Oberfläche, wesentlich stärker zur Gesamtelektronenausbeute beitragen als für Metalle (vgl. S. 94). In der Tat zeigt sich in Abb. 5.6 für $v > 1 \cdot 10^5$ m/s für LiF im Gegensatz zur Au-Oberfläche ein Zuwachs der Sekundärelektronenausbeute mit wachsender Projektilgeschwindigkeit. Damit bestimmt sich die Gesamtelektronenausbeute nach Gl. 2.35 (vgl. Abschnitt 2.2.6) zu

$$\gamma_e(v) = \gamma_0^{\text{KE}} \Theta(v - v_{\text{th}}) v + \frac{\gamma_0^{\text{PE}}}{\sqrt{v}} + \gamma_\infty. \quad (5.14)$$

²Eine weitere Verringerung der initialen Projektilgeschwindigkeit v hat vermöge der Beschleunigung durch die Bildladung des HCI keine Auswirkung auf die Relaxationszeit des Projektils vor der Oberfläche und bewirkt demzufolge keine Änderung der Elektronenausbeute (siehe auch Abschnitt 2.2.3 S. 17 sowie [49]).

Die beste Approximation der experimentellen Daten ergibt sich dabei für die Parameter $\gamma_0^{\text{KE}} = 7.5 \text{ m}^{-1} \text{ s}$, $v_{\text{th}} = 4 \cdot 10^4 \text{ ms}^{-1}$, $\gamma_0^{\text{PE}} = 60 \text{ m}^{0.5} \text{ s}^{-0.5}$, sowie $\gamma_\infty = 120$. Durch Abzug des ersten Summanden in Gl. (5.14) findet sich der, in Abb. 5.6 als unterbrochene Linie eingetragene, rein potentielle Anteil an der Gesamtelektronenausbeute.

Für Projektilgeschwindigkeiten $v < 5 \cdot 10^4 \text{ m/s}$ findet sich in Abb. 5.6 für die LiF-Oberfläche ein signifikanter Abfall der Gesamtelektronenausbeute, welcher mit den bisherigen Modellen des COM (Gl. (5.14)) nicht vereinbar ist. Durch wiederholte Messungen der Elektronenausbeute in diesem Geschwindigkeitsbereich, bei verschiedenen Einstellungen des Messapparates sowie durch permanenten Vergleich mit der Referenzprobe Au, konnte zweifelsfrei gezeigt werden, dass es sich bei dem beobachteten Abfall von γ nicht um ein Artefakt der Messmethode handelt. Damit konnte erstmals bei niedrigster kinetischer Ionenenergie ein signifikanter Unterschied in der Sekundärelektronenemission zwischen den Oberflächen von Metallen und Ionenkristallen aufgezeigt werden. Auch für die Ionenkristalle KBr und CaF_2 konnte ein signifikanter Abfall der Elektronenausbeute für $v < 5 \cdot 10^4 \text{ m/s}$ beobachtet werden. Demnach kann auch die spezielle Wahl der Probe als Ursache für den beobachteten Effekt ausgeschlossen werden.

Mögliche Ursachen für das Absinken der Elektronenausbeute bei Projektilgeschwindigkeiten $v < 5 \cdot 10^4 \text{ m/s}$ sollen im Folgenden anhand drei verschiedener Modellvorstellungen erläutert werden. Eine detaillierte theoretische Analyse dieses Effektes ist Gegenstand aktueller Untersuchungen an der Technischen Universität Wien. Die folgenden Modelle besitzen nach gegenwärtigem Erkenntnisstand nur spekulativen Charakter und müssen durch weitere Messungen sowie verlässliche Simulationsrechnungen verifiziert werden.

5.2.1 Balance der Emission vor und unter der Oberfläche

Eine mögliche Ursache des beobachteten Abfalls von γ für $v < 5 \cdot 10^4 \text{ m/s}$ könnte in einer unterschiedlichen Effizienz der Elektronenemission vor und unter der Oberfläche des Ionenkristalls liegen. Für Geschwindigkeiten der betrachteten Größenordnung kann die Eindringtiefe des Projektils den Wert der mittleren freien Weglänge für Elektronen im Kristall unterschreiten. Unter der Oberfläche emittierte Elektronen können demnach nicht mehr auf der gesamten Wegstrecke λ zur Erzeugung von Kaskadenelektronen über inelastische Streuprozesse am Gitter beitragen (vgl. Abb. 5.4). In direkter Konsequenz sollte der Anteil unter der Oberfläche erzeugter Elektronen (γ_{unter}) an der Gesamtelektronenausbeute sinken. Aufgrund der verminderten Projektilgeschwindigkeit steigt jedoch gleichzeitig die mittlere Neutralisations- / Relaxationszeit des HCI vor der Oberfläche. Hieraus lässt sich unmittelbar eine Erhöhung des Anteils vor der Oberfläche emittierter Elektronen (γ_{vor}) ableiten.

Unter der Annahme, dass eine Reduzierung von γ_{unter} eine stärkere Auswirkung auf die Gesamtelektronenausbeute zeigt als eine Erhöhung von γ_{vor} ließe sich das im Experiment beobachte-

te Verhalten von γ bei niedriger Projektilgeschwindigkeit erklären. In der Tat konnten Meissl *et al.* in [180] anhand experimenteller Ergebnisse sowie einfacher Simulationsrechnungen auf der Grundlage des COM zeigen, dass für Argonionen in einem Geschwindigkeitsregime von $4 \dots 7 \cdot 10^5$ m/s vor der Oberfläche emittierte Elektronen nur zu einem Anteil von $\approx 10 \dots 20\%$ zur Gesamtelektronenausbeute auf LiF beitragen. Ob und in welcher Quantität diese Ergebnisse auch auf das in den vorliegenden Untersuchungen betrachtete System von Xe^{40+} -Ionen bei $v < 5 \cdot 10^4$ m/s adaptiert werden können, bleibt jedoch zum gegenwärtigen Zeitpunkt eine offene Fragestellung.

5.2.2 Der Trampolineffekt

Als eine weitere mögliche Ursache für die experimentellen Beobachtungen soll der bereits 1996 von Briand *et al.* [186] postulierte Trampolineffekt diskutiert werden. Eine schematische Darstellung dieses Effektes ist in Abb. 5.7 gegeben. In diesem Modell wird davon ausgegangen, dass für sehr geringe Projektilgeschwindigkeiten die, durch resonanten Transfer von Elektronen zum HCI hervorgerufene, lokale Oberflächenladung die Bildladung des Projektils übersteigen kann. Die damit einhergehende repulsive Kraft auf das Projektilion kann dabei zu dessen Reflexion vor der Oberfläche führen. Durch die Rückstreuung des nur teilweise relaxierten HCI ins Vakuum ohne Kontakt mit der Oberfläche entfällt der Beitrag unter der Oberfläche erzeugter Elektronen in diesem Modell gänzlich.

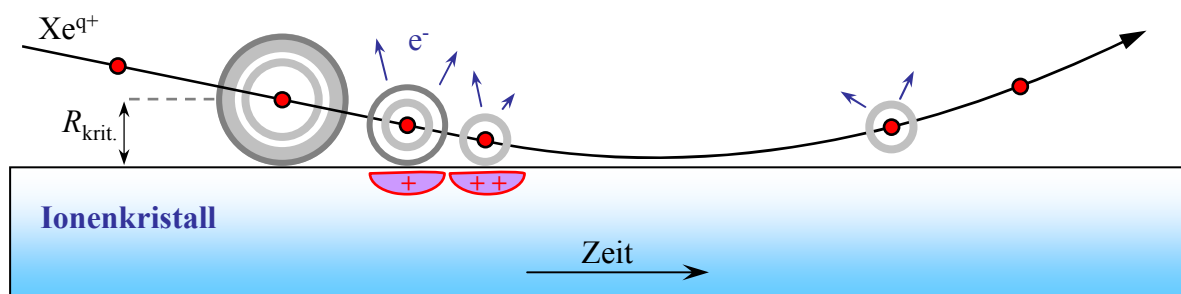


Abbildung 5.7: Trampolineffekt auf Ionenkristalloberflächen bei kleinsten Projektilgeschwindigkeiten. Durch Elektronentransfer entsteht eine positive Ladung an der Oberfläche, welche zur Rückstreuung des teilweise relaxierten Projektils führen kann.

Die Existenz des Trampolineffektes ist zum gegenwärtigen Zeitpunkt in der Literatur recht umstritten. Simulationsrechnungen von Wirtz *et al.* [5, 69] zeigen am Beispiel von Ne^{10+} -Ionen bei einer kinetischen Energie von $E_{\text{kin}} = 0 \text{ eV}^3$, dass die während der Relaxation an LiF erzeugte Oberflächenladung nicht zu einer Umkehrung der Bewegungsrichtung der Projektile führen kann. Experimentelle Befunde von Meyer *et al.* [187] stützen diese Ergebnisse für den Beschuss

³Die Bewegung in Richtung Oberfläche ist in diesem Fall ausschließlich durch die Bildladungsbeschleunigung charakterisiert.

von CsI mit Ar^{11+} -Ionen. Ungeachtet dieser Ergebnisse ist es denkbar, dass die in den vorliegenden Untersuchungen verwendeten Xe^{40+} -Ionen aufgrund ihrer signifikant höheren Ladung eine ungleich stärkere lokale Oberflächenaufladung hervorrufen und demnach bei Geschwindigkeiten $v < 5 \cdot 10^4$ m/s einen Trampolineffekt initiieren können. Die beobachtete signifikante Abnahme der Elektronenausbeute ließe sich damit durch das Entfallen unter der Oberfläche erzeugter Elektronen deuten.

5.2.3 Wiedereinfang von Elektronen

Aus der lokalen Aufladung der Kristalloberfläche durch resonanten Ladungstransfer zum Projektil ergibt sich eine dritte potentielle Ursache für die im Experiment beobachtete Abnahme der Elektronenausbeute bei niedriger Projektilgeschwindigkeit. Die Mechanismen dieses Modells sind in Abb. 5.8 schematisch dargestellt. Dabei wird angenommen, dass durch die lokale Aufladung der Oberfläche die Trajektorien von Elektronen aus der Emission vor sowie unter der Oberfläche dahingehend beeinflusst werden, dass diese insbesondere bei niedriger Primärenergie (E_e) am Verlassen der Oberfläche gehindert werden. Der Wiedereinfang von Elektronen in Zonen lokaler Oberflächenaufladung sollte dabei auf Elektronen, die vor der Oberfläche erzeugt werden, einen stärkeren Einfluss zeigen als auf Elektronen deren Erzeugungsort unter der Oberfläche liegt. Für letztere ergibt sich aufgrund elastischer sowie inelastischer Streuprozesse am Gitter eine starke Streuung des Austrittspunktes aus der Oberfläche (vgl. Abb. 5.8), wodurch ein Austritt an Orten außerhalb des Einflussbereiches der Aufladungszone ermöglicht wird. Gleiches gilt auch für Kaskadenelektronen aus der inelastischen Streuung primärer AUGER-Elektronen am Gitter. Elektronen, die die Oberfläche in unmittelbarer Umgebung der lokalen Aufladungszone erreichen, werden zurückgehalten und können nicht zur Gesamtelektronenausbeute beitragen.

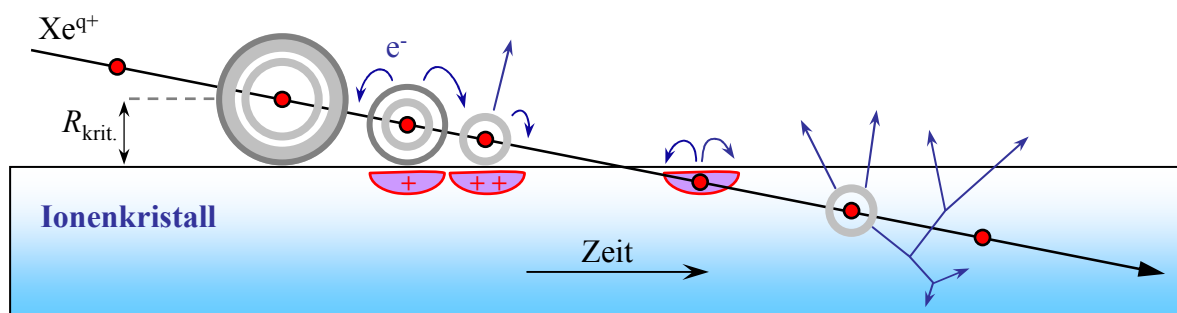


Abbildung 5.8: Schematische Darstellung zum Wiedereinfang von Elektronen. Die durch Elektronentransfer verursachte lokale Aufladung der Oberfläche verhindert die Emission langsamer Sekundärelektronen und reduziert damit die Gesamtelektronenausbeute bei niedriger Projektilgeschwindigkeit.

Die für die Neutralisation verfügbare Zeit τ vor der Oberfläche und damit auch die Anzahl zum Projektil transferierter Ladung ist im Wesentlichen durch die Projektilgeschwindigkeit charak-

terisiert. Mit sinkender Auftreffgeschwindigkeit steigt demnach der Einfluss der lokalen Oberflächenaufladung auf die Emission von Elektronen. Die im Experiment beobachtete Abnahme der Elektronenausbeute mit sinkender Projektilgeschwindigkeit für $v < 5 \cdot 10^4$ m/s erscheint demnach plausibel.

5.3 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde ein, in Zusammenarbeit mit der Technischen Universität Wien realisierter, experimenteller Aufbau zur Untersuchung der Sekundärelektronenemission langsamer hochgeladener Ionen bei der Wechselwirkung mit Ionenkristalloberflächen vorgestellt. Erstmals konnten mit diesem Versuchsaufbau Elektronenausbeuten für die Oberflächen der Isolatoren KBr, CaF₂ sowie LiF bei kleinsten Projektilgeschwindigkeiten ($v \leq 1 \cdot 10^5$ m/s) experimentell bestimmt werden.

In Messungen zur Elektronenausbeute als Funktion der Projektilladung konnte auch für eine Projektilgeschwindigkeit von $v = 7.7 \cdot 10^4$ m/s auf den Oberflächen von CaF₂ und KBr keine Sättigung der Elektronenausbeute für hohe Ladungszustände beobachtet werden. Die von Meissl *et al.* gefundenen Ergebnisse bei $v = 7 \cdot 10^5$ m/s konnten somit verifiziert und das in [180] vorgestellte Erklärungsmodell bestätigt werden.

Messungen der Geschwindigkeitsabhängigkeit der Elektronenausbeute von Xe⁴⁰⁺-Ionen zeigten für die metallische Oberfläche von Gold ein aus dem COM-Modell vorhergesagtes Verhalten. Für die Ionenkristalloberfläche von LiF fand sich hingegen bei geringsten Projektilgeschwindigkeiten ($v \leq 5 \cdot 10^4$ m/s) eine signifikante Abweichung zu den Vorhersagen des COM. In diesem Geschwindigkeitsbereich konnte eine drastische Abnahme der Elektronenausbeute mit abnehmender Projektilgeschwindigkeit beobachtet werden. Damit wurde erstmalig ein Unterschied in der Elektronenemission bei der Wechselwirkung langsamer hochgeladener Ionen mit Metall- und Isolatoroberflächen aufgezeigt.

Potentielle Ursachen für die Abnahme der Elektronenausbeute mit sinkender Projektilgeschwindigkeit wurden auf der Basis verschiedener Erklärungsmodelle diskutiert.

Kapitel 6

Zusammenfassung und Ausblick

In der vorliegenden Arbeit wurde die Erzeugung individueller Nanostrukturen auf Ionenkristaloberflächen bei der Wechselwirkung mit langsamen hochgeladenen Xenonionen ($q \leq 40$) untersucht. Die Experimente wurden an der Rossendorfer Zweiquellen-Ionenstrahlanlage durchgeführt, in deren Targetkammer ein eigens für die vorliegenden Untersuchungen konzipierter Versuchsaufbau integriert wurde. Durch die an der Bestrahlungsanlage gegebene Möglichkeit, Ionen vor dem Auftreffen auf die Probe abzubremsen, konnte der Einfluss der potentiellen Projektilenergie auf den Wechselwirkungsprozess mit der Oberfläche eingehend untersucht werden.

Anhand der experimentellen Befunde dieser Arbeit konnte für die Oberflächen der Ionenkristalle KBr sowie CaF_2 ein konsistentes mikroskopisches Bild für den Prozess der Nanostrukturierung abgeleitet werden.

Die Emission von Elektronen während der Relaxation des hochgeladenen Ions stellt eine der wesentlichen Grundvoraussetzungen für den Prozess der Nanostrukturierung dar. In der vorliegenden Arbeit wurde daher, in Kooperation mit der Technischen Universität Wien, ein experimenteller Aufbau für die Untersuchung der Sekundärelektronenausbeuten hochgeladener Ionen bei der Wechselwirkung mit der Oberfläche von Isolatoren erarbeitet. Mit diesem Versuchsaufbau konnten erstmals Sekundärelektronenausbeuten auf Isolatoroberflächen bei niedrigsten Projektilgeschwindigkeiten ($v \leq 1 \cdot 10^5 \text{ m/s}$) bestimmt werden. Aus den Resultaten dieser Untersuchungen geht ein bis dahin unbekannter, signifikanter Unterschied zwischen der Emission von Elektronen auf Metall- und Isolatoroberflächen für kleinste kinetische Projektilenergien hervor. Die Ergebnisse der in der vorliegenden Arbeit durchgeführten Studien sind im Folgenden stichpunktartig zusammengefasst.

Nanopiterzeugung auf KBr(001)

- Der individuelle Einfall hochgeladener Ionen auf der (001)-Oberfläche von KBr kann die Formierung monoatomar tiefer Löcher (Nanopits) mit lateralen Ausdehnungen von einigen 10 nm einleiten.
- Für die Erzeugung dieser Nanopits ist eine minimale potentielle Energie $E_{\text{pot}}^{\text{grenz}}$ erforderlich, die ihrerseits eine ausgeprägte Abhängigkeit von der Projektilgeschwindigkeit aufweist.
- Die Größe der erzeugten Nanopits sowie die damit einhergehende Anzahl gesputterter Neutralteilchen zeigt eine lineare Abhängigkeit vom Projektilladungszustand.
- Auf der Grundlage der defekt-induzierten Desorption für Elektronen konnte ein Modell für die individuelle Nanopiterzeugung durch hochgeladene Projektile abgeleitet werden. In diesem Modell wird davon ausgegangen, dass durch den lokalen Energietransfer vom HCI zur Oberfläche Farbzentren im Ionenkristall in hoher Dichte erzeugt werden, die über den Prozess der Agglomeration in komplexe Defektzentren (X-Zentren) die Erzeugung eines individuellen Nanopits hervorrufen können.
- Komplementäre Bestrahlungsexperimente bei erhöhter Ionenfluenz weisen auf die Existenz des X-Zentrums hin und stützen die Annahmen des vorgestellten Modells.
- Für ein detaillierteres Verständnis des Zusammenwirkens von kinetischer und potentieller Projektilenergie bei dem Prozess der Nanopiterzeugung sind weitere experimentelle Studien unter streifendem Ioneneinfall an der Rossendorfer Zweiquellenanlage geplant.

Hillockformierung auf CaF₂(111)

- Aus Untersuchungen von El-Said *et al.* [115] ist bekannt, dass der Einfall hochgeladener Ionen auf der CaF₂(111)-Oberfläche die Erzeugung hügelartiger Erhebungen (Hillocks) mit einer Höhe von 1 nm bis 2 nm sowie einem Durchmesser von einigen 10 nm hervorrufen kann. In Kooperation mit der Technischen Universität Wien konnte durch Bestrahlungsexperimente bei geringsten kinetischen Energien ($E_{\text{kin}} \geq 150 \text{ qeV}$) erstmals gezeigt werden, dass die potentielle Energie die alleinige Ursache für die Erzeugung dieser Strukturen darstellt.
- Für den von El-Said *et al.* gefundenen Grenzwert der potentiellen Energie für die Hillockformierung $E_{\text{pot}}^{\text{grenz}}$ konnte in der vorliegenden Arbeit eine Verschiebung zu geringerem Ladungszustand bei niedrigerer Projektilgeschwindigkeit gefunden werden.

- Für das Hillockvolumen konnte bei konstanter Projektilladung ein Zuwachs bei geringer kinetischer Ionenenergie beobachtet werden.
- Durch an der Technischen Universität Wien durchgeführte Simulationsrechnungen auf der Basis des modifizierten *thermal spike*-Modells, konnten die in dieser Arbeit gefundenen experimentellen Ergebnisse in ein mikroskopisches Bild überführt werden.
- Die Ursache der individuellen Hillockerzeugung findet sich in diesem Modell in der lokalen Schmelze der Oberfläche, verursacht durch den Energietransfer von Sekundärelektronen aus der HCI-Neutralisation an das Kristallgitter.
- Aus den Simulationsrechnungen geht hervor, dass geometrische Form und Größe des effektiv geheizten Kristallvolumens signifikant von der Projektilgeschwindigkeit abhängen. Die im Experiment beobachtete Verschiebung der Hillockvolumina sowie des Grenzwertes $E_{\text{pot}}^{\text{grenz}}$ bei niedrigerer kinetischer Energie lassen sich damit sowohl qualitativ als auch quantitativ deuten.

Elektronenemission von Metall- und Ionenkristalloberflächen

- Mit dem in dieser Arbeit konzipierten experimentellen Aufbau konnten erstmals Gesamtelektronenausbeuten für die Relaxation hochgeladener Ionen an Isolatoroberflächen bei niedrigsten kinetischen Energien ermittelt werden.
- Bei einer Projektilgeschwindigkeit von $v = 7.7 \cdot 10^4$ m/s wurde für die Ionenkristalloberflächen von CaF_2 , KBr sowie LiF keine Sättigung der Elektronenausbeute bei hohen Ladungszuständen beobachtet. Erste experimentelle Untersuchungen von Meissl *et al.* [180] konnten damit verifiziert und das zugrunde gelegte Erklärungsmodell bestätigt werden.
- In einfachen Gegenfelduntersuchungen zeigte sich ein signifikanter Unterschied in der Elektronenenergieverteilung für die Oberflächen von Au und CaF_2 , der in Einklang mit der von Meissl *et al.* postulierten Modellvorstellung gebracht werden kann.
- Für den Ionenkristall LiF konnte bei Beschuss mit Xe^{40+} -Ionen, in starkem Kontrast zur Metalloberfläche von Au, bei niedrigsten Projektilgeschwindigkeiten ($v \leq 5 \cdot 10^4$ m/s) eine deutliche Verminderung der Elektronenausbeute beobachtet werden. Mögliche Ursachen letzterer Beobachtung wurden auf der Grundlage unterschiedlicher Erklärungsmodelle diskutiert. Eine abschließende Wertung welches dieser Modelle die tatsächliche Ursache für den beobachteten Effekt darstellt, bedarf weiterer experimenteller sowie theoretischer Betrachtungen und ist Gegenstand aktueller Untersuchungen an der Technischen Universität Wien sowie am Forschungszentrum Dresden-Rossendorf.

Ausblick

- Die in dieser Arbeit konzipierten Modelle zur Erzeugung von Nanopits sowie Nanohillocks auf den Oberflächen der Ionenkristalle KBr und CaF₂ stellen erste mikroskopische Erklärungsmodelle für den allgemeinen Fall der HCl-Oberflächenstrukturierung dar. Eine Verifizierung und Verbesserung dieser Modelle für weitere Isolatoroberflächen stellt eine wichtige Herausforderung für zukünftige Untersuchungen auf dem Gebiet der Ionen-Oberflächen-Wechselwirkung dar.
- Bei den vorgestellten Untersuchungen galt das Hauptinteresse dem Verständnis der mikroskopischen Prozesse die zur Erzeugung permanenter Nanostrukturen durch den potentiellen Energieeintrag hochgeladener Ionen hervorgerufen werden können. Dabei trafen die verwendeten Projektionen statistisch verteilt auf die jeweilige Probenoberfläche. Für Anwendungen in der Mikro- und Nanotechnologie ist eine gezielte Platzierung der Ionen auf der Oberfläche hingegeben unabdingbar. Experimente zur kontrollierten Einzelionenimplantation sind daher eines der weitläufig geplanten Hauptziele der Forschungstätigkeiten an der Rossendorfer Zweiquellenanlage.
- Aus den in der vorliegenden Arbeit gefundenen Unterschieden in der Sekundärelektronenemission auf Isolator- und Metalloberflächen ergeben sich neue, interessante und zum gegenwärtigen Zeitpunkt teilweise offene Fragestellungen die in zukünftigen Untersuchungen beantwortete werden sollen und zu einem besseren Verständnis des Relaxationsprozesses hochgeladener Ionen an Festkörperoberflächen führen sollen. Neue Experimente zur gezielten Untersuchung der Energieverteilung emittierter Sekundärelektronen befinden sich derzeit im Aufbau und sollen in naher Zukunft das Spektrum von Experimenten an der Rossendorfer Zweiquellenanlage erweitern.

Literaturverzeichnis

- [1] AUMAYR, F. ; WINTER, H. P.: Slow Highly Charged Ions -A New Tool For Surface Nanostructuring?-. In: *e-J. Surf. Sci. Nanotech.* 1 (2003), S. 171–174
- [2] GEBESHUBER, I. C. ; CERNUSCA, S. ; AUMAYR, F. ; WINTER, H. P.: Nanoscopic Surface Modification by Slow Ion Bombardment. In: *International Journal of Mass Spectrometry* 229 (2003), S. 27–34
- [3] KOST, D. ; FACSKO, S. ; MÖLLER, W. ; HELLHAMMER, R. ; STOLTERFOHT, N.: Channels of Potential Energy Dissipation During Multiply Charged Argon-Ion Bombardment of Copper. In: *Physical Review Letters* 98 (2007), S. 225503
- [4] STÖCKL, J. ; SUTA, T. ; DITROI, F. ; WINTER, H. P. ; AUMAYR, F.: Separation of Potential and Kinetic Electron Emission for Grazing Impact of Multiply Charged Ar Ions on a LiF(001) Surface. In: *Physical Review Letters* 93 (2004), S. 263201
- [5] WIRTZ, L. ; LEMELL, C. ; REINHOLD, C. O. ; HAGG, L. ; BURGDÖRFER, J.: Vertical Incidence of Slow Ne¹⁰⁺ Ions on an LiF Surface: Suppression of the Trampoline Effect. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 182 (2001), S. 36–40
- [6] BURGDÖRFER, J. ; LERNER, P. ; MEYER, F. W.: Above-Surface Neutralization of Highly Charged Ions - The Classical over-the-Barrier Model. In: *Physical Review A* 44 (1991), S. 5674–5685
- [7] BURGDÖRFER, J. ; MEYER, F. W.: Image Acceleration of Multiply Charged Ions by Metallic Surfaces. In: *Physical Review A* 47 (1993), S. R20–R22
- [8] BURGDÖRFER, J. ; LEMELL, C. ; SCHIESSL, K. ; SOLLEDER, B. ; REINHOLD, C. ; TOKESI, K. ; WIRTZ, L.: Collisions of Slow Highly Charged Ions with Surfaces. In: *arXiv:physics/0605245v1* (2006)
- [9] BURGDÖRFER, J. ; WIRTZ, L. ; REINHOLD, C. O. ; LEMELL, C.: Multi-Electron Dynamics for Neutralization of Highly Charged Ions near Surfaces. In: *Vacuum* 73 (2004), S. 3–7

- [10] PARKS, D. C. ; BASTASZ, R. ; SCHMIEDER, R. W. ; STÖCKLI, M.: Nanometer-Size Surface-Features Produced by Single, Low-Energy, Highly-Charged Ions. In: *Journal of Vacuum Science and Technology B* 13 (1995), S. 941–948
- [11] HAYDERER, G. ; CERNUSCA, S. ; SCHMID, M. ; VARGA, P. ; WINTER, H. P. ; AUMAYR, F.: STM Studies of HCl-Induced Surface Damage on Highly Oriented Pyrolytic Graphite. In: *Physica Scripta* T92 (2001), S. 156–157
- [12] POMEROY, J. M. ; PERRELLA, A. C. ; GRUBE, H. ; GILLASPY, J. D.: Gold Nanostructures Created by Highly Charged Ions. In: *Physical Review B* 75 (2007), S. 241409
- [13] THUMM, U. ; DUCREE, J. ; KÜRPICK, P. ; WILLE, U.: Charge Transfer and Electron Emission in Ion-Surface Interactions. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 157 (1999), S. 11–20
- [14] BORISOV, A. G. ; ZIMNY, R. ; TEILLETBILLY, D. ; GAUYACQ, J. P.: Energy and Lifetime of One-Electron Multicharged-Ion states in Front of an Al Surface. In: *Physical Review A* 53 (1996), S. 2457–2465
- [15] NORDLANDER, P.: Energies and Lifetimes of Atomic Rydberg States near Metal Surfaces. In: *Physical Review B* 53 (1996), S. 4125–4132
- [16] DEUTSCHER, S. A. ; YANG, X. Z. ; BURGDÖRFER, J.: Atomic Resonances of Hydrogen near Aluminum Surfaces: Adiabatic Evolution of the Ground State. In: *Physical Review A* 55 (1997), S. 466–478
- [17] KURPICK, P. ; THUMM, U. ; WILLE, U.: Resonance Formation of Hydrogenic Levels in Front of Metal Surfaces. In: *Physical Review A* 56 (1997), S. 543–554
- [18] AUMAYR, F. ; WINTER, H. P.: Electron-Emission Induced by Slow Highly-Charged Ions on a Clean Metal-Surface. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 90 (1994), S. 523–532
- [19] ARNAU, A. ; AUMAYR, F. ; ECHENIQUE, P. M. ; GREETHER, M. ; HEILAND, W. ; LIMBURG, J. ; MORGENSTERN, R. ; RONCIN, P. ; SCHIPPERS, S. ; SCHUCH, R. ; STOLTERFOHT, N. ; VARGA, P. ; ZOUROS, T. J. M. ; WINTER, H. P.: Interaction of Slow Multicharged Ions with Solid Surfaces. In: *Surface Science Reports* 27 (1997), S. 117–239
- [20] AUMAYR, F. ; KURZ, H. ; WINTER, H. P.: Slow-Electrons Produced by Slow Multicharged Ions on a Clean Metal-Surface. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 87 (1994), S. 130–137

- [21] WINTER, H. P. ; AUMAYR, F.: Hollow Atoms. In: *Journal of Physics B* 32 (1999), S. R39–R65
- [22] DUCREE, J. J.: *Dynamik hyperthermischer hochgeladener Ionen an Oberflächen*, Westfälische Wilhelms-Universität Münster, Fakultät Mathematik und Naturwissenschaften, Diss., 1999
- [23] DUCREE, J. J. ; CASALI, F. ; THUMM, U.: Extended Classical over-Barrier Model for Collisions of Highly Charged Ions with Conducting and Insulating Surfaces. In: *Physical Review A* 57 (1998), S. 338–350
- [24] SCHIPPERS, S.: *Die Wechselwirkung hochgeladener Ionen mit Platin und Blei Einkristall-Oberflächen*, Technische Universität Osnabrück, Fachbereich Physik, Diss., 1992
- [25] KOST, D.: *Energieeintrag langsamer hochgeladener Ionen in Festkörperoberflächen*, Technische Universität Dresden, Fakultät Mathematik und Naturwissenschaften, Diss., 2006
- [26] HAGG, L. ; REINHOLD, C. O. ; BURGDÖRFER, J.: Above-Surface Neutralization of Slow Highly Charged Ions in Front of Ionic Crystals. In: *Physical Review A* 55 (1997), S. 2097–2108
- [27] OLIPHANT, M. L. E.: The Liberation of Electrons from Metal Surfaces by Positive Ions Part I - Experimental. In: *Proceedings of the Royal Society of London Series A* 127 (1930), S. 373–387
- [28] OLIPHANT, M. L. E.: The Liberation of Electrons from Metal Surfaces by Positive Ions Part II - Theoretical. In: *Proceedings of the Royal Society of London Series A* 127 (1930), S. 388–406
- [29] HAGSTRUM, H. D.: Auger Ejection of Electrons from Tungsten by Noble Gas Ions. In: *Physical Review* 96 (1954), S. 325–335
- [30] HAGSTRUM, H. D.: Theory of Auger Ejection of Electrons from Metals by Ions. In: *Physical Review* 96 (1954), S. 336–365
- [31] HAGSTRUM, H. D.: Ion-Neutralization Spectroscopy of Solids and Solid Surfaces. In: *Physical Review* 150 (1966), S. 495
- [32] HAGSTRUM, H. D. ; BECKER, G. E.: Resonance, Auger, and Autoionization Processes Involving $\text{He}^+(2S)$ and He^{++} near Solid Surfaces. In: *Physical Review B* 8 (1973), S. 107–121

- [33] BRENTEN, H. ; MÜLLER, H. ; KEMPTER, V.: Electrons from Intraatomic and Interatomic Auger Processes in Low-Energy He²⁺ Collisions with Partially Alkalated W(110) Surfaces. In: *Surface Science* 274 (1992), S. 309–316
- [34] TOGLHOFFER, K. ; AUMAYR, F. ; WINTER, H. P.: Ion-Induced Electron-Emission from Metal-Surfaces - Insights from the Emission Statistics. In: *Surface Science* 281 (1993), S. 143–152
- [35] HAGSTRUM, H. D.: Auger Ejection of Electrons from Molybdenum by Noble Gas Ions. In: *Physical Review* 104 (1956), S. 672–683
- [36] ARIFOV, U. A. ; KISHINEVSKII, L. M. ; MUKHAMADIEV, E. S. ; PARILIS, E. S.: Auger Neutralization of Highly Charged Ions at the Surface of a Metal. In: *Soviet Physics Technical Physics* 18 (1973), S. 118
- [37] BRIAND, J. P. ; BILLY, L. ; CHARLES, P. ; ESSABAA, S. ; BRIAND, P. ; GELLER, R. ; DESCLAUX, J. P. ; BLIMAN, S. ; RISTORI, C.: Production of Hollow Atoms by the Excitation of Highly Charged Ions in Interaction with a Metallic Surface. In: *Physical Review Letters* 65 (1990), S. 159–162
- [38] DE LAUNAY, M. ; FEHRINGER, M. ; GELLER, R. ; VARGA, P. ; WINTER, H. P.: Auger-Electron Emission from Slow Multicharged Ions near a Metal-Surface. In: *Europhysics Letters* 4 (1987), S. 377–382
- [39] ZEHNER, D. M. ; OVERBURY, S. H. ; HAVENER, C. C. ; MEYER, F. W. ; HEILAND, W.: Electron-Emission from the Interaction of Multiply Charged Ions with a Au(110) Surface. In: *Surface Science* 178 (1986), S. 359–366
- [40] MEYER, F. W. ; OVERBURY, S. H. ; HAVENER, C. C. ; VANEMMICHOVEN, P. A. Z. ; ZEHNER, D. M.: Evidence for Above-Surface and Subsurface Neutralization during Interactions of Highly Charged Ions with a Metal Target. In: *Physical Review Letters* 67 (1991), S. 723–726
- [41] MEYER, F. W. ; OVERBURY, S. H. ; HAVENER, C. C. ; VANEMMICHOVEN, P. A. Z. ; BURGDÖRFER, J. ; ZEHNER, D. M.: Electron-Emission during Interactions of Multicharged N and Ar Ions with Au(110) and Cu(001) Surfaces. In: *Physical Review A* 44 (1991), S. 7214–7228
- [42] VAN EMMICHOVEN, P. A. Z. ; HAVENER, C. C. ; HUGHES, I. G. ; ZEHNER, D. M. ; MEYER, F. W.: Emission of Low-Energy Electrons from Multicharged Ions Interacting with Metal-Surfaces. In: *Physical Review A* 47 (1993), S. 3998–4006

- [43] DE ZWART, S. T. ; DRENTJE, A. G. ; BOERS, A. L. ; MORGENSTERN, R.: Electron-Emission Induced by Multiply Charged Ar Ions Impinging on a Tungsten Surface. In: *Surface Science* 217 (1989), S. 298–316
- [44] KÖHRBRÜCK, R. ; SOMMER, K. ; BIRSACK, J. P. ; BLECKNEUHAUS, J. ; SCHIPPERS, S. ; RONCIN, P. ; LECLER, D. ; FREMONT, F. ; STOLTERFOHT, N.: Auger-Electron Emission from Slow, Highly Charged Ions Interacting with Solid Cu Targets. In: *Physical Review A* 45 (1992), S. 4653–4660
- [45] BRIAND, J. P. ; BILLY, L. ; CHARLES, P. ; ESSABAA, S. ; BRIAND, P. ; GELLER, R. ; DESCLAUX, J. P. ; BLIMAN, S. ; RISTORI, C.: Subfemtosecond Study of the Hypersatellite-Satellite Cascade in Hollow Atoms. In: *Physical Review A* 43 (1991), S. 565–567
- [46] CLARK, M. W. ; SCHNEIDER, D. ; DEWITT, D. ; McDONALD, J. W. ; BRUCH, R. ; SAFRONOVA, U. I. ; TOLSTIKHINA, I. Y. ; SCHUCH, R.: Xe-L and M X-Ray-Emission Following Xe-44-48+ Ion Impact on Cu Surfaces. In: *Physical Review A* 47 (1993), S. 3983–3997
- [47] SCHULZ, M. ; COCKE, C. L. ; HAGMANN, S. ; STÖCKLI, M. ; SCHMIDT-BÖCKING, H.: X-Ray-Emission from Slow Highly Charged Ar Ions Interacting with a Ge Surface. In: *Physical Review A* 44 (1991), S. 1653–1658
- [48] DE ZWART, S. T. ; FRIED, T. ; JELLEN, U. ; BOERS, A. L. ; DRENTJE, A. G.: Charge-Distribution of Multiply Charged Ions Scattered from Tungsten. In: *Journal of Physics B* 18 (1985), S. L623–L628
- [49] AUMAYR, F. ; KURZ, H. ; SCHNEIDER, D. ; BRIERE, M. A. ; McDONALD, J. W. ; CUNNINGHAM, C. E. ; WINTER, H.P.: Emission of Electrons from a Clean Gold Surface-Induced by Slow, Very Highly-Charged Ions at the Image Charge Acceleration Limit. In: *Physical Review Letters* 71 (1993), S. 1943–1946
- [50] SNOWDON, K. J.: Slow-Multicharged Ion-Surface Interactions. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 34 (1988), S. 309
- [51] DUCREE, J. J. ; ANDRÄ, H. J. ; THUMM, U.: Near-Surface K-Auger Emission in Low-Energy Scattering of Highly Charged Ions with Surfaces. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 145 (1998), S. 509–521
- [52] WENTZEL, G.: Über strahlungslose Quantensprünge. In: *Zeitschrift für Physik A* 43 (1927), S. 524–530
- [53] APELL, P.: Multiply Charged Ion-Solid Interaction. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics B* 23 (1987), S. 242–244

- [54] WORATSCHEK, B. ; SESSELMAN, W. ; KUPPERS, J. ; ERTL, G. ; HABERLAND, H.: Electron-Spectroscopy of Alkali-Metal Surfaces by Deexcitation of Metastable He Atoms. In: *Surface Science* 180 (1987), S. 187–202
- [55] COWAN, R. D.: *The Theory of Atomic Structure and Spectra*. Berkeley : University of California Press, 1981
- [56] LANDAU, L. D. ; LIFSCHITZ, J. M.: *Lehrbuch der Theoretischen Physik (Band 3) Quantenmechanik*. Berlin : Akademie Verlag, 1988
- [57] LANDAU, L. D. ; LIFSCHITZ, J. M.: *Lehrbuch der Theoretischen Physik (Band 4) Quantenelektrodynamik*. Berlin : Akademie Verlag, 1991
- [58] MAZARRO, A. ; ECHENIQUE, P. M. ; RITCHIE, R. H.: Charged-Particle Wake in the Random-Phase Approximation. In: *Physical Review B* 27 (1983), S. 4117–4128
- [59] KURZ, H. ; TÖGLHOFER, K. ; WINTER, H. P. ; AUMAYR, F. ; MANN, R.: Electron-Emission from Slow Hollow Atoms at a Clean Metal-Surface. In: *Physical Review Letters* 69 (1992), S. 1140–1143
- [60] KURZ, H. ; AUMAYR, F. ; LEMELL, C. ; TÖGLHOFER, K. ; WINTER, H. P.: Neutralization of Slow Multicharged Ions at a Clean Gold Surface - Total Electron Yields. In: *Physical Review A* 48 (1993), S. 2182–2191
- [61] DUCREE, J. ; MROGENDA, J. ; RECKELS, E. ; ANDRÄ, H. J.: Improved Dynamic Simulation of Highly Charged Ion-Surface Collisions. In: *Physica Scripta T80B* (1999), S. 220–222
- [62] DUCREE, J. ; ANDRÄ, H. J. ; THUMM, U.: Neutralization of Hyperthermal Multiply Charged Ions at Surfaces: Comparison between the Extended Dynamical Overbarrier Model and Experiment. In: *Physical Review A* 60 (1999), S. 3029–3043
- [63] THOMASCHEWSKI, J. ; BLECK-NEUHAUS, J. ; GREETHER, M. ; SPIELER, A. ; STOLTERFOHT, N.: Hollow Nitrogen Atoms Probing the Jellium Edge in Front of a Au(111) Surface. In: *Physical Review A* 57 (1998), S. 3665–3673
- [64] BAHRIM, B. ; THUMM, U.: Charge-Transfer Dynamics in Slow Atom-Surface Collisions: A new Close-Coupling Approach Including Continuum Discretization. In: *Surface Science* 451 (2000), S. 1–6
- [65] BAHRIM, B. ; THUMM, U.: Electron Transfer and Orbital Hybridization in Slow Collisions Between Excited Hydrogen Atoms and Aluminum Surfaces. In: *Surface Science* 521 (2002), S. 84–94

- [66] BAHIM, B. ; KURPICK, P. ; THUMM, U. ; WILLE, U.: Electron Dynamics and Level Broadening in Slow Atomic Interactions with Metal Surfaces and Thin Metallic Films. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 164 (2000), S. 614–625
- [67] SIDKY, E. Y. ; LIN, C. D.: Quantum Mechanical Calculation of Ejected Electron Spectra for Ion-Atom Collisions. In: *Journal of Physics B* 31 (1998), S. 2949–2960
- [68] STOLTERFOHT, N. ; ARNAU, A. ; GREYER, M. ; KÖHRBRÜCK, R. ; SPIELER, A. ; PAGE, R. ; SAAL, A. ; THOMASCHESKI, J. ; BLECKNEUHAUS, J.: Multiple-Cascade Model for the Filling of Hollow Ne Atoms Moving Below an Al Surface. In: *Physical Review A* 52 (1995), S. 445–456
- [69] WIRTZ, L. ; REINHOLD, C. O. ; LEMELL, C. ; BURGDÖRFER, J.: Liouville Master Equation for Multielectron Dynamics: Neutralization of Highly Charged Ions near a LiF Surface. In: *Physical Review A* 67 (2003), S. 012903
- [70] HASSELKAMP, D.: *Kinetic Electron Emission from Solid Surfaces under Ionbombardment, in Particle Induced Electron Emission II*. Berlin : Springer-Verlag, 1991
- [71] ROSLER, M. ; BRAUER, W.: On the Theory of Ion-Induced Electron-Emission. In: *Physica Status Solidi B* 126 (1984), S. 629–642
- [72] LAKITS, G. ; AUMAYR, F. ; HEIM, M. ; WINTER, H. P.: Threshold of Ion-Induced Kinetic Electron-Emission from a Clean Metal-Surface. In: *Physical Review A* 42 (1990), S. 5780–5783
- [73] EDER, H. ; VANA, M. ; AUMAYR, F. ; WINTER, H. P.: Precise Total Electron Yield Measurements for Impact of Singly or Multiply Charged Ions on Clean Solid Surfaces. In: *Review of Scientific Instruments* 68 (1997), S. 165–169
- [74] EDER, H. ; AUMAYR, F. ; WINTER, H. P.: Search for Projectile Charge Dependence of Kinetic Electron Emission from Clean Polycrystalline Gold. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 154 (1999), S. 185–193
- [75] EDER, H. ; VANA, M. ; AUMAYR, F. ; WINTER, H. P. ; JUARISTI, J. L. ; ARNAU, A.: Projectile Charge Dependence of Kinetic Electron Emission from Clean Gold. In: *Physica Scripta* T73 (1997), S. 322–323
- [76] KURZ, H. ; AUMAYR, F. ; WINTER, H. P. ; SCHNEIDER, D. ; BRIERE, M. A. ; MCDONALD, J. W.: Electron-Emission and Image-Charge Acceleration for the Impact of Very Highly-Charged Ions. In: *Physical Review A* 49 (1994), S. 4693–4702
- [77] JACKSON, J. D.: *Klassische Elektrodynamik 2. Auflage*. Berlin : de Gruyter Verlag, 1983

- [78] ABAJO, F. J. G. ; ECHENIQUE, P. M.: Wake Potential in the Vicinity of a Surface. In: *Physical Review B* 46 (1992), S. 2663–2675
- [79] LOWNDES, R. P. ; MARTIN, D. H.: Dielectric Dispersion and Structures of Ionic Lattices. In: *Proceedings of the Royal Society of London A* 308 (1969), S. 473
- [80] BARANY, A. ; SETTERLIND, C. J.: Interaction of Slow Highly-Charged Ions with Atoms, Clusters and Solids - A Unified Classical Barrier Approach. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 98 (1995), S. 184–186
- [81] KELLER, A.: *Komparative Studie des Energieeintrags langsamer hochgeladener Ionen in Halbleiter- und Isolatoroberflächen*, Fachhochschule Coburg, Fachbereich Physikalische Technik und Allgemeinwissenschaften, Diplomarbeit, 2005
- [82] LIMBURG, J. ; SCHIPPERS, S. ; HOEKSTRA, R. ; MORGENSTERN, R. ; KURZ, H. ; VANA, M. ; AUMAYR, F. ; WINTER, H. P.: On the Formation of Hollow Atoms in Front of an Insulating LiF Surface. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 115 (1996), S. 237–241
- [83] LIMBURG, J. ; SCHIPPERS, S. ; HOEKSTRA, R. ; MORGENSTERN, R. ; KURZ, H. ; AUMAYR, F. ; WINTER, H. P.: Do Hollow Atoms Exist in Front of an Insulating LiF(100) Surface. In: *Physical Review Letters* 75 (1995), S. 217–219
- [84] VANA, M. ; AUMAYR, F. ; VARGA, P. ; WINTER, H. P.: Electron-Emission from Polycrystalline Lithium-Fluoride Bombarded by Slow Multicharged Ions. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 100 (1995), S. 284–289
- [85] SCHENKEL, T. ; HAMZA, A. V. ; BARNES, A. V. ; SCHNEIDER, D. H.: Interaction of Slow, very Highly Charged Ions with Surfaces. In: *Progress in Surface Science* 61 (1999), S. 23–84
- [86] KENTSCH, U. ; TYRROFF, H. ; ZSCHORNACK, G. ; MÖLLER, W.: Retention of the potential energy of multiply charged argon ions incident on copper. In: *Physical Review Letters* 87 (2001), S. 105504
- [87] KENTSCH, U.: *Untersuchung des Leistungseintrags hochgeladener langsamer Schwereionen in Festkörpertargets*, Technische Universität, Fakultät Mathematik und Naturwissenschaften, Diplomarbeit, 2001
- [88] RADZHABOV, S. S. ; RAKHIMOV, R. R. ; ABDUSALOMOV, D.: Secondary-Emission of Alkali-Halide Crystals by Bombardment with Ar⁺-Ar⁵⁺ and Kr⁺-Kr⁵⁺ Multi-Charged Ions. In: *Izvestiya Akademii Nauk Sssr Seriya Fizicheskaya* 40 (1976), S. 2543–2547

- [89] NEIDHART, T. ; PICHLER, F. ; AUMAYR, F. ; WINTER, H. P. ; SCHMID, M. ; VARGA, P.: Potential Sputtering of Lithium-Fluoride by Slow Multicharged Ions. In: *Physical Review Letters* 74 (1995), S. 5280–5283
- [90] SPORN, M. ; LIBISELLER, G. ; NEIDHART, T. ; SCHMID, M. ; AUMAYR, F. ; WINTER, H. P. ; VARGA, P. ; GREYER, M. ; NIEMANN, D. ; STOLTERFOHT, N.: Potential Sputtering of Clean SiO₂ by Slow Highly Charged Ions. In: *Physical Review Letters* 79 (1997), S. 945–948
- [91] BITENSKY, I. S. ; PARILIS, E. S.: The Sputtering of Non-Metals under Slow Multiply Charged Ions. In: *Journal De Physique* 50 (1989), S. 227–230
- [92] CHENG, H. P. ; GILLASPY, J. D.: Nanoscale Modification of Silicon Surfaces via Coulomb Explosion. In: *Physical Review B* 55 (1997), S. 2628–2636
- [93] AUMAYR, F. ; BURGDÖRFER, J. ; HAYDERER, G. ; VARGA, P. ; WINTER, H. P.: Evidence Against the Coulomb Explosion Model for Desorption from Insulator Surfaces by Slow Highly Charged Ions. In: *Physica Scripta T80B* (1999), S. 240–242
- [94] KAKUTANI, N. ; AZUMA, T. ; YAMAZAKI, Y. ; KOMAKI, K. ; KUROKI, K.: Potential Sputtering of Protons from a Surface under Slow Highly-Charged Ion-Bombardment. In: *Japanese Journal of Applied Physics* 34 (1995), S. L580–L583
- [95] MOCHIIJI, K. ; ITABASHI, N. ; YAMAMOTO, S. ; OCHIAI, I. ; OKUNO, K.: Surface-Reaction Induced by Multiply-Charged Ions. In: *Japanese Journal of Applied Physics* 33 (1994), S. 7108–7111
- [96] BURGDÖRFER, J. ; YAMAZAKI, Y.: Above-Surface Potential Sputtering of Protons by Highly Charged Ions. In: *Physical Review A* 54 (1996), S. 4140–4144
- [97] HAYDERER, G. ; CERNUSCA, S. ; SCHMID, M. ; VARGA, P. ; WINTER, H. P. ; AUMAYR, F. ; NIEMANN, D. ; HOFFMANN, V. ; STOLTERFOHT, N. ; LEMELL, C. ; WIRTZ, L. ; BURGDÖRFER, J.: Kinetically Assisted Potential Sputtering of Insulators by Highly Charged Ions. In: *Physical Review Letters* 86 (2001), S. 3530–3533
- [98] AUMAYR, F. ; VARGA, P. ; WINTER, H. P.: Potential Sputtering: Desorption from Insulator Surfaces by Impact of Slow Multicharged Ions. In: *International Journal of Mass Spectrometry* 192 (1999), S. 415–424
- [99] AUMAYR, F. ; WINTER, H. P.: Potential Sputtering. In: *Philosophical Transactions of the Royal Society of London* 362 (2004), S. 77–102

- [100] NEIDHART, T. ; PICHLER, F. ; AUMAYR, F. ; WINTER, H. P. ; SCHMID, M. ; VARGA, P.: Secondary-Ion Emission from Lithium-Fluoride under Impact of Slow Multicharged Ions. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 98 (1995), S. 465–468
- [101] KUBO, T. ; OKANO, A. ; KANASAKI, J. ; ISHIKAWA, K. ; NAKAI, Y. ; ITOH, N.: Emission of Na Atoms from Undamaged and Slightly Damaged NaCl (100) Surfaces by Electronic Excitation. In: *Physical Review B* 49 (1994), S. 4931–4937
- [102] GEBESHUBER, I. C. ; CERNUSCA, S. ; AUMAYR, F. ; WINTER, H. P.: AFM Search for Slow MCI-produced Nanodefects on Atomically Clean Monocrystalline Insulator Surfaces. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 205 (2003), S. 751–757
- [103] RUEHLICKE, C. ; BRIERE, M. A. ; SCHNEIDER, D.: AFM Studies of a New-Type of Radiation Defect on Mica Surfaces Caused by Highly-Charged Ion Impact. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 99 (1995), S. 528–531
- [104] MOCHIIJI, K. ; YAMAMOTO, S. ; SHIMIZU, H. ; OHTANI, S. ; SEGUCHI, T. ; KOBAYASHI, N.: Scanning Tunneling Microscopy and Atomic Force Microscopy Study of Graphite Defects Produced by Bombarding with Highly Charged Ions. In: *Journal of Applied Physics* 82 (1997), S. 6037–6040
- [105] NAKAMURA, N. ; TERADA, M. ; NAKAI, Y. ; KANAI, Y. ; OHTANI, S. ; KOMAKI, K. ; YAMAZAKI, Y.: SPM Observation of Nano-dots Induced by Slow Highly Charged Ions. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 232 (2005), S. 261–265
- [106] TONA, M. ; WATANABE, H. ; TAKAHASHI, S. ; FUJITA, Y. ; ABE, T. ; JIAN, S. ; NAKAMURA, N. ; YOSHIYASU, N. ; YAMADA, C. ; SAKURAI, S. M. and O. M. and Ohtani: Observation of HCl-induced Nanostructures with a Scanning Probe Microscope. In: *Journal of Physics* 58 (2007), S. 331–334
- [107] TONA, M. ; WATANABE, H. ; TAKAHASHI, S. ; NAKAMURA, N. ; YOSHIYASU, N. ; SAKURAI, M. ; TERUI, T. ; MASHIKO, S. ; YAMADA, C. ; OHTANI, S.: Nano-Crater Formation on a Si(111)-(7 x 7) Surface by Slow Highly Charged Ion-Impact. In: *Surface Science* 601 (2007), S. 723–727
- [108] EL-SAID, A. S. ; MEISSL, W. ; SIMON, M. C. ; LOPEZ-URRUTIA, J. R. C. ; GEBESHUBER, I. C. ; LAIMER, J. ; WINTER, H. P. ; ULLRICH, J. ; AUMAYR, F.: Creation of Surface Nanostructures by Irradiation with Slow, Highly Charged Ions. In: *Radiation Effects and Defects in Solids* 162 (2007), S. 467–472
- [109] CHADDERTON, L. T.: Nuclear Tracks in Solids: Registration Physics and the Compound Spike. In: *Radiation Measurements* 36 (2003), S. 13–34

- [110] FLEISCHER, R. L. ; PRICE, P. B. ; WALKER, R. M.: Ion Explosion Spike Mechanism for Formation of Charged-Particle Tracks in Solids. In: *Journal of Applied Physics* 36 (1965), S. 3645
- [111] SCHIWIETZ, G. ; LUDERER, E. ; XIAO, G. ; GRANDE, P. L.: Energy Dissipation of Fast Heavy Ions in Matter. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 175 (2001), S. 1–11
- [112] MÜLLER, C. ; CRANNEY, M. ; EL-SAID, A. S. ; ISHIKAWA, N. ; IWASE, A. ; LANG, M. ; NEUMANN, R.: Ion Tracks on LiF and CaF₂ Single Crystals Characterized by Scanning Force Microscopy. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 191 (2002), S. 246–250
- [113] EL-SAID, A. S. ; CRANNEY, M. ; ISHIKAWA, N. ; IWASE, A. ; NEUMANN, R. ; SCHWARTZ, K. ; TOULEMONDE, M. ; TRAUTMANN, C.: Study of Heavy-Ion Induced Modifications in BaF₂ and LaF₃ Single Crystals. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 218 (2004), S. 492–497
- [114] KHALFAOUI, N. ; ROTARU, C. C. ; BOUFFARD, S. ; TOULEMOND, M. ; STOQUERT, J. P. ; HAAS, F. ; TRAUTMANN, C. ; JENSEN, J. ; DUNLOP, A.: Characterization of Swift Heavy Ion Tracks in CaF₂ by Scanning Force and Transmission Electron Microscopy. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 240 (2005), S. 819–828
- [115] EL-SAID, A. S. ; MEISSL, W. ; SIMON, M. C. ; LOPEZ-URRUTIA, J. R. C. ; GEBESHUBER, I. C. ; LANG, M. ; WINTER, H. P. ; ULLRICH, J. ; AUMAYR, F.: Surface Nanostructures Induced by Slow Highly Charged Ions on CaF₂ Single Crystals. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 256 (2007), S. 346–349
- [116] EL-SAID, A. S. ; MEISSL, W. ; SIMON, M. C. ; LOPEZ-URRUTIA, J. R. C. ; LEMELL, C. ; BURGDÖRFER, J. ; GEBESHUBER, I. C. ; WINTER, H. P. ; ULLRICH, J. ; TRAUTMANN, C. ; TOULEMONDE, M. ; AUMAYR, F.: Potential Energy Threshold for Nano-Hillock Formation by Impact of Slow Highly Charged Ions on a CaF₂(111) Surface. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 258 (2007), S. 167–171
- [117] EL-SAID, A. S. ; HELLER, R. ; MEISSL, W. ; RITTER, R. ; FACSKO, S. ; LEMELL, C. ; SOLLEDER, B. ; GEBESHUBER, G. I. C. B. I. C. Betz ; TOULEMONDE, M. ; MÖLLER, W. ; BURGDÖRFER, J. ; AUMAYR, F.: Creation of Nanohillocks on CaF₂ Surfaces by Single Slow Highly Charged Ions. In: *Physical Review Letters* 100 (2008), S. 237601
- [118] HELLER, R. ; FACSKO, S. ; WILHELM, R. A. ; MÖLLER, W.: Defect Mediated Desorption of the KBr(001) Surface Induced by Single Highly Charged Ion Impact. In: *Physical Review Letters* 101 (2008), S. 096102

- [119] HELLER, R.: *Optimierung der Ionenextraktion aus der EBIT der Rossendorfer Zwei-quellenionenstrahlanlage*, Technische Universität, Fakultät Mathematik und Naturwissenschaften, Diplomarbeit, 2005
- [120] ZSCHORNACK, G. ; LANDGRAF, S. ; FACSKO, S. ; KOST, D. ; MÖLLER, W. ; TYRROFF, H. ; GROSSMANN, F. ; KENTSCH, U. ; OVSYANNIKOV, V. P. ; SCHMIDT, M. ; ULLMANN, F.: A New Ion Beam Facility for Slow Highly Charged Ions. In: *in Proceedings of EPAC 2004, Lucerne, Switzerland* ISBN: 92-9083-232-0 (2004), S. 1189–1191
- [121] GELLER, G.: *Electron Cyclotron Resonance Ion Sources and ECR Plasmas*. Bristol : Institute of Physics Publishing, 1996
- [122] BROWN, I. G.: *The Physics and Technology of Ion Sources*. Bristol : John Wiley and Sons Inc, 1998
- [123] SHIRKOV, G. D. ; ZSCHORNACK, G.: *Electron Impact Ion Sources for Charged Heavy Ions*. Wiesbaden : Vieweg, 1996
- [124] MARRS, R. E. ; BEIERSDORFER, P. ; SCHNEIDER, D.: The Electron-Beam Ion-Trap. In: *Physics Today* 47 (1994), S. 27–34
- [125] SCHENKEL, T. ; PERSAUD, A. ; KRAEMER, A. ; MCDONALD, J. W. ; HOLDER, J. P. ; HAMZA, A. V. ; SCHNEIDER, D. H.: Extraction of Highly Charged Ions from the Electron Beam Ion Trap at LBNL for Applications in Surface Analysis and Materials Science. In: *Review of Scientific Instruments* 73 (2002), S. 663–666
- [126] BIEDERMANN, C. ; FÖRSTER, A. ; FUSSMANN, G. ; RADTKE, R.: First Results from the Berlin EBIT. In: *Physica Scripta* T73 (1997), S. 360–361
- [127] OVSYANNIKOV, V. P. ; ZSCHORNACK, G.: First Investigations of a Warm Electron Beam Ion Trap for the Production of Highly Charged Ions. In: *Review of Scientific Instruments* 70 (1999), S. 2646–2651
- [128] GOBIN, R. ; DELFERRIERE, O. ; GROS, P. ; LEAUX, P. ; VISENTIN, B. ; CONGRETTEL, G. ; FAURE, J. ; HARRAULT, F. ; LEROY, P. A. ; COURTOIS, A. ; THURIEZ, S. ; GIARDINO, G. ; BRIAND, J. P.: First Results on the Warm EBIS Source at Saclay. In: *Review of Scientific Instruments* 67 (1996), S. 1168–1170
- [129] KLEINOD, M. ; BECKER, R. ; BONGERS, H. ; WEIDENMÜLLER, M. ; ZIPFEL, B. ; DONETS, E. D.: A Generation of Unconventional Electron Beam Ion Sources. In: *Review of Scientific Instruments* 67 (1996), S. 986–988

- [130] ZSCHORNACK, G. ; HELLER, R. ; KRELLER, M. ; LANDGRAF, S. ; GROSSMANN, F. ; KENTSCH, U. ; OVSYANNIKOV, V. P. ; SCHMIDT, M. ; ULLMANN, F.: Time Resolved Investigation of Ionization Processes in the Dresden Electron Beam Ion Source. In: *Review of Scientific Instruments* 77 (2006), S. 03A902
- [131] ZSCHORNACK, G. ; KRELLER, M. ; OVSYANNIKOV, V. P. ; GROSSMAN, F. ; KENTSCH, U. ; SCHMIDT, M. ; ULLMANN, F. ; HELLER, R.: Compact Electron Beam Ion Sources/Traps: Review and Prospects. In: *Review of Scientific Instruments* 79 (2008), S. 02A703
- [132] SCHMIDT, M. ; ZSCHORNACK, G. ; HELLER, R. ; KENTSCH, U. ; KRELLER, M. ; LANDGRAF, S. ; GROSSMANN, F. ; OVSYANNIKOV, V. P. ; ULLMANN, F.: Report on the current Developments and Experiments of the Dresden EBIT System. In: *Journal of Physics: Conference Series* 72 (2007), S. 012020
- [133] ZSCHORNACK, G. ; HELLER, R. ; KRELLER, M. ; LANDGRAF, S. ; GROSSMANN, F. ; KENTSCH, U. ; OVSYANNIKOV, V. P. ; SCHMIDT, M. ; ULLMANN, F.: Dresden EBIT: Status Report and Next Developments. In: *Review of Scientific Instruments* 77 (2006), S. 03A904
- [134] LEMELL, C. ; STÖCKL, J. ; WINTER, H. P. ; AUMAYR, F.: A Versatile Electron Detector for Studies on Ion-Surface Scattering. In: *Review of Scientific Instruments* 70 (1999), S. 1653–1657
- [135] MEISSL, W. ; SIMON, M. C. ; LOPEZ-URRUTIA, J. R. C. ; TAWARA, H. ; ULLRICH, J. ; WINTER, H. P. ; AUMAYR, F.: Highly Charged Ion-Induced Potential Electron Emission from Clean Au(111): Dependence on the Projectile Angle of Incidence. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 256 (2007), S. 520–523
- [136] BINNIG, G. ; QUATE, C. F. ; GERBER, C.: Atomic Force Microscope. In: *Physical Review Letters* 56 (1986), S. 930–933
- [137] BINNIG, G. ; GERBER, C. ; STOLL, E. ; ALBRECHT, T. R. ; QUATE, C. F.: Atomic Resolution with Atomic Force Microscope. In: *Surface Science* 189 (1987), S. 1–6
- [138] BINNIG, G. ; GERBER, C. ; STOLL, E. ; ALBRECHT, T. R. ; QUATE, C. F.: Atomic Resolution with Atomic Force Microscope. In: *Europhysics Letters* 3 (1987), S. 1281–1286
- [139] GIESSIBL, F. J.: Advances in Atomic Force Microscopy. In: *Reviews of Modern Physics* 75 (2003), S. 949–983
- [140] MORITA, S.: *Roadmap of Scanning Probe Microscopy*. Berlin : Springer, 2007

- [141] LEMELL, C. ; EL-SAID, A. S. ; MEISSL, W. ; GEBESHUBER, I. C. ; TRAUTMANN, C. ; TOULEMONDE, M. ; BURGDÖRFER, J. ; AUMAYR, F.: On the Nano-Hillock Formation Induced by Slow Highly Charged Ions on Insulator Surfaces. In: *Solid-State Electronics* 51 (2007), S. 1398–1404
- [142] POHL, R.W.: Über die Farbzentren der Alkalihalogenidkristalle. In: *Kolloid-Zeitschrift* 71 (1935), S. 257–261
- [143] GLASER, G.: Elektrische Beobachtungen bei der optischen Bildung und Rückbildung von Farbzentren in KBr- und KCl-Kristallen. In: *Annalen der Physik* 419 (1936), S. 217–232
- [144] SCOTT, A. B. ; BUPP, L. P.: The Equilibrium between F-Centers and Higher Aggregates in KCl. In: *Physical Review* 79 (1950), S. 341–346
- [145] MIESSNER, G.: Farbzentren in Alkalihalogenid-Mischkristallen. In: *Zeitschrift für Physik* 134 (1953), S. 576–581
- [146] SZYMONSKI, M. ; KOLODZIEJ, J. ; CZUBA, P. ; PIATKOWSKI, P. ; PORADZISZ, A. ; TOLK, N. H. ; FINE, J.: New Mechanism for Electron-Stimulated Desorption of Non-thermal Halogen Atoms from Alkali-Halide Surfaces. In: *Physical Review Letters* 67 (1991), S. 1906–1909
- [147] SZYMONSKI, M. ; PORADZISZ, A. ; CZUBA, P. ; KOLODZIEJ, J. ; PIATKOWSKI, P. ; FINE, J. ; TANOVIC, L. ; TANOVIC, N.: Electron-Stimulated Desorption of Neutral Species from (100) KCl Surfaces. In: *Surface Science* 260 (1992), S. 295–303
- [148] BIERSACK, J. P.: Sputtering of Potassium Chloride by H, He, and Ar Ions. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 132 (1976), S. 229–235
- [149] POSTAWA, Z. ; MABOUDIAN, R. ; ELMAAZAWI, M. ; ERVIN, M. H. ; WOOD, M. C. ; WINOGRAD, N.: Electronic and Nuclear Effects in Ion-Induced Desorption from NaCl(100). In: *Journal of Chemical Physics* 96 (1992), S. 3298–3305
- [150] KANZAKI, H. ; MORI, T.: Photon-Stimulated Desorption of Neutrals from Silver and Alkali-Halides. In: *Physical Review B* 29 (1984), S. 3573–3585
- [151] HÖCHE, H. ; TOENNIES, J. P. ; VOLLMER, R.: Photon-Stimulated Layer-by-Layer Desorption from NaCl(001) Surfaces Monitored by Helium-Atom Scattering. In: *Physical Review Letters* 71 (1993), S. 1208–1211
- [152] NEIDHART, T. ; TOTH, Z. ; HOCHHOLD, M. ; SCHMID, M. ; VARGA, P.: Total Sputter Yield of LiF Induced by Hyperthermal Ions Measured by a Quartz Microbalance. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 90 (1994), S. 496–500

- [153] <http://www.korth.de>.
- [154] ZIEGLER, J. F.: <http://www.srim.org/>.
- [155] SZYMONSKI, M. ; KOLODZIEJ, J. ; POSTAWA, Z. ; CZUBA, P. ; PIATKOWSKI, P.: Electron-Stimulated Desorption from Ionic-Crystal Surfaces. In: *Progress in Surface Science* 48 (1995), S. 83–96
- [156] SZYMONSKI, M. ; STRUSKI, P. ; SIEGEL, A. ; KOLODZIEJ, J. J. ; SUCH, B. ; PIATKOWSKI, P. ; CZUBA, P. ; KROK, F.: Ionic Crystal Decomposition with Light. In: *Acta Physica Polonica B* 33 (2002), S. 2237–2242
- [157] SEIFERT, N. ; LIU, D. ; BARNES, A. ; ALBRIDGE, R. ; YAN, Q. ; TOLK, N. ; HUSINSKY, W. ; BETZ, G.: Simultaneous Laser-Induced Fluorescence and Quadrupole-Mass-Spectroscopy Studies of Electron-Stimulated Desorption of Ground-State Lithium Atoms from Lithium-Fluoride Crystals. In: *Physical Review B* 47 (1993), S. 7653–7658
- [158] WALKUP, R. E. ; AVOURIS, P. ; GHOSH, A. P.: Positive-Ion Production by Electron-Bombardment of Alkali-Halides. In: *Physical Review B* 36 (1987), S. 4577–4580
- [159] WILLIAMS, R. T. ; SONG, K. S. ; FAUST, W. L. ; LEUNG, C. H.: Off-Center Self-Trapped Excitons and Creation of Lattice-Defects in Alkali-Halide Crystals. In: *Physical Review B* 33 (1986), S. 7232–7240
- [160] WILLIAMS, R. T.: Creation of Lattice-Defects in the Bulk and at the Surface of Alkali-Halide Crystals. In: *Radiation Effects and Defects in Solids* 109 (1989), S. 175–187
- [161] WILLIAMS, R. T. ; SONG, K. S.: The Self-Trapped Exciton. In: *Journal of Physics and Chemistry of Solids* 51 (1990), S. 679–716
- [162] ITOH, N. ; TANIMURA, K.: Formation of Interstitial-Vacancy Pairs by Electronic Excitation in Pure Ionic-Crystals. In: *Journal of Physics and Chemistry of Solids* 51 (1990), S. 717–735
- [163] PUCHIN, V. E. ; SHLUGER, A. L. ; ITOH, N.: Theoretical-Studies of Atomic Emission and Defect Formation by Electronic Excitation at the (100) Surface of NaCl. In: *Physical Review B* 47 (1993), S. 10760–10768
- [164] ELLIOTT, D. J. ; TOWNSEND, P. D.: Defect Formation and Sputtering of Alkali Halides with Low Energy Irradiation. In: *Philosophical Magazine* 23 (1971), S. 249
- [165] ALJAMMAL, Y. ; TOWNSEND, P. D.: Possible Structures for Alkali Ions on Surface of Alkali-Halides. In: *Journal of Physics C - Solid State Physics* 6 (1973), S. 955–960

- [166] TADAMI, Y. ; SAIKI, K. ; KOMA, A.: Real-Time Observation of the Surface Alteration in LiF during Electron-Irradiation. In: *Solid State Communications* 70 (1989), S. 261–264
- [167] WURZ, P. ; BECKER, C. H.: Surface Enrichment of Li on LiF Single-Crystal after Cleaning or under Electron-Bombardment. In: *Surface Science* 224 (1989), S. 559–569
- [168] SUCH, B. ; CZUBA, P. ; PIATKOWSKI, P. ; SZYMONSKI, M.: AFM Studies of Electron-Stimulated Desorption Process of KBr(001) Surface. In: *Surface Science* 451 (2000), S. 203–207
- [169] SUCH, B. ; KOLODZIEJ, J. ; CZUBA, P. ; PIATKOWSKI, P. ; STRUSKI, P. ; KROK, F. ; SZYMONSKI, M.: Surface Topography Dependent Desorption of Alkali Halides. In: *Physical Review Letters* 85 (2000), S. 2621–2624
- [170] KOLODZIEJ, J. J. ; SUCH, B. ; CZUBA, P. ; KROK, F. ; PIATKOWSKI, P. ; STRUSKI, P. ; SZYMONSKI, M. ; BENNEWITZ, R. ; SCHAR, S.: Frenkel Defect Interactions at Surfaces of Irradiated Alkali Halides Studied by Non-Contact Atomic-Force Microscopy. In: *Surface Science* 482 (2001), S. 903–909
- [171] KROK, F. ; KOLODZIEJ, J.J. ; SUCH, B. ; CZUBA, P. ; PIATKOWSKI, P. ; STRUSKI, P. ; SZYMONSKI, M.: Desorption and Surface Topography Changes Induced by He⁺ Ion Bombardment of Alkali Halides. In: *Nucl. Instr. Meth. B* 226 (2004), S. 601–608
- [172] GROCHTMANN, G. ; MEYER, R. J. ; PETERS, F. ; GMELIN, L.: *Gmelins Handbuch der anorganischen Chemie*. Berlin : Verlag Chemie, 1970
- [173] TOULEMONDE, M. ; PAUMIER, E. ; DUFOUR, C.: Thermal Spike Model in the Electronic Stopping Power Regime. In: *Radiation Effects and Defects in Solids* 126 (1993), S. 201–206
- [174] D., Palik E.: *Handbook of Optical Constants of Solids II*. Boston : Academic Press Inc., 1991
- [175] REINHOLD, C. O. ; BURGDÖRFER, J.: Theoretical Description of Fast Kinetic Electron Emission in Ion-Surface Collisions. In: *Physical Review A* 55 (1997), S. 450–465
- [176] HAYES, W. ; LAMBOURN, R. F. ; STOTT, J. P.: H Centers in Alkaline-Earth Fluorides. In: *Journal of Physics C* 7 (1974), S. 2429–2433
- [177] HAYES, W. ; STONEHAM, A. M.: *Crystals with Fluorite Structures*. Oxford : Clarendon Press, 1974

- [178] WILLIAMS, R. T. ; MARQUARDT, C. L. ; WILLIAMS, J. W. ; KABLER, M. N.: Transient Absorption and Luminescence in MgF₂ Following Electron Pulse Excitation. In: *Physical Review B* 15 (1977), S. 5003–5011
- [179] TANIMURA, K. ; KATOH, T. ; ITOH, N.: Lattice-Relaxation of Highly Excited Self-Trapped Excitons in CaF₂. In: *Physical Review B* 40 (1989), S. 1282–1287
- [180] MEISSL, W. ; WINKLEHNER, D. ; AUMAYR, F. ; SIMON, M. C. ; GINZEL, R. ; CRESPO LOPEZ-URRUTIA, J. R. ; ULLRICH, J. ; SOLLEDER, B. ; LEMELL, C. ; BURGDÖRFER, J.: Electron Emission from Insulators Irradiated by Slow Highly Charged Ions. In: *e-J. Surf. Sci. Nanotech.* 6 (2008), S. 54–59
- [181] TOKESI, K. ; VARGA, D. ; KOVER, L. ; MUKOYAMA, T.: Monte Carlo Modelling of the Backscattered Electron Spectra of Silver at the 200 eV and 2 keV Primary Electron Energies. In: *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena* 76 (1995), S. 427–432
- [182] DIETZ, L. A. ; SHEFFIELD, J. C.: Spectrometer for Measuring Secondary-Electron Yields Induced by Ion Impacts on Thin-Film Oxide Surfaces. In: *Review of Scientific Instruments* 44 (1973), S. 183–191
- [183] KUHLENKAMPFF, H. ; SPYRA, W.: Energieverteilung rückdiffundierter Elektronen. In: *Zeitschrift für Physik* 137 (1954), S. 416–425
- [184] DRESCHER, H. ; REIMER, R. ; SEIDEL, H.: Rückstreuoeffizient und Sekundreelektronen-Ausbeute von 10-100 keV-Elektronen und Beziehungen zur Raster-Elektronen-Mikroskopie. In: *Zeitschrift für Angewandte Physik* 29 (1970), S. 331
- [185] AUMAYR, F. ; LAKITS, G. ; WINTER, H. P.: On the Measurement of Statistics for Particle-Induced Electron-Emission from a Clean Metal-Surface. In: *Applied Surface Science* 47 (1991), S. 139–147
- [186] BRIAND, J. P. ; THURIEZ, S. ; GIARDINO, G. ; BORSONI, G. ; FROMENT, M. ; EDDRIEF, M. ; SEBENNE, C.: Observation of Hollow Atoms or Ions above Insulator and Metal Surfaces. In: *Physical Review Letters* 77 (1996), S. 1452–1455
- [187] MEYER, F. W. ; MOROZOV, V. A. ; MROGENDA, J. ; VANE, C. R. ; DATZ, S.: Large-angle Back-scattering of Ar^{q+} (q=1-13) during Quasi-binary Collisions with CsI(100) in the Energy Range 10 eV/q-2.8 keV/q: Energy Loss Analysis and Scattered Charge State Distributions. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 193 (2002), S. 508–515

Publikationsliste

HELLER, R. ; FACSKO, S. ; WILHELM, R. A. ; MÖLLER, W. : Defect Mediated Desorption of the KBr(001) Surface Induced by Single Highly Charged Ion Impact. In: *Physical Review Letters* 101 (2008), S. 096102

EL-SAID, A. S. ; **HELLER, R.** ; MEISSL, W. ; RITTER, R. ; FACSKO, S. ; LEMELL, C. ; SOLLEDER, B. ; GEBESHUBER, I. C. ; BETZ, G. ; TOULEMONDE, M. ; MÖLLER, W. ; BURGDÖRFER, J. ; AUMAYR, F. : Creation of Nanohillocks on CaF₂ Surfaces by Single Slow Highly Charged Ions. In: *Physical Review Letters* 100 (2008), S. 237601

FACSKO, S. ; **HELLER, R.** ; EL-SAID, A. S. ; MEISSL, W. ; AUMAYR, F. : Surface Nanostructures by Single Highly Charged Ions. In Druck bei: *Journal of Physics: Condensed Matter*

ZSCHORNACK, G. ; **HELLER, R.** ; KRELLER, M. ; LANDGRAF, S. ; GROSSMANN, F. ; KENTSCH, U. ; OVSYANNIKOV, V. P. ; SCHMIDT, M. ; ULLMANN, F. : Dresden EBIT: Status Report and Next Developments. In: *Review of Scientific Instruments* 77 (2006), S. 03A904

OVSYANNIKOV, V. P. ; ZSCHORNACK, G. ; GROSSMANN, F. ; **HELLER, R.** ; KENTSCH, U. ; KRELLER, M. ; LANDGRAF, S. ; SCHMIDT, M. ; ULLMANN, F. : First Investigations on the Dresden EBIS-A. In: *Journal of Physics: Conference Series* 58 (2007), S. 399-402

GROSSMANN, F. ; **HELLER, R.** ; KRELLER, M. ; KENTSCH, U. ; LANDGRAF, S. ; OVSYANNIKOV, V. P. ; SCHMIDT, M. ; ULLMANN, F. ; ZSCHORNACK, G. : Production of Highly Charged Ions in the Range of Energy of 10Vxq up to MeV. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 256 (2007), S. 565-570

ZSCHORNACK, G. ; GROSSMANN, F. ; **HELLER, R.** ; KENTSCH, U. ; KRELLER, M. ; LANDGRAF, S. ; OVSYANNIKOV, V. P. ; SCHMIDT, M. ; ULLMANN, F. : Production of Highly Charged Ions for Ion-Surface Interaction Studies. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 258 (2007), S. 205-208

SCHMIDT, M. ; ZSCHORNACK, G. ; GROSSMANN, F. ; **HELLER, R.** ; KENTSCH, U. ; KRELLER, M. ; LANDGRAF, S. ; OVSYANNIKOV, V. P. ; ULLMANN, F. : Report on the Current Development and Experiments of the Dresden EBIT System. In: *Journal of Physics: Conference Series* 72 (2007), S. 012020

KRELLER, M. ; ZSCHORNACK, G. ; KENTSCH, U. ; **HELLER, R.** : Molecule Fragmentation at the Dresden EBIS-A. In: *Review of Scientific Instruments* 79 (2008), S. 02A702

ZSCHORNACK, G. ; KRELLER, M. ; OVSYANNIKOV, V. P. ; GROSSMANN, F. ; KENTSCH, U. ; SCHMIDT, M. ; ULLMANN, F. ; **HELLER, R.** : Compact Electron Beam Ion Sources/Traps: Review and Prospects. In: *Review of Scientific Instruments* 79 (2008), S. 02A703

Danksagung

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

Ein besonderer Dank gilt Herrn Prof. Möller und Herrn Dr. Zschornack für die Übertragung dieses interessanten Promotionsthemas, für die übernommene Betreuung der Promotion und die oft kurzfristigen Termine zur Besprechung und Diskussion von Ergebnissen.

Für die hervorragende Betreuung der Promotion, die zahlreichen fruchtbringenden Diskussionen sowie den stets großzügig bemessenen Freiraum bei der Bearbeitung des Themas möchte ich meinem Betreuer Herrn Dr. Stefan Facsko danken.

Bei der gesamten Arbeitsgruppe „Atom- und Plasmaphysik“ der Technischen Universität Wien möchte ich mich für die äußerst erfolgreiche wissenschaftliche Kooperation sowie die zahlreichen, anregenden, auch über den Rahmen der Kooperation hinaus gehenden Diskussionen bedanken. Für die Begutachtung der vorliegenden Arbeit und die Initiierung der Kooperation gilt mein besonderer Dank Herrn Prof. Dr. Friedrich Aumayr. Zudem bedanke ich mich bei Herrn Dr. Walter Meissl für den regen Erfahrungsaustausch während der zahlreichen Strahlzeitbesuche.

Herzlicher Dank gilt natürlich auch den Herren Dr. Falk Ullmann, Dipl.-Phys. Mike Schmidt, Frau Kristina Arndt sowie Herrn Dipl.-Phys. Martin Kreller aus der Arbeitsgruppe „Hochgeladene Ionen“, die mir oft halfen Probleme aus einem anderen Blickwinkel zu betrachten und die immer wieder gute Ideen und Vorschläge in meine Arbeit einbrachten.

Besonders bedanken möchte ich mich bei Herrn Dipl.-Phys. Ulrich Kentsch für die vielen anregenden Gespräche und die hilfreichen Korrekturvorschläge an dieser Arbeit.

Herrn Richard Wilhelm danke ich für die beständige Hilfe bei den täglich im Labor anfallenden Tätigkeiten, bei denen er mir stets, über die Grenzen seiner Tätigkeit als studentische Hilfskraft hinweg, zur Hilfe stand.

Bei der Abteilung FWIA möchte ich mich für das entgegengebrachte Interesse an meiner Arbeit und die Integration in die Abteilung bedanken. Besonders bei Herrn Dr. Rainer Grötzschel bedanke ich mich für seine verständnisvolle Art und seine stets schnellen und unkomplizierten Hilfestellungen.

Meiner Familie danke ich für die Unterstützung während meiner gesamten Promotion.

Für die entgegengebrachte Geduld und die beständige Unterstützung während der Promotion möchte ich meiner Freundin Anita recht herzlich danken.

Erklärung

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit zum Thema

Wechselwirkung langsamer hochgeladener Ionen mit der Oberfläche von Ionenkristallen

ohne unzulässige Hilfe Dritter und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel angefertigt habe. Die aus fremden Quellen direkt oder indirekt übernommenen Gedanken sind als solche kenntlich gemacht. Die Arbeit wurde bisher weder im Inland noch im Ausland in gleicher oder ähnlicher Form einer anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

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

Dresden, 12. Februar 2009

René Heller