

MAX-PLANCK-INSTITUT FÜR PLASMAPHYSIK
GARCHING BEI MÜNCHEN

Kurzfasz.

Untersuchungen zum Rauigkeitsübergang an der
Cu(115)-Oberfläche mittels Ionenstreuung

Investigations of the Roughening Transition
at the Cu(115) Surface using Ion Scattering

Anita Liegl

IPP 9/91

September 1992

*Die nachstehende Arbeit wurde im Rahmen des Vertrages zwischen dem
Max-Planck-Institut für Plasmaphysik und der Europäischen Atomgemeinschaft über die
Zusammenarbeit auf dem Gebiete der Plasmaphysik durchgeführt.*

September 1992

Kurzfassung

Der Rauigkeitsübergang der Cu(115)-Oberfläche wurde mittels niederenergetischer Ionenstreuung (ISS) untersucht. Der thermodynamische Effekt der Aufrauhung betrifft die kurzreichweitige atomare Ordnung, die mittels ISS hervorragend beobachtet werden kann.

Mit Hilfe des Abschattungseffektes der Oberflächenatome bei Ionenbeschuß (ICISS) und der Kanalisierung der einfallenden Ionen entlang dichtgepackter niedrigindizierter Reihen an der Oberfläche (Channeling), konnte eine kristallographische Beschreibung der Oberfläche erfolgen. Die Ergebnisse des Channeling-Experimentes sind stark von der Wahl der Detektionsenergie beeinflusst. Wird bei einer Energie, die einer Doppelstreuung der Ionen an der Oberfläche entspricht, detektiert, so sind die charakteristischen Strukturen in den Azimutverteilungen wesentlich deutlicher ausgeprägt.

Die unterschiedlichen Neutralisationsraten von Edelgas- (Ne^+) und Alkaliionen (Na^+) bedingen, daß unterschiedliche Informationstiefen erzielt werden. Bei der Streuung von Na^+ kann Information aus bis zu 5 Lagen Tiefe gewonnen werden, die Struktur der Spektren ist dabei nicht von Neutralisationseffekten überlagert. Vergleiche von experimentellen Daten (Na^+) mit 2-dimensionalen Simulationsrechnungen, die eine Verringerung des Abstandes der ersten Atomlage berücksichtigen, fordern nicht nur eine Lagenrelaxation, sondern eine zusätzliche laterale Verschiebung der Stufenkantenatome, um eine gute Übereinstimmung zu erlangen. Bei Sauerstoffadsorption aus dem Restgas bilden sich Cu-O-Cu-Ketten entlang der Stufenkanten aus.

Bereits bei Raumtemperatur sind an der Oberfläche Adatome nachweisbar. Bei Erhöhung der Proben temperatur zeigt sich in der Ionenstreuung ein reversibler kontinuierlicher Rauigkeitsübergang. Die charakteristische Temperatur der Aufrauhung wurde zu $390 \text{ K} \pm 15 \text{ K}$ bestimmt. Die Grundstruktur der Oberfläche bleibt bis zu der maximal untersuchten Temperatur von 800 K erhalten.

*Diese Arbeit ist identisch mit einer Dissertation gleichen Titels, die im September 1992 bei der Technischen Universität Wien eingereicht wurde.

September 1992

Abstract

The roughening transition of Cu(115) was investigated using low-energy ion scattering (LEIS). The thermodynamic effect of roughening concerns the atomic short range order, thus ISS is well suited for investigations.

Due to shadowing effects at the surface in ion backscattering (ICISS) and channeling of the incoming ions along low-indexed directions in forward scattering, a crystallographic description of the surface could be given. The structure of the azimuthal intensity distribution strongly depends on the detection energy. Using a detection energy which corresponds to double scattering of the ions at the surface, the typical structure of azimuthal spectra is most clearly visible.

The differences in the neutralization probabilities of rare gas ions (Ne^+) and alkali ions (Na^+) lead to different information depths. By Na^+ scattering one can get information from up to five layers, the structure of the spectra not being influenced by neutralization effects. Comparison of experimental data (Na^+) with 2-dimensional simulations including an inward relaxation of the first atomic layer requires additionally a lateral inward displacement of the step edge atoms in order to obtain agreement. Upon adsorption of oxygen from the residual gas, Cu-O-Cu-rows are formed along the step edges.

Already at room temperature adatoms could be detected at the surface. By increasing the sample temperature the surface shows a reversible continuous roughening transition. The characteristic transition temperature was found to be at $390 \text{ K} + 15 \text{ K}$. The fundamental crystallographic structure of the surface persists up to the highest investigated temperature of 800 K .

*This report is identical with a thesis under the same title which was submitted to the Technical University Vienna in September 1992.

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	1
2. Ionenstreupektroskopie	5
2.1. Grundprinzip der Ionenstreuung - Binäres Stoßmodell	8
2.2. Differentieller Streuquerschnitt und Wechselwirkungspotential	14
2.3. Neutralisation	17
2.4. Bestimmung der Oberflächenzusammensetzung - Quantitative Auswertung	21
2.5. Strukturbestimmung	22
2.5.1. Mehrfachstreuung	22
2.5.2. Oberflächen-Channeling	27
2.5.3. Abschattungseffekte - Der Schattenkegel (ICISS)	30
2.6. Einflüsse der thermischen Schwingungen der Oberflächenatome auf die Ionenstreuung	38
2.6.1. Einflüsse auf die Energie- und Massenauflösung	38
2.6.2. Einflüsse auf die Mehrfachstreuung	39
2.6.3. Einflüsse auf das Oberflächen-Channeling	40
2.6.4. Einflüsse auf den Abschattungseffekt	41
2.7. Zerstäubung	44
2.8. Simulation der Experimente	49
2.8.1. 3 - dimensionale Simulation	49
2.8.2. 2 - dimensionale Simulation	50
3. Rauigkeitsübergänge	53
3.1. Modelle	56
3.2. Rauigkeitsparameter	60
4. Experiment	63
4.1. Stand des Experimentes und Erneuerungen	63
4.2. Die Apparatur	63
4.3. Die Spektroskopie - Einheit	66
4.4. Positionierung der einzelnen Komponenten	70

4.5. Die Probe	71
4.6. Probenpräparation im UHV	74
4.7. LEED-Aufnahmen - Eine erste Strukturinformation	75
5. Experimentelle Ergebnisse	77
5.1. Probenpräparation	78
5.2. Strukturbestimmung bei Raumtemperatur	85
5.2.1. Mehrfachstreuung	85
5.2.2. Channeling	96
5.2.3. ICISS - Spektren	103
5.3. Punktdefekte und Ausheilverhalten	113
5.4. Strukturbestimmung bei höheren Temperaturen	119
5.4.1. Gleichgewichtszustand	121
5.4.2. Rauigkeitsübergang	124
6. Diskussion - Vergleich der Ergebnisse mit der Literatur	129
7. Zusammenfassung	139
8. Literaturverzeichnis	143

Meinen Eltern und Großeltern

Alle Wissenschaft fängt mit dem Erstaunen an.

Plato

1. Einleitung

Das sehr stark zunehmende Interesse an der Physik und Chemie von Festkörperoberflächen wurde durch neue Technologien wie Mikroelektronik und Katalyse, neue Beschichtungsverfahren usw. ausgelöst. Die Eigenschaften vieler Produkte, z.B. die von optischen und magnetischen Speichermedien, hängen stark von der Beschaffenheit der Oberfläche ab. Ein Zweig der Physik, die Oberflächenphysik, beschäftigt sich mit Systemen reduzierter Dimensionalität. Sie setzt sich mit den Unterschieden in den physikalischen Eigenschaften der Oberfläche und des Volumens von Festkörpern auseinander. Zur Diskussion stehen Fragen zur Zusammensetzung und atomaren Struktur der Oberfläche, zu elektronischen und magnetischen Eigenschaften und vieles mehr, Fragen, die auf mikroskopischer Basis geklärt werden müssen.

Je nach gewünschter Information stehen zahlreiche mehr oder weniger oberflächenspezifische Spektroskopien zur Verfügung. Wird die atomare Ordnungszahl indirekt mit Augerelektronen- und Röntgenphotoelektronenspektroskopie bestimmt, so werden zerstäubte oder desorbierte Teilchen mit Sekundärionenmassenspektroskopie und Thermodesorptionsspektroskopie, und mit Photoelektronenspektroskopie und Inverser-Photoelektronenspektroskopie die elektronischen Eigenschaften analysiert. Die Oberflächenstruktur wird mit Röntgenbeugung, Beugung von Elektronen und Atomstreuung untersucht, neue Möglichkeiten bietet das Rastertunnelmikroskop. Viele dieser Methoden sind heute bereits kommerziell im Einsatz.

Die Streuung niederenergetischer Ionen (ISS, LEIS) verbindet viele Anforderungen der modereren Oberflächenphysik. ISS ermöglicht sowohl eine direkte Analyse der Zusammensetzung der Oberfläche als auch eine massenspezifische Strukturbestimmung. Besonders auf die Möglichkeit der Wahl der Informationstiefe ist hinzuweisen. Je nachdem ob Edelgas- oder Alkaliionen als Projektil gewählt werden, liegt die Informationstiefe bei der absolut ersten Lage bzw. bei 3 bis 4 Lagen. Eine Variante der Ionenstreuung, ICISS, bietet die Möglichkeit der direkten Bestimmung von Atomabständen an der Oberfläche im Ortsraum.

Das Interesse der Oberflächenphysik geht in Richtung der Charakterisierung realer Flächen. Um realen Materialoberflächen nahezukommen, d.h. Oberflächen mit

meist unperfekten Strukturen, bietet sich die Untersuchung gestufter Oberflächen an. Gestufte Oberflächen sind Vizinalflächen, d.h. Flächen mit Terrassen parallel zu niedrigindizierten Ebenen, z.B. (001), und monoatomaren (111)-Stufen. Die Stufen dieser (11 n)-Flächen stellen regelmäßige kontrollierte Defekte dar.

Gestufte Oberflächen sind prädestiniert zur phänomenologischen Erforschung realer Flächen und zum Studium thermodynamischer Prozesse wie Übergänge vom idealen Kristall über Aufrauungseffekte zum Oberflächenschmelzen. Aufrauungseffekte sind durch das Entstehen von Adatomen und Fehlstellen an glatten Flächen bzw. durch das Auftreten von Kinks an den Stufenkanten von (11 n)-Flächen gekennzeichnet. Theoretische Berechnungen zeigen, daß die Aufrauung bei gestuften Oberflächen bei wesentlich tieferen Temperaturen erfolgt als bei glatten Oberflächen. Diese thermodynamischen Effekte sind von kurzreichweitiger Ordnung, so daß die Untersuchung der Aufrauung mit Ionenstreuung naheliegend ist und einen interessanten Beitrag liefern kann. Bis jetzt wurden strukturelle Phasenübergang nur mit langreichweitigen Methoden, wie LEED, Helium-Atomstreuung und Röntgenbeugung untersucht, jedoch nicht mit einer absolut oberflächenspezifischen, massenauflösenden und im Ortsraum darstellenden, kurzreichweitigen Methode, wie es die Ionenstreuung darstellt.

Interessant sind derartige Systeme besonders wegen ihrer Zweidimensionalität, da verglichen mit dreidimensionalen Systemen, wegen der geringeren Zahl von Nachbarn, eine größere Mannigfaltigkeit der Phänomene zu erwarten ist. Gleichzeitig sind zweidimensionale Modelle zur theoretischen Beschreibung häufig einfacher lösbar.

Eine Motivation, zur Untersuchung von Rauigkeitsübergängen an gestuften Oberflächen, ist nicht zuletzt in der Materialwissenschaft zu suchen. So sind zahlreiche physikalische und chemische Reaktionen, wie zum Beispiel bei der heterogenen Katalyse, und das Wachstum dünner Schichten sensitiv auf die Struktur des Substrates. Durch die Anwesenheit von Stufen, Adatomen usw. werden diese Reaktionen wesentlich beeinflusst.

So berichten *Fu et al.* (1992) von vergleichenden Untersuchungen der Reaktivität von Cu(113) und Cu(110) bezüglich der bei der Methanolsynthese entstehenden Gase CO, CO₂ und D₂ im UHV. Es ergeben sich gravierende Unterschiede. CO₂ und D₂ chemisorbieren an Cu(113) und an der sauerstoffmodifizierten Cu(113)-Oberfläche, nicht aber

an Cu(110) bzw. an O / Cu(110). Ebenso kann die Reaktion $\text{CO} + \text{O}_{\text{Oberfläche}} \rightleftharpoons \text{CO}_2$ sehr wohl an der Cu(113)-Fläche, nicht jedoch an Cu(110) beobachtet werden. Da viele dieser Prozesse temperaturgesteuert ablaufen, ist eine genaue Kenntnis der temperaturbedingten Änderungen der Substratstruktur notwendig.

Aus LEED-Untersuchungen weiß man, daß eine geordnete Struktur der Cu(115)-Fläche mit geraden Stufenkanten bei niedrigen Temperaturen präpariert werden kann. Analysen bei höheren Temperaturen ergaben einen Hinweis auf einen Rauigkeitsübergang, d.h. daß die Stufen bei höheren Temperaturen (~380 K) ausfransen (mäandrieren, engl. meandering).

Ziel dieser Arbeit war es, die Struktur einer Cu(115)-Oberfläche als Prototyp für eine gestufte Oberfläche mit ISS zu untersuchen.

Die speziellen Anforderungen des Themas verlangen, die Fähigkeiten der Ionenstreuung im Bereich der Strukturbestimmung und im besonderen die Möglichkeit der Detektion von Adatomen, Punktdefekten usw. aufzuzeigen. Um eine unterschiedliche Informationstiefe zu erlangen, wurde sowohl Edelgas- (Ne^+) als auch Alkaliionenstreuung (Na^+) verwendet.

Nach der Literatur zu erwartende Relaxationen werden ebenso untersucht, wie die Temperaturabhängigkeit von Oberflächendefekten, die einen Hinweis auf die Aufrauhung der Oberfläche geben.

Den experimentellen Kapiteln sind eine Einführung in die Ionenstreuenspektroskopie, ein Kapitel zum Thema der Rauigkeitsübergänge und eine Beschreibung der verwendeten Apparatur vorangestellt. Im Kapitel "Diskussion" wird ein Vergleich der Resultate mit der Literatur hergestellt.

2. Ionenstreuospektroskopie

In den vergangenen Jahren wurden verschiedene Techniken zur Analyse von Festkörperoberflächen entwickelt. Eine der vielen Möglichkeiten ist der Beschuß der Oberfläche mit Ionen. Analysiert werden je nach Verfahren entweder die rückgestreuten Ionen (Ionenstreuospektroskopie - ISS), die bei der Streuung neutralisierten Primärteilchen (Time of Flight - TOF), ionisierte zerstäubte Probenpartikel (Sekundärionenmassenspektroskopie - SIMS) oder Neutralteilchen (Secondary Neutral Mass Spectroscopy - SNMS). Je nach Ionenmasse, Energie und Ionenstromdichte kann die Verwendung von Ionen als Sonde eine mehr oder weniger destruktive Methode sein (siehe Kap. "Zerstäubung"). Mit der Verwendung leichter Ionen (He^+ , ...) und niedriger Energien (200 eV bis einige wenige keV) findet man eine direkte Möglichkeit der Bestimmung der Oberflächenzusammensetzung. Die elastisch gestreuten Primärionen werden unter einem bestimmten Streuwinkel energieselektiv nachgewiesen. Aufgrund des Energieverlustes bei der Streuung kann auf die Masse des Streupartners rückgerechnet werden. Die Streuung niederenergetischer Ionen, die Ionenstreuospektroskopie (ISS) oder Low Energy Ion Spectroscopy (LEIS) ist eine der jüngsten oberflächenanalytischen Festkörperspektroskopien. Kommerzielle Geräte sind seit Mitte der 70er Jahre erhältlich.

Sir Ernest Rutherford beschrieb 1911 zum ersten Mal das Phänomen der an Oberflächen rückgestreuten Ionen. Bereits 1957 beobachtete *Brunnee* niederenergetische Ionenstreuung von Alkaliionen mit Energien von 400 eV bis 4 keV an Molybdän. Er fand, daß die meisten Ionen nach der Streuung eine Energie besitzen, die auf elastische Zweierstöße hinweist. Viele der gestreuten Ionen hatten eine niedrigere Energie, diese Tatsache wurde mit Mehrfachstreuung an verschiedenen Targetatomen erklärt.

Den starken Einfluß von Oberflächenverunreinigungen beschrieb *Panin* 1962 und zeigte, daß die Ion-Oberflächenatom-Wechselwirkung durch elastische Streuung an einem freien Atom erklärt werden kann. Eine gute Übereinstimmung von experimentellen Daten mit Berechnungen, bei denen ein abgeschirmtes Coulomb-Potential verwendet wurde, fanden *Mashkova* und *Molchanov* 1963 für die Streuung von Argonionen mit 30 keV an Kupfer. *Fluit* (1964) untersuchte ebenfalls die Energieverteilung der an Kupfer gestreuten Argonionen und fand wiederum das Maximum der Energieverteilung bei einem Wert entsprechend einem elastischen Zweierstoß.

Smith gelang es 1967 erstmals die Eignung der Ionenstreuung zur elementspezifischen und strukturellen Analyse von Oberflächen unter Beweis zu stellen. Erste reproduzierbare Experimente mit Helium-, Neon- und Argonionen mit Energien von 0.5 bis 3 keV, gestreut an polykristallinem Molybdän und Nickel, wurden durchgeführt. Seine Erklärung der Energieverteilung war, daß die Ion-Oberflächenatom-Streuung als einfacher Zweierstoß angesehen werden kann. Er fand Maxima in der Energieverteilung bei Energien, die einer Streuung der Ionen sowohl an Targetatomen, als auch an adsorbierten Teilchen entsprachen. Eine Bestimmung der Position von CO auf Nickel aus den relativen Intensitäten des Kohlenstoff- bzw. Sauerstoffpeaks wurde zum ersten Mal versucht. *Smith* wies auf die Notwendigkeit der Verwendung von Edelgasionen hin, da z.B. bei Verwendung von H, N, O,... breite kontinuierliche Spektren hervorgehoben werden, die keine Aussagen über die Oberflächenzusammensetzung oder die Struktur der Oberfläche zulassen.

In den letzten Jahren ging die Entwicklung der Ionenstreuenspektroskopie von der reinen Zusammensetzungsanalyse durch die Verwendung von Alkaliionenquellen und den Nachweis beim Stoß neutralisierter Primärionen (TOF), zur Strukturbestimmung von Oberflächen mit Hilfe der "Impact Collision Ion Scattering Spectroscopy", kurz ICISS. Die direkten "recoils" (zerstäubte Targetteilchen) wurden erstmals beobachtet und mit "Direct Recoil Spectroscopy" - DRS wurde eine sehr nützliche Methode zur Bestimmung leichter Adsorbateilchen gefunden.

Parallel zur niederenergetischen Ionenstreuung wird mit höheren Energien, bis zu einigen MeV, gearbeitet (Rutherford Backscattering - RBS), wobei die Eindringtiefe des Ionenstrahls wesentlich größer ist.

Bei nahezu allen Methoden besteht das Problem der Quantifizierung. Ist bei SIMS die Quantifizierung durch die Zerstäubungsausbeute und die Matrixabhängigkeit der Ionisationsquerschnitte bestimmt, so ist ISS durch das Problem der unbekanntenen Ionenüberlebenswahrscheinlichkeit, der fehlerbehafteten Streuwirkungsquerschnitte und die relativ schlechte Massenauflösung für $M_{Ion} \ll M_{Target}$ limitiert.

Die größten Vorteile der niederenergetischer ISS sind in den folgenden Punkten begründet:

(a) Die hohe Oberflächensensitivität ist einerseits bedingt durch die großen Streuwir-

kungsquerschnitte ($\sim 0.1 \text{ \AA}^2/\text{sr}$) niederenergetischer Ionen, die zu starken Abschwächungen des tiefereindringenden Ionenstrahls führen, und andererseits durch die große Neutralisationsrate für tiefer in die Oberfläche eindringende Ionen. Da nur geladene Teilchen analysiert werden, ergibt sich durch die Neutralisation eine starke Abschwächung des detektierten Signals. Beide Effekte reduzieren die Wahrscheinlichkeit, daß Ionen, gestreut am Targetinneren oder nach Mehrfachstößen, den Analysator erreichen. Bei der Verwendung von Edelgasionen mit einer Überlebenswahrscheinlichkeit von $< 10\%$ trägt nur die oberste Lage zum Signal bei, während Alkaliionen nur zu einem Prozentsatz von ungefähr 20% neutralisiert werden, sodaß auch Information aus der 2. bis 4., eventuell sogar aus tieferen Lagen erhalten werden kann.

- (b) Die Strukturinformation wird im Ortsraum gewonnen.
- (c) Die Massensensitivität erlaubt die Bestimmung der Oberflächenzusammensetzung, eine massenselektive Strukturbestimmung und ermöglicht eine Isotopentrennung.
- (d) Die Empfindlichkeit der Methode liegt bei 10^{-2} für leichte Elemente, für schwere Elemente beträgt sie 10^{-4} .
- (e) Bei der Verwendung von höheren Fluenzen ist Tiefenprofilierung möglich.
- (f) Das experimentelle Konzept ist einfach.

Eine ausführliche Zusammenfassung über ISS wird von *Taglauer und Heiland* (1976), bzw. von *Taglauer* (1991) gegeben.

In den nächsten Kapiteln werden die Grundprinzipien der niederenergetischen Ionenstreuung erläutert. In den Kapiteln zur Strukturbestimmung werden die speziell für die vorliegende Arbeit interessanten Varianten der Ionenstreuung beschrieben. Der Vollständigkeit wegen sind auch Themen wie die Neutralisation, die quantitative Auswertung und Zerstäubung angeführt, da gerade diese die besonderen Fähigkeiten der Ionenstreuung ausmachen. In der Einleitung wurde erwähnt, daß die Motivation in Verwendung von LEIS darin lag, eine absolut oberflächenspezifische (s. Kap. "Neutralisation"), massenauflösende (s. Kap. "Grundprinzipien ...", "Bestimmung der Oberflächenzusammensetzung") und im Ortsraum darstellende Methode (s. Kap. "Strukturbestimmung") zu nützen, die zudem nahezu zerstörungsfrei (s. Kap. "Zerstäubung") ist.

2.1. Grundprinzip der Ionenstreuung - Binäres Stoßmodell

Bei der Ionenstreuenspektroskopie werden die an einer Festkörperoberfläche rückgestreuten Ionen nach ihrer Energie- und Winkelverteilung analysiert. Ein kollimierter Strahl, meist einfach geladener, monoenergetischer Ionen bestimmter Masse und einer Energie im Bereich von 0.1 bis 5 keV, wird auf die zu untersuchende Oberfläche gerichtet (siehe Abbildung 1).

Die Ionen werden an den Atomen des Festkörpers reflektiert und geben einen Teil ihrer kinetischen Energie ab. Die Energieverteilung der rückgestreuten Ionen wird in Abhängigkeit vom Streuwinkel gemessen. Aus der energetischen Lage und der Intensität der Energiemaxima kann auf die chemische Oberflächenzusammensetzung der Probe geschlossen werden. Im Falle einkristalliner Proben kann, durch Abschattungseffekte (ICISS), Mehrfachstreuung ("Loops") oder Channeling-Effekte, Information über die Struktur der Oberfläche, wie z.B. die Gitterkonstante, über die Existenz von Defekten oder die Lage von Adsorbaten usw. gewonnen werden.

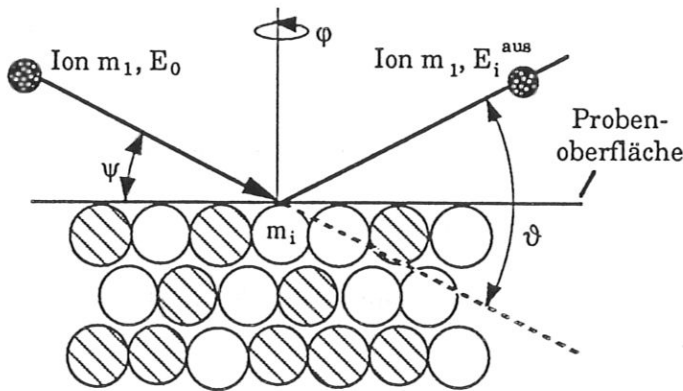


Abbildung 1: Definition der Streugeometrie.

Die beschriebene Vorstellung der elastischen Wechselwirkung von Ionen mit einzelnen Festkörperatomen bezeichnet man als binäres Stoßmodell. Dabei müssen jedoch im wesentlichen vier Annahmen getroffen werden:

- (a) thermische Schwingungen an der Oberfläche sind zu vernachlässigen
- (b) die Festkörperatome sind freie Atome
- (c) Vernachlässigung inelastischer Effekte
- (d) Vernachlässigung von Quanteneffekten

Die thermische Geschwindigkeit der Kupferatome bei Raumtemperatur beträgt etwa $3 \cdot 10^3$ m/s, d.h. sie ist klein im Vergleich zur Geschwindigkeit von Neonionen mit 1.5 keV bzw. $1 \cdot 10^5$ m/s, deshalb kann das Targetatom als stationäres Teilchen betrachtet werden. Die Neonionen sind als klassische Teilchen zu behandeln. Daß keine Beugung zu erwarten ist, ist verständlich, da die Ionen (Neon, 1.5 keV) eine de Broglie-Wellenlänge λ von $\sim 1 \cdot 10^{-13}$ m haben, also nur 1/1000 eines Gitterabstandes. Sieht das einfallende Ion ein einziges Festkörperatom, oder mehrere? Während der Wechselwirkungszeit der Ionen mit der Oberfläche von $\sim 4 \cdot 10^{-16}$ s ist ein Ankoppeln an die Phononen des Festkörpers nicht möglich, da diese mit einer Frequenz von $\sim 1 \cdot 10^{13}$ s⁻¹ schwingen. Die Oberflächenatome können als freie Teilchen behandelt werden, die effektive Masse des Stoßpartners ist seine tatsächliche Masse. Bohr (1948) stellte eine notwendige und hinreichende Bedingung für die klassische Behandlung der Streuung auf: $\chi = r_0 / \lambda \gg 1$, dabei ist r_0 der kleinste Abstand zwischen Projektil und Atom, λ ist die de Broglie-Wellenlänge dividiert durch 2π . Im niederenergetischen Bereich der Ionenstreuung ist diese Bedingung zur Vernachlässigung von Quanteneffekten erfüllt. Außerdem ist der Energietransfer aufgrund von Elektronenübergängen zwischen Projektil und Atom, von elektronischer Anregung des Targetatoms und von inelastischen Stößen während eines Stoßes so klein (<10 eV), daß die Kollision als elastisch angesehen werden kann.

Das Primärion mit der Masse m_I und der Energie E_0 fällt unter einem Winkel ψ zur Oberfläche ein und wird am Targetatom m_i unter dem Winkel ϑ zum einfallenden Strahl mit der Energie E_i^{aus} reflektiert. Der Winkel ϑ wird als Streuwinkel bezeichnet. Für die Energie des Ions nach dem Stoß E_i^{aus} ergibt sich, aufgrund der Impuls- und Energieerhaltung und der Annahme, daß das Targetatom vor dem Stoß ruht:

$$E_i^{aus} = E_0 \frac{m_I^2}{(m_I + m_i)^2} \left(\cos\vartheta \pm \left(\frac{m_i^2}{m_I^2} - \sin^2\vartheta \right)^{1/2} \right)^2 = E_0 \cdot f(\vartheta, A) \quad (1)$$

Die Position der Energie E_i^{aus} wird in den Energieverteilungen mit "S" für "single scattering" gekennzeichnet (Abb. 2). Die Energie des Ions nach dem Stoß E_i^{aus} ist eine Funktion von E_0 , ϑ und dem Massenverhältnis m_i / m_I . Bei einem festen Streuwinkel und einer fixen Primärenergie hängt die Energie der rückgestreuten Teilchen nur vom Massenverhältnis A ab, die Energieverteilung liefert ein direktes Bild der Oberflächenzusammensetzung. Für $A \geq 1$ gilt in Gleichung 1 das positive, für $A < 1$ gelten beide Vorzeichen, das heißt, daß das an einem Atom gestreute Ion nach dem Stoß bei einem Streuwinkel zwei Energien E_i^{aus} haben kann.

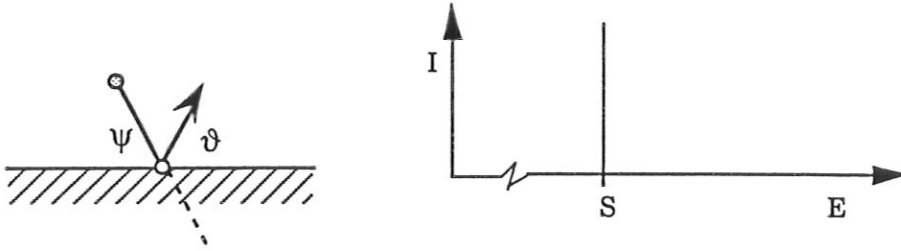


Abbildung 2: Binäres Stoßmodell und daraus resultierende Energieverteilung.

In Abbildung 3 ist die Funktion $E_i^{aus} = E_0 \cdot f(\vartheta, A)$ dargestellt. Die unterschiedlichen Symbole stellen die Streuung von He^+ (\circ), Ne^+ (Δ), Na^+ (\blacktriangle), Ar^+ (\square) und Cu^+ (\blacksquare) an Cu und zusätzlich die Streuung von Ne^+ ($*$) an O dar, im weiteren werden bei gleicher Streupartnerkonfiguration gleiche Symbole verwendet. Die Energieauflösung ist umso besser, je kleiner A ist, d.h. je ähnlicher sich Projektil- und Targetmasse sind. Bei einem Streuwinkel $\vartheta < 90^\circ$ können auch Targetatome mit Massen $m_i < m_1$ nachgewiesen werden. Eine Beschränkung des Streuwinkels ist für $A < 1$ durch $\sin \vartheta \leq \frac{m_i}{m_1}$ gegeben.

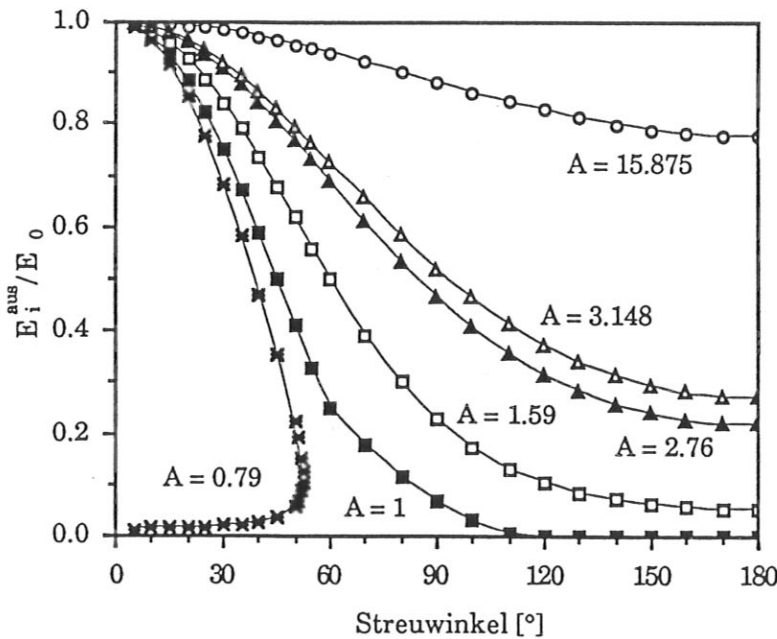


Abbildung 3: Die Energie der rückgestreuten Teilchen als Funktion des Streuwinkels und des Massenverhältnisses, $E_i^{aus} = E_0 \cdot f(\vartheta, A)$. Die Werte für A entsprechen der Streuung von He^+ , Ne^+ , Na^+ , Ar^+ , Cu^+ an Cu und Ne^+ an O.

Stößt das Ion mit einem gebundenen Atom der Masse m_1 , so ist seine Energie E_1^* nach dem Stoß durch Gleichung 2 bestimmt, mit E_b der Bindungsenergie [Aono, Souda (1987)]. Die Differenz zwischen E_1^* und E_1^{aus} ($E_1^{aus} > E_1^*$) ist von der Primärenergie unabhängig und liegt in der Größenordnung von E_b ($\sim 5\text{-}10$ eV).

$$E_I^* = E_0 \frac{m_I^2}{(m_I + m_i)^2} \left(\cos\vartheta + \left(\frac{m_i^2}{m_I^2} \sin^2\vartheta - \frac{m_i (m_I + m_i) E_b}{m_I^2 E_0} \right)^{1/2} \right)^2 \quad (2)$$

Diese Gleichung beruht auf der Vorstellung, daß das Targetatom nach der Streuung eine Energie $> E_b$ hat, d.h. Gleichung 2 gilt nicht für zu kleine Streuwinkel und Primärenergien $E_0 < 100$ eV.

Der bei der Streuung der Ionen an den Targetatomen entstehende Energie- und Impulsübertrag führt zur Zerstäubung der Oberfläche. Die Energie E_i^{rec} des zerstäubten Teilchens (Rückstoßteilchen (engl. recoil)), welches vor dem Stoß als ruhend angesehen wird, kann äquivalent mit Hilfe der Erhaltungssätze berechnet werden.

$$E_i^{rec} = E_0 \frac{4 m_i m_I}{(m_i + m_I)^2} \cos^2\alpha \quad (3)$$

Zerstäubte Teilchen werden nur bei einem Streuwinkel $\alpha \leq 90^\circ$ erhalten. α ist der Winkel zwischen dem einfallenden Projektil und dem rückgestreuten Targetteilchen. Dieser Zusammenhang ist in Abbildung 4 dargestellt.

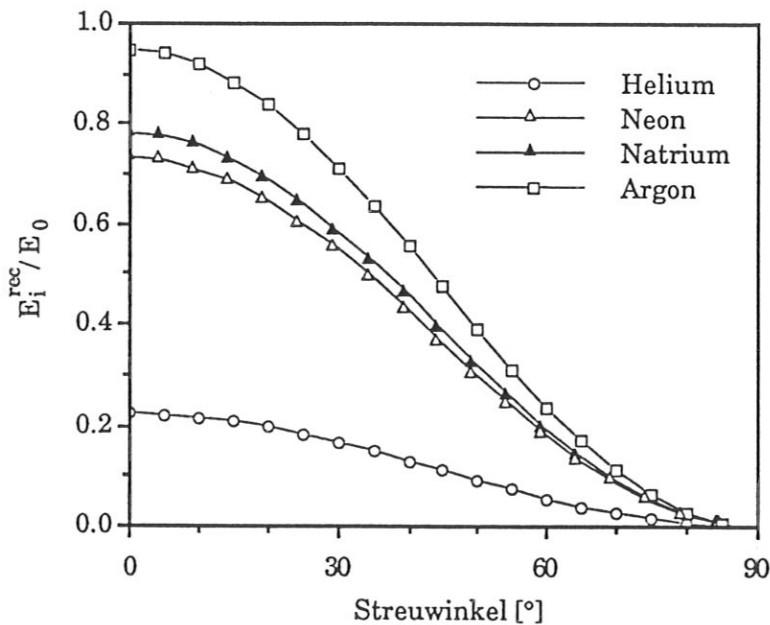


Abbildung 4: Die Energie der zerstäubten Kupferteilchen als Funktion des Streuwinkels und des Massenverhältnisses, $E_i^{rec} = E_0 \cdot f(\alpha, A)$.

Die zerstäubten Teilchen liefern einen Beitrag im niederenergetischen Bereich der Energieverteilung. Die DRS (direct recoil spectroscopy) hat sich als Zweig der Ionenstreuung für die Untersuchung leichter Adsorbate auf schweren Substratatomen bewährt.

Eine wesentliche, die Leistungsfähigkeit einer elementspezifischen Methode charakterisierende Größe ist die Massenauflösung $m_i / \Delta m_i$. Sie ergibt sich zu

$$\frac{m_i}{\Delta m_i} = \frac{E_i^{aus}}{\Delta E_i^{aus}} \frac{2A}{1+A} \frac{A + \sin^2 \vartheta - \cos \vartheta (A^2 - \sin^2 \vartheta)^{1/2}}{A^2 - \sin^2 \vartheta + \cos \vartheta (A^2 - \sin^2 \vartheta)^{1/2}} \quad (4)$$

Abbildung 5 zeigt die Massenauflösung $m_i / \Delta m_i$ und ihre Abhängigkeit von der Targetmasse m_i und dem Streuwinkel ϑ [Taglauer, Heiland (1976)].

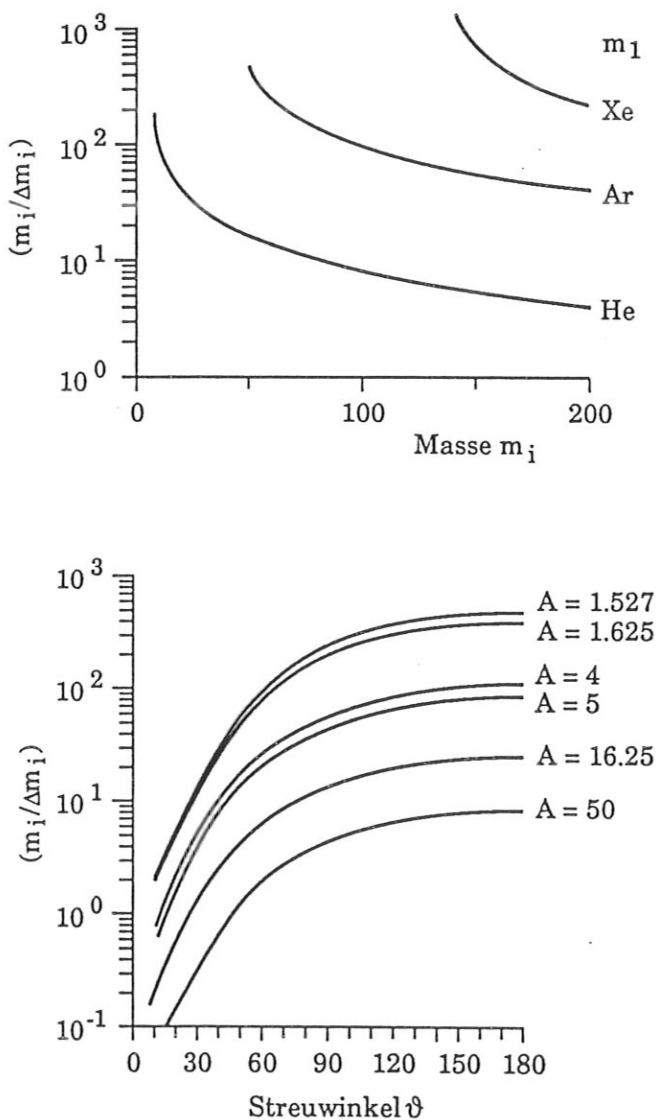


Abbildung 5: Oberes Bild: Massenauflösung $m_i / \Delta m_i$ gegenüber der Targetmasse m_i für verschiedene Ionen und einen Streuwinkel $\vartheta = 90^\circ$, unten: $m_i / \Delta m_i$ gegenüber dem Streuwinkel ϑ für verschiedene A . (Energieauflösung $E_i^{aus} / \Delta E_i^{aus} = 100$) [Taglauer, Heiland (1976)]

Die Massenauflösung ist bei konstanter Energieauflösung am besten, wenn die Targetmasse in etwa der Ionenmasse ($A \approx 1$) entspricht. Bei festem Massenverhältnis A nimmt $m_i / \Delta m_i$ mit steigendem Streuwinkel ϑ zu. Die maximale Massenauflösung wird für einen Streuwinkel von 180° erreicht, wobei zu bedenken ist, daß bei steigendem Streuwinkel der Streuquerschnitt abnimmt und somit wesentlich geringere Zählraten detektiert werden müssen (siehe Kap. "Differentieller Streuquerschnitt und ..."). Weiterhin kann aus Figur 5 abgelesen werden, daß die Winkelauflösung in der Größenordnung von 1° und die Energieauflösung bei 1% sein muß, um nicht die Massenauflösung, besonders bei kleineren Winkeln, merklich zu verschlechtern. Damit sind für das Experiment, für den Primärstrahl und das Nachweissystem, zwei wesentliche Parameter in etwa festgelegt.

Ein typisches ISS-Spektrum für Ne^+ Ionen mit einer Energie von 1 keV, gestreut an Cu(115) unter einem Streuwinkel von 38° , zeigt Abbildung 6. Die über den Peaks angegebenen Zahlenwerte entsprechen den nach Gleichung 1 bzw. Gleichung 3 berechneten Streuenergien E_i^{aus} bzw. E_I^{rec} .

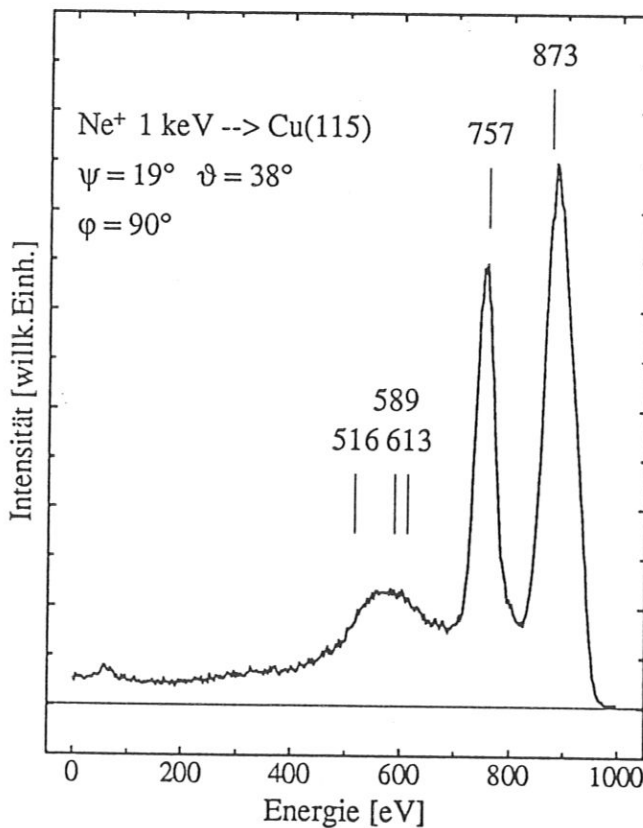


Abbildung 6:

ISS-Spektrum für Ne^+ Ionen mit einer Energie von 1 keV gestreut an Cu(115), unter einem Streuwinkel von 38° .

Die Intensitätsmaxima bei (873 und 757 eV) stellen Streuung an Kupfer- und Schwefelatomen dar. Der Streuung am Sauerstoff (516 eV) sind die Recoilsignale von Schwefel und Sauerstoff (589 und 613 eV) überlagert. Die Intensitätsunterschiede weisen auf eine unterschiedliche Konzentration der einzelnen Elemente an der Oberfläche hin (siehe Kap. "Bestimmung d. Oberflächenzusammensetzung ...").

2.2. Differentieller Streuquerschnitt und Wechselwirkungspotential

Die Wahrscheinlichkeit für einen bestimmten Streuprozess, d.h. die Anzahl der gestreuten Teilchen, wird durch den Streuquerschnitt σ wiedergegeben. Der Fluß der gestreuten Teilchen ist mit dem differentiellen Wirkungsquerschnitt korreliert. Der differentielle Streuquerschnitt $d\sigma/d\Omega$ gibt die Zahl der Teilchen an, die in das Raumwinkelement $d\Omega$ um Ω gestreut werden, normiert auf die Zahl der Teilchen, die pro Flächeneinheit einfallen. Der Streuquerschnitt ist durch $d\sigma(\vartheta) = 2\pi b db$ gegeben, das Raumwinkelement durch $d\Omega = 2\pi \sin\vartheta d\vartheta$. Daraus ergibt sich der differentielle Streuquerschnitt :

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{\vartheta} = \frac{b}{\sin\vartheta} \left| \frac{db}{d\vartheta} \right|. \quad (5)$$

Da $(db/d\vartheta)$ im allgemeinen negativ ist, der Wirkungsquerschnitt aber positiv definiert ist, steht in Gleichung 5 ein Absolutbetrag. Der totale Wirkungsquerschnitt ist dann durch $\sigma = \int (d\sigma/d\Omega) d\Omega$ gegeben. Der Zusammenhang zwischen dem Stoßparameter b und dem Winkel ϑ ist durch das klassische Streuintegral gegeben (siehe Gl. 6).

Der Streuwinkel ϑ im Schwerpunktsystem ist vom Stoßparameter b abhängig. Das Streuintegral mit den Parametern r (Abstand Projektil-Atom), r_{min} (Abstand der nächsten Annäherung), $V(r)$ (Wechselwirkungspotential) und der Energie E des Projektils im Schwerpunktsystem ($E = E_0 A / (1+A)$) liefert den gesuchten Zusammenhang. Da b in einem homogenen Ionenstrahl gleichverteilt ist, sind alle Streuwinkel $0 < \vartheta < 180^\circ$ möglich.

$$\vartheta = \pi - 2 \int_{r_{min}}^{\infty} b \frac{1}{r^2} \left(1 - \left(\frac{b}{r}\right)^2 - \left(\frac{V(r)}{E}\right) \right)^{-1/2} dr \quad (6)$$

Zur Berechnung dieses Integrals muß ein Wechselwirkungspotential gegeben sein.

Bei Energien im keV Bereich durchdringen sich die Elektronenhüllen von Ion und Oberflächenatom teilweise, die abstoßende Coulombkraft der Kerne ist abgeschirmt. Die Ion-Atom-Wechselwirkung wird daher für Primärenergien $E_0 > 100$ eV durch ein abgeschirmtes Coulombpotential beschrieben.

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \Phi(Z_1, Z_2, r) \quad (7)$$

Z_1, Z_2 sind die Kernladungszahlen der beiden Stoßpartner, r ist der Abstand zwischen dem Ion und dem Atom, Φ die Abschirmfunktion. Für den niederenergetischen Bereich hat sich das Thomas-Fermi-Potential bewährt, wobei a die Abschirmlänge ist:

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \Phi\left(\frac{r}{a}\right) \quad (8)$$

Für die Abschirmfunktion $\Phi(r/a)$ existieren verschiedene analytische Näherungen. Die Molière-Näherung [Molière (1947)] mit dem Bohrschen Radius $a_0 = 0.529 \text{ \AA}$ und der Firsovschen Abschirmlänge a_f (s. Gl. 9 und 10), ist neben dem "Universellen Potential" und dem Ziegler-Biersack-Littmark-Potential wohl die meist verwendete [Firsov].

$$\Phi(r/a) = 0.35 \exp(-0.3 r/a) + 0.55 \exp(-1.2 r/a) + 0.1 \exp(-6.0 r/a), \quad (9)$$

$$a_f = \frac{0.8853 a_0}{(Z_1^{1/2} + Z_2^{1/2})^{2/3}}, \quad (10)$$

Zur besseren Übereinstimmung von Theorie und Experiment wird die Firsovsche Abschirmlänge mit einem Anpassungsparameter ξ multipliziert, der allgemein zwischen 0.6 und 0.8 gewählt wird [Fauster (1986,1988), Beckschulte (1988)].

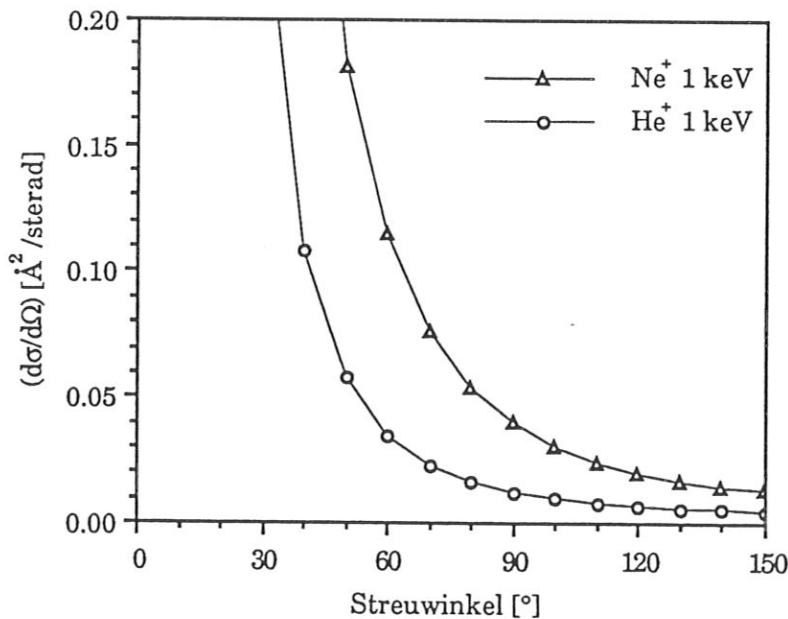


Abbildung 7: Differentieller Streuquerschnitt in Abhängigkeit vom Streuwinkel.

Die berechneten Streuquerschnitte (Thomas-Fermi-Potential) zeigen einen Anstieg mit abnehmenden Streuwinkel (Bild 7), mit abnehmender Primärenergie (Bild 8) und mit zunehmender Targetmasse (Bild 9). Hohe Streuquerschnitte, d.h. kleine Streuwinkel, sind mit einer schlechten Massenauflösung verbunden (siehe Kap. "Grundprinzip der Ionenstreuung - ...") und vice versa. Für das Experiment bedeutet dies ein Abwägen von gewünschter Information und experimenteller "Machbarkeit".

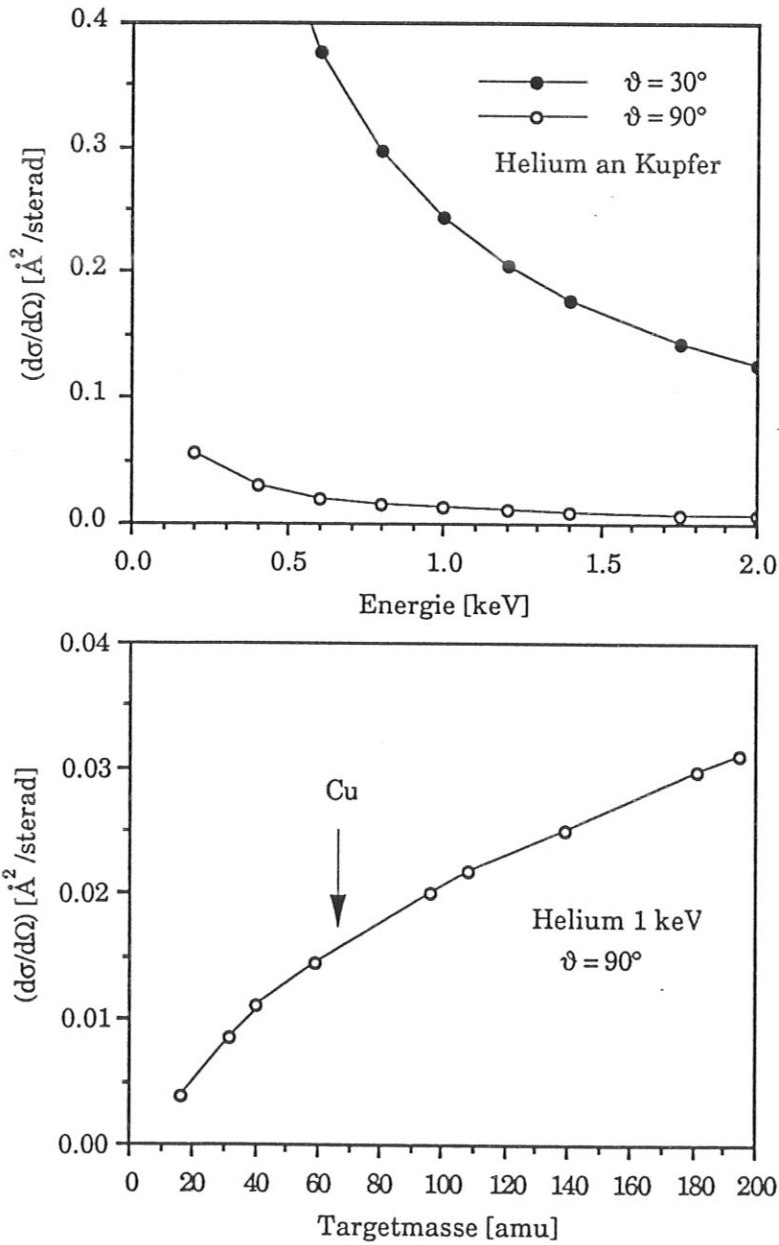


Abbildung 8 u. 9: Differenzieller Streuquerschnitt in Abhängigkeit von der Primärenergie und der Targetmasse.

2.3. Neutralisation

Wenn geladene Teilchen mit einer Festkörperoberfläche wechselwirken, so kommt es zum Ladungsaustausch zwischen Ion und Oberfläche. Die Intensität der rückgestreuten Ionen hängt nicht nur vom Streuwirkungsquerschnitt ab, sondern ist essentiell durch die Ionenüberlebenswahrscheinlichkeit P bestimmt. Bei Annäherung eines geladenen Teilchens an eine Festkörperoberfläche kommt es in wenigen Ångström Entfernung vor der Oberfläche zu einer Wechselwirkung, bei der Elektronenübergänge stattfinden können. Diese Elektronenübergänge können schließlich zur Neutralisation führen.

Aufgrund der unterschiedlichen Ionisationsenergien von Edelgas- und Alkaliionen sind verschiedene, konkurrierende Ladungsaustauschprozesse, Ein- und Zweielektronenprozesse, bei der Wechselwirkung von Ion und Oberfläche möglich, Bild 10.

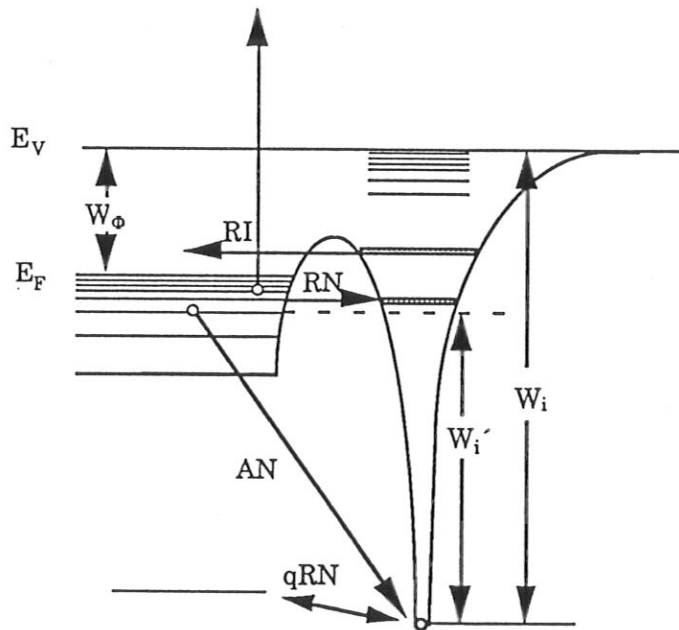


Abbildung 10: Die unterschiedlichen Neutralisationsprozesse.

Die Augerneutralisation (AN) ist ein Zweielektronenprozeß. Dieser Prozeß ist möglich, wenn die effektive Ionisierungsenergie W_i' des Projektils größer ist als die Austrittsarbeit W_ϕ des Metalls [Hagstrum (1954)]. Das Ion wird neutralisiert, indem ein Elektron aus dem Valenzband in das Grundzustandsniveau des Projektils fällt. Die

freiwerdende Energie W_i' wird an ein Elektron im Leitungsband übertragen und es folgt Elektronenemission. Die Wahrscheinlichkeit einer Augerneutralisation ist groß, wenn im Bereich des Leitungsbandes des Festkörpers keine leeren Energieniveaus im Atom vorhanden sind.

Sind jedoch derartige Niveaus vorhanden, so können Festkörperelektronen durch Tunneln diese Niveaus besetzen. Dieser Prozeß wird Resonanzneutralisation (RN) genannt. Nähert sich das Ion der Oberfläche, kommt es zu einer Verschiebung seiner Ionisationsniveaus zu kleineren Bindungsenergien (Bildkraftpotential). Zusätzlich zur Verschiebung tritt eine Verbreiterung der Niveaus auf (Lebenszeit, Geschwindigkeit). Ein Elektron aus dem Valenzband des Festkörpers tunnelt durch die Potentialbarriere in einen unbesetzten Energiezustand des Ions. Anschließend ist es möglich, daß das Elektron aus dem angeregten Niveau in den Grundzustand fällt und die dabei freiwerdende Energie von einem Leitungsbandedelektron aufgenommen wird, welches dann den Festkörper verläßt. *Hagstrum* nennt diesen Prozeß "Auger deexcitation". Dieser Prozeß ist, da er nicht direkt in den Grundzustand führt, langsamer und daher auch unwahrscheinlicher. Der zur Resonanzneutralisation komplementäre Vorgang ist die Resonanzionisation (RI), d.h. ein Elektron aus einem angeregten Teilchenzustand (bei Alkaliionen auch aus dem Grundzustand) gelangt in einen freien Zustand des Festkörpers. Bei der quasiresonanten Neutralisation (qRN) kommt es zum Ladungsaustausch zwischen dem Grundniveau des Ions und einem tiefliegenden Targetniveau.

Welcher der Prozesse stattfindet, ist von der relativen Lage der Energieniveaus zueinander abhängig, der bestimmende Faktor für die Art des Neutralisationsprozesses ist die Ionisationsenergie der Ionen. Bei der Kombination von Edelgasionen und Metalloberflächen ist, aufgrund der großen Ionisationsenergien der Ionen (Ne^+ 21.6 eV), die Voraussetzung für Augerneutralisation gegeben. *Hagstrum* (1954) zeigte, daß die Wahrscheinlichkeit einer Augerneutralisation sehr groß (~ 1) ist, wenn Edelgasionen auf eine Metalloberfläche treffen. Edelgasionen und Alkaliionen unterscheiden sich grundlegend in ihren Ionisationsenergien. Bei Alkaliionen liegen die Ionisationsenergien im Bereich der Austrittsarbeit der von Metallen (Na^+ 5.1 eV), das Ionisationsniveau der Alkaliionen entspricht dann in etwa dem Fermi-niveau des Targetmaterials.

Dieser Sachverhalt spiegelt sich in der unterschiedlichen Überlebenswahrscheinlichkeit P der Ionen bei der Streuung wider. Aufgrund der unterschiedlichen Ionisationsenergien sind verschiedene Neutralisationsprozesse zu betrachten. Ist die Wechselwirkungszeit mit der Oberfläche gering, so überleben Edelgasionen die Streuung zu einem großen Teil als geladene Teilchen, das heißt, daß ihre Überlebenswahrscheinlichkeit trajektorienabhängig ist. Hingegen ist P bei Alkaliionen unabhängig von der Flugbahn, sie können also mehrere Streuereignisse als Ionen überleben. Für Edelgasionen liegt P bei 1% bis 10%, für Alkaliionen bei 70% bis 100%. Als Konsequenz ergibt sich eine hohe Oberflächenempfindlichkeit bei der Verwendung von Edelgasionen, da nur die Projektile zur Analyse gelangen, die den Stoßprozeß als Ionen überleben, das sind aber jene, die an der obersten Atomlage gestreut werden. Führen einerseits die hohen Neutralisationsraten zur Oberflächensensitivität der Ionenstreuung, so sind auch die Schwierigkeiten bei der Quantifizierung in ihnen begründet. Die Verwendung von Alkaliionen würde zwar die Quantifizierung erleichtern, bringt aber andere Interpretationsprobleme mit sich, da zur Energieverteilung auch Ionen, die eine Mehrfachstreuung im Kristallinneren erlitten haben, beitragen. Aushilfe bei diesem Problem schaffen Eichproben.

Zahlreiche experimentelle und theoretische Arbeiten untersuchen Neutralisations-, Anregungs- und Abregungsprozesse bei Ion-Oberflächen-Wechselwirkungen. Erfolgreich beschrieben wurden Auger-Prozesse durch das exponentielle Modell von *Hagstrum*, in welchem die Elektronenübergangsrate exponentiell mit dem Ion-Oberflächen-Abstand z abnimmt

$$\Gamma(z) = A \exp(-az) . \quad (11)$$

Die Überlebenswahrscheinlichkeit P ist gegeben durch

$$P = \exp[-v_c (1/v_{iL} + 1/v_{fL})], \quad (12)$$

v_c wird charakteristische Geschwindigkeit genannt, v_{iL} und v_{fL} sind die Normal-komponenten der Einfalls- und Austrittsgeschwindigkeiten.

Um aber eine vollständige Beschreibung der Ion-Oberflächenwechselwirkung zu finden, müssen auch noch andere Prozesse in Betracht gezogen werden. Allgemein schließt man auf ein Durchlaufen mehrerer verschiedener Neutralisations- und Ionisationsprozesse. *Van der Weg und Biermann* teilen den Stoßprozeß in zwei Phasen:

atomarer Stoß und anschließend Neutralisation. *Brongersma et al. und Verhey et al.* schlagen eine Dreiteilung vor: der Einfallsbereich, die Region der atomaren Kollision und die Ausfallstrajektorie. Entlang der Einfalls- und der Ausfallstrajektorie treten Auger- oder Resonanzneutralisation auf, während beim Stoß neben der Neutralisation auch Reionisation möglich ist. Direkt beim Stoß, also im Bereich nächster Annäherung, durchdringen sich die Elektronenhüllen, die Energieniveaus verschieben sich - ein Quasimolekül wird gebildet. Für diesen Prozeß ist jedoch eine Mindestenergie von einigen keV notwendig, um den Bereich nächster Annäherung zu erreichen. Die Molekülorbitale sind zum Teil autoionisierend, so daß nach der Trennung ein positiv geladenes Ion vorliegen kann [*Fano und Lichten (1965)*]. An dieser Stelle soll auf weiterführende Literatur verwiesen werden [*Beckschulte (1992), Woodruff (1982), Aono et al. (1987), Eckstein (1980)*].

2.4. Bestimmung der Oberflächenzusammensetzung - Quantitative Auswertung

Eine qualitative Aussage über die Zusammensetzung der Oberfläche ist über die Analyse der energetischen Lage der Intensitätsmaxima der Energiespektren mit Hilfe von Gleichung 13 möglich. Quantitative Aussagen, d.h. der Zusammenhang zwischen der Intensität des rückgestreuten Signals und der Anzahl der Streupartner, bergen jedoch Schwierigkeiten in sich. In die Rückstreuintensität gehen nach Gleichung 13 Größen wie die Überlebenswahrscheinlichkeit, die Transmission des Analysators, die Detektoreffizienz, der differentielle Streuwirkungsquerschnitt, usw. ein. Einige dieser Größen sind im allgemeinen nur ungenügend bekannt. Die Intensität I_i entsprechend der Streuung an der Atomsorte i setzt sich wie folgt zusammen :

$$I_i = \frac{I_0}{F_Q} \left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_i \Delta\Omega P_i T F_A N_i . \quad (13)$$

Dabei ist I_i das Rückstreusignal, I_0 der Primärstrom, F_Q der Quellfleck, $(d\sigma/d\Omega)$ der differentielle Wirkungsquerschnitt, $\Delta\Omega$ das Raumwinkelement, P_i die Überlebenswahrscheinlichkeit, T die Transmission des Spektrometers, F_A der Analysefleck, N_i die Flächendichte der Atomsorte i , $\frac{I_0}{F_Q} \left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_i \Delta\Omega$ die Anzahl der Teilchen, die pro Zeiteinheit an einem Targetatom unter dem Winkel ϑ in das Raumwinkelement $\Delta\Omega$ gestreut werden. Die Größen F_Q und F_A berücksichtigen den experimentellen Unterschied zwischen Quell- und Analysefleck (siehe Abbildungen 38 und 39).

Die gemessene Rückstreuintensität I_i stellt eine Faltung der physikalischen Energieverteilung, die durch die Energieunschärfe der Primärteilchen und die Unschärfe des Energieverlustes beim Stoß gegeben ist, mit der apparativen Energieunschärfe des Energieanalysators dar, wobei für elektrostatische Analysatoren $\Delta E / E$ konstant ist.

2.5. Strukturbestimmung mit ISS

2.5.1. Mehrfachstreuung

In den meisten Fällen ist das binäre Stoßmodell, d.h. die Annahme einer Wechselwirkung des einfallenden Ions mit einem einzigen, völlig isolierten Targetatom, ausreichend, um die Energie des Ions nach dem Stoß zu berechnen. Unter bestimmten experimentellen Bedingungen (siehe Abbildung 11) kann jedoch das binäre Stoßmodell an seine Grenzen stoßen und die Berücksichtigung der nächsten Nachbarn wird notwendig. Dominiert der binäre Einzelstoß für leichte Ionen wie He^+ , so wird bei steigender Ionenmasse die Mehrfachstreuung relevant. Die Wahrscheinlichkeit für Mehrfachstreuung steigt mit

- der Ionenmasse,
- kleinerem Einfallswinkel bei konstantem Streuwinkel,
- kleinerem Streuwinkel bei konstantem Einfallswinkel,
- kleinerer Primärenergie,
- kleinerem Gitterabstand,
- der Zunahme des Verhältnisses von Stoßparameter zu Gitterabstand.

Geht man vom binären Stoß zum einfachsten Fall der Mehrfachstreuung - zur Streuung an einer Kette - über, so kann diese vereinfachend durch aufeinanderfolgende, aber getrennte, Einfachstöße angesehen werden. Die Energie des Ions E_i^n nach n Einzelstößen an Atomen der Masse m_i ist dann durch

$$E_i^n = E_0 \prod_{j=1}^n f(\vartheta_j, A) \quad (14)$$

$$\text{mit } \vartheta = \sum_{j=1}^n \vartheta_j$$

gegeben. Obwohl das Kettenmodell, erstmals erwähnt von *Parilis* (1965), eine relativ schlechte Darstellung der Oberfläche ist, erlaubt es trotzdem gute Aussagen und vermittelt ein qualitatives Verständnis der beobachteten Phänomene. Verbesserungen dieses

Modells brachten die Berücksichtigung von elektronischen Energieverlusten, Neutralisationseffekten, thermischen Vibrationen der Gitteratome und Oberflächendefekten.

Für einen Zweifachstoß - zwei Einzelstöße hintereinander ausgeführt - ergibt sich somit

$$E_i^n = E_0 f(\vartheta_1, A) f(\vartheta_2, A) \quad \text{mit} \quad \vartheta_1 + \vartheta_2 = \vartheta. \quad (15)$$

Die Stoßparameter der beiden Stöße verhalten sich wie

$$b_2 = b_1 - d \sin(\psi - \vartheta_1), \quad (16)$$

wenn d der Abstand der Atome in der Kette ist. Berechnungen der Stoßparameter b_1 und b_1' zeigen, daß diese für die betrachteten kleinen Streuwinkel gleichzusetzen sind. Der Stoßparameter b_2 und infolge dessen die Energie E_i^n sind von der Streugeometrie (ψ, ϑ) und vom Abstand d der beiden Atome in der Kette abhängig (siehe Abbildung 11).

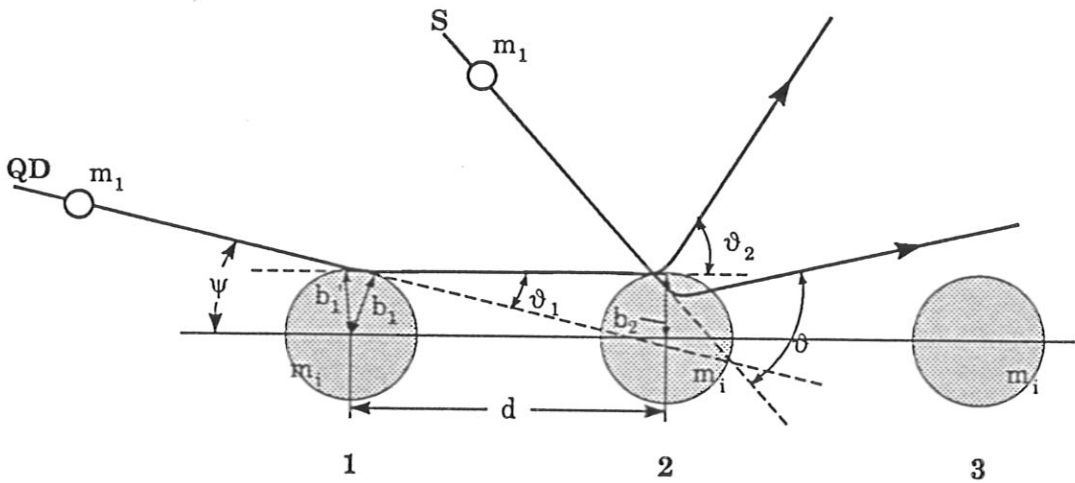


Abbildung 11: Schematische Darstellung des Doppelstoßes.

Ist, bei gegebenem Einfallswinkel ψ , Einzelstreuung an Atom 2 mit einem bestimmten Streuwinkel ϑ möglich (Abb.11-S), so kann man sich vorstellen, daß bei abnehmendem Einfallswinkel und gleichbleibendem Streuwinkel ein unterer kritischer Winkel ψ_{QD} existiert, unter welchem Einzelstreuung unmöglich wird (Abb.11-QD), da das Nachbaratom 1 die Streuung beeinflusst. Für den Winkel ψ_{QD} ergibt sich anhand von Bild 11:

$$\psi_{QD} = \arcsin\left(\frac{b_1 - b_2}{d}\right) + \vartheta_1 \quad (17)$$

Äquivalent existiert ein oberer kritischer Einfallswinkel, der dann eine Rolle spielt, wenn das Atom 3 die Ausfallstrajektorie des Ions versperrt und zum Doppelstreupartner wird.

Karpuzov *et al.* (1971) zeigen, daß die Mehrfachstreuung in guter Näherung als Summe mehrerer Einzelstöße betrachtet werden kann und E_i^n als Funktion der relativen Positionen der Atome zueinander, d.h. als Funktion der kurzreichweitigen Ordnung der Oberfläche zu sehen ist.

In den Energiespektren ist E_i^2 mit "QD" (quasi double scattering) bezeichnet. Die Energie E_i^{aus} , einer Einzelstreuung entsprechend, verschiebt sich zu etwas höheren Energien (+ einige eV), da auch die Einfachstreuung von der Umgebung des Streuzentrums beeinflusst wird (in den Energieverteilungen als "QS" - quasi single scattering gekennzeichnet). Abbildung 12 zeigt links schematische Darstellungen der Einzel- bzw Doppelstreuung, im rechten Bild die dazugehörigen Energieverteilungen.

Es gibt also die Möglichkeit, daß durch Kombination zweier Einzelstöße der gleiche Gesamtstreuwinkel ϑ erzielt wird. Dabei ist die Energie E_i^2 des Ions nach zwei Einfachstößen mit ϑ_1 und ϑ_2 größer als die Energie E_i^{aus} des Ions nach nur einem Stoß um den gleichen Gesamtstreuwinkel ϑ , da das Ion bei kleineren Streuwinkeln einen geringeren Energieverlust erleidet.

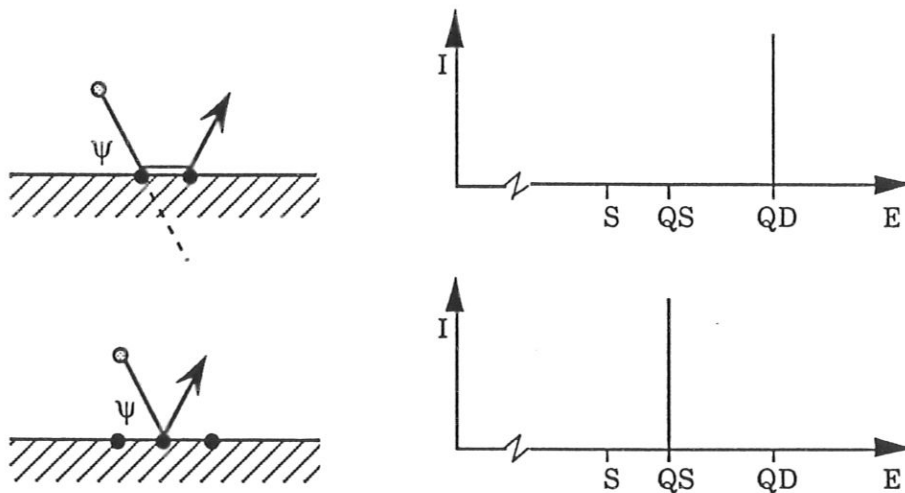


Abbildung 12: Streuung an zwei Atomen einer linearen Kette.

Die Differenz ("QD"- "QS ") ist ein Maß für den Abstand d . Peaks in der Energieverteilung des Rückstoßspektrums, die einer Mehrfachstreuung entsprechen, sind für kleinere Primärenergien, kleinere Streuwinkel und schwerere Ionen dominanter (siehe Kap. "Experimentelle Ergebnisse - Mehrfachstreuung"). Abbildung 13 zeigt E_i^{aus}/E_0 und E_i^2/E_0 als Funktion des Streuwinkels ϑ , wobei E_i^2 für $\vartheta_1 = \vartheta_2 = \vartheta/2$ berechnet wurde.

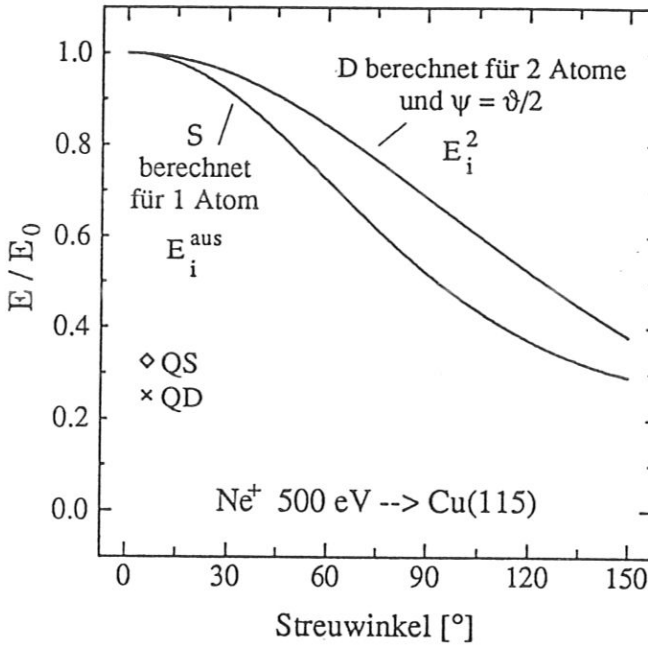


Abbildung 13: Die Energie des Ions nach einem Einzelstoß im Vergleich zu zwei nacheinander ausgeführten Einzelstößen als Funktion des Streuwinkels.

Durch die Abschattung der einzelnen Kettenatome untereinander sind nicht alle Stoßparameter zugänglich. Die Ionen werden in einen begrenzten Streuwinkelbereich $\Delta\vartheta$ ($\vartheta_{min} < \vartheta < \vartheta_{max}$) bzw. Energiebereich ΔE gestreut. ϑ_{min} wird durch Abblockungseffekte bestimmt, während ϑ_{max} durch Abschattung festgelegt wird, siehe Abbildung 14. ΔE ist jetzt nicht mehr nur vom Massenverhältnis A und ϑ abhängig, sondern auch von ψ und d .

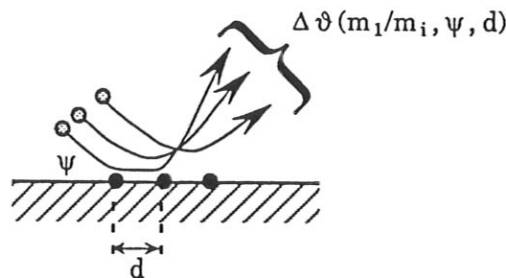


Abbildung 14: Streugeometrie einer Mehrfachstreuung.

Vergrößert sich der Abstand der Atome in der Kette, so wandert ϑ_{min} etwas zu kleineren Winkel, ϑ_{max} hingegen nimmt um einen wesentlich größeren Faktor zu. Diese Effekte führen zu den charakteristischen Schleifen (engl. loop), wenn man die Energie der rückgestreuten Ionen als Funktion des Streuwinkels darstellt (s. Abb. 15). Taglauer und Heiland (1972) haben numerische Rechnungen zur Streuung von Ionen an einer linearen Kette durchgeführt. In Abbildung 15 ist im linken Bild eine derartige Rechnung für Neonionen mit einer Energie von 600 eV, gestreut an Ni(110), dargestellt. Das rechte Bild zeigt experimentelle Daten.

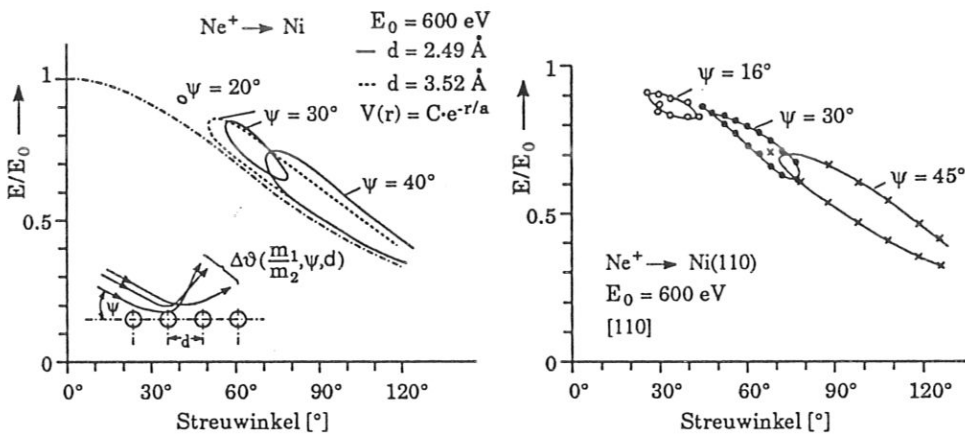


Abbildung 15: Die charakteristischen Schleifen (loops) der Mehrfachstreuexperimente, siehe Text [Taglauer et al. (1972)].

Die strichpunktirierte Linie, die die Schleifen näherungsweise begrenzt, entspricht dem einfachen binären Stoß. Die durchgezogenen bzw. gestrichelten Linien stellen die Loops für unterschiedliche Gitterabstände dar.

Die Größe der Schleifen, d.h. ϑ_{min} und ϑ_{max} , hängt stark vom Einfallswinkel ψ , der Primärenergie E_0 , dem Gitterabstand d und den Massen der Streupartner ab, ist also charakteristisch für die Geometrie der Oberfläche. Experimentell ist ϑ_{min} besser bestimmbar als ϑ_{max} , da bei höherem Streuwinkel die Intensität stark abnimmt.

Der Einfluß inelastischer oder elektronischer Verluste führt zu einer parallelen Verschiebung der Schleifen zu niedrigeren Energien. Heiland et al. (1976) und Poelsema et al. heben die Wichtigkeit der Berücksichtigung der thermischen Schwingungen der Gitteratome hervor, um eine gute Anpassung von Theorie und Experiment zu

finden (siehe Kap. "Einflüsse der thermischen Schwingungen ..."). Die größte Diskrepanz zwischen Theorie und Experiment liegt in der Angabe der Signalintensität, wobei hier 3-dimensionale Modelle Verbesserungen erzielen konnten.

2.5.2. Oberflächen - Channeling

Der Einfluß einer geordneten Gitterstruktur auf die Bewegung von Ionen im Kristallgitter wurde bereits vor vielen Jahrzehnten entdeckt [*Stark* (1912)]. In einem Einkristall können sich Ionen entlang dichtgepackter Atomketten nahezu ungehindert bewegen, sie bewegen sich entlang von Kanälen durch den Kristall und besitzen eine besondere Bahnstabilität. Diese Kanäle sind ausgezeichnete Richtungen im Kristallgitter, die durch sehr dichtgepackte Atomreihen gekennzeichnet sind. Diese Definition des Festkörpergitterführungseffektes kann auch auf Oberflächen angewendet werden [*Hou et al.* (1978)].

Dieser Gitterführungseffekt, das "Channeling", ist ein spezieller Fall von Mehrfachstreuung, wobei zwischen axialem und planarem Channeling unterschieden wird. Treffen Ionen mit sehr kleinem Einfallswinkel auf eine Oberfläche, so können sie entlang von Atomketten geführt werden, wobei sie ständig etwas abgelenkt werden. Durch korrelierte Kleinwinkelstöße an benachbarten Atomen erfolgt Spiegelreflexion, d.h. der Einfallswinkel ψ ist gleich dem Ausfallswinkel. Die ursprüngliche Bewegungsrichtung wird von den Projektilen beibehalten. Derartiges Channeling ist nur möglich, wenn lange und gerade, dichtgepackte Atomketten, wie sie in niedrigindizierten Kristallrichtungen vorliegen, vorhanden sind.

Lindhard (1965) beschreibt diese Spiegelreflexion vereinfacht mit Hilfe des Kontinuum-Modelles, d.h. man betrachtet nicht die Wechselwirkung der Projektilen mit einem einzelnen Atom, sondern mit der ganzen Kette, die durch ein in Kettenrichtung konstantes Potential beschrieben ist. Da aber jede Kette aus einzelnen diskreten Streupartnern besteht, ist die Streuwinkelverteilung verschmiert. Nur Teilchen, die mit einem Winkel ψ_{ch} kleiner dem kritischen Winkel ψ_{ch}^c starten und eine nicht zu große transversale Energie haben (die Projektilen dürfen sich den Atomketten nicht zu sehr nähern, da sonst Stöße mit großen Winkeländerungen möglich werden), können sich

entlang des Kanals auf geführten Bahnen weiterbewegen. *Lindhard* beschreibt den Grenzwinkel durch folgende Gleichung

$$\psi_{ch}^c = \sqrt[4]{3 a_f^2 Z_1 Z_2 e^2 / E_0 d_{[hkl]}^3}. \quad (18)$$

In Gleichung (18) bezeichnet $d_{[hkl]}$ den interatomaren Abstand in der $[hkl]$ Richtung der Oberfläche bzw. den Abstand der Atome entlang der Achse. Die nächste Abbildung zeigt den Grenzwinkel in Abhängigkeit von der Primärenergie der Ionen E_0 und dem Abstand d der Atome in der Kette.

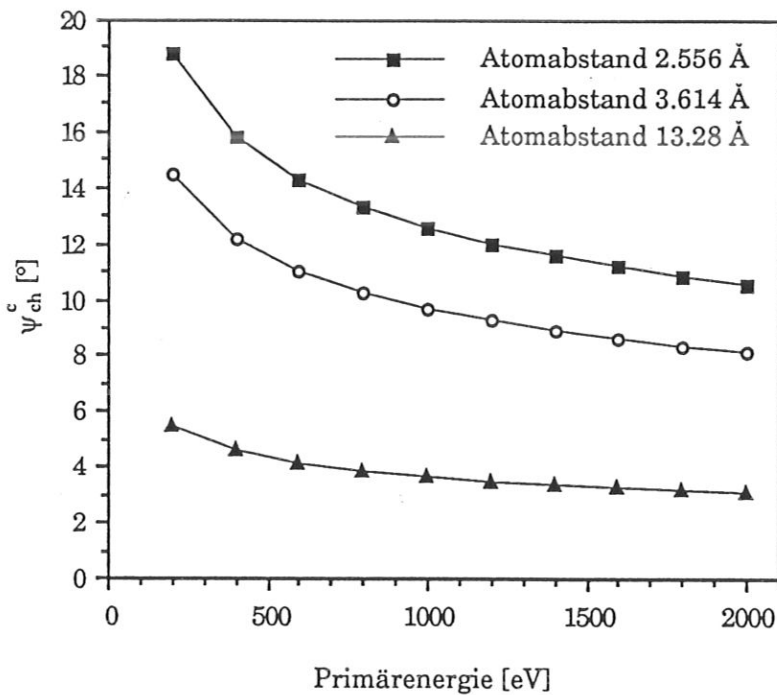


Abbildung 16: Der kritische Grenzwinkel in Abhängigkeit von der Ionenenergie für verschiedene Atomabstände (Ne^+ an Cu).

Die experimentelle Vorgehensweise bei einem Channeling-Experiment ist folgende: Man detektiert die gestreuten Ionen unter einem konstanten Streuwinkel $\vartheta > 2\psi$, so daß aufgrund der Spiegelreflexion, nur eine geringe Intensität zu erwarten ist. Dreht man nun den Ionenstrahl in azimuthaler Richtung über die Probe, so tastet man die Kanäle an der Oberfläche ab. Azimutale Richtungen der Oberfläche, in denen Channeling möglich ist, zeichnen sich durch geringe Rückstreuintensität aus. Diese Richtungen verlaufen parallel zu dichtgepackten Atomketten (siehe Abbildung 17). Verläßt der Ionenstrahl

eine ausgezeichnete Richtung, steigt die Intensität an und sinkt beim Erreichen des nächsten Kanals wieder. Die Bereiche niedriger Intensität lassen sich nun bestimmten Kristallrichtungen zuordnen. Auf diese Weise hat man eine experimentell einfache Methode gefunden, um die kristallographische Orientierung der Probe relativ zum Strahl bestimmen zu können. Im weiteren sollen auf diese Art erhaltene Spektren Azimutspektren genannt werden.

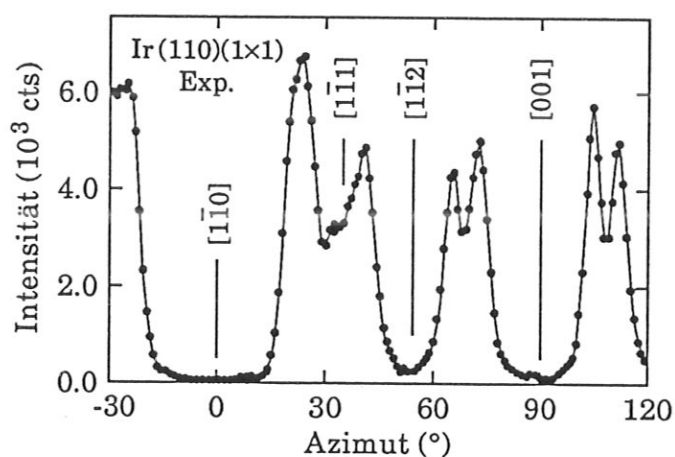


Abbildung 17: Azimutspektren einer Ir(100) Oberfläche (Ne⁺ 2 keV, $\psi = 9^\circ$, $\vartheta = 40^\circ$) [Hetterich (1991)].

2.5.3. Abschattungseffekte - Der Schattenkegel (ICISS)

Trifft ein Ionenstrahl auf ein Targetatom, führt das Wechselwirkungspotential zu einer dreidimensionalen, paraboloidähnlichen Zone hinter dem Atom, in welche kein einfallendes Ion eindringen kann (siehe Abbildung 18). Das Atom befindet sich in dieser Darstellung im Koordinatenursprung, der Ionenstrahl kommt von der linken Seite, dargestellt durch die parallel einfallenden Trajektorien. Diese abgeschattete, trajektorienfreie Region wird vom sogenannten Schattenkegel (engl. shadow cone) umschlossen. Die Achse dieses rotationssymmetrischen Schattenkegels verläuft in Richtung der Einfallsrichtung der Ionen durch das Streuzentrum.

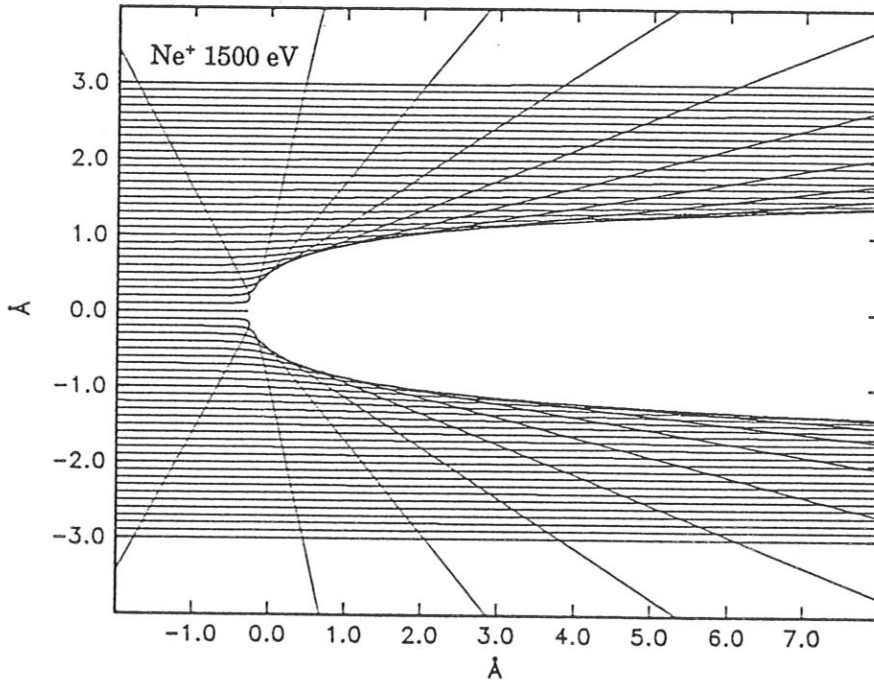


Abbildung 18: Trajektorien des Projektils bei der Wechselwirkung mit einem Targetatom.

Bei einem homogenen Ionenstrahl sind alle Stoßparameter gleichverteilt. Direkt am Schattenkegelrand bildet sich ein Bereich aus, in den viele Trajektorien fokussiert werden. Dieser Effekt der Fokussierung, zu sehen in Bild 18, führt zu einer Flußüberhöhung am Rand des Schattenkegels. Die Form des Schattenkegels ist durch die Ionensorte, die Ionenenergie und das Streuzentrum, d.h. die streuende Atomsorte bestimmt.

Ändert man nun den Einfallswinkel und detektiert die rückgestreuten Ionen bei einem bestimmten Streuwinkel und einer diesem Streuwinkel entsprechenden Energie, so ist ein Intensitätsanstieg zu erwarten, wenn ein Nachbaratom aus dem Rand des Schattenkegels heraustritt und selbst zur Streuung beitragen kann (Abb. 19). Der entsprechende Winkel wird kritischer Winkel ψ_c genannt. Aufgrund der Flußüberhöhung am Schattenkegelrand wird der Intensitätsanstieg noch verstärkt.

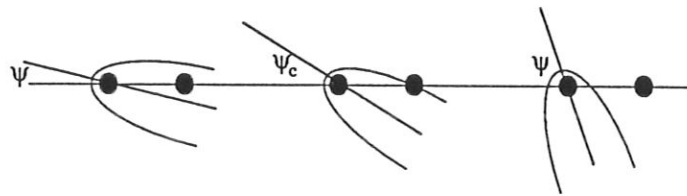


Abbildung 19: Beim kritischen Winkel ψ_c , treten die Oberflächenatome aus dem Schatten ihrer jeweiligen Nachbarn und die Rückstreuintensität steigt.

Aono *et al.* (1981,1982) haben sich dieses Konzept des Schattenkegels zu Nutze gemacht, um Strukturbestimmungen mit ISS, mit einer Genauigkeit von $\pm 0.1 \text{ \AA}$, durchzuführen. Der Einfallswinkel des Ionenstrahls wird in kleinen Schritten geändert und der reflektierte Strahl unter einem sehr großen Streuwinkel, optimalerweise 180° , detektiert. Bildlich gesprochen wird der Schattenkegel in die Oberfläche gedreht. 180° -Streuung findet nur statt, wenn das Atom mit einem Stoßparameter $b \sim 0$ zentral getroffen wird. Ist der Einfallswinkel sehr klein, so werden alle Atome abgeschattet - eine Streuung mit $b \sim 0$ wird unmöglich - und es findet nur Streuung bei sehr kleinen Streuwinkeln statt, d.h. Mehrfachstreuung ist nicht mehr ausgeschlossen. Diese Technik ist als "Impact Collision ISS - ICISS" bekannt. Im Experiment reicht ein Streuwinkel von 145° aus, um ICISS-Spektroskopie zu ermöglichen.

Ein simuliertes ICISS-Spektrum, d.h. die Intensität aufgetragen über dem Einfallswinkel, zeigt Abbildung 20. Deutlich ist hier der markante Anstieg zu sehen. Der Verlauf der ICISS-Kurve entspricht der Flußverteilung. Dem berechneten Intensitätsverlauf überlagert sich im Experiment die Winkelauflösung des Analysators, die Divergenz des Ionenstrahls und die Neutralisationswahrscheinlichkeit, die ebenfalls stark trajektorienabhängig ist. Van *d. Riet et al.* (1989) zeigen (siehe Abb.21), daß bei Primärenergien $> 3.5 \text{ keV}$ und Streuwinkeln $> 70^\circ$ kein Einfluß der Trajektorien auf

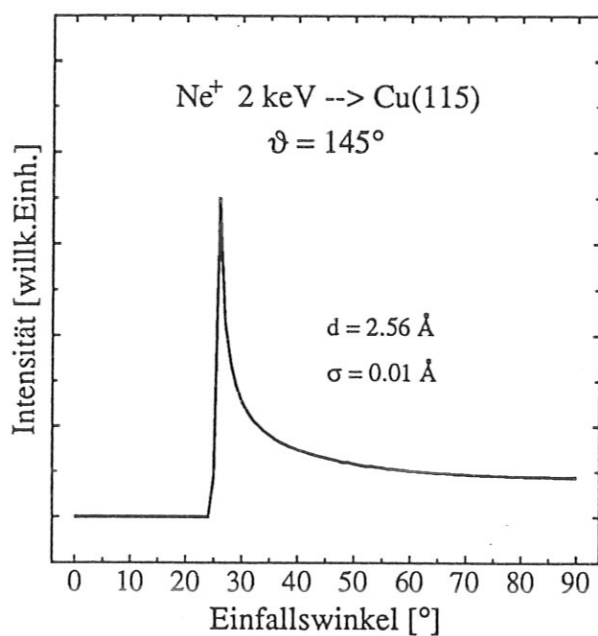


Abbildung 20: Simuliertes ICISS-Spektrum, Ne⁺ 2 keV an Cu(115) bei T = 2 K. (Programm ICISS-SIM)

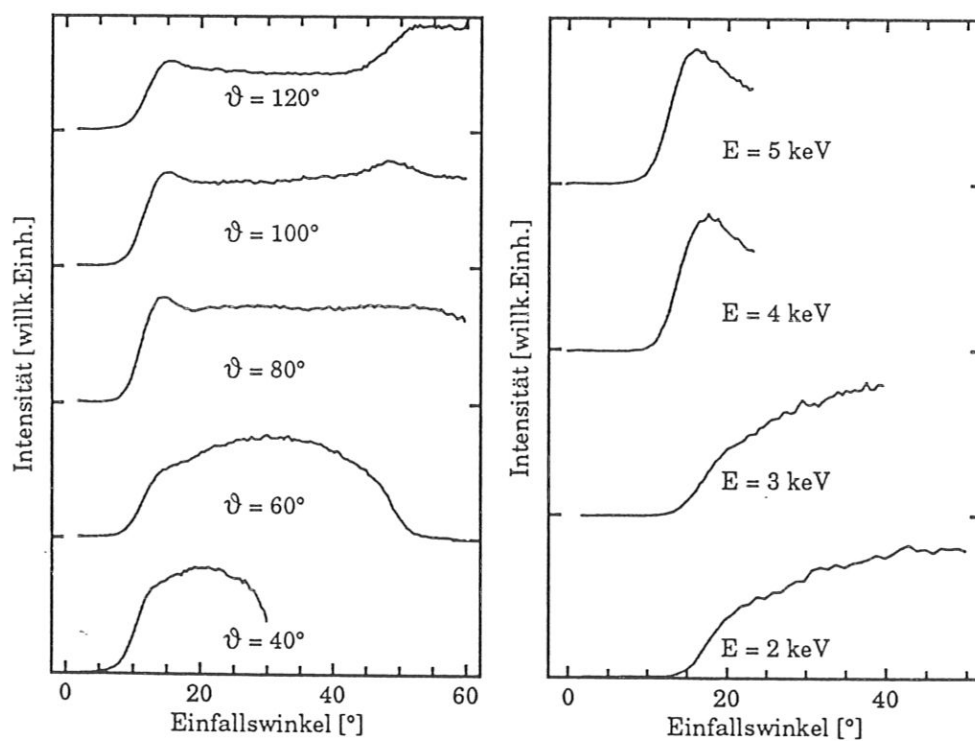


Abbildung 21: ICISS-Spektren von Ne⁺ an Cu [Van d. Riet et al. (1989)].
 Linkes Bild: in Abhängigkeit vom Streuwinkel für Ne⁺ mit 5 keV,
 Rechtes Bild: in Abhängigkeit von der Primärenergie für Ne⁺ und $\vartheta = 120^\circ$.

die Neutralisation der gestreuten Teilchen zu finden ist und daher die Intensitätsverteilung der Flußverteilung entspricht. *Fauster* und *Metzner* (1986) zeigen eine starke Abhängigkeit der ICISS-Verteilung von der Primärenergie. Bei der Verwendung von Alkaliionen (ALICISS) kann der Einfluß der Neutralisation auf die Flußverteilung ausgeschlossen werden, da die Neutralisation von Alkaliionen nicht trajektorienabhängig ist. Da bei ICISS, durch die großen Streuwinkel mehrfache Großwinkelstreuung ausgeschlossen ist, ist die Interpretation der Alkalidaten wesentlich vereinfacht. Werden kleinere Streuwinkel gewählt, so ist ein Vergleich der experimentellen Daten mit Computersimulationen unumgänglich, um die auftretenden Mehrfachstreueffekte zu berücksichtigen.

Aber nicht nur Abschattungseffekte, sondern auch Abblockungseffekte sind zu berücksichtigen, besonders wenn man Abstände in tieferen Lagen bestimmen möchte (Abb.22). Nach der Streuung an Atomen in tieferen Lagen werden die Ionen durch oberflächennähere Atome abgelenkt und so an ihrem Weg zum Detektor gehindert. Unter Berücksichtigung der verringerten Energie des Ions nach dem ersten Stoß, läßt sich äquivalent ein Schattenkegel für den Austritt und ein kritischer Austrittswinkel definieren.

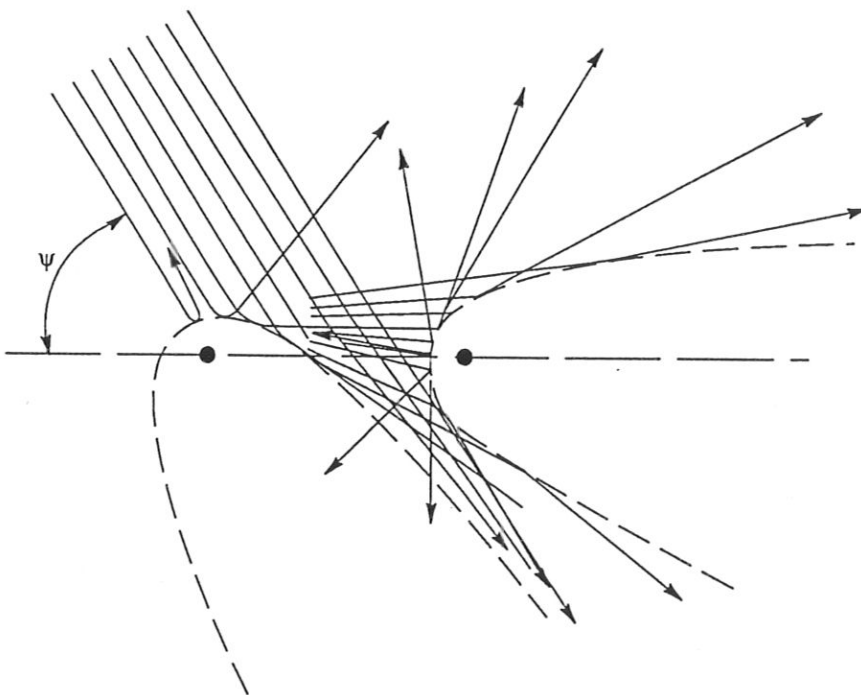


Abbildung 22: Abschattungs- und Abblockungseffekte

Beachtet man alle diese Fakten, so ist zu erwarten, daß eine wohlgeordnete Oberflächenstruktur eine charakteristische Intensitätsverteilung liefert. Durch Variation der Streubedingungen gelingt es, aus Überlegungen von Abschattungs- und Abblockungseffekten, ein Bild der Oberfläche zu erzeugen, und zwar im Ortsraum. Die Anwendung dieser Methode zur Bestimmung von Kristallstrukturen erfordert eine genaue Kenntnis der Schattenkegeldimensionen. Wie schon erwähnt, kann die Wechselwirkung zwischen Ionen und Atomen im Energiebereich über 100 eV durch ein abgeschirmtes Coulombpotential beschrieben werden. Für die Abschirmfunktion kann die Molière-Näherung zum Thomas-Fermi-Modell oder die empirische Ziegler-Biersack-Littmark-Approximation gewählt werden. Berechnungen des Schattenkegels wurden von *Oen* (1983) und *Fauster et al.* (1988) durchgeführt. Auch auf experimentelle Weise wurde der Schattenkegel von mehreren Autoren, z.B. von *Aono et al.* (1982) und von *Niehus und Comsa* (1984), ausgemessen. Abbildung 23 zeigt die Asymptoten der Trajektorien eines einfallenden Ions m_1 , das sich an ein Atom m_2 nähert.

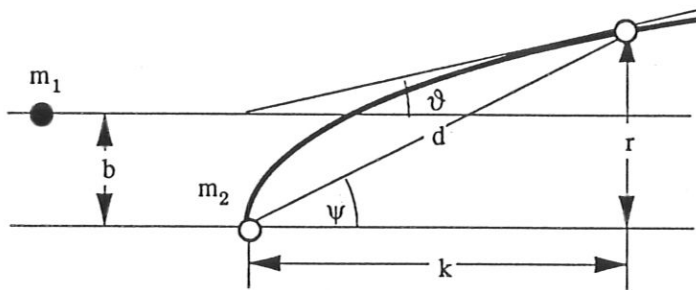


Abbildung 23: Streugeometrie zur Bestimmung des Schattenkegels.

Einfache geometrische Überlegungen stellen den Zusammenhang zwischen ψ , dem Schattenkegelradius r und dem Abstand d her. Das Ion nähert sich unter dem Stoßparameter b dem Atom. Nach der Streuung um den Winkel ϑ , ist seine Trajektorie durch den Abstand r bei einer Distanz k hinter dem Atom gegeben.

$$\psi = \vartheta + \arcsin(b \cos \vartheta / d) \quad (19)$$

Oen (1983) gibt unter Verwendung des Thomas-Fermi-Molière-Potentials eine Formel für den Schattenkegelradius r_c im Abstand k hinter dem Streuzentrum mit einer Genauigkeit von 1% an, wobei E die Primärenergie des einfallenden Ions und a die Abschirmlänge ist.

$$\frac{r_c}{2\sqrt{A} k a} = \begin{cases} 1.0 - 0.12\alpha + 0.01\alpha^2 & 0 \leq \alpha \leq 4.5 \\ 0.924 - 0.182 \ln\alpha + 0.0008\alpha & 4.5 \leq \alpha \leq 100 \end{cases} \quad (20)$$

$$\text{mit } \alpha = \frac{2\sqrt{A} k a}{a} \quad \text{und} \quad A = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{E a}$$

Für experimentelle Arbeiten ist diese Beschreibung des Schattenkegels jedoch nicht geeignet. Im Experiment wird nicht $r(k)$ direkt gemessen, sondern der Winkel ψ , den die Asymptote des einfallenden Ions mit der Linie d d.h. mit der Oberfläche einschließt.

Fauster (1988) gibt den kritischen Winkel als Funktion zweier Variabler d und A an. Der numerisch berechnete Winkel (TFM-Potential) kann durch einen analytischen Ausdruck der Form

$$\ln\psi_c = 4.6239 + \ln(d/a) (-0.0403 \ln A - 0.6370) + \ln A (-0.0158 \ln A + 0.4647) \quad (21)$$

$$\text{mit } A = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{4\pi\epsilon_0 E a}$$

beschrieben werden. Der zu ψ_c gehörende Stoßparameter b_c kann aus Gleichung 22 berechnet werden.

$$\ln(b_c/a) = 0.0327 + \ln(d/a) (-0.0317 \ln A + 0.3655) + \ln A (-0.0206 \ln A + 0.4898) \quad (22)$$

Zur Demonstration des Verlaufes der beiden Parameter ψ_c und b_c sind diese für die Streuung von Neon mit 1.5 keV an Kupfer in Abhängigkeit vom Atomabstand d in der nächsten Abbildung dargestellt.

Kennt man nun die Geometrie des Schattenkegels, so hat man die Möglichkeit aus dem ICISS-Spektrum den kritischen Winkel abzulesen und dann aus Gleichung 21 den entsprechenden Abstand d auszurechnen oder über Schnitte der Schattenkegelhülle mit einer fiktiven Ebene den Abstand d graphisch zu bestimmen. Welchen Winkel man als kritischen Winkel wählt, wird von unterschiedlichen Autoren unterschiedlich gehandhabt. *Dürr* und *Niehus et al.* (1984) wählen 50% des Intensitätsmaximums zur Bestimmung von ψ_c , während *Aono* den Wert bei 70% und *Hetterich et al.* den Wert bei 80% wählen, *Beckschulte* wertet den Winkel direkt im Intensitätsmaximum aus. Eine Eichung kann an einer bekannten Oberfläche erfolgen. Wichtig ist die konsistente Wahl von ψ_c und dem Reduktionsfaktor der Abschirmlänge.

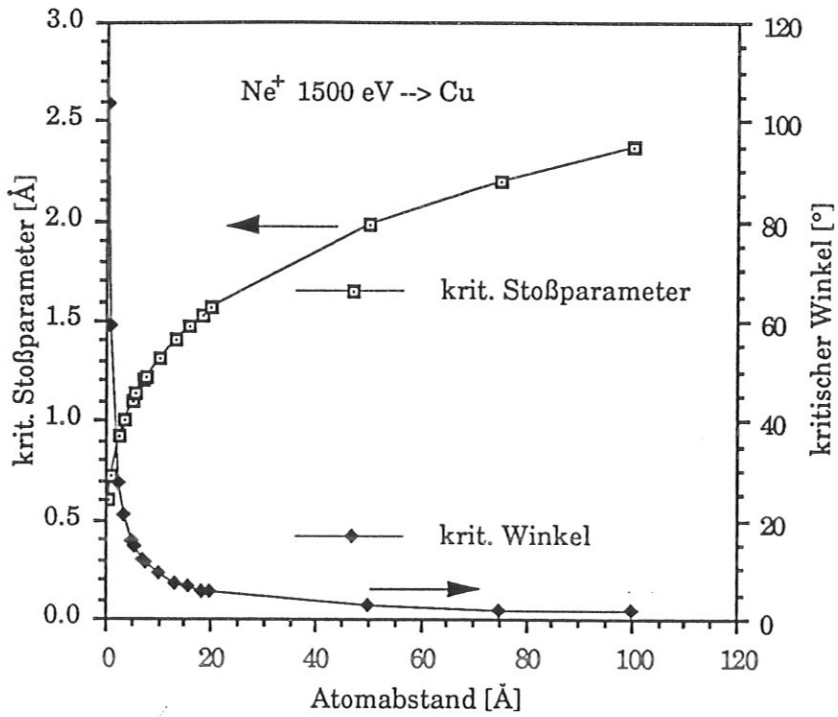


Abbildung 24: Der kritische Stoßparameter und der kritische Winkel in Abhängigkeit vom Atomabstand, für Ne⁺ gestreut an Cu mit einer Energie von 1.5 keV.

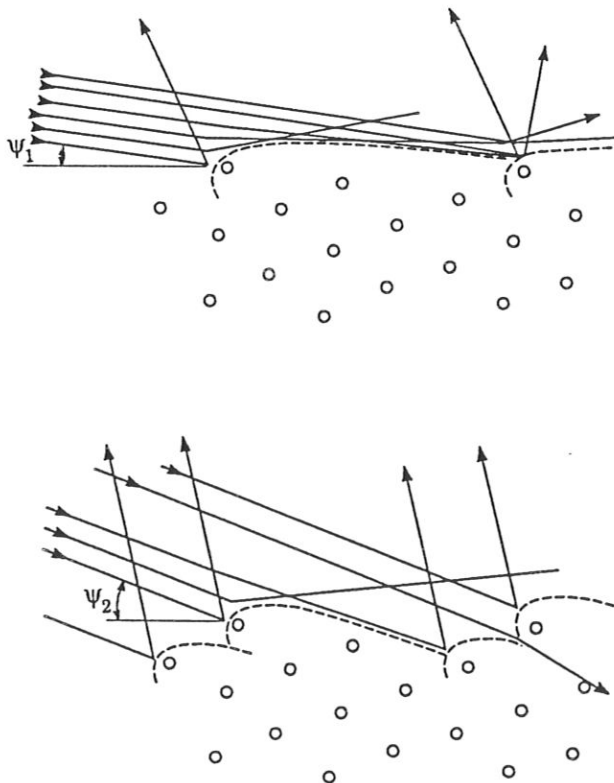
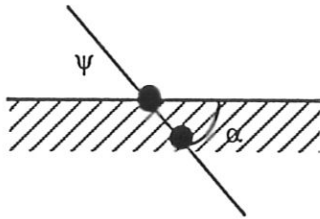


Abbildung 25: Der kritische Winkel bei Streuung an verschiedenen Atomlagen.

Abbildung 25 zeigt die unterschiedlichen kritischen Winkel für die Streuung aus erster und zweiter Atomlage. Gehören die zwei betrachteten Nachbaratome unterschiedlichen Lagen an, so ist der effektive kritische Winkel ψ_{eff} durch Gleichung 23 gegeben.



$$\psi_{eff} = \psi_c + \alpha \quad (23)$$

Bei ISS ist, wegen der niedrigen Energien, der Schattenkegelradius in der Dimension der Gitterabstände des Festkörpers. Deshalb ist der Schattenkegel besonders geeignet Nächste-Nachbar-Abstände zu bestimmen. Aber nicht nur Nächste-Nachbar-Abstände können mit ICISS bestimmt werden, sondern auch Adsorbatplätze, Bindungslängen von Adsorbaten bzw. Adsorbat bedingte Rekonstruktionen usw. [Dürr (1990), Hetterich (1991), Beckschulte (1992), Fauster et al. (1986)]. Mißt man Nächste-Nachbar-Abstände in der Oberfläche in Abhängigkeit von der azimuthalen Richtung aus, so erhält man auf einfache Art, und vor allem direkt im Ortsraum, eine Information über die Struktur der Oberfläche. Des weiteren ist ICISS hervorragend geeignet, um den Einfluß der Oberflächentemperatur auf die Streuung zu beobachten [Engelmann (1987)], siehe Kapitel "Einflüsse der thermischen Schwingungen ...".

2.6. Einflüsse der thermischen Schwingungen der Oberflächenatome auf die Ionenstreuung

Alle vorangegangenen Überlegungen beruhen auf der Annahme, daß die Kristallatome an einem festen Gitterplatz ruhen. Berücksichtigt man die thermischen Vibrationen der Atome, so sind Auswirkungen, vor allem in den strukturbestimmenden Methoden (siehe Kap. "Strukturbestimmung"), aber auch in der Energie- und Massenauflösung, zu erwarten. Verschiedene Modelle können zur Beschreibung der thermischen Bewegungen herangezogen werden. Bei großen thermischen Amplituden scheint das 2-Atom-Modell, in dem nur die relativen Schwingungen zweier nächster Nachbarn betrachtet werden, zu versagen. Das 2-Atom-Modell kann durch ein Ketten-Modell ersetzt werden, wobei bereits bei einer Kettenlänge von 3 Atomen zufriedenstellende Ergebnisse erzielt werden können [Dürr *et al.* (1990)].

2.6.1. Einflüsse auf die Energie- und Massenauflösung

Bisher wurde die Energie E_I^{aus} nach dem binären Stoßmodell berechnet, ohne eine Bewegung des Targetatoms zu berücksichtigen. Diese thermischen Schwingungen sind als endliche Geschwindigkeitsverteilung, der bis jetzt als ruhend betrachteten Targetatome, in der Stoßkinematik zu berücksichtigen. Die Energie der Phononen E_{phon} ist zu klein, um einen direkten Einfluß auf die Energie des rückgestreuten E_I^{aus} Ions zu haben. Der Impulstransfer führt aber zu einer endlichen Energiebreite ΔE_I^{aus} . Nach Hulpke (1975) berechnet sich die endliche Energiebreite ΔE_I^{aus} zu

$$\Delta E_I^{aus} = 8 (A-1) (A+1)^{-2} \sqrt{A E_0 E_{phon}} \quad (24)$$

Als Beispiel soll die thermisch bedingte Energiebreite eines an Kupfer gestreuten Neonions mit 1 keV Primärenergie und einem Streuwinkel von 145° berechnet werden:

bei Raumtemperatur : $E_{phon} = 30 \text{ meV}$

$$\Delta E_I^{aus} = 9.7 \text{ eV} \quad E_I^{aus}(\psi = 145^\circ) = 301 \text{ eV} \quad \rightarrow \quad \Delta E_I^{aus} / E_I^{aus} \approx 0.03$$

Da die Massenauflösung linear mit der Energieauflösung zusammenhängt, ist zu sehen, daß die totale Energieauflösung - Ionenquelle und Analysator - bei 3 % liegen soll.

2.6.2. Einflüsse auf die Mehrfachstreuung

Geht man wiederum von der Streuung an einer Kette aus, so ist mit Hilfe von Abbildung 26 ersichtlich, daß die thermischen Schwingungen der Atome zu starken Verschmierungen der Energieverteilung führen.

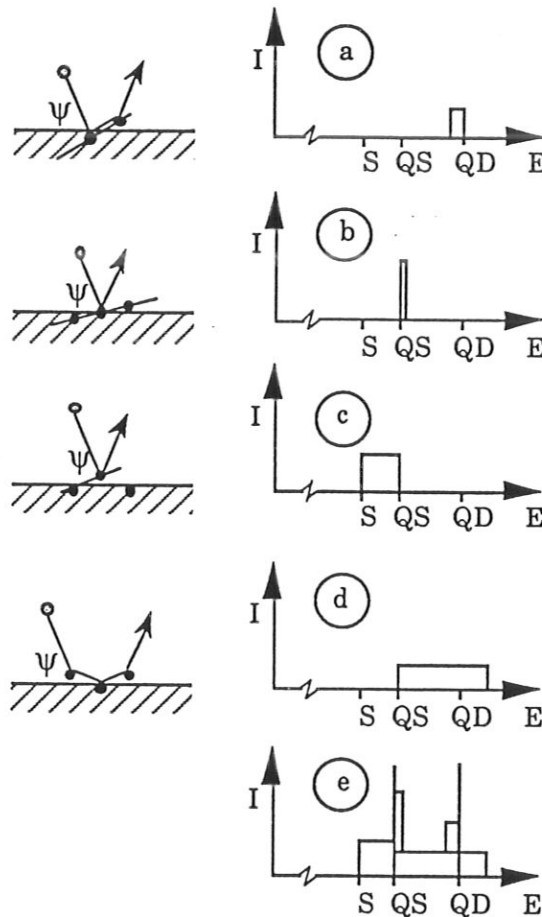


Abbildung 26: Darstellung der thermischen Auswirkungen auf die Energieverteilung. Die Bilder a - d zeigen einzelne Streusituationen, Bild e die Summe aller möglicher Streuungen [Poelsema et al. (1976)].

Zum Vergleich soll auf Abbildung 11 hingewiesen werden, welche die Streuung bei $T=0$ K an einer "eingefrorenen" Atomkette darstellt. Die ersten vier Bilder aus Darstellung 26 zeigen der Reihe nach die Auswirkung thermischer Vibrationen. Der "QD"-Peak verbreitert sich, entsprechend der statistisch unterschiedlichen Streuwinkel ϑ_1 und ϑ_2 , zu kleineren Energien (Bild a). Die Energie der "QS"-Streuung kann auf ver-

schiedene Arten verändert werden (Bilder b-c). Bleibt das Streuzentrum in der Oberfläche und bewegen sich seine Nachbarn aus der Fläche hinaus, erhöht sich die "QS"-Energie entsprechend um einige eV (Bild b). Schwingt das Atom z.B. aus der Oberfläche heraus, sodaß es vom Ion als einzelner Streupartner gesehen wird, verbreitert sich der "QS"-Peak bis hin zur Energie für die theoretische Einfachstreuung (Bild c). Ebenso wird aber auch Mehrfachstreuung (Doppel- und Dreifachstreuung) möglich (Bild d). Ein reales Spektrum (Bild e) stellt die Summe aller dargestellten Möglichkeiten, gefaltet mit der Auflösung des Analysators, dar.

2.6.3. Einflüsse auf das Oberflächen-Channeling

Die für eine Oberfläche charakteristischen Strukturen in Azimutpektren werden, bei kleinen Einfallswinkeln, durch Channeling der einfallenden Ionen entlang ausgezeichneter Richtungen an der Oberfläche erzielt.

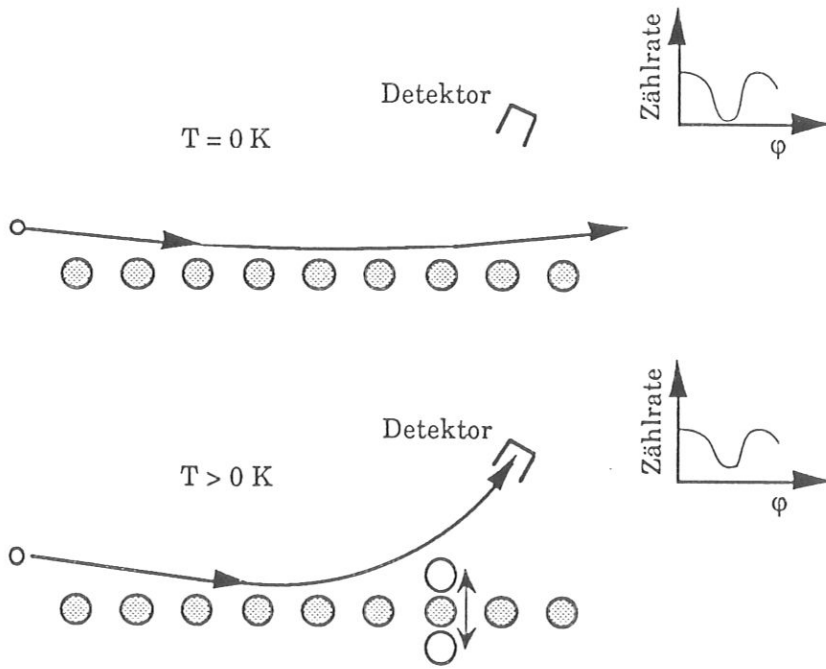


Abbildung 27: Schematische Darstellung der Auswirkungen der thermischen Schwingungen auf das Channeling-Phänomen.

Schwingen die Atome der dichtgepackten Ketten stark um ihren Gitterplatz, so werden die Kanäle "verstopft" und die Ionen werden in größere Streuwinkel abgelenkt - die Intensität in den Tälern der Azimutspektren nimmt zu. Abbildung 27 stellt diesen Effekt dar. Im oberen Bild erleidet der einfallende Ionenstrahl Spiegelreflexion an einer langen geraden Kette, kein Ion findet den Weg in den Detektor. Im schematisch dargestellten Azimutspektrum ist die Intensität im Tal, dessen azimuthaler Winkel dem der Kettenrichtung entspricht, gering. Beginnen nun die Atome um ihre Ruheposition zu schwingen (im unteren Bild gekennzeichnet durch weiße Kreise), so werden hin und wieder Ionen abgelenkt und erreichen den Detektor, die Intensität im Tal nimmt zu.

2.6.4. Einflüsse auf den Abschattungseffekt

Der Anstieg der Intensität beim kritischen Winkel ψ_c in den ICISS-Spektren entspricht bei ruhenden Oberflächenatomen dem Heraustreten der Atome aus dem Schattenkegelrand ihrer Nachbaratome bei Änderung des Einfallswinkels. Wenn die Oberflächenatome bei $T > 0$ K thermisch schwingen, bewegen sie sich aus dem Schattenkegelrand heraus und hinein und tragen somit, je nach Einfallswinkel, mehr oder weniger zur Streuung bei, dargestellt in Abbildung 28.

Im Bild a ist die mittlere Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Atoms außerhalb des Schattenkegelrandes am größten, das Atom liefert einen großen Beitrag zur Streuintensität. Fall c zeigt das "kälteste" Targetatom, es hat seine größte Aufenthaltsdauer innerhalb des Schattenkegelrandes und trägt demnach kaum zur Streuung bei. Das mittlere Bild stellt einen Mittelweg dar. Die Intensitätsverteilungen sind im rechten Teil der Abbildung 28 dargestellt. Die gefärbten Flächen der Gaußverteilungen zeigen den unterschiedlichen Beitrag zur Streuung.

Schon bei kleineren Einfallswinkeln werden aufgrund der Schwingungen Streubeiträge erwartet. Der Anstieg beim kritischen Winkel wird verbreitert, d.h. dem charakteristischen Anstieg ist für $T > 0$ K, neben der experimentellen Auflösung, eine thermische Verbreiterung überlagert (siehe Abbildung 29).

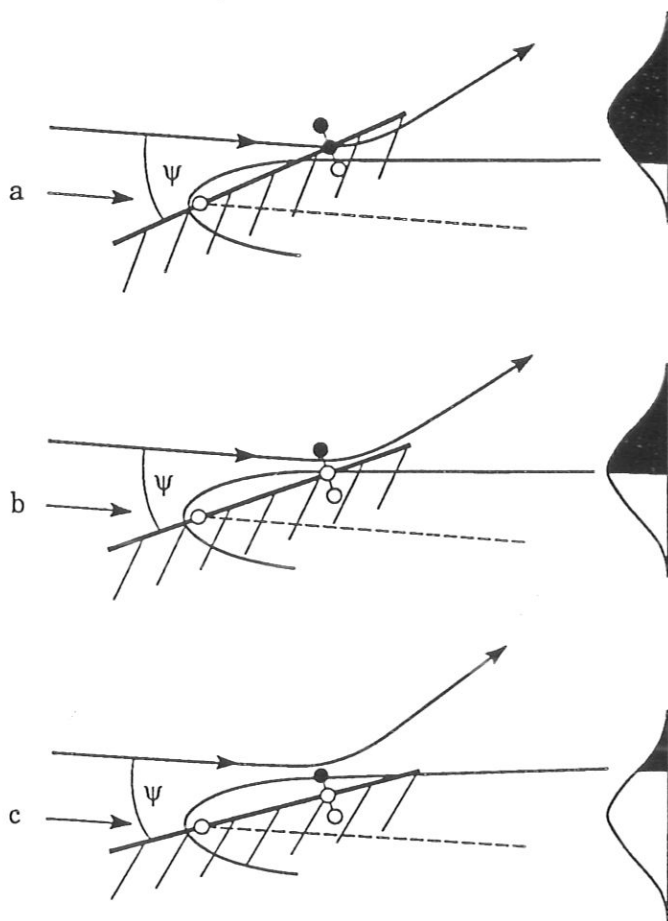


Abbildung 28: Der Beitrag thermisch schwingender Atome zur Streuintensität einer ICISS-Verteilung. In allen drei Fällen trifft das Ion unter dem gleichen Einfallswinkel auf die Oberfläche. **Fall a:** Bei großer thermischer Amplitude befindet sich das Atom die meiste Zeit außerhalb des Schattenkegels und trägt verstärkt zur Intensität bei. **Fall b:** Das Atom befindet sich die halbe Zeit innerhalb, die halbe Zeit außerhalb des Schattenkegels - halbe Intensität. **Fall c:** Das Atom ist zu gering ausgelenkt, um aus dem Schattenkegelrand hinauszuragen, geringe Streuintensität ist die Folge [nach Engelmann (1987)].

Zusätzlich zur Verbreiterung ist eine leichte Verschiebung von ψ_c zu kleinerem Einfallswinkel ψ_c^{therm} zu erwarten (Gl. 25). Die Atome schwingen mit einer Varianz σ um ihren Ruheplatz, wobei Schwingungen senkrecht zur Oberfläche den größten Beitrag liefern.

$$\psi_c^{therm} = \psi_c - \arctan(\sigma_{rel}/d) \quad (25)$$

Atome an der Oberfläche haben, aufgrund ihrer geringeren Koordinationszahl, d.h. aufgrund der asymmetrisch wirkenden Kräfte, höhere Schwingungsamplituden als

Atome im Volumen. Die Debye-Temperatur Θ_D ist an der Oberfläche niedriger (bis zu einem Faktor 2) als im Volumen. Die Debye-Temperatur beschreibt die Temperatur, oberhalb der alle Moden angeregt sind, bzw. für $T < \Theta_D$ beginnen Moden einzufrieren. Für Kupfer liegt die Volumen-Debye-Temperatur bei 343 K (*Kittel*), *Ashcroft* gibt 315 K für Θ_D im Volumen an. σ^2 ist für harmonisch schwingende Atome durch das Debye-Modell beschrieben (m_i Masse des Targetatoms, k_b Boltzmann-Konstante, Θ_D Debye-Temperatur, \hbar Plancksches-Wirkungsquantum)

$$\sigma^2 = \frac{3 \hbar^2}{m_i k_b \Theta_D^2} T \quad \text{für } T \geq \frac{\Theta_D}{4} \quad \sigma_{rel}^2 = 2 \sigma^2. \quad (26)$$

Da relative Schwingungen zweier Atome zueinander betrachtet werden, ist σ^2 mit dem Faktor 2 zu multiplizieren. Das ICISS-Spektrum, bei einer bestimmten Temperatur, kann durch Faltung des Spektrums bei $T=0$ K mit einer Gaußverteilung der Varianz $\sigma(T)^2$ berechnet werden. Abbildung 29 zeigt das Resultat einer derartigen Berechnung.

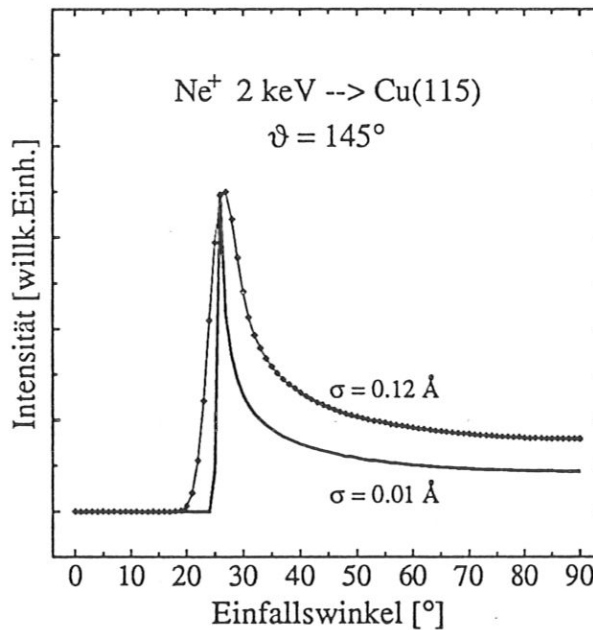


Abbildung 29: Vergleich der berechneten ICISS-Spektren für eine Oberfläche bei $T = 2 \text{ K}$ und bei sommerlicher Raumtemperatur (315 K).

2.7. Zerstäubung

Treffen ein heißes Plasma oder ein Strahl energetischer Teilchen (Ionen, Elektronen, Neutronen, Photonen, ...) auf eine Festkörperoberfläche, so werden verschiedene Prozesse der Wechselwirkung angeregt. Ein Teil der Projektile wird am Festkörper rückgestreut, der andere Teil wird an der Oberfläche abgebremst und kann dort "gefangen" werden oder ins Volumen diffundieren. Elektronen und Photonen werden von der Festkörperoberfläche emittiert. Verlassen Atome die Oberfläche, so spricht man von Zerstäuben. Dieser Effekt des Zerstäubens von Festkörpern wurde bereits vor vielen Jahren entdeckt. 1902 sprach Goldstein bereits von Zerstäubung einer Kathode durch Ionenbeschuß [Goldstein (1902)]. Ein historischer Überblick wird von *Sigmund* gegeben.

Ioneninduziertes Zerstäuben von Festkörpern spielt in vielen Gebieten der Forschung und der Technologie, wie zum Beispiel der Ionenimplantation, der Plasma-Wand-Wechselwirkung bei Fusionsexperimenten, bei der Dünnschichterzeugung und der Oberflächenanalyse eine wichtige Rolle. Abhängig von der Beschaffenheit des Festkörpers (einkristallines Material oder polykristallines Material, monoatomarer Festkörper oder Legierung) und des Projektils (Stromdichte, Ionenart ...) sind unterschiedliche Mechanismen und Prozesse in der Projektil-Target-Wechselwirkung für die Zerstäubung verantwortlich. Außerdem müssen bei einkristallinen Festkörpern Einflüsse der Kristallstruktur berücksichtigt werden. Bei Legierungen sind Festkörperprozesse wie Diffusion und Segregation und im speziellen präferentielles Zerstäuben zu beachten. Je nach Reaktivität der Ionen, kann es auf der Oberfläche zu chemischen Wechselwirkungen zwischen Projektil und Target kommen, wie zum Beispiel beim Beschuß von Graphit mit Wasserstoffionen. Dieser Vorgang des Zerstäubens wird chemisches Zerstäuben genannt, im Gegensatz zu physikalischer Zerstäubung, wie sie durch den Beschuß mit Edelgasionen auftritt. Eine Grenze zwischen chemischer Erosion und physikalischem Zerstäuben ist allgemein schwer zu ziehen.

Grundsätzlich wird davon ausgegangen, daß ioneninduziertes Zerstäuben durch Energie- und Impulsübertrag bei Stößen der einfallenden Teilchen mit dem Festkörper bzw. anschließend bei Stößen der Festkörperatome untereinander ausgelöst wird. Erhält das Festkörperatom genügend kinetische Energie senkrecht zur Oberfläche um

die Oberflächenbindungsenergie zu überwinden, kann es den Festkörper verlassen. Wird die Energie direkt über einen einzigen Stoß durch das einfallende Teilchen übertragen, so spricht man vom "single-knock-on"-Regime, erhält das Teilchen seine Energie jedoch über eine Stoßkaskade von Rückstoßatomen, so nennt man dieses Regime "cascade regime". Während schwere Ionen (Ne^+ , Ar^+ , ...) durch Stoßkaskaden, die direkt durch die einfallenden Ionen erzeugt werden, zerstäuben, ist die Zerstäubung bei leichten Projektilen (He^+ , ...) auf die Rückstreuung der Ionen an Atomen im Inneren des beschossenen Festkörpers zurückzuführen. Die Zerstäubung mit leichten Ionen in einem Energiebereich von bis zu 1 keV findet im Bereich der Einzelstöße statt. Für jede Projektil-Target-Kombination existiert eine bestimmte Schwellenenergie E_{th} unterhalb derer keine Zerstäubung möglich ist. Stellt U_s die Oberflächenbindungsenergie und γ den maximalen Energieübertrag (m_1 ... Masse Ion, m_2 ... Target) dar, so kann die Schwellenenergie nach Gleichung 27 berechnet werden.

$$E_{th} = \frac{U_s}{\gamma(1-\gamma)} \quad \gamma = 4 \frac{m_1 m_2}{(m_1 + m_2)^2} \quad (27)$$

Die emittierten Teilchen besitzen eine breite Energie- und Winkelverteilung, ihre Energie liegt in der Größenordnung von 10 eV. 60% der zerstäubten Atome resultieren aus der ersten Atomlage [Behrisch (1980,1983,1991)].

Zur quantitativen Beschreibung der Zerstäubung wird die Zerstäubungsausbeute oder Abtragsrate Y definiert. Y kann, je nach Projektil-Target-Kombination und Energie, Werte zwischen 10^{-5} und 10^3 annehmen.

$$Y = \frac{\text{Anzahl zerstäubter Teilchen}}{\text{Anzahl einfallender Teilchen}} \quad (28)$$

Die Zerstäubungsausbeute von Metallen ist im allgemeinen bei Temperaturen $T \ll T_m$ von der Temperatur nahezu unabhängig (T_m ... Schmelztemperatur). Ein starker Temperatureffekt wird bei der Zerstäubung von Halbleitern gefunden, wo sich die Charakteristik der Zerstäubungsausbeute völlig ändert. Aber auch Ferromagnete zeigen bei Temperaturen $T \sim T_c$ ein geändertes Verhalten in Y [Roosendaal].

Die energieabhängige Zerstäubungsausbeute für senkrechten Einfall Y_0 kann für die jeweilige Ion-Target-Kombination mit Hilfe einer empirischen Gleichung der Form 29 beschrieben werden. Die von der Ion-Target-Kombination abhängigen Parameter (a^* , ϵ , s_n , s_e) werden durch Anpassung an experimentelle Daten (Gewichtsverlust-

messungen, Interferometrie, ...) bestimmt. Q ist ein empirischer Parameter, E_{th} die Schwellenenergie, U_s ist die Sublimationsenergie in eV, K die "stopping power" [Matsunami et al. (1983)].

$$Y_0(E) = 0.42 \frac{\alpha^* Q K s_n(\epsilon)}{U_s [1 + 0.35 U_s s_e(\epsilon)]} \left[1 - \sqrt{E_{th}/E} \right]^{2.8} \quad (29)$$

Die Abhängigkeit der Zerstäubungsausbeute $Y(E, \alpha)$ vom Einfallswinkel ist durch die Gleichungen 30a und 30b gegeben [Yamamura et al. (1983)]. Der Winkel α ist der Winkel zur Oberflächennormalen und nicht der Winkel zur Oberfläche!

$$\frac{Y(E, \alpha)}{Y_0} = t^f \cdot \exp[-\Sigma(t-1)] \quad t = \frac{1}{\cos \alpha} \quad (30a)$$

f und Σ sind Fitparameter zur Anpassung an das Experiment. Für nicht zu schrägen Einfall, das heißt für $\alpha < 60^\circ$, kann näherungsweise mit

$$Y(E, \alpha) = \frac{Y_0}{\cos \alpha} \quad (30b)$$

gerechnet werden. In Abbildung 30 sieht man ein starkes Abweichen der Ausbeute für sehr schrägen Einfall (Symbole nach Gl. 30a, Punkt-Linien nach Gl. 30b).

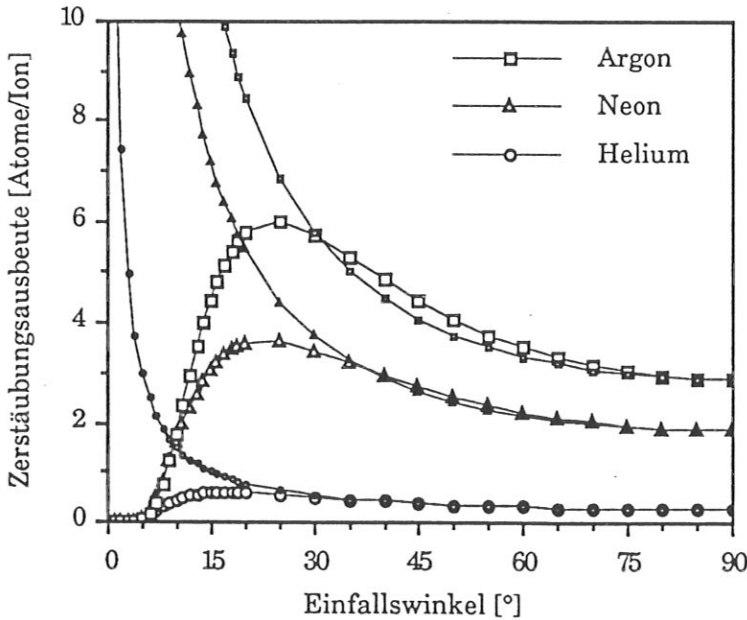


Abbildung 30: Winkelabhängige Zerstäubungsausbeute $Y(E, \alpha)$ für Argon, Neon und Helium mit einer Energie von 1 keV auf polykristallinem Kupfer (Symbole nach Formel 30a, — Formel 30b).

Die Zerstäubungsausbeute einer einkristallinen Festkörperoberfläche hängt von der kristallographischen Orientierung des Targets relativ zur Richtung des Ionenstrahls ab. Treffen die einfallenden Teilchen mit einer Energie von einigen wenigen keV parallel zu einer niedrigindizierten Richtung auf, so liegt die beobachtete Zerstäubungsausbeute unter der für polykristallines Material, entsprechend dem Channelingeffekt. Eine höhere Zerstäubungsausbeute kann für höherindizierte Richtungen bestimmt werden. Im Bereich bis zu einer Energie von 2 keV, variiert die Zerstäubungsausbeute Y_0 für den Beschuß von Argon auf Kupfer um einen Faktor von ~ 3 für verschiedene Kristalloberflächen. Y_0 erweist sich als ungefähr proportional zu den entsprechenden interatomaren Abständen. Zurückzuführen sind diese, kristallographisch bedingten, Unterschiede auf Kanalisierungs- und Fokussierungseffekte an der Oberfläche, wie sie von *Onderdelinden* beschrieben werden. Ein äußerst schwacher Einfluß der Proben temperatur auf diese Effekte, über thermische Vibrationen oder durch Ausheilen der zerstörten Oberfläche, konnte gefunden werden [*Roosendaal* (1983)].

Die für diese Arbeit relevanten Zerstäubungsausbeuten (näherungsweise berechnet für polykristalline Proben) sind in Abbildung 31 dargestellt.

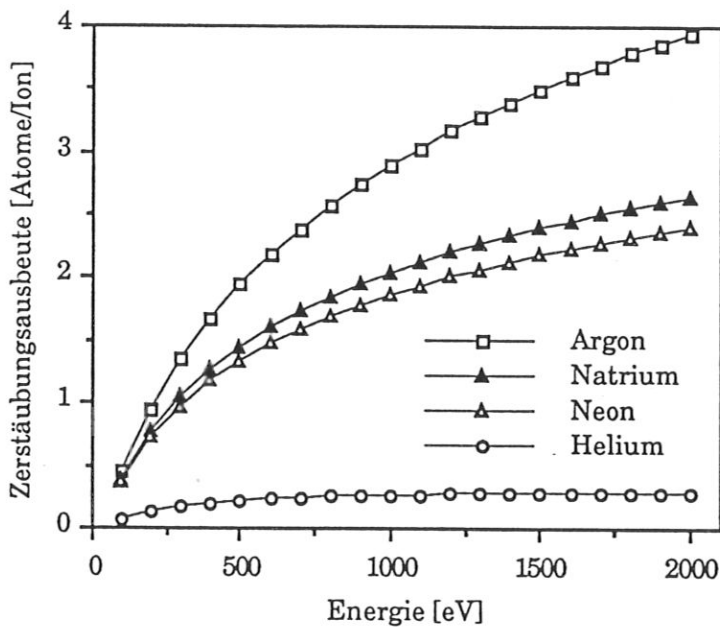


Abbildung 31: Energieabhängige Zerstäubungsausbeute Y_0 für unterschiedliche Ionen auf polykristallinem Kupfer, berechnet nach Gleichung 29.

Dargestellt ist die Energieabhängigkeit der Zerstäubungsausbeuten Y_0 für Helium, Neon, Natrium und Argon auf Kupfer in einem Energiebereich von 100 - 2000 eV. Der

Unterschied in Y_0 von polykristalliner zu einer (113)-Oberfläche liegt für 1 keV bei 2.9 zu 3, für 2 keV bei 4 zu 5, also innerhalb des Fehlers von Y_0 , der bei ~20% liegt [Roosendaal]. Für Helium ist die Zerstäubungsausbeute erwartungsgemäß kleiner als 1 und geht rasch in Sättigung, während für Neon und Natrium und im besonderen für Argon eine höhere Abtragungsrate erzielt wird.

Die Zerstäubungsausbeute Y ist abhängig von dem Potential der Projektil-Tar-get-Wechselwirkung. Abbildung 32 vergleicht $Y(E, \alpha)$ für Neonionen mit einer Energie von 1 keV auf polykristallinem Kupfer berechnet mit dem Simulationsprogramm TRIM.SP (Kr - C Potential, Eckstein) und der empirischen Formel von Yamamura und Matsunami (Gl. 29, 30a).

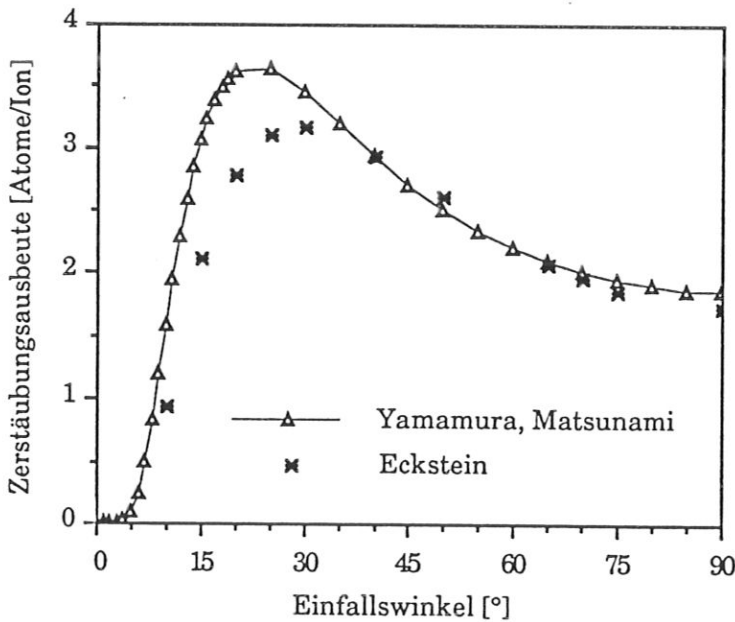


Abbildung 32: Zerstäubungsausbeute $Y(E, \alpha)$ für Neon mit einer Energie von 1 keV auf polykristallinem Kupfer. Die Dreiecke sind nach den Formeln von Yamamura und Matsunami (s.Gl. 29, 30a) berechnet, die Sternchen mit TRIM.SP (Kr-C Potential) von Eckstein.

Die experimentelle Abtragungsrate Z_i berechnet sich nach Formel 31 aus der winkel- und energieabhängigen Zerstäubungsausbeute $Y(E, \alpha)$, der Primärstromdichte J_0 und der Teilchendichte N_i

$$Z_A \text{ [ML/s]} = \frac{J_0 \text{ [A/cm}^2\text{]}}{N_i \text{ [T/cm}^2\text{]} \cdot 1.602 \cdot 10^{-19}} Y(E, \alpha) \quad (31)$$

Um zu den in dieser Arbeit durchschnittlich verwendeten Stromdichten und Einfallswinkel Bezug zu nehmen, sind einige Zahlenwerte angegeben. Bei einer Stromdichte (z.B. Ne^+ mit 1 keV) von $J_0 = 150 \text{ nA/cm}^2$ werden, je nach Einfallswinkel zur Oberfläche, Abtragungsraten von einigen 10^{-4} ML/s erreicht. Die durchschnittliche Meßdauer beträgt zwischen 3 und 10 Minuten pro Spektrum. Hier wird der Vorteil der Alkaliionenstreuung deutlich, wenn man bedenkt, daß für die gleiche Statistik nur 1% der Primärstromdichte der Edelgasstreuung benötigt wird.

2.8. Simulation der Experimente

Die Komplexität der experimentellen Daten erfordert in den meisten Fällen die Unterstützung durch Simulationsrechnungen. Die qualitativ besten Ergebnisse erreicht man mit recht umfangreichen, 3-dimensionalen Monte-Carlo-Rechnungen. Diese Programme sind durch ihre große Anzahl an Parametern sehr leistungsstark, aber dementsprechend auch rechenzeitintensiv. Für eine zufriedenstellende Statistik werden durchaus CRAY-Stunden benötigt. Aber auch wesentlich einfachere 2-dimensionale Modelle ermöglichen in vielen Fällen eine gute Simulation der experimentellen Daten. Beide Modelle berechnen die Trajektorien eines einzelnen Ions auf der Basis des binären Stoßmodells.

2.8.1. 3-dimensionale Simulation

Ein umfassendes Programm, welches alle physikalischen Aspekte (außer der Neutralisation der Ionen an der Oberfläche) der Streuung berücksichtigt, ist das von *Robinson et al.* entwickelte Programm MARLOWE. Die Idee dieses Programmes ist, die Trajektorien eines einzelnen Ions auf Basis des binären Stoßmodells zu berechnen. Dazu wird der Festkörper mit allen seinen physikalischen Eigenschaften wie thermische Schwingungen, permanente Verlagerungen usw. simuliert. Eine Auswahl der Struktur der Kristalloberfläche ist möglich. Die Streuung der Projektile wird unter Verwendung des binären Stoßmodells und der Simulation von Stoßkaskaden berechnet, wobei das Wechselwirkungspotential ausgewählt werden kann und sowohl elastische

als auch inelastische Energieverluste berücksichtigt werden. Ein Analysator mit endlicher Auflösung und endlicher Winkelunschärfe bringt die notwendige experimentelle Nähe. Da jedoch eine große Anzahl an Trajektorien verfolgt werden muß, die nur zum Teil den Detektor erreichen, ist das Programm sehr rechenzeitintensiv, wenn eine zufriedenstellende Statistik erreichen werden soll.

2.8.2. 2-dimensionale Simulationen der Experimente

Wie im Kapitel "Abschattungseffekte ... ICISS" gezeigt wurde, ist die von Aono eingeführte Methode hervorragend geeignet, Kristallstrukturen zu untersuchen. Ein einfaches 2-dimensionales Simulationsmodell von *Daley et al.* (1989) zur Berechnung der Intensitätsverteilung, wie sie bei ICISS gemessen wird, dient zum besseren Verständnis und vereinfacht die Interpretation der experimentellen Daten. Ein direkter Vergleich zwischen Experiment und Simulation ist möglich. Dieses im weiteren beschriebene Modell wurde im Zuge dieser Arbeit an einem PC programmiert (Programm ICISS-SIM) und liefert innerhalb weniger Minuten eine ICISS-Intensitätsverteilung.

Erlebt ein Ion bei der Wechselwirkung mit einem Targetatom eine einzige Großwinkelstreuung, so kann es mit großer Wahrscheinlichkeit den Detektor erreichen, ohne ein weiteres Atom zu treffen. In den meisten Fällen müssen jedoch zwei Atome betrachtet werden. Die Wahrscheinlichkeit für eine Wechselwirkung des Ions mit einem Atom, nachdem es zuvor bereits eine Streuung erlitten hat (Abschattungseffekt, engl. shadowing), und die Wahrscheinlichkeit dafür, daß sich das Ion nach den Stößen auf geeigneten Trajektorien befindet, um den Detektor zu erreichen (Abblockungseffekt, engl. blocking), sind zu berücksichtigen. Da bei ICISS-Experimenten mit konstantem Streuwinkel und daher auch mit konstantem Streuquerschnitt gearbeitet wird, reicht zur Simulation die Berechnung der Wahrscheinlichkeit für eine Streuung an einem Atompaar und das Erreichen des Detektors nach der Streuung aus.

In diesem Simulationsmodell wird die relative Stoßwahrscheinlichkeit dafür berechnet, daß ein Atom im Strom mehrerer Projektile getroffen wird, wenn diese

Projektilen zuvor an einem anderen Atom gestreut wurden. Diese Vorgehensweise wurde bereits 1965 von *Oen* vorgeschlagen und von *Tromp* und *van der Veen* (1983) weiterentwickelt. Man berechnet dazu, wie weit ein Atom aus seiner Gleichgewichtslage ausgelenkt sein muß, um ein Projektil, welches zuvor mit dem Stoßparameter b an einem Atom gestreut wurde, an seinem weiteren Weg zu hindern. Die Wahrscheinlichkeit dafür ist durch eine normierte Gaußfunktion mit einer Halbwertsbreite entsprechend der relativen thermischen Vibrationsamplitude der Atome im Kristallgitter gegeben. Die totale Stoßwahrscheinlichkeit ist dann das Integral der Gaußfunktion über alle möglichen Stoßparameter, bezogen auf das erste streuende Atom. Um ein ICISS-Experiment zu simulieren, muß dieses Integral für jeden Einfallswinkel berechnet werden, die berechnete Wahrscheinlichkeit wird als Funktion des Einfallswinkels aufgetragen.

Die totale ICISS-Verteilung unter Berücksichtigung von Abschattungs- und Blockierungseffekten ist dann durch

$$I(\psi) = \left(\sum_j \prod_i S_{ij}(\psi_s) \prod_k B_{ij}(\psi_b) \right) \frac{1}{\sin\vartheta} \quad (32)$$

gegeben. Der gesamte Beitrag der Streuung am Atom j ist das Produkt aus allen Abschattungen S_{ij} und allen Abblockungswechselwirkungen B_{ij} . Der Faktor $1/\sin\vartheta$ ist notwendig, um der Verkürzung des Atomabstandes an der Oberfläche, bezogen auf die Richtung des Ionenstrahls, Rechnung zu tragen [*Daley* (1989)].

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde das Programm MARLOWE in erster Linie zur Simulation von azimutalen Spektren verwendet, aber auch Einfallswinkelspektren wurden analysiert. Mit Hilfe des 2-dimensionalen Programmes ICISS-SIM wurden die experimentellen einfallswinkelabhängigen Daten (ICISS-Spektren), und hier im besonderen die der Alkalistreuung, analysiert.

3. Rauigkeitsübergänge

Eines der bemerkenswertesten Phänomene der Natur ist der Übergang zwischen verschiedenen makroskopischen Zuständen der Materie, Phasen genannt. Die verschiedenen Phasen werden durch unterschiedliche Merkmale, wie z.B. die Dichte, beschrieben. Die ersten beobachteten Übergänge waren die zwischen fester, flüssiger und gasförmiger Phase. Die Kenntnis über die Vielfalt der Phasenübergänge wuchs rasch, Übergänge zwischen verschiedenen magnetischen Ordnungen, elektrischen Dipolmomenten, unterschiedlicher Leitfähigkeit oder unterschiedlichen Kristallstrukturen, aber auch Oberflächenstrukturänderungen wurden beobachtet. Man erkannte, daß die Struktur jeder Kristalloberfläche nur innerhalb eines begrenzten Temperaturbereiches stabil ist. Die beiden wohl markantesten thermischen Instabilitäten von Kristalloberflächen sind der Rauigkeitsübergang und das Oberflächenschmelzen.

Bereits *Frenkel* (1945) wies darauf hin, daß jede perfekte Kristalloberfläche bei Temperaturen $T > 0$ K eine gewisse Rauigkeit entsprechend den thermischen Fluktuationen besitzt. Aus energetischen Überlegungen entwickelte er die Vorstellung, daß bereits existierende Stufen bei $T > 0$ K "Kinks" (Knicke in den Stufenkanten) bekommen. *Burton, Cabrera und Frank* haben 1951 in einer grundlegenden Arbeit über den Mechanismus des Kristallwachstums erkannt, daß ein Rauigkeitsübergang in der Gleichgewichtsstruktur von Kristalloberflächen auftreten kann. Sie machten in ihrer Beschreibung des Wachstums jedoch wesentliche Vereinfachungen (schichtweises Wachstum), so daß sie den Übergang durch das 2-D-Ising-Modell beschreiben konnten. Durch Adaption der exakten Lösung des 2-dimensionalen Ising-Modells [*Onsager* (1944)-ferromagnetischer Phasenübergang], konnte dieses für das Kristallwachstum verwendet werden. *Burton et al.* (1949) zeigten, daß thermische Fluktuationen nicht zu Stufenbildungen an niedrigindizierten Oberflächen führen können, außer bei Proben-temperaturen nahe dem Schmelzpunkt.

Erst 1980 konnten Rauigkeitsübergänge erstmals experimentell bestätigt werden. Diese Experimente zeigten, daß mikroskopisch glatte Oberflächen beim Übergang von niedrigen zu höheren Temperaturen aufrauen.

Temperaturbedingte Aufrauhung kann als Auftreten thermisch aktivierter Defekte auf atomarer Skala gesehen werden. Dichtgepackte Oberflächen, z.B. (100)

Flächen zeigen einen Rauigkeitsübergang erst nahe der Schmelztemperatur T_m , während vizinale (11 n) Oberflächen bereits bei wesentlich niedrigeren Temperaturen aufrauen. Die Temperatur, die die Aufrauung einer Oberfläche kennzeichnet, wird Rauigkeitsübergangstemperatur T_R (engl. roughening transition temperature) genannt. Bei dieser Temperatur verschwindet die langreichweitige Ordnung der Oberfläche, die Energie zur Erzeugung einer Stufe verschwindet - die Kristalloberfläche rauht auf. T_R liegt für vizinale Oberflächen bei $0.1 T_m < T_R < 0.5 T_m$, abhängig von der mittleren Terrassenlänge. Aus der Literatur entnommene, sowohl theoretische als auch experimentelle, Werte für die Rauigkeitsübergangstemperatur T_R verschiedener Kupferoberflächen, sind in Tabelle 1 aufgelistet.

Oberfläche	T_R [K]	Methode	Autor
Cu(001)	> 700	Theorie, He-Atomstreuung	Villain et al.
Cu(110)	870	Röntgenbeugung	Mochrie
Cu(113)	620 ± 10	Röntgenbeugung	Liang et al.
	650 ± 50	Röntgenbeugung	Salanon et al.
	650 ± 50	He-Atomstreuung	Selke
Cu(115)	380	experimentell	Gorse et al.
	375 ± 10	theor., He-Atomstreuung	Villain et al.
	380	He-Atomstreuung	Fabre et al.
	380	He-Atomstreuung	Lapujoulade et al.

Tabelle 1: Zusammenstellung von Werten aus der Literatur für die Rauigkeitsübergangstemperatur für einige spezielle Kupferoberflächen. (Volumenschmelztemperatur 1356 K)

An gestuften Oberflächen kann dieser Effekt der Aufrauung als Kink-Antikink-Paarbildung gesehen werden, die Aufrauung glatter Oberflächen als Adatom-Fehlstellen-Paarerzeugung. Da zur Kink-Antikink-Paarbildung weniger Bindungen gebrochen werden, als es die Erzeugung eines Adatom-Fehlstellen-Paares

fordert, erfolgt der Rauigkeitsübergang bei gestuften Oberflächen bei niedrigeren Temperaturen als bei glatten Oberflächen. Im Sinne der Thermodynamik ist zwischen mikroskopischer und makroskopischer Zustandsänderung zu unterscheiden. Makroskopisch gesehen hat der Rauigkeitsübergang einen direkten Einfluß auf die Struktur der Oberfläche, Facetten einer bestimmten kristallographischen Struktur einer im Gleichgewicht befindlichen Oberfläche verschwinden. Mikroskopisch entsteht der Rauigkeitsübergang durch eine Minimierung der freien Energie der Oberfläche. Tatsächlich sind diese beiden Aussagen äquivalent [van Beijeren (1987)]. Glatte Oberflächen rauhen dabei durch Bildung von Stufen auf, gestufte Flächen durch die Bildung von "Mäandern"- "Kinks" an bereits existierenden Stufen.

An dieser Stelle scheint es wichtig, die in der Literatur oft vermischten Phänomene des Oberflächenschmelzens und der Oberflächenaufrauhung zu differenzieren. Aufrauhung einer Oberfläche impliziert das Verschwinden der freien Energie in Zusammenhang mit der Bildung von Stufen und Kinks an der Oberfläche, wobei die atomare Ordnung der oberflächennahen Schichten erhalten bleibt. Oberflächenschmelzen hingegen bringt einen Verlust der kurzreichweitigen Ordnung mit sich.

Nach Lindemann (1910) ist die Volumenschmelztemperatur T_m eines Kristalles durch

$$T_m = konst. \sqrt{\frac{T_m}{m \sqrt[3]{a^2}}} \quad (33a)$$

gegeben (a ... Atomvolumen). Setzt man diesen Ausdruck folgendem gleich (Θ_D ... Volumen-Debye-Temperatur),

$$T_m = \frac{\langle u_m^2 \rangle m k_b \Theta_D^2}{3 \hbar^2} \quad (33b)$$

so erhält man ein Kriterium zur Berechnung der Schmelztemperatur (Gl. 33c) wie von Loisel et al. (1989) angegeben, wobei für fcc-Strukturen c bei ~ 0.08 liegt.

$$\frac{\sqrt{\langle u_m^2 \rangle}}{d} = c \quad (33c)$$

Hierbei ist $\langle u_m^2 \rangle$ die mittlere quadratische Auslenkung der Atome und d der Nächste-Nachbar-Abstand. Demnach beginnt Kupfer im Volumen zu schmelzen, wenn $\langle u_m^2 \rangle$ einen Wert von $\sim 0.04 \text{ \AA}^2$ erreicht.

3.1. Modelle

Im Laufe der Zeit haben sich viele Vorstellungen, Modelle und Theorien über Rauigkeitsübergänge entwickelt. Ihnen allen ist gemein, daß der Rauigkeitsübergang als reversibler, kontinuierlicher Übergang gesehen wird. *Weeks* (1980) beschreibt den Phasenübergang als nicht vom Volumen abhängig, sondern als charakteristisch für die jeweilige Oberfläche und somit als einen Phasenübergang vom 2D-Ising-Typ. Viele Ergebnisse exakt lösbarer Modelle zeigen, daß der Rauigkeitsübergang vom Kosterlitz-Thouless-Typ ist, einem Übergang höherer Ordnung. *Frenken et al.* schreiben dazu:

"Since surface roughening is a Kosterlitz-Thouless type infinite order transition, most experimental quantities are expected to vary extremely smoothly around T_R . This makes it quite difficult for most experimental surface probes,..."

Um eine thermodynamische und statistische Beschreibung der Oberflächenänderungen durchführen zu können, muß zunächst ein Modell zur Beschreibung der Oberfläche entwickelt werden. Bereits in diesem Ansatz finden sich wesentliche Unterschiede. Zwei der wichtigsten Modelle sind das SOS-Modell (solid on solid model) und das TSK-Modell (terrace step kink model).

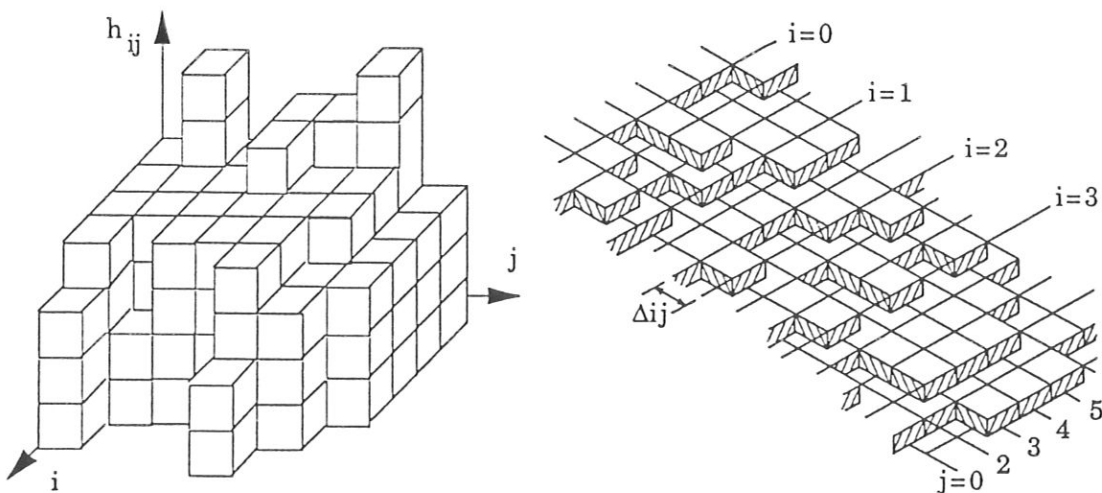


Abbildung 33: SOS-Modell (links) und TSK-Modell (rechts) zur Beschreibung von Kristallstrukturen.

Im häufig verwendeten SOS-Modell wird die Oberfläche durch vertikale Kolonnen der Höhe z_i , von Atomen an Positionen (x_i, y_i) , in einem einfach kubischen Gitter beschrieben (siehe Abbildung 33). Ein Gitterplatz ist entsprechend dem Ising-Modell entweder besetzt, oder nicht. Diese Kolonnen wechselwirken über ein Potential $V(h_{ij}, r_{ij})$, wobei ein Satz diskreter Werte h_{ij} den Höhenunterschied zweier Kolonnen beschreibt ($h_{ij} = z_i - z_j$), die sich im Abstand r_{ij} zueinander befinden. Außerdem wird gefordert, daß keine "Überhänge" auftreten. Einer bestimmten Konfiguration $\{h_{ij}\}$ kann durch

$$E(h_{ij}) = J \sum_{ij} (|h_{ij} - h_{i+1j}| + |h_{ij} - h_{ij+1}|) \quad (34)$$

eine Energie $E(h_{ij})$ zugeordnet werden. Dabei ist J die Energie, mit der benachbarte Atome wechselwirken, $E(h_{ij})$ ist proportional zur Zahl ungesättigter Bindungen.

Sobald die freie Energie zur Bildung einer Stufe an der Oberfläche verschwindet, entstehen Stufen, die Kolonnen werden unterschiedlich hoch. Die durch die Bildung der Stufen entstehende Umordnung an der Oberfläche kann durch die Änderung der Positionen der Oberflächenatome beschrieben werden, d.h. durch eine Höhe-Höhe-Korrelationsfunktion

$$G(r_{ij}, kl) = \langle (h_{ij} - h_{kl})^2 \rangle. \quad (35)$$

Oberhalb der Aufrauungstemperatur T_R divergiert die mittlere quadratische Höhendifferenz.

$$\begin{aligned} \lim_{r_{ij}, kl \rightarrow \infty} G(r_{ij}, kl) &= \text{endlich} & T < T_R & \text{ glatte Fläche} & (36) \\ &= \infty & T \geq T_R & \text{ rauhe Fläche} \end{aligned}$$

Bild 34 zeigt das Ergebnis einer Computersimulation von *Gilmer* (1980) zur Untersuchung der thermischen Aufrauung mit Hilfe des SOS-Modells.

Da die Annahme einer einfach kubischen Oberfläche nur beschränkt anwendbar ist (viele Materialien besitzen eine andere Kristallstruktur), wurde das SOS-Modell zum BCSOS-Modell (body centered solid on solid model) [*van Beijeren* (1987)] erweitert. In diesem Modell bauen verschiedene Untergitter die Kristalloberfläche auf. *Jayaprakash et al.* und *Trayanov et al.* entwickelten dieses Modell wiederum weiter, so daß sich neben den bcc (100)-Flächen auch andere Grenzflächen, wie die (110)-Fläche des fcc-Gitters beschreiben lassen.

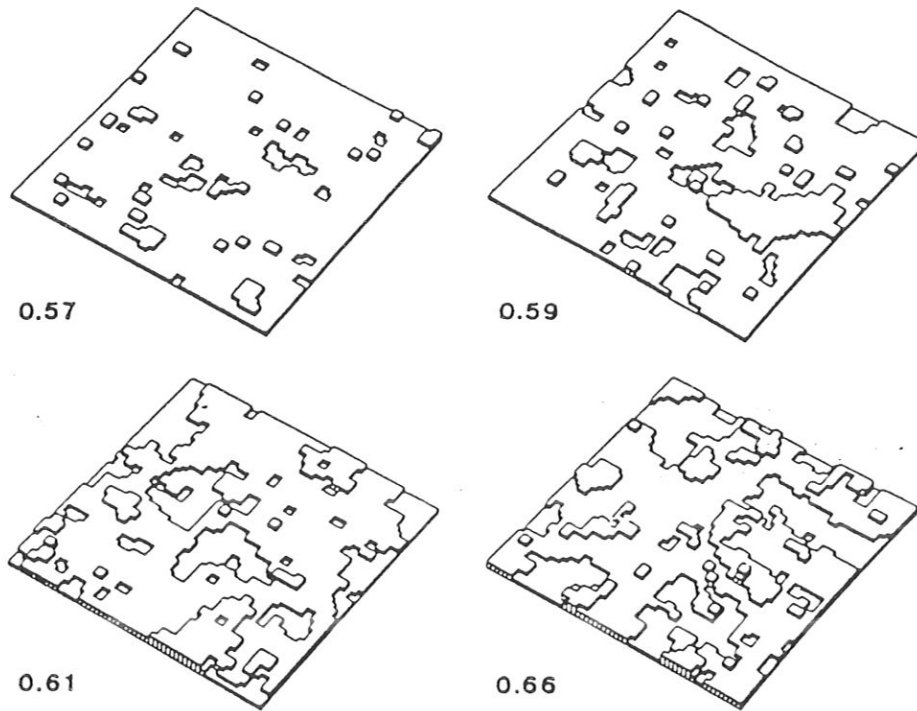


Abbildung 34: Computersimulation des Aufrauhungsprozesses [Gilmer (1980)].

Die Ziffern stehen für $T = x \cdot T_m \cdot T_R$ wird bei $0.6 T_m$ festgelegt.

Eine wichtige Variante des SOS-Modells ist das TSK-Modell. Im TSK-Modell [Selke et al.] wird die Oberfläche aus Kolonnen parallel zur (001) Oberfläche aufgebaut und nicht senkrecht wie beim SOS-Modell (siehe Abbildung 33). Dies hat den Vorteil, daß sich auf diese Art Oberflächen mit endlichen Stufendichten, also vizinale Oberflächen beschreiben lassen. Vizinale Oberflächen schließen einen, meist sehr kleinen, Winkel zu niedrigindizierten Ebenen ein. Eine Folge der thermischen Anregungen ist, in diesem Modell, die Entstehung von Mäandern (Kinks) an bereits bestehenden Stufen. Die Rauigkeitstemperatur ist definiert als die Temperatur, bei der die freie Energie zur Bildung eines Kinks an einer Stufe verschwindet. Die Energie einer Konfiguration ist durch

$$E = \sum_{ij} V(|\Delta_{ij} - \Delta_{i,j+1}|) + \sum_{ij} \sum_{kl} U(\Delta_{ij}, \Delta_{kl}) \quad (37)$$

gegeben, wobei $V(\Delta)$ die Energie eines Kinks mit der Länge Δ ist und $U(\Delta_{ij}, \Delta_{kl})$ die Wechselwirkung zwischen den Stufenelementen (ij) und (kl). Das TSK-Modell führt also effektive Kopplungen zwischen Nachbarstufen ein. Villain et al. (1985) beschreiben

diese Wechselwirkung zwischen den Stufen als eine Summation von repulsiven Kräften (sie entsprechen den elastischen Spannungen, die von den Stufen hervorgerufen werden) und elektrostatischer Wechselwirkung zwischen den Dipolen, die sich an den Stufen bilden. Langreichweitige Abstoßung zwischen den Stufen ist notwendig, um die Stabilität in der Niedrigtemperaturphase zu sichern, kurzreichweitige Wechselwirkung würde zu einer bei allen Temperaturen rauhen Oberfläche führen. Zur Stabilisierung der Oberfläche muß diese Wechselwirkung repulsiven Charakter haben, da bei attraktiven Potentialen die Oberfläche instabil wäre. Im SOS-Modell werden die repulsiven Kräfte zwischen den Stufenkanten nicht berücksichtigt, außerdem sind Stufen doppelter Höhe verboten.

Salanon et al. vergleichen die verschiedenen Modelle miteinander und stellen fest, daß detaillierte kristallographische Strukturangaben, wie etwa die Verschiebung der Atomposition benachbarter Stufen um einen halben atomaren Abstand, vernachlässigt werden können und die beiden Modelle sich im Grunde sehr ähnlich sind. Auch *Nenow et al.* kommen zu dem Resultat, daß das TSK-Modell, welches von *Villain et al.* genau studiert wurde, und das BCSOS-Modell [*Conrad et al.*] ähnliche Resultate liefern. *Chui und Weeks* (1976) konnten zeigen, daß das Gauß-Modell, eine Weiterentwicklung des SOS-Modells, und das von *Kosterlitz und Thouless* vorgeschlagene Modell (K.Th.) in ihren Aussagen äquivalent sind - der Rauigkeitsübergang (SOS) entspricht dem Metall-Isolator-Übergang (K.Th.). Dadurch war, mit Hilfe der exakten Lösbarkeit des SOS-Modells, eine Bestätigung des Kosterlitz-Thouless-Bildes des Rauigkeitsüberganges möglich. Die Höhenkorrelationsfunktion zeigt im K.Th.-Modell für Temperaturen größer T_R eine logarithmische Divergenz

$$G(r_{ij}, k_l) \approx \log r_{ij}, k_l \quad T > T_R . \quad (38)$$

Rys (1986) meint, daß bei sehr starken repulsiven Kräften zwischen den Stufen der Übergang nicht durch einen Kosterlitz-Thouless-Übergang (Übergang n-ter Ordnung), sondern durch das Ising-Modell (Übergang 2. Ordnung) zu beschreiben ist.

3.2. Rauigkeitsparameter

Erste Messungen mit He-Beugung an den vizinalen Oberflächen Ni(115) [Conrad et al. 1986] und Cu(115) [Fabre et al. 1986] zeigten Änderungen der Linienform in Abhängigkeit von der Temperatur und eine damit verbundene Verbreiterung der Beugungsintensitäten. Um diese experimentellen Ergebnisse in Relation zu den theoretischen Vorhersagen bringen zu können, wurde von den Nijs et al. (1985) ein Rauigkeitsparameter $x_I(T,n)$ für (11n)-Flächen definiert. Mit Hilfe dieses Parameters sollte es möglich sein, den Grad der Aufrauung über $T_R^{(11n)}$ zu bestimmen. Ausgehend vom SOS-Modell, definieren sie ein "mean square height displacement" (MSHD), welches in der rauhen Phase logarithmisch divergiert [Weeks (1980)].

$$\left\langle \left(z_i - z_j - \frac{\sqrt{2} x}{n} \right)^2 \right\rangle = \frac{2 a_0^2 x_I}{\pi^2} \log \left(\frac{r_{ij}}{r_0} \right) \quad (39)$$

Der Ausdruck auf der linken Seite entspricht der vorher definierten Höhenkorrelationsfunktion G , wobei der Term $\frac{\sqrt{2} x}{n}$ dem Winkel zwischen der (11n) und der (001)-Ebene Rechnung trägt. a_0 ist dabei der Nächste-Nachbar-Abstand, r_0 die Länge der Einheitszelle. Der Parameter x_I ist der gesuchte Rauigkeitsparameter. $x_I = x_I(T,n)$ liefert eine vollständige Beschreibung des Phasenüberganges und erreicht bei T_R einen universellen Wert $x_I^{(R)}$

$$x_I^{(R)} = \frac{2}{N_n^2} \quad \text{für} \quad \begin{array}{ll} (11n)\text{-Ebenen} & N_n = n, \quad n \text{ ungerade} \\ & N_n = 2n, \quad n \text{ gerade} \\ (001)\text{-Ebene} & N = 2 \end{array} \quad (40)$$

Es ist also z.B. an der Phasenübergangstemperatur T_R die Aufrauung einer (115)-Ebene durch $x_I^{(R)} = \frac{2}{25}$ beschrieben. Dieser Parameter ist ein theoretischer Parameter zu dem das experimentelle Pendant zu bestimmen ist. Eine Möglichkeit besteht in der Linienformanalyse von He-Beugungs-Resultaten. Demnach bestimmt sich ein experimenteller Rauigkeitsexponent X_Q für ungerade n zu

$$X_Q = x_I \frac{n^2}{4} \frac{(S_{\perp} b)^2}{\pi}, \quad (41)$$

wobei $\frac{S_{\perp} b}{\pi}$ Werte zwischen ± 1 annimmt. In Gleichung 41 ist b die Stufenhöhe und S_{\perp} die

Impulsänderung des He-Strahls senkrecht zur (115)-Ebene. In den meisten Arbeiten (He-Beugung), wird dieser experimentell bestimmbare Rauigkeitsexponent X_Q in Abhängigkeit von der Temperatur zur Beschreibung des Phasenüberganges herangezogen. Eine analytische Form der Abhängigkeit von X_Q von T_R ist nicht gegeben. Die Temperatur bei der X_Q den Wert $1/2$ erreicht, entspricht der Rauigkeitsübergangstemperatur. Für $T < T_R$ liegt X_Q bei 0 und steigt um T_R rapid an. Dieser Anstieg entspricht einer Zunahme von Kinks an den Stufenkanten.

4. Experimenteller Aufbau

4.1. Stand des Experimentes und Erweiterungen

Die vorliegende Arbeit entstand am Max-Planck-Institut für Plasmaphysik in Garching bei München, in der Abteilung Oberflächenphysik. Die Messungen wurden an der UHV-Apparatur "ALI" durchgeführt. Eine genaue Beschreibung dieser Apparatur wurde von *Baretzky* (1985) gegeben. Diese Apparatur wurde durch Umbauten und Erneuerungen verbessert und erweitert.

Da keiner der vorhandenen Manipulatoren die geforderten Spezifikationen erfüllen konnte, wurde ein neuer Manipulator konstruiert, angefertigt und eingebaut. Zur Vereinfachung des Experimentierbetriebes wurden Schritt- und Gleichstrommotoren für den z-Hub und die Drehung der Probe um die Manipulatorachse angebracht und die notwendigen Steuerungen (manuelle Steuerung oder Computersteuerung) dafür entworfen und gebaut. Während der Experimentierzeit entstand der Bedarf, bei kleineren Streuwinkeln messen zu können, dazu wurden die AES-Elektronenquelle und die Zerstäubungsquelle ausgebaut (siehe. Abb. 36). Der Einbau zweier Vakuumschieber verbesserte die "Vakuumsicherheit" der Apparatur bei den nicht seltenen Strom- oder Kühlwasser- ausfällen. Zur Steuerung des Experiments, der Manipulormotoren, der Datenerfassung und für die Auswertung wurden neue Programme entwickelt, die eine umfangreichere Meßdatenerfassung ermöglichten und so neue Analysebereiche offenlegten.

Eine kurze Beschreibung der Apparatur, der Spektroskopieeinheit und der Justage der einzelnen Komponenten soll in den drei folgenden Kapiteln gegeben werden. Der letzte Abschnitt liefert eine Beschreibung der Probe und ihrer Oberflächengeometrie, gibt eine Charakterisierung der Oberfläche durch Laue-Aufnahmen, beschreibt die Probenpräparation und zeigt erste Strukturinformationen aus LEED-Aufnahmen.

4.2. Die Apparatur

Die Apparatur "ALI" - dieses Akronym steht für die drei zur Verfügung stehenden Spektroskopien AES (Augerelektronenspektroskopie), LEED (Low Energy

Electron Diffraction) und ISS (Ionenstreuungsspektroskopie) - ist in Abbildung 35 schematisch dargestellt. Das Vakuumsystem ist im wesentlichen in fünf Teilsysteme einzuteilen, das Pumpensystem, die Probenkammer, die ISS-Ionenquelle, die Gaszuleitungen und den Manipulator. Das Pumpensystem bestehend aus vier Turbopumpen mit Vorpumpen, einer Ionenzerstäuberpumpe und einer Titansublimationspumpe in Kombination mit einer Flüssig-Stickstoff-Kühlfalle (LN_2) versorgt alle weiteren Komponenten der Anlage.

Der Restgasdruck wird mit Hilfe mehrerer, den Druckbereichen entsprechenden Druckmeßzellen (Bayard-Alpert im Probenraum, Ionisationsmanometer) und eines Quadrupolmassenspektrometers (QMS) im Rezipienten kontrolliert.

Die Probenkammer (zylindrisches Volumen, 120 Liter) erfüllt zwei Aufgaben. Einerseits wird hier die Probenpräparation durchgeführt, andererseits befinden sich hier alle spektroskopischen Analysemöglichkeiten. Der Rezipient wird mittels Vorvakuum-, Turbo- und Ionenzerstäuberpumpe ständig gepumpt, wobei die Möglichkeit besteht, den Probenraum durch einen Schieber von der Turbopumpe zu trennen. Die Flüssig-Stickstoff-Kühlfalle und die Titansublimationspumpe werden bei Bedarf zugeschaltet. Zur ISS-Ionenquelle ist der Rezipient offen. Nach dem Ausheizen der Apparatur bei ungefähr 180°C - 220°C wird ein maximaler Restgasdruck von $8 \cdot 10^{-10}$ mbar erreicht, der mit Hilfe der Titansublimationspumpe und der LN_2 -Kühlfalle auf $2 \cdot 10^{-10}$ mbar gesenkt werden kann. Das Restgas besteht größtenteils aus H_2 und CO . Bei diesem Restgasdruck kann die Adsorption von Teilchen auf die Probenoberfläche während einer Zeit von ungefähr einer Stunde vernachlässigt werden, erst nach dieser Zeit hat sich eine Monolage von Verunreinigungen an der Oberfläche gebildet, unter der Annahme, daß jedes auftreffende Atom an der Oberfläche haftet. Aufgrund des Zerstäubungseffektes des Meßstrahls entstehen während der Messungen keine signifikanten Bedeckungen. Im besonderen Fall der Zerstäubung der Probe mit Argon steigt der Druck im Rezipienten auf $1 \cdot 10^{-6}$ mbar. Dann ist es vorteilhaft die Stickstoffkühlung erst nach dem Abpumpen des Argongases zuzuschalten, um ein Ausfrieren des Gases an der Kühlfalle zu vermeiden.

Die ISS-Ionenquelle, bestehend aus dem Quellraum und dem Ablenkmagneten, stellt eine kombinierte Edelgas- und Alkaliionenquelle dar. Sie wird ebenfalls mittels Vorvakuum- und Turbopumpe gepumpt, ein Schieber ist ebenso vorhanden.

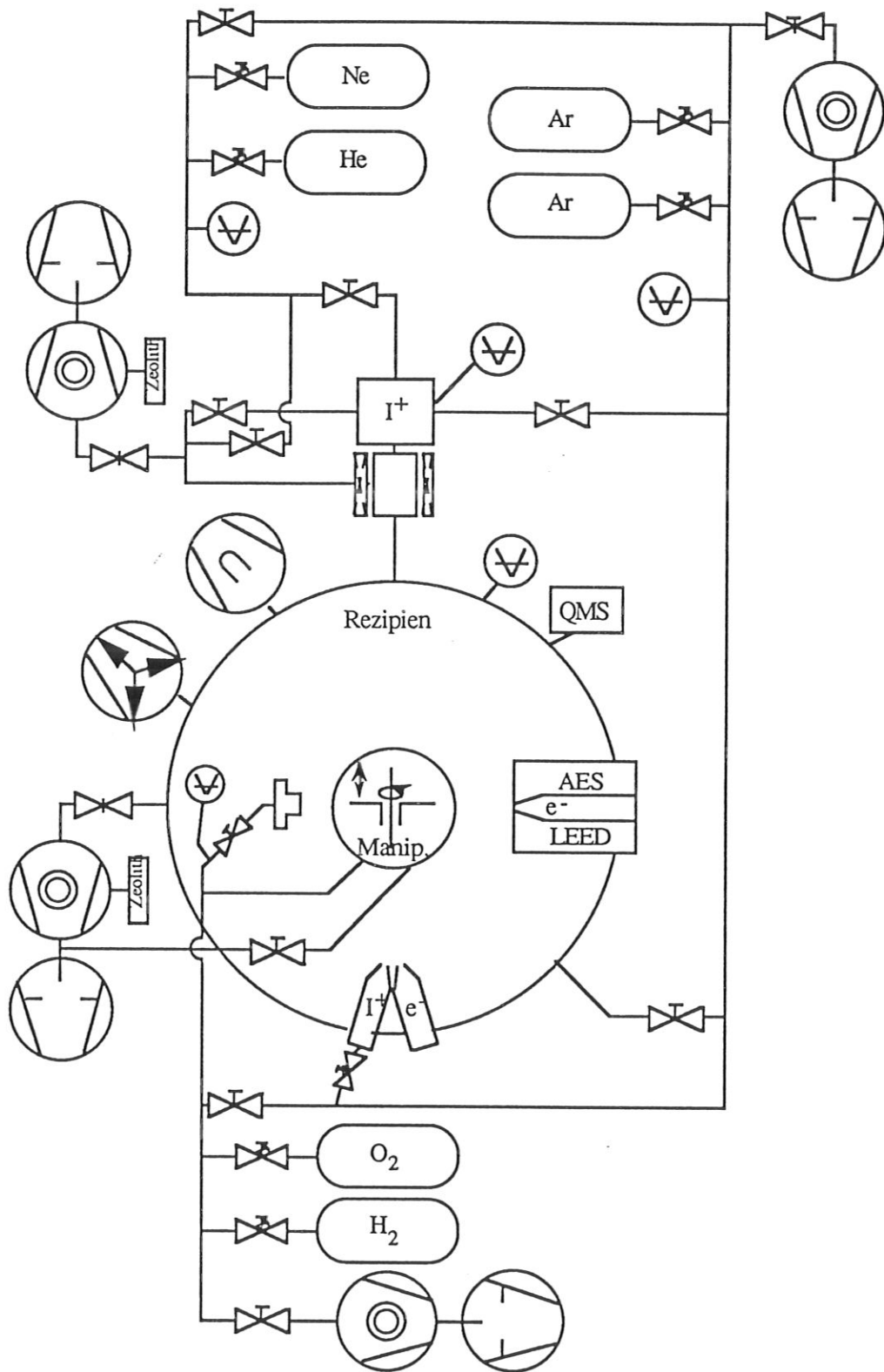


Abbildung 35: Schematischer Aufbau der Apparatur ALI
(Symbole nach Leybold-Heraeus und Balzers)

Zusätzliches differentielles Pumpen des Quellenraumes ist möglich, wovon nur während des Alkalibetriebs Gebrauch gemacht wird. Nach dem platzbedingten Abbau der Zerstäubungsquelle wurde die ISS - Ionenquelle ebenfalls zum Zerstäuben der Proben verwendet.

Über die Gaszuleitungen werden die Ionenquellen mit Helium, Neon und Argon versorgt, aber auch ein Bedecken der Probe mit definierten Gasen (O_2 , H_2 , D) ermöglicht. Die Gaszufuhr der ISS-Ionenquelle wird über ein automatisches Dosierventil geregelt und mit Ionisationsmanometern kontrolliert. Die Zuleitungen werden mit Vor- und Turbopumpen gepumpt und sind vom restlichen Vakuumsystem über Ventile trennbar. Die Adsorption von Gasen auf der Probenoberfläche wird mit einer Gasdusche durchgeführt und kann zusätzlich mit einer Kelvinsonde überprüft werden.

An dem neu konzipierten Manipulator befindet sich sowohl die Probe, als auch ein Faraday-Cup. Die Probenoberfläche liegt in der vertikalen Drehachse des Manipulators, die parallel zur Zylinderachse der Probenkammer verläuft. Der Probenstab ist in alle drei Raumrichtungen auf 1/100 mm genau verschiebbar, in der vertikalen Achse um 360° drehbar ($\pm 0.2^\circ$) und ermöglicht zusätzlich eine azimutale Verdrehung der Probe um 90° , mit einer Genauigkeit von 0.1° . Die Probe kann mit einer Elektronenstoßheizung auf Temperaturen bis zu $1000^\circ C$ geheizt, oder durch Einfüllen von flüssigem Stickstoff in den Manipulatorstab gekühlt werden, wobei der Wärmeaustausch über einen dicken Kupferblock erfolgt. Eine Probentemperatur von $-155^\circ C$ konnte erreicht werden. Die Temperatur wird mit einem NiCr / Ni -Thermoelement gemessen, welches direkten Kontakt mit der Probe hat. Mit diesem Thermoelement wird, außer der Temperatur, auch der Targetstrom gemessen. Die Kontrolle des Thermoelementes erfolgte mit einem IR-Pyrometer, wozu ein MgF_2 -Fenster und später ein CaF_2 -Fenster eingebaut wurde. Die Drehschiebedurchführung des Manipulators wird mit einer Vorvakuum- und einer Turbopumpe differentiell gepumpt.

4.3. Die Spektroskopie-Einheit

An der Apparatur ALI stehen mehrere Möglichkeiten der Spektroskopie zur Verfügung (siehe Abb. 36). Zur Charakterisierung der Struktur der Probenoberfläche dient ein LEED-Spektrometer. Es wird mit einem 4-Gitter-Gegenfeldanalysator gearbeitet, in

den eine Elektronenquelle konzentrisch integriert ist. Die Probenoberfläche kann mit Augerelektronenspektroskopie auf ihre Zusammensetzung hin untersucht werden. Das AES-Spektrometer besitzt eine eigene Quelle zur Erzeugung von Elektronen mit einer Energie zwischen 0 und 3 keV, die einen Einschub der Elektronen unter sehr kleinen Winkeln zur Probenoberfläche (streifender Einfall) ermöglicht. Zur Energieanalyse der emittierten Augerelektronen wird der 4-Gitter-Gegenfeldanalysator verwendet.

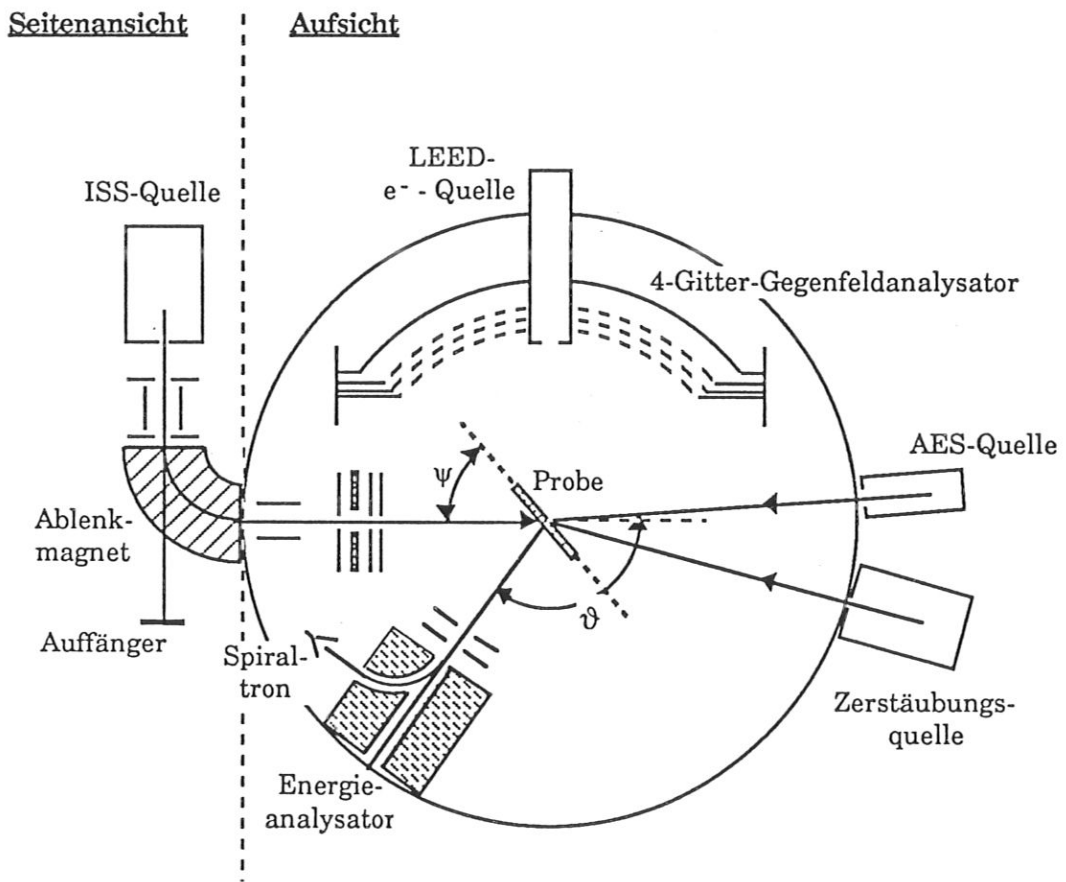


Abbildung 36: Die Analyseebene der Apparatur ALI.

Für das Ionenstreuexperiment steht ein massenseparierter Ionenstrahl und ein schwenkbarer Energieanalysator zur Verfügung. Die Ionenkanone ist in *Grundner et al.* (1973) beschrieben. Diese Kanone arbeitet nach dem Prinzip der Elektronenstoßanregung der in dem Stoßraum befindlichen Edelgasteilchen. Die Elektronen werden von einem thorierten Wolframheizfaden emittiert (~3.8 A Heizstrom) und beschleunigt. In dem Stoßraum haben sie die Möglichkeit zu pendeln, um die effektive Weglänge zu erhöhen. Die Wahrscheinlichkeit einer Ionisierung durch Ionenstoß ist sehr klein, da die mittlere freie Weglänge der Ionen wesentlich größer ist als die Quellendimension.

Bei der Ionisierung von Argon beträgt der Anteil von Ar^{2+} Ionen nur etwa 10% des Wertes für Ar^+ Ionen. Über einen Extraktor werden die Ionen aus dem Ionisationsraum abgesaugt und anschließend, mittels elektrostatischer Linsen und Ablenkplatten, fokussiert und ausgerichtet. Der Ionenstrahl kann direkt auf einen Auffänger treffen oder, mit Hilfe eines Ablenkmagneten, der der Massentrennung dient, auf die Probe bzw. den auf dem Probenstab befindlichen Faraday-Cup gelenkt werden. Der am Target gemessene Ionenstrom beträgt etwa 1/30 des Stroms, gemessen am Auffänger vor dem Magneten. Der Ablenkmagnet, ein inhomogenes magnetisches 90° -Sektorfeld bestimmt die Energiebreite der Ionen gleicher Masse auf 3% [Engelmann (1987)]. Die Primärionenenergie, festgelegt durch die Beschleunigungsspannung, ist gegenüber der eingestellten Spannung verschoben, da die Ionen an einem Ort niedrigeren Potentials entstehen. Die Bestimmung der Primärionenenergie ist an dieser Apparatur nur indirekt über das ISS-Experiment möglich, da der Energieanalysator nicht direkt in den Ionenstrahl gedreht werden kann. Vorzugsweise sollte die Probe leitend sein, um Aufladungseffekte zu vermeiden. Zusätzlicher Elektronenbeschuß zur Kompensation dieses unerwünschten Effektes ermöglicht die Analyse isolierender Proben. Abbildung 37 stellt ein Strahlprofil des Ionenstroms dieser Ionenquelle, gemessen im Faraday-Cup, dar. Die Halbwertsbreite bestimmt sich zu 1.2 mm bzw. 1.6 mm.

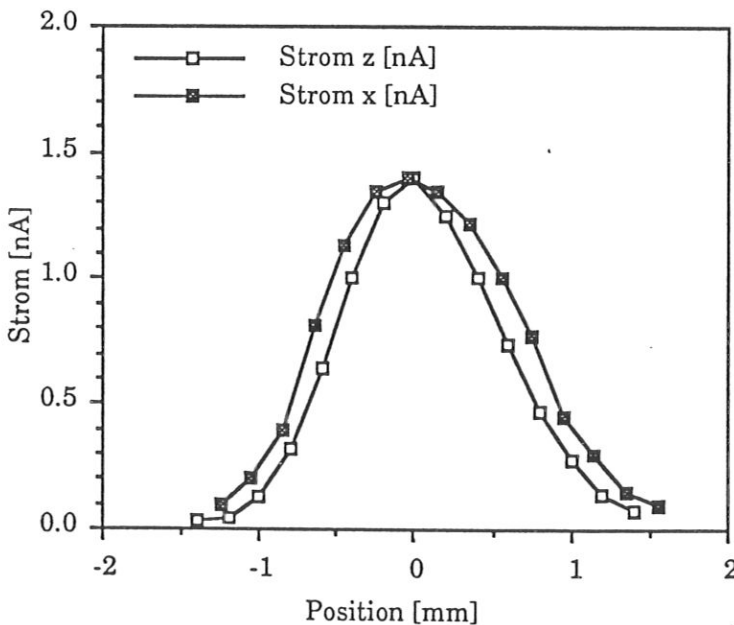


Abbildung 37: Strahlprofil der ISS-Quelle für Ne^+ Ionen mit einer Energie von 1 keV.

Zur Erzeugung der Alkaliionen wird eine mit Na-Oxid versetzte β -Eukryptitkeramik ($m \text{ Na}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot n \text{ SiO}_2$) durch ohmsche Heizung ($I_{\text{Heizung}} \sim 7.7 \text{ A}$, 60 W) auf $1300\text{-}1400 \text{ K}$ geheizt. Das verdampfte Natrium ist bereits ionisiert. Dieser Emitter ist koaxial in die Edelgasionenquelle eingebaut, so daß zur Strahlführung die Elemente der Edelgasionenquelle verwendet werden können. Der Heizfaden der Edelgasionenquelle wurde während des Alkalibetriebes mit $\sim 1.5 \text{ A}$ betrieben, wodurch eine Adsorption des Natriums verhindert wurde.

Der Energieanalysator besteht aus einem 90° -Kugelkondensator, dessen Ablenkefeld zugleich dispersive und abbildende Eigenschaften aufweist, und einem Spiraltron, dem ein Vorverstärker, ein Linearverstärker und ein Einkanaldiskriminator nachgeschaltet sind. Das in Normpulse umgewandelte Signal wird von einem Ratemeter gezählt oder in einen Computer eingelesen und verarbeitet. Zusätzlich kann für jeden Meßpunkt der Targetstrom aufgezeichnet werden. Die Energieauflösung des Spektrometers liegt bei $\Delta E / E = 1.2 \pm 0.1 \%$, die Divergenz der Eintrittsoptik des Analysators beträgt $\Delta \vartheta \sim 3^\circ$. Der experimentell mögliche Streuwinkelbereich liegt zwischen 38° und 146° und kann auf $\pm 0.2^\circ$ Genauigkeit eingestellt werden.

Eine gute Übereinstimmung zwischen Quellfläche und Analysefläche spielt eine besonders wichtige Rolle, eine graphische Darstellung liefert Abbildung 38.

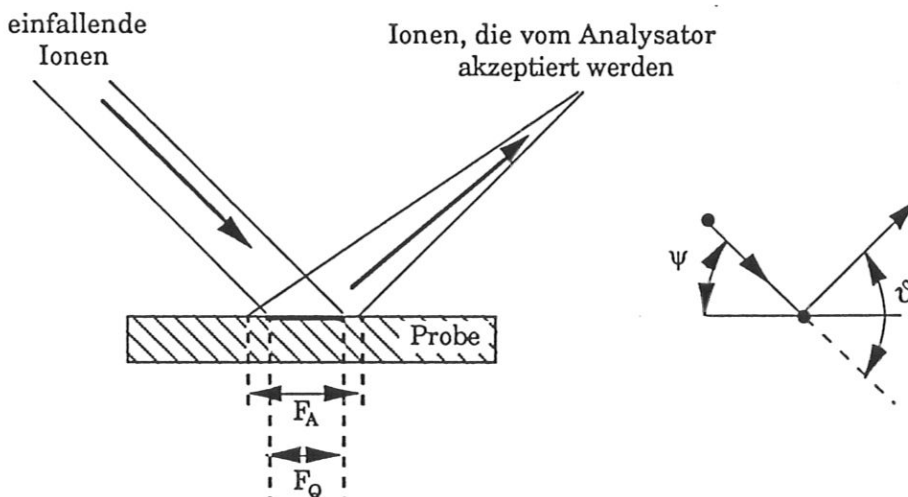


Abbildung 38: Geometrie des Quell- und des Analyseflecks.

Die beiden Flächen müssen nicht nur konzentrisch liegen, sondern es muß im besonderen die Analysefläche größer als die Quellfläche sein, d.h. $F_A \geq F_Q$, bzw. $F = F_A / F_Q \geq 1$.

Diese Forderung ist in den Kapiteln "Bestimmung der Oberflächenzusammensetzung - Quantitative Auswertung" begründet. Abbildung 39 stellt das Größenverhältnis dieser beiden Flächen in Abhängigkeit vom Einfallswinkel und für einen Streuwinkel von 145° dar. Die Analysefläche verhält sich wie $(\sin(\vartheta - \psi))^{-1}$, die Quellfläche ist proportional zu $(\sin\psi)^{-1}$.

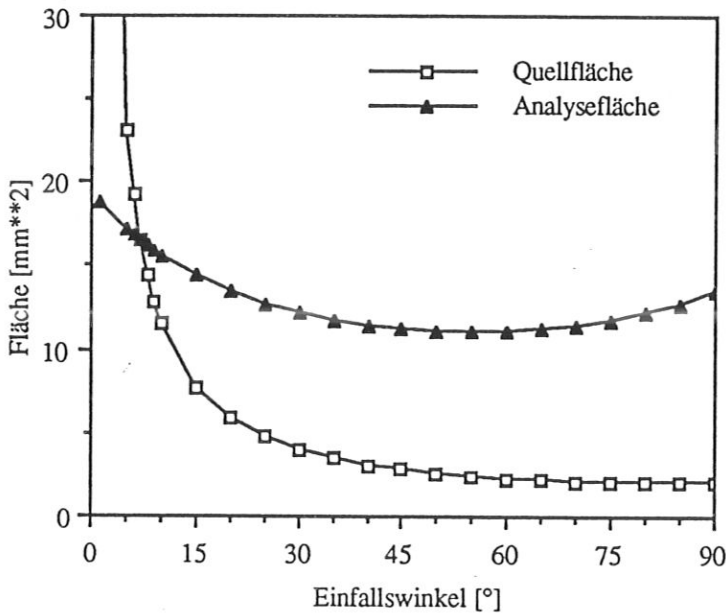


Abbildung 39: Größenverhältnis von Analyse- zu Quellfläche für einen Streuwinkel von 145° .

Ab etwa 7° Einfallswinkel ist die Analysefläche größer als die Quellfläche. Das bedeutet, daß beim Vergleich von Experimenten mit kleinem ($\psi < 7^\circ$) und großem ($\psi > 7^\circ$) Einfallswinkel die unterschiedlichen Flächenverhältnisse berücksichtigt werden müssen.

4.4. Positionierung der einzelnen Komponenten

Alle spektroskopischen Strahlen liegen horizontal auf einer Analyseebene und treffen sich in einem Punkt. Ebenso in dieser Ebene befindet sich die Eintrittsöffnung des Energieanalysators. Es gilt nun die Probenoberfläche und den Faraday-Cup in dieses Zentrum der Analyseebene zu bringen, um so einen genauen Analysefleck auf der Probenoberfläche festzulegen und eine Eichung der Einfalls- bzw. Streuwinkel durchzuführen. Damit wird sichergestellt, daß immer derselbe Fleck an der Probe ge-

reingt und untersucht wird, unabhängig davon welche Methode man anwendet und unter welchem Winkel die Analyse durchgeführt wird. Bei der Montage der Probe muß die Probenoberfläche bereits in der vertikalen Drehachse des Manipulators angebracht werden. Zur genauen Justierung wird, nach dem Einbau des Probenhalters in den Rezipienten, der Strahl eines Lasers - durch ein Fenster - auf die Probenoberfläche gerichtet und der reflektierte Laserstrahl beobachtet, bzw. wird mit dem Laser auf die Eintrittsöffnung des Faraday-Cups gezielt. Auf diese Weise können die vertikale Verkipfung der Probe überprüft und zwei Koordinaten des Probenmittelpunktes bzw. des Faraday-Cups ermittelt werden. Die dritte Koordinate erhält man durch Verdrehung der Probe um $\pm 22.5^\circ$, der reflektierte Strahl muß dann auf ein unter $\pm 45^\circ$ zum Primärstrahl angebrachtes Fadenkreuz treffen. Diese Justage muß nach jedem Manipulatorenbau wiederholt werden. Zur Sicherheit wurden die Koordinaten routinemäßig jeden Tag überprüft, im Laufe der Arbeit wurde ein Fehler in der Anzeige des Winkels der vertikalen Verdrehung des Manipulators von $\sim 0.01^\circ$ festgestellt.

4.5. Die Probe

Die zur Verfügung stehende Probe war ein Kupfer-Einkristall (Reinheit 5N) mit einem Durchmesser von 10 mm, einer Dicke von 2 mm und einer (115)-Orientierung der Oberfläche.

Abbildung 40 zeigt die Geometrie einer (115)-Ebene eines kubisch-flächenzentrierten Gitters. Eingezeichnet sind die wichtigsten kristallographischen Richtungen und die Definition des azimutalen Winkels φ . Die [110] Richtung liegt parallel zu den Stufenkanten und soll in Folge einem Azimut von $\varphi = 90^\circ$ entsprechen, $\varphi = 0^\circ$ bezeichnet dann die [55 $\bar{2}$] Richtung. Die (115)-Ebene schließt mit der (001)-Ebene einen Winkel von 15.8° ein. Im Idealfall besteht die Oberfläche aus ebenen (001)-Terrassen, die durch monoatomare Stufen vom Typ (111) getrennt sind; der Normalabstand zwischen zwei Stufen beträgt 6.6 \AA , die Stufenhöhe $\sim 1.8 \text{ \AA}$. In der (001)-Ebene beträgt der geringste Atomabstand 2.556 \AA . Der mittlere Abstand benachbarter Stufen ist durch $\lambda = h / \tan \alpha$ gegeben. Dabei ist h die Stufenhöhe, und λ der Stufenabstand projiziert in die (001)-Ebene. Zu beachten ist im besonderen, daß die Atomketten an den Stufenkanten von Stufe zu Stufe um einen halben Atomabstand versetzt sind. Daher ist die Einheitszelle

der Cu(115) Fläche nicht rechtwinkelig, die Vektoren \vec{a} und \vec{b} schließen einen Winkel von 79.1° ein.

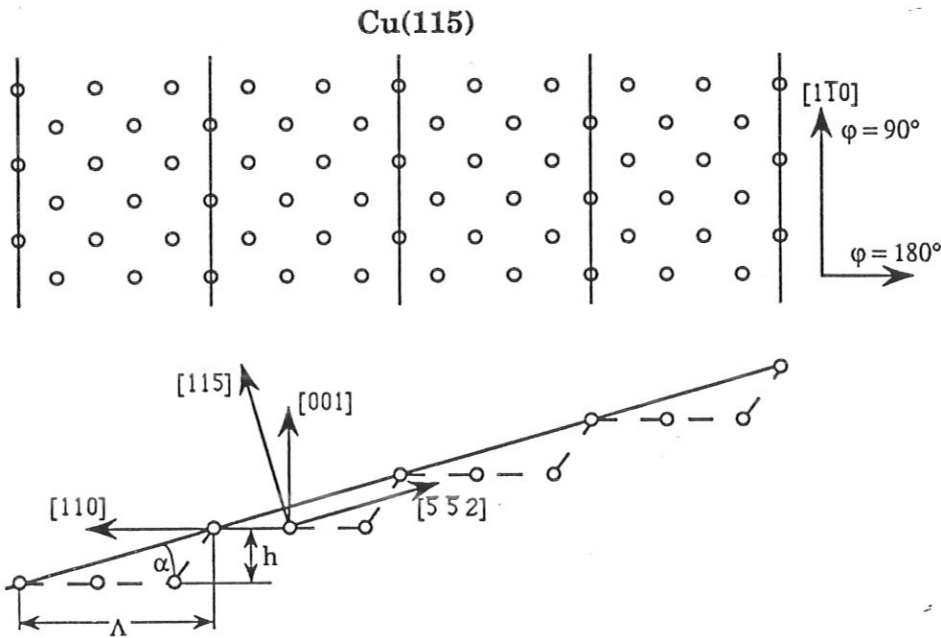


Abbildung 40: Geometrie einer (115)-Ebene eines kubisch-flächenzentrierten Kristalls. Der obere Bildabschnitt zeigt die Aufsicht, der untere eine Seitenansicht.

Eine andere Art der Beschreibung vizinaler Oberflächen ist durch die *Lang*-Nomenklatur möglich [*Lang* (1972)].

$$E(S) - [m(hkl) \times n(h'k'l')] \quad (42)$$

Hier steht *E* für die chemische Notation des Substrates, *S* für gestufte Oberfläche, *m* für die Anzahl der Atomreihen in den Terrassenebenen (*hkl*) und *n* für die Anzahl der Atomlagen, die die Stufenhöhe festlegen und (*h'k'l'*) für die Stufenebene. Handelt es sich um monoatomare Stufen, so wird *n*=1 nicht ausgeschrieben. In dieser Notation kann die Cu(115)-Ebene folgendermaßen beschrieben werden:

$$\text{Cu}(S) - [3(001) \times (111)].$$

Zur ersten Kontrolle der rückseitig am Kristall angebrachten Markierung der Orientierung der Oberfläche wurden an der TU München Laue-Aufnahmen angefertigt. Abbildung 41a zeigt eine Laueaufnahme (Wolfram, Kontinuum) des Cu(115) Kristalls nach der Präparation. Diese Aufnahme wurde mit Hilfe eines Laue-Atlas (Cu(411)) ausgewertet (Abbildung 41b) und so die Oberflächengenauigkeit bestimmt.

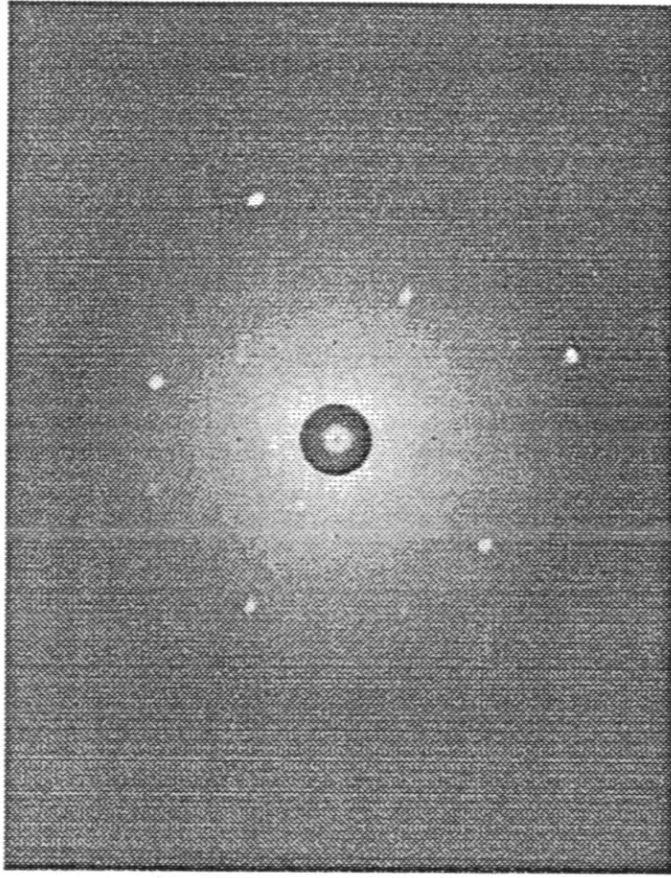


Abbildung 41a: Laueaufnahme des Cu(115)-Kristalls nach der Präparation.

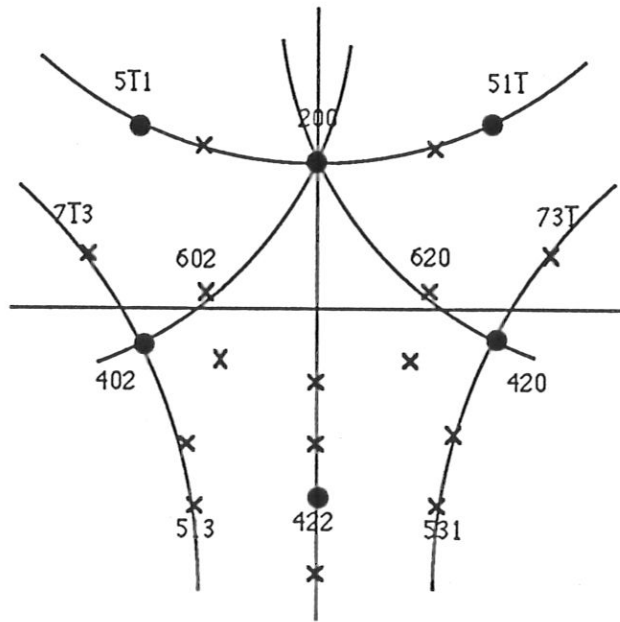


Abbildung 41b: Zur Auswertung der Laue-Aufnahme.

Erst nach mehreren elektrochemischen Politurversuchen konnte die Oberflächenstruktur einer (115)-Ebene bestimmt werden. Der Winkel der (115)-Fläche zur (001)-Ebene beträgt 15.79° , der tatsächlich gemessene Winkel liegt bei 15.87° , die rückseitige Markierung ist um 2.46° verdreht angezeichnet.

4.6. Probenpräparation im UHV

Die Präparation der Probe im Vakuum erfolgte durch wiederholte Heiz- und Zerstäubungszyklen. Die anfänglichen Verunreinigungen wie Kohlenstoff, Sauerstoff und Schwefel konnten soweit reduziert werden, daß in den ISS-Energieverteilungen keine Verunreinigungssignale mit einer Intensität $> 3\%$ der Intensität des Kupfersignals gefunden wurden. Zur Präparation der Struktur der Oberfläche mußte speziell auf die azimutale Richtung des einfallenden Ionenstrahls während der Zerstäubung geachtet werden. Optimale Ergebnisse, das heißt eine gute Struktur und eine saubere Oberfläche, erzielte man durch Zerstäuben parallel zu den Stufenkanten. Die Proben-temperatur bei der Zerstäubung lag zwischen 200 und 400°C . Nach dem Abschalten des Ionenstrahls wurde die Probe noch für mindestens 60 Minuten auf dieser Temperatur gehalten, um ein Ausheilen der Oberfläche zu ermöglichen. Die Abkühlung auf Raumtemperatur erfolgte über einen Zeitraum von ~ 2 Stunden. Späterhin reichte es aus, den Kristall nur noch 15 Minuten zu Zerstäuben und nach dem Ausheilen langsam auf Raumtemperatur abkühlen zu lassen. Teilweise konnte auf den Ionenbeschuß völlig verzichtet werden, Heizen allein genügte zur Säuberung.

In der Literatur findet man Hinweise auf ähnliche Präparationsvorgänge. *Liang et al.* (1988) beschreiben die Präparation eines Cu(113)-Kristalls. Nach einer Behandlung mit H_2 bei 700°C und einer elektrochemischen Politur wurde im UHV mit 500 V Ne^+ bei 700°C zerstäubt. *Fabre et al.* (1986) präparierten einen Cu(115)-Kristall nach einer mechanischen und elektrochemischen Politur durch Heiz- und Zerstäubungszyklen (Ar^+ mit 400 V und $10\ \mu\text{A}$ für 1 Stunde bei senkrechtem Einfall, 530°C für 15 Minuten).

4.7. LEED-Aufnahmen - Eine erste Strukturinformation

Erste Information über die Kristallstruktur nach dem Einbau ins Vakuum und erfolgter Reinigung bot eine LEED-Aufnahme, die in Abbildung 42a gezeigt ist. Vergleiche mit einem berechneten LEED-Bild (siehe Abbildung 42b) ergeben eine recht gute Übereinstimmung. Die dunklen Stellen im experimentellen Bild sind durch vorstehende Manipulator- bzw. Ionenquellenbauteile verursacht, die die Sicht auf den LEED-Schirm versperren. Durch Verdrehung des Manipulators können auch die verdeckten LEED-Reflexe beobachtet werden.

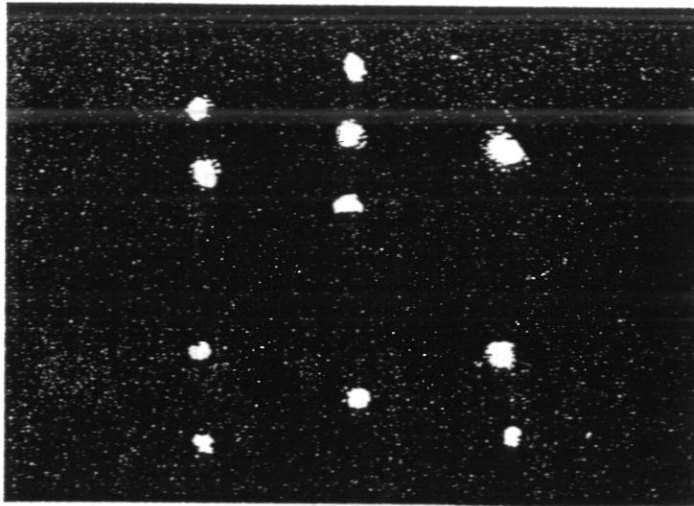


Abbildung 42a: LEED Aufnahme eines Cu(115) Kristalls bei Raumtemperatur ($E_0=102$ eV).

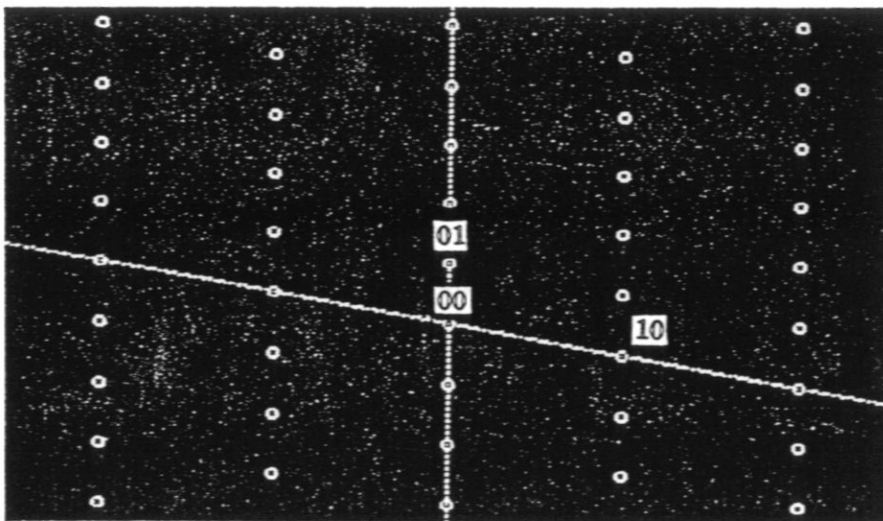
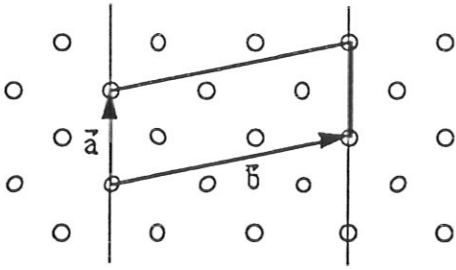


Abbildung 42b: Berechnetes LEED Bild eines Cu(115) Kristalls [Heinz 1991].



Um die Interpretation des LEED-Bildes zu erleichtern, ist die Einheitszelle der Cu(115) Fläche dargestellt. Mit Hilfe dieser Zeichnung ist zu erkennen, daß im LEED Bild die Stufenkanten durch die Reihen von Reflexen

parallel zur (00-10) Richtung abgebildet werden, der Winkel zwischen (00-10) und (00-01) entspricht dem Winkel zwischen den Vektoren \vec{a} und \vec{b} der Einheitszelle. Die kurzen Abstände entlang der (00-01) Richtung repräsentieren die Abstände der Stufenkanten zueinander, die langen Abstände in der (00-10) Richtung die kurzen Atomabstände entlang den [110] Stufenkanten.

Die Qualität der LEED-Bilder läßt sicher zu wünschen übrig. Doch um erste qualitative Aussagen über die Oberfläche machen zu können, reicht es gerade aus. Nach einigen Versuchen den Kontrast und die Schärfe der Reflexe zu verbessern, wurde entdeckt, daß die Probe nicht im Fokus war, aber leider auch nicht dorthin zu verschoben werden konnte.

5. Experimentelle Ergebnisse

In folgender Einleitung sollen noch einmal ganz kurz die unterschiedlichen Experimente und die weiterhin verwendeten Begriffe erläutert werden.

(a) Definition der Streugeometrie:

(Einfallswinkel, Streuwinkel, Azimut; Primärenergie, Ionenmasse, Targetmasse) ist beschrieben durch $(\psi, \vartheta, \varphi, E_0, m_0, m_i)$.

(b) Treppauf- und Treppabstreuung:

Treppaufstreuung bedeutet Streuung in $\varphi = 180^\circ$, Treppabstreuung in $\varphi = 0^\circ$, siehe Abbildung 40.

(c) Energie-Spektrum:

Energieverteilung aufgenommen bei konstanter Streugeometrie, d.h. bei konstantem Einfallswinkel und Streuwinkel, konstantem Azimut, fixer Primärenergie; variiert wird die Passenergie des Energieanalysators.

Information: Atomabstände (Mehrfachstreuung) und Zusammensetzungsanalyse

(d) Azimut-Spektren:

Winkelverteilung, aufgenommen bei konstantem Streuwinkel ($\vartheta = 38^\circ$) und Einfallswinkel, bei konstanter Primärenergie, der Energieanalysator läßt nur Ionen mit einer dem Streuwinkel und dem Streupartner entsprechenden Energie durch; variiert wird der azimutale Winkel des Ionenstrahls zur Probenoberfläche. Dabei entspricht $\varphi=0^\circ$ der [552], $\varphi=90^\circ$ der [110] und $\varphi=180^\circ$ der [552]-Richtung.

Information: azimutale Orientierung dichtgepackter Reihen mit Hilfe des Channeling-Effektes

(e) ICISS-Spektrum oder PSI-Spektrum:

Winkelverteilung aufgenommen bei konstantem Streuwinkel ($\vartheta = 145^\circ$) und Azimut, bei konstanter Primärenergie, der Energieanalysator läßt nur Ionen mit einer dem Streuwinkel und dem Streupartner entsprechenden Energie durch; variiert wird der Einfallswinkel.

Information: Atomabstände mit Hilfe des Schattenkegeleffektes

5.1. Probenpräparation

Die Präparation einer Probe stellt mitunter einige Anforderungen an die Experimentführung. Üblicherweise werden kombinierte Heiz- und Zerstäubungszyklen verwendet [Taglauer (1990)]. Bei speziell strukturierten Oberflächen, wie sie die (115)-Ebene darstellt, ist besondere Sorgfalt geboten, um die Struktur der Oberfläche während des Reinigungsprozesses nicht zu zerstören.

Die Zerstäubung der Oberfläche konnte in vorliegender Arbeit auf zwei Arten durchgeführt werden. Einerseits bestand zu Anfang die Möglichkeit mit Hilfe einer eigenen Ionenquelle, die für die Zerstäubung notwendigen Ionen zu erzeugen. Andererseits war es auch möglich, die zur Spektroskopie verwendete Ionenquelle zur Zerstäubung zu nutzen. Dazu wurde die Stromdichte des Ionenstrahls erhöht und das Strahlprofil aufgeweitet. Die Zerstäubungsquelle hatte den Vorteil einer höheren Stromdichte und eines breiten Strahlprofils; so daß der Zerstäubungsfleck an der Probe größer war. Die Verwendung des Meßstrahls zur Zerstäubung hat als Pluspunkt aufzuweisen, daß mit absoluter Sicherheit der Zerstäubungsfleck auch der Analysefleck ist. Beide Methoden lieferten gleich gute Ergebnisse.

Eine wichtige Fragestellung ist die nach dem Einfluß der Verunreinigungen auf die Oberflächenstruktur und das Streueignis. Eine andere Frage richtet sich nach der Position der Verunreinigungen an der Oberfläche. Welche Aussagen bereits aus der "ungewollten" Verunreinigung der Probenoberfläche gemacht werden können, soll im nächsten Abschnitt gezeigt werden.

Wie wird die Sauberkeit einer Probe definiert? *Van de Riet et al.* (1989) stellen zwei Kriterien einer sauberen Probenoberfläche auf, indem sie fordern, daß (i) das Signal der zerstäubten, negativ geladenen Sauerstoffteilchen weniger als 1% des Signals einer Monolage Sauerstoff liefert (Streuwinkel $\vartheta=40^\circ$), und daß (ii) das Verhältnis zwischen Maximum und Minimum einer azimuthalen Verteilung ($\psi = 8^\circ$, $\vartheta = 90^\circ$; Neon, $E_0 = 5$ keV) größer als 100 ist. Wenn die erste Forderung erfüllt ist, befindet sich an der Oberfläche eine Verunreinigung von 1% oder weniger Sauerstoff, die zweite Bedingung gilt als Maß für eine gut geordnete Oberfläche.

Eine definierte Bedeckung der Oberfläche war im Zuge dieser Arbeit leider nicht

möglich. Außerdem schien eine einprozentige Bedeckung der Oberfläche durch Sauerstoff kein zufriedenstellendes Maß zu sein. Entsprechend den auch experimentell erreichbaren Intensitätsverhältnissen von den gesamten Verunreinigungen zum Kupfersignal von 3%, wurde die Probe solange gesäubert, bis eben dieses Verhältnis erreicht wurde. In den Azimutspektren ($\psi = 8^\circ$, $\vartheta = 38^\circ$; $E_0 = 1$ keV, Neon) wurden ähnliche Verhältnisse erzielt (Maximum/Minimum ≥ 100). Wie wichtig es ist, bei der Sauberkeitsangabe die Angabe des Streuwinkels hinzuzufügen, zeigt Abbildung 43.

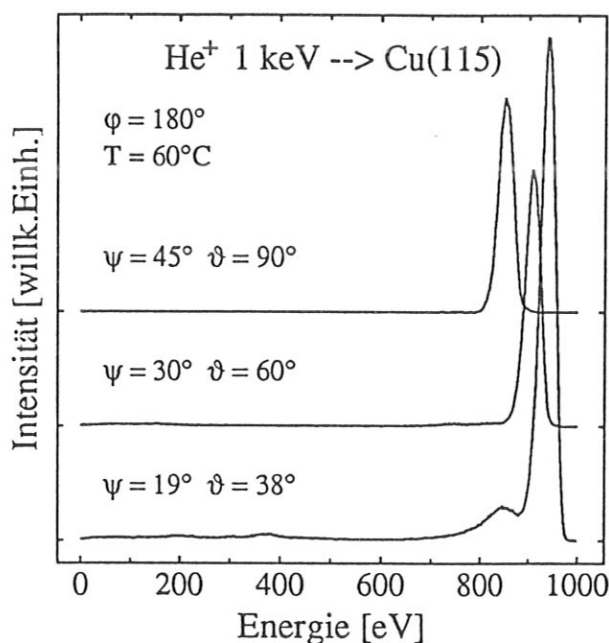


Abbildung 43: Verschiedene Streugeometrien ergeben verschiedene Aussagen über die Oberflächenzusammensetzung (absolute Zählraten).

Unter flachem Einfallswinkel und kleinem Streuwinkel ($\vartheta = 38^\circ$) sind Verunreinigungen besonders gut zu detektieren. Ein Beispiel für die unterschiedliche Massenauflösung von He^+ und Ne^+ zeigt Abbildung 44. Wählt man einen genügend kleinen Streuwinkel, so kann man auch mit einem schweren Ion leichte Verunreinigungen wie Sauerstoff detektieren ($m_o > m_i$). Hier ist einer der großen Vorteile der Ionenstreuung klar zu erkennen. Bei Auswahl eines Neonionenstrahls kann man einen einzigen Ionenstrahl zur Zerstäubung und auch als Meßsonde, zur Bestimmung der Oberflächenzusammensetzung und auch zur Bestimmung der Geometrie der Fläche verwenden.

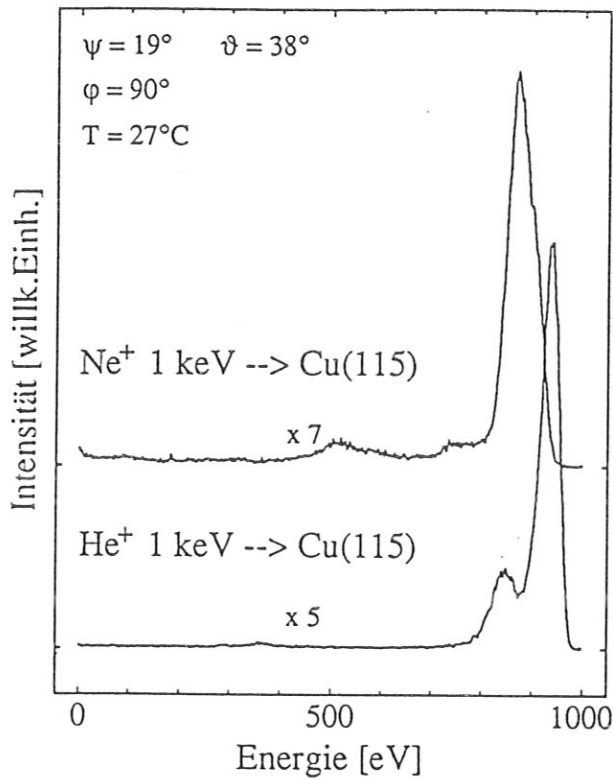


Abbildung 44: Energiespektren bei gleicher Streugeometrie und Primärenergie, aber für verschiedene Ionen.

Zur Bestimmung der Position des Sauerstoffes an der Oberfläche ist es angebracht, strukturbestimmende Verfahren der ISS zu wählen. Besonders geeignet ist die Aufnahme eines Azimutpektrums (Abb. 45a), d.h. eine azimutale Variation der Probe, während unter festgehaltener Streugeometrie und Detektionsenergie, die der Einfachstreuung des Ions am Sauerstoff entspricht, detektiert wird. In der entsprechenden Energieverteilung lag das Intensitätsverhältnis von Cu/O bei 3412/214 (etwa 6%). Die starke Variation im Sauerstoffsignal ist durch die geometrische Anisotropie der Probe bedingt. Eine qualitative Beschreibung der azimutalen Intensitätsabhängigkeit aufgrund von Abschattungs- und Channelingeffekten ist in Abbildung 45b zu sehen. Dieser Beschreibung ist ein Modell von Cu-O-Cu-Ketten entlang den Stufenkanten zugrunde gelegt, wobei jedes zweite Cu-Atom durch ein O-Atom ersetzt wird. Grundsätzlich bieten sich 4 Möglichkeiten, die Cu-O-Cu-Ketten relativ zueinander zu positionieren. Aufgrund der guten Übereinstimmung mit dem Experiment wurde das dargestellte Modell favorisiert. Dürr weist ebenfalls bei verschiedenen Sauerstoffbedeckungen und bei Anwesenheit von Adatomen an Cu(110) auf lineare Cu-O-Cu-Ketten in [001]-Richtung hin.

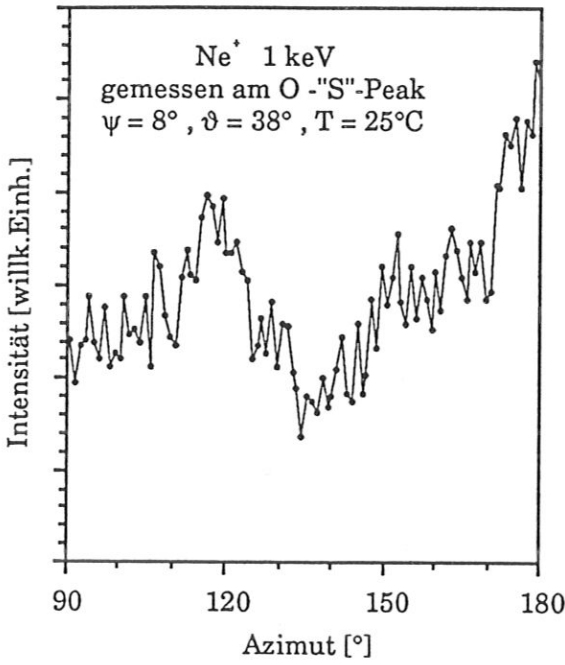


Abbildung 45a: Azimutspektrum am Sauerstoffpeak.

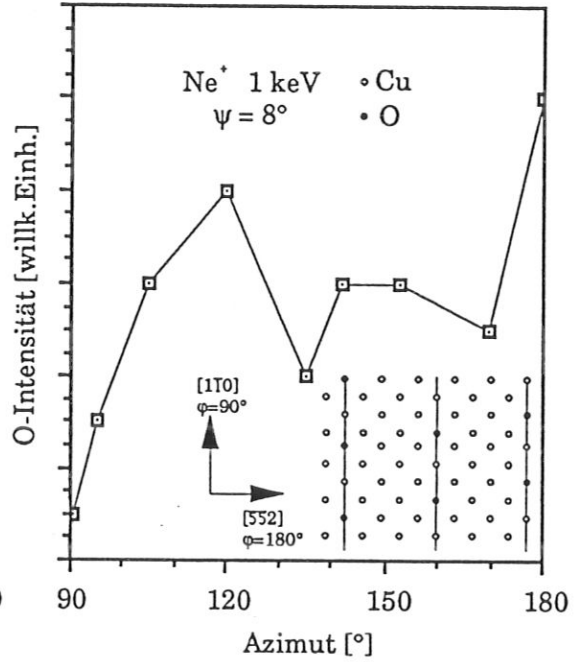


Abbildung 45b: O-Intensität als Funktion von ϕ . Modell der Cu-O-Cu-Ketten.

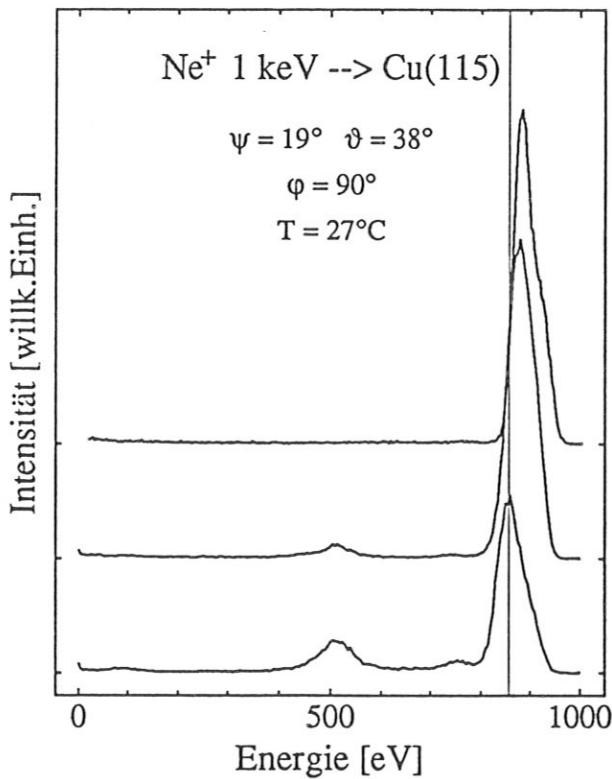


Abbildung 46: Auswirkung der Verunreinigungen auf das Mehrfachstreuverhalten. Die einzelnen Spektren sind von unten nach oben bei zunehmender Fluenz aufgenommen (absolute Zählraten).

Interessant ist es auch, die Energie der, an einer verschmutzten, im Vergleich zu an einer sauberen Probe, rückgestreuten Ionen zu beobachten. Für dieses Experiment wurde Ne^+ -Streuung bei einer Streugeometrie von $\psi=19^\circ$ und $\vartheta=38^\circ$ gewählt, die azimutale Richtung des einfallenden Ionenstrahls lag parallel zu den Stufenkanten ($\varphi = 90^\circ$). In Bild 43 war diese Streugeometrie als geeignet befunden worden, um die Sauberkeit einer Oberfläche zu definieren.

In Abbildung 46 sind drei Energieverteilungen gezeigt. Die unterste Kurve zeigt eine stark verunreinigte Kupferoberfläche. Die Intensitäten der Verunreinigungen Schwefel und Sauerstoff im Verhältnis zum Cu-Signal ergeben eine Gesamtverschmutzung von $\sim 22\%$ (Intensitätsverhältnisse der Energieverteilung). Wird die Probe durch Ne^+ -Beschuss parallel zu den Stufen gereinigt ($E_0=1.0\text{ keV}$, $\psi=19^\circ$, $J_0=0.1\text{ }\mu\text{A/cm}^2$), so erhält man nach kurzer Zeit das zweite in Abbildung 46 dargestellte Spektrum (Mitte). Die Verunreinigungen haben sich auf 5% verringert. Besonders zu bemerken ist die Verschiebung des Signals bei 870 eV (Cu) um etwa 20 eV zu höherer Energie und die Intensitätszunahme um beinahe 80% im Maximum. Diese Verschiebung wird im obersten Spektrum besonders deutlich, sie entspricht dem Übergang von der Einfach-Streuung ("S") zur Quasi-Einfach-Streuung ("QS"). Das in Streurichtung als konstant anzusehende Potential ist durch die Anwesenheit von Sauerstoff soweit gestört, daß die Kupferatome sich gegenseitig nicht mehr beeinflussen. Diese Tatsache spricht wiederum für die Bildung von Cu-O-Cu Ketten. Außerdem ist zu beobachten, daß der "S"-Peak im untersten Spektrum nicht symmetrisch ist. Eine zusätzliche Schulter auf der höherenergetischen Seite des Cu-Signals gibt ein Anzeichen für auftretende Mehrfachstreuereignisse, wenn die Probe optimal - d.h. Gesamtverschmutzung von $\sim 3\%$ - gereinigt ist.

Anhand dieser Informationen wurde eine Standardpräparation festgelegt, die erfolgreich zu einer gut gesäuberten und perfekt geordneten Probenoberfläche führt:

- (i) Aufnahme eines Energiespektrums zur Identifikation der Art und des Ausmaßes der Verunreinigungen.
- (ii) Entsprechende Präparation durch Heizen der Probe auf bis zu 400°C und, wenn erforderlich, gleichzeitigen Ionenbeschuss (Ne^+ , $\varphi=90^\circ$, $\psi=12^\circ$).
- (ii) Ständige Kontrolle der Oberflächenzusammensetzung.

(iv) Nach Erreichen der geforderten Sauberkeit wird die Heizung abgedreht, die Probe kühlt langsam auf Raumtemperatur ab. Wurde mit Ionenbeschuß gearbeitet, so wird dieser abgestellt, die Heizung bleibt dann aber noch mindestens für 60 Minuten an.

Um neben den qualitativen Aussagen über die Struktur der Oberfläche auch eine Quantifizierung zu ermöglichen, ist es notwendig, einzelne Punktdefekte detektieren zu können. Diese geben Auskunft über die Güte der Oberfläche. Welche Art des Experimentes erlaubt die Beobachtung von Punktdefekten? Eine Antwort auf diese Frage findet sich in Kapitel "Punktdefekte und Ausheilverhalten".

5.2. Struktur der Cu(115) Oberfläche bei Raumtemperatur

5.2.1. Mehrfachstreuung

Im theoretischen Kapitel "Strukturbestimmung - Mehrfachstreuung" wurde gezeigt, daß die Mehrfachstreuung - im Experiment meist begrenzt auf Doppelstreuung - Möglichkeiten zur Strukturbestimmung bietet. Das Auftreten und die Intensität des Doppelstreupeaks ist ein Maß für die Anzahl von Atompaaren in einem bestimmten Abstand. In diesem Abschnitt soll gezeigt werden, daß die im theoretischen Kapitel beschriebenen Vorstellungen durch das Experiment bestätigt werden können.

In Abbildung 47a sind Energiespektren bei gleichen geometrischen Bedingungen ($\psi=30^\circ$, $\vartheta=60^\circ$, $\varphi=90^\circ$) und gleicher Primärenergie ($E_0 = 500$ eV), aber für unterschiedliche Ionen dargestellt. Nur bei der Streuung des schweren Neonions ist der Doppelstreupeak zu erkennen. Der Einfluß der Primärenergie auf die Doppelstreuung ist in Abbildung 47b zu sehen.

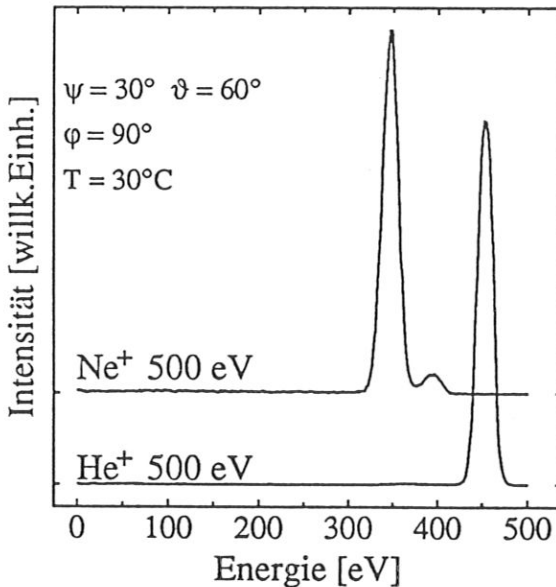


Abbildung 47a: Mehrfachstreuung bei verschiedenen Ionenmassen (normierte Zählraten).

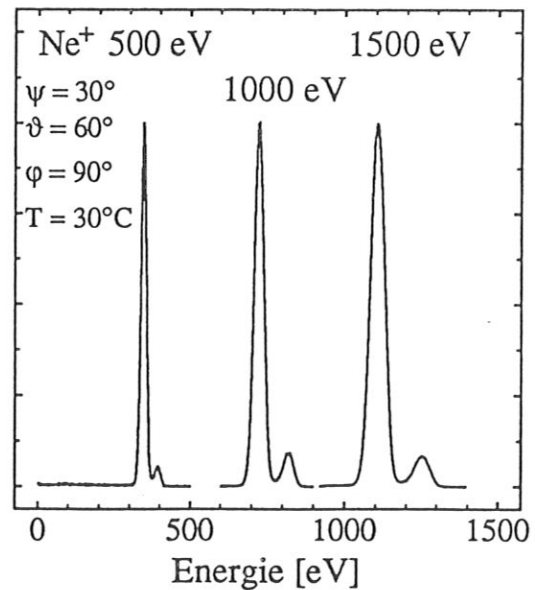


Abbildung 47b: Mehrfachstreuung bei verschiedenen Primärenergien (normierte Zählraten).

Die Auswirkungen einer Streuwinkelvariation für Neonionen mit einer Energie von 500 eV gestreut parallel zu den Stufenkanten ($\varphi=90^\circ$), zeigt Abbildung 48. Dabei

wurde ψ immer gleich $\vartheta/2$ gewählt. Zur besseren Vergleichbarkeit sind alle Spektren auf die gleiche maximale Peakhöhe normiert. Ist es bei kleineren Streuwinkeln schwierig, den Doppelstreupeak vom Einfachstreueignis zu trennen, so sind diese beiden Streueignisse bei großen Streuwinkeln zwar gut trennbar, dafür sinkt die Doppelstreuintensität mit zunehmendem ϑ . Bei einer Streugeometrie von $\psi=30^\circ$ und $\vartheta=60^\circ$ ist eine Separation gut möglich und die "QD"-Intensität ist ausreichend hoch, um Aussagen zu ermöglichen. Deshalb wurde für nahezu alle weiteren Beispiele zur Mehrfachstreuung diese Streugeometrie - $\psi=30^\circ, \vartheta=60^\circ$ - gewählt.

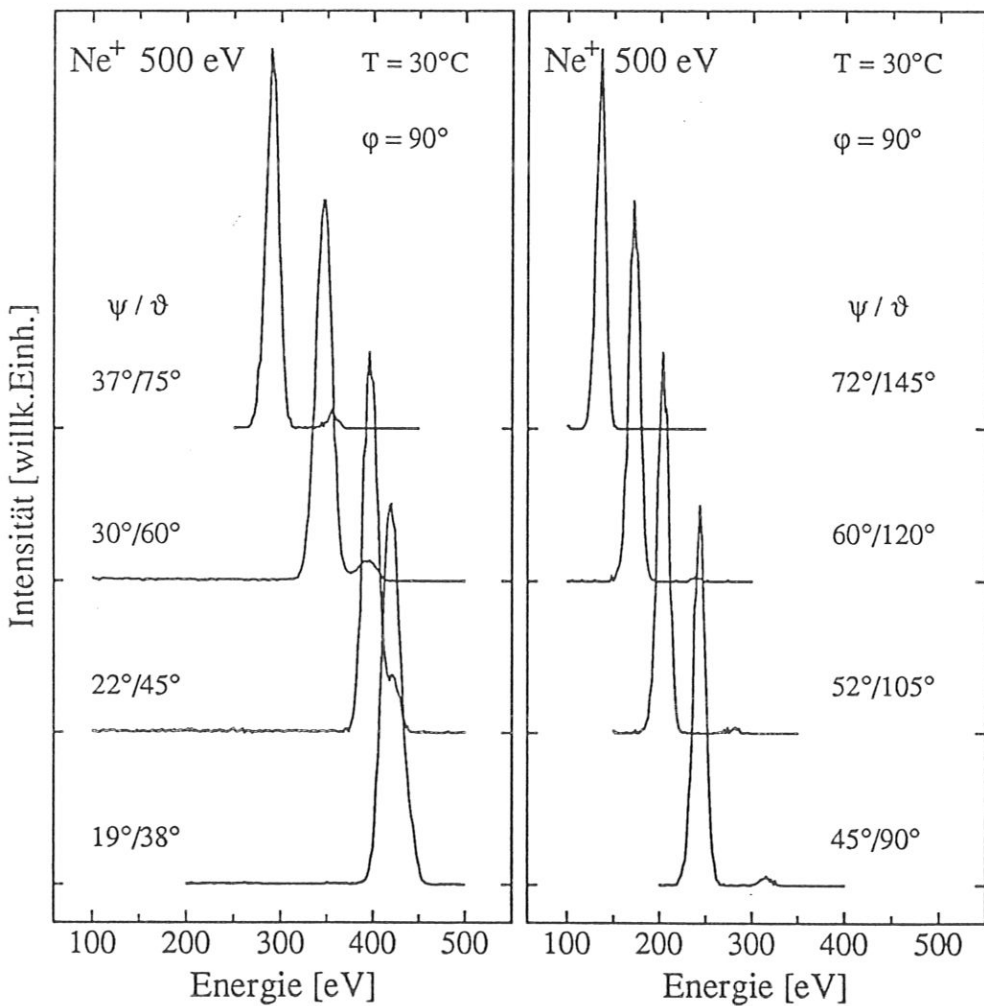


Abbildung 48: Das Verhalten des Doppelstreupeaks bei Variation des Streu- und des Einfallswinkels (normierte Zählraten).

Da der Effekt der Doppelstreuung stark vom Einfallswinkel abhängt (siehe Abb. 11), ergeben sich bei Variation von ψ unterschiedliche Energieverteilungen. Abbildung 49a zeigt die Streuung von Ne⁺ mit 0.5 keV parallel zu den Stufenkanten, bei einem

Streuwinkel von 60° und für die Einfallswinkel $20^\circ, 25^\circ, 30^\circ, 35^\circ$ und 40° . Die Intensität des "S"-Peaks in Abhängigkeit vom Einfallswinkel ist in Bild 49b dargestellt. Ab einem Einfallswinkel von $\sim 27^\circ$ ist die Schattenkegeldimension in Streurichtung kleiner als der kleinste Atomabstand (2.556 \AA), d.h. daß alle Stufenkantenatome zur Streuung beitragen. Wird der Einfallswinkel zu groß, sinkt die Wahrscheinlichkeit für Streuung in $\vartheta=60^\circ$ (Vergleich: ICISS-Spektren).

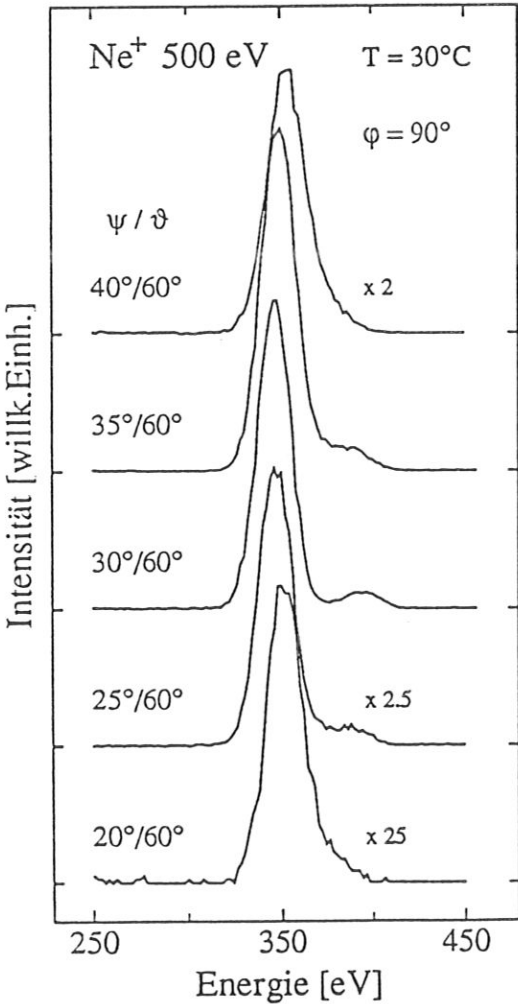


Abbildung 49a:
Energieverteilungen bei
(ψ var, $\vartheta=60^\circ$, $\varphi = 90^\circ$; 500 eV, Ne^+).

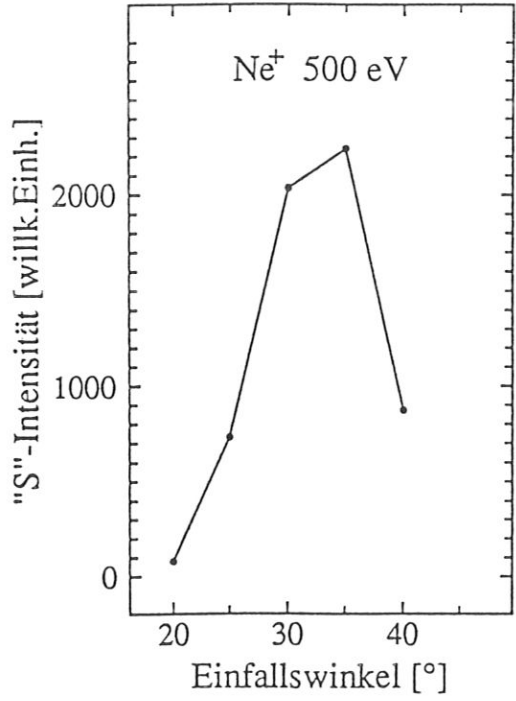


Abbildung 49b:
Intensität des "S"-Peaks in Abhängigkeit von ψ .

Energiespektren für unterschiedliche azimutale Richtungen, d.h. unterschiedliche Atomabstände, sind im nächsten Bild zu sehen (Abb. 50). Der azimutale Winkel φ ist in 15° -Schritten von 0° bis 180° variiert. Deutlich sieht man das "Auftreten" des Doppelstreupeaks und die Verschiebung des Einfachstreupeaks von der "S"-Position, gekennzeichnet durch die vertikale Linie, zur "QS"-Position.

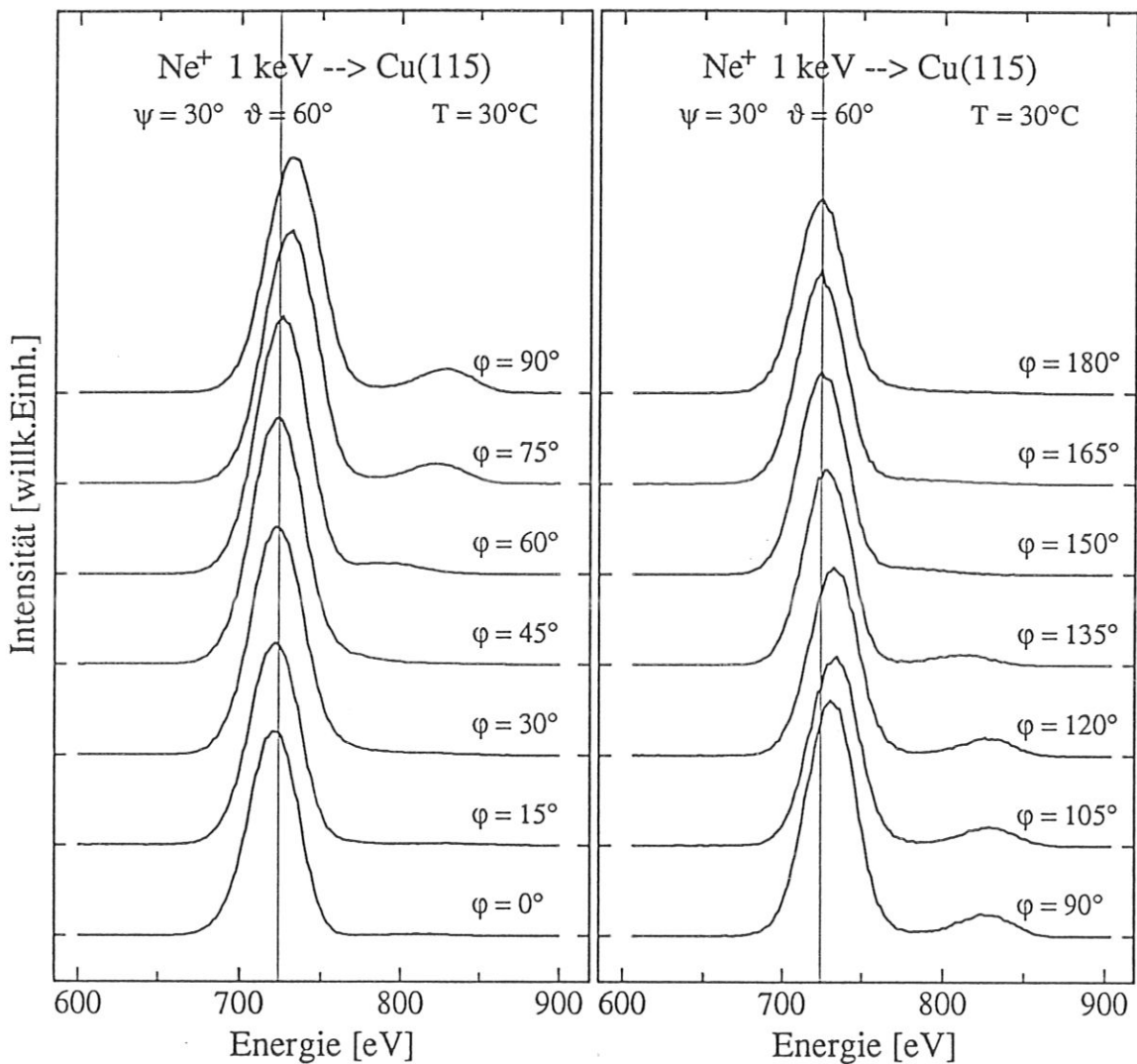


Abbildung 50: φ -Variation einer Energieverteilung (absolute Zählraten).

Die Intensität des ersten Peaks ("S", "QS") nimmt von $\varphi=0^\circ$ beginnend bis $\varphi=90^\circ$ kontinuierlich zu, um dann wieder im gleichen Maße abzunehmen. Erklärbar ist dieser Effekt mit Abschattung der einzelnen Atome untereinander, wobei hier die Atome der (001)-Terrassen gemeint sind. Trifft der Ionenstrahl unter einem immer "schrägeren" Winkel (größeres φ) an die Stufenkanten, sind auch Terrassenatome der Streuung zugänglich, die Intensität steigt an. Erreicht man einen zur Stufenkante parallelen Einfall, verschiebt sich der Peak, die Intensität bleibt nahezu erhalten. Ab $\varphi=90^\circ$ beginnt der umgekehrte Verlauf. Parallel zu den Stufen ist der Atomabstand in der Streuebene 2.556 Å, senkrecht zu den Stufen ist er jedoch wesentlich größer, nämlich 13.3 Å, sodaß keine Doppelstreuung beobachtet werden kann. Bei $\varphi=75^\circ$ liegt der nächste Nachbar-

abstand in der (115)-Fläche zwar bei $\sim 25 \text{ \AA}$, doch der Abstand zweier paralleler Streuebenen beträgt nur $\sim 0.6 \text{ \AA}$. In diesem Fall können sich die Atome verschiedener, nahe beieinander liegender, Streuebenen (zick-zack Streuung) beeinflussen, ein "QD"-Peak ist zu sehen. Ab $\varphi=90^\circ$ wird Doppelstreuung auch bei anderen azimutalen Winkeln beobachtet, da hier die als Streupartner fungierenden Terrassenatome direkt zugänglich sind. Entsprechend der unterschiedlichen Abstände der Atome, in den unterschiedlichen Richtungen φ , sind die "QD"-Signale nicht an genau derselben Energieposition zu finden. Zur Bestimmung der atomaren Abstände an der Oberfläche wird die Position des Doppelstreupeaks, im Vergleich zur der des Einfachstreupeaks, in der Energieverteilung untersucht. Der Vergleich mit Simulationen läßt auf den Abstand d der Atome an der Oberfläche schließen (siehe Abb. 15).

Aus Figur 48 ist zu erkennen, daß der Streuwinkelbereich in dem Doppelstreuung auftritt begrenzt ist. Eine andere Art der Darstellung dieses Effektes zeigen die Abbildungen 51a und 51b. Die energetische Lage der Peaks ist, im Verhältnis zur Primärenergie, gegenüber dem Streuwinkel aufgetragen. Die Neonionen wurden für dieses Experiment parallel zu den Stufenkanten gestreut, sodaß zwei Peaks in den Energieverteilungen entsprechend der "QS"- und der "QD"-Streuung zu beobachten sind. Die Symbole \times und \diamond stellen in Abbildung 51a die "QD"- bzw. die "QS"-Energie dar.

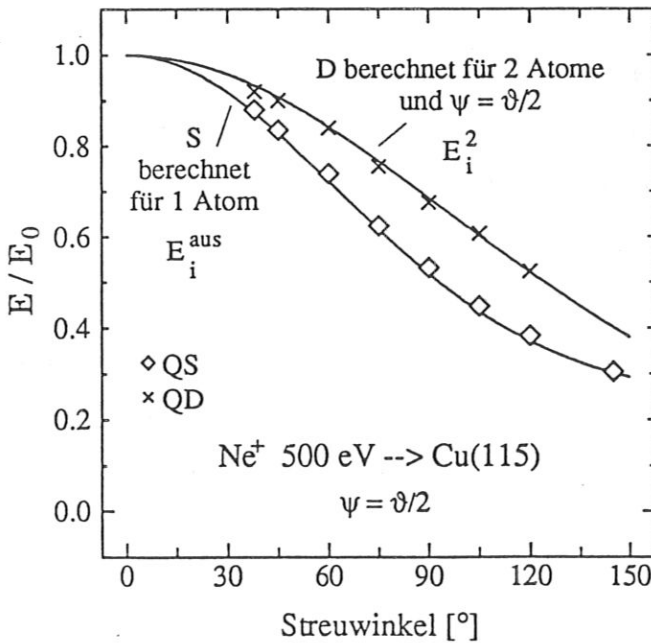


Abbildung 51a:

E_1^1/E_0 bzw. E_1^2/E_0 aufgetragen gegenüber dem Streuwinkel ϑ . Die Symbole stellen Werte aus dem Experiment ($\text{Ne}^+ 500 \text{ eV}$, $\psi=\vartheta/2$), die Linien den Einfach- bzw. den Doppelstoß dar.

Das gleiche Experiment, doch für konstanten Einfallswinkel, liefert die Datenpunkte in Figur 51b. Hier wurde zusätzlich noch die Streuung senkrecht zu den Stufenkanten durchgeführt, um auch die Einfachstreuenergie "S" (im Bild dargestellt durch \circ) bestimmen zu können. Aufgrund der großen Abstände zu den nächsten Nachbarn bei $\varphi=0^\circ$, gibt es keine Beeinflussung, die Energiepositionen entsprechen der "S"-Energie.

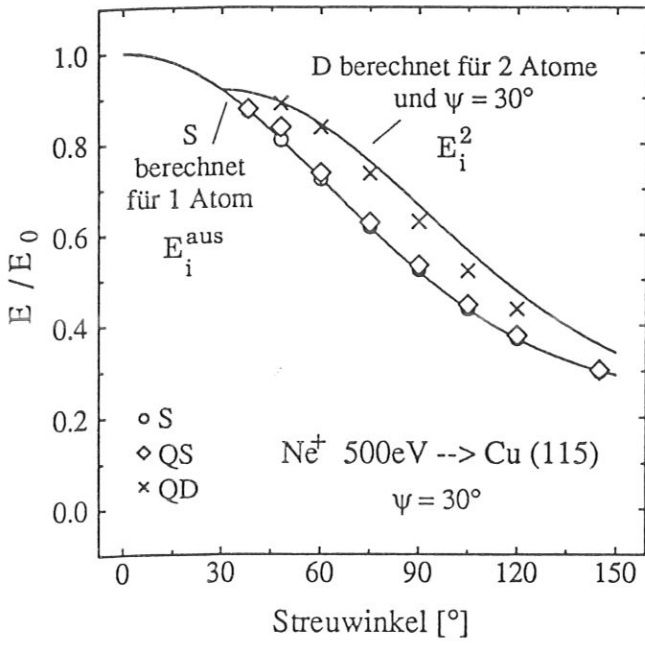


Abbildung 51b:
 E_1^1/E_0 bzw. E_1^2/E_0 aufgetragen gegenüber dem Streuwinkel ϑ . Die Symbole stellen Werte aus dem Experiment (Ne^+ 500 eV, $\psi=30^\circ$), die Linien den Einfach- bzw. den Doppelstoß dar.

Die experimentellen Werte liegen innerhalb der theoretischen Kurven für den Einfach- und den Doppelstoß, es entstehen die für die jeweilige Struktur der Oberfläche charakteristischen "Loops". Da in diesem Fall der Einfallswinkel konstant 30° beträgt, ergibt sich für die Doppelstreuung speziell bei großem Streuwinkel ein größerer Energieverlust, die Energie der Doppelstreuung liegt bei etwas niedrigeren Werten.

Die "tatsächliche" Oberfläche ist bzgl. der [110]-Richtung, im Gegensatz zur (115)-Fläche, nicht symmetrisch. Mit Hilfe von Abbildung 52 ist zu sehen, daß sich für Treppauf- und Treppabstreuung, bei gleichem Einfallswinkel $\psi_{(115)}$ zur (115)-Fläche, unterschiedliche Winkel ψ_{Terr} zu den Terrassenebenen ergeben. Der Einfallswinkel zur Terrassenebene kann aus Abbildung 52 trigonometrisch berechnet werden.

$$\begin{aligned} \psi_{Terr} &= \psi_{(115)} - 15.8^\circ && \text{für } \varphi = 180^\circ && (43) \\ \psi_{Terr} &= \psi_{(115)} + 15.8^\circ && \text{für } \varphi = 0^\circ && \end{aligned}$$

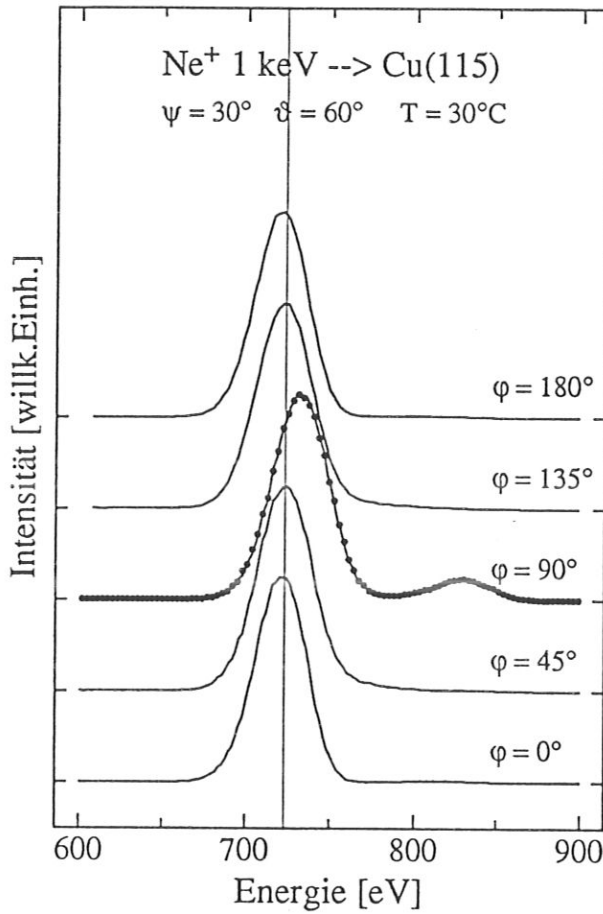


Abbildung 53: Energiespektren in unterschiedlichen azimutalen Richtungen, bei gleichbleibender Streugeometrie (normierte Zählraten).

Dreht man nach Gleichung 43 den Einfallswinkel für Treppab- bzw. Treppaufstreuung bzgl. der Terrassenebenen nach, so ist an der "QD"-Position der Energiespektren eine Intensitätszunahme zu verzeichnen, der Einfachstreupeak wandert von der "S"- zur "QS"-Position (Abb. 54). Jetzt wird auch senkrecht zu den Stufen der gleiche Atomabstand mit dem Ionenstrahl abgetastet, die Ionen sehen in die Oberfläche hinein auf die Terrassenebenen.

Tabelle 2 stellt die Intensitäten der Signale, für unterschiedliche azimutale Richtungen und verschiedene Einfallswinkel, zusammen. Die Intensität des "QS"-Ereignisses parallel zu den Stufen ($\varphi = 90^\circ$) liegt, aufgrund der größeren Anzahl von Atompaaren im gleichen Abstand d , bei einem höheren Wert. An Hand des Bildes 52 versteht man auch, warum $I_{QD}(\varphi=0^\circ)$ kleiner als $I_{QD}(\varphi=180^\circ)$ ist. Zur Verdeutlichung sind wiederum die entsprechenden Energiespektren dargestellt (Abb. 54).

Azimut	Einfalls- winkel	Position "S"-"QS"	Intensität "S"-"QS"	Position "QD"	Intensität "QD"
	14°	364	497	417	12
0°	30°	360	1106	-	-
	46°	368	287	-	-
90°	30°	367	1197	416	84
	14°	360	817	-	-
180°	30°	361	1028	-	-
	46°	367	420	416	21

Tabelle 2: Intensitäten der Einfach- und Doppelstreuung bei unterschiedlichem Einfallswinkel zur (115)-Fläche für $\varphi = 0^\circ, 90^\circ, 180^\circ$ (Ne^+ 500 eV).

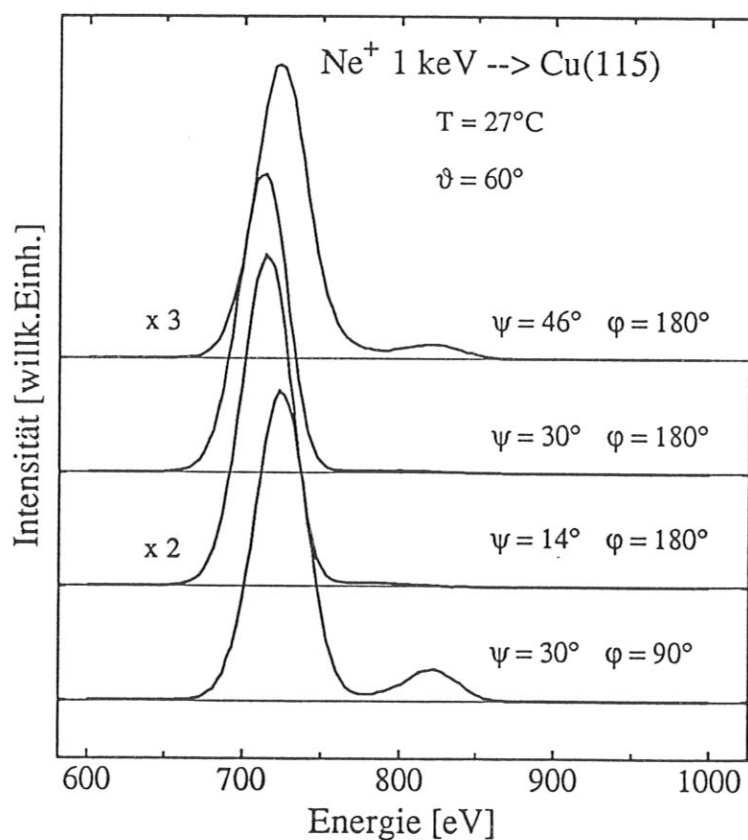


Abbildung 54: Energiespektren, wobei der Einfallswinkel bzgl. der Terrassenebene nachgedreht wurde.

Der Einfallswinkel ψ wurde in 1° -Schritten von 40° bis 52° variiert und das Auftreten des Doppelstreusignals beobachtet. Am exaktesten ausgeprägt ist der "DS"-Peak bei $\psi = 46^\circ \pm 2^\circ$. Daraus bestimmt sich der Winkel zwischen der (115)-Oberfläche und den (001)-Terrassen zu $16^\circ \pm 2^\circ$.

Die Wahrscheinlichkeit für Mehrfachstreueignisse ist außerdem stark durch das Neutralisationsverhalten der Ionen bestimmt. Alkaliionen, die zu einem wesentlich geringeren Prozentsatz neutralisiert werden, sollten infolgedessen größere Intensitäten für den Mehrfachstreupeak aufweisen. Abbildung 55 zeigt die Streuung von Natrium ($\psi=25^\circ$, $\vartheta=50^\circ$, $E_0 = 1.5$ keV) an Cu(115). Die beiden vertikalen Linien sind zur Führung des Auges gedacht, sie stellen keine ausgezeichneten Energiepositionen dar.

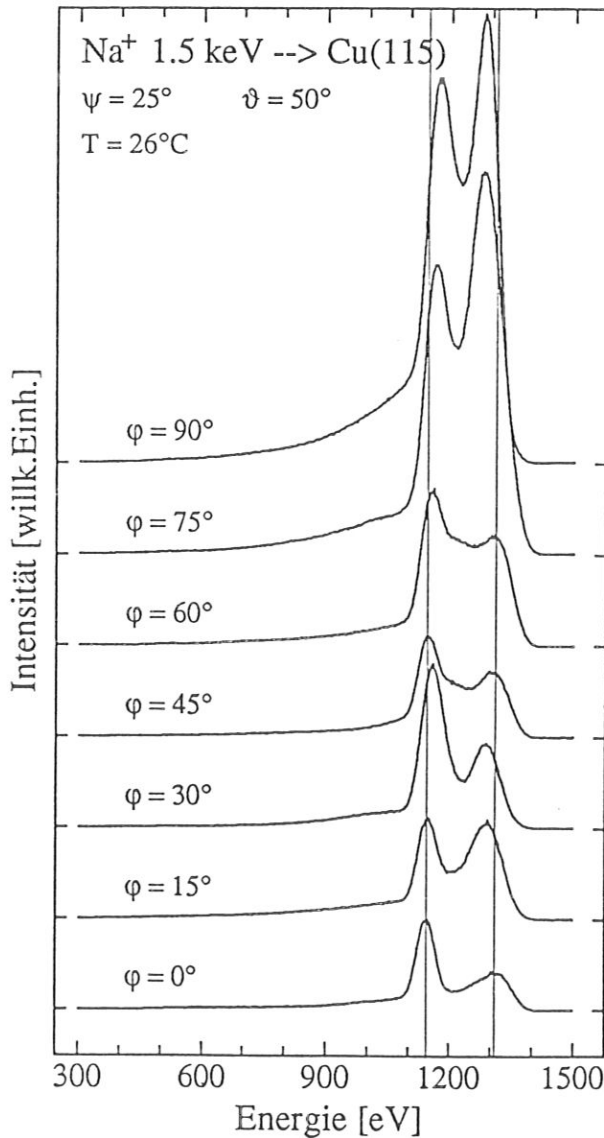


Abbildung 55: Azimutvariation einer Energieverteilung für Alkaliionen (absolute Zählraten).

Die theoretischen Vorstellungen bestätigen sich. Teilweise ist sogar der Doppelstreupeak in der Intensität höher als der Einfachstreupeak. Auffallend ist, daß in jedem Azimut der Doppelstreupeak vorhanden ist und daß die Positionen beider Peaks, sowohl die des "QS"- als auch die des "QD"-Peaks, wandern. Parallel zu den Stufen wird der Einfachstreupeak stark durch die in der Streuebene naheliegenden Nachbarn beeinflusst. Er liegt an der "QS"-Position, während er in anderen azimutalen Richtungen ($\varphi=0^\circ$ bis $\varphi=45^\circ$) bei der "S"-Position liegt. Der "QD"-Peak wandert von höheren Energien ($\varphi=0^\circ$ -größere Atomabstände) zu niedrigeren Energien ($\varphi=90^\circ$ -kleinere Abständen). Gleichung 16 beschreibt die Abhängigkeit des Stoßparameters b_2 vom Abstand d der beiden zur Mehrfachstreuung beitragenden Atome. Da der Stoßparameter den Streuwinkel bestimmt (Gl. 2) und dieser die Energie der reflektierten Ionen (Gl. 1), ist das Wandern des Doppelstreupeaks als Folge unterschiedlicher Abstände an der Oberfläche zu sehen.

Die theoretischen Vorstellungen über das Auftreten und das Verhalten der Mehrfachstreuung haben sich bestätigt. Aufgrund der Anisotropie der gestuften Oberfläche erhält man unterschiedliche Information bei der Variation des azimutalen Winkels. Einerseits hat man eine Möglichkeit gefunden, die azimutale Orientierung der Probe bzgl. des Ionenstrahls zu überprüfen, andererseits kann man, durch einen Vergleich mit anderen Experimenten und Rechnungen zur Mehrfachstreuung, auf den Atomabstand entlang der niedrigindizierten [1T0]-Richtung schließen. Da leider kein Simulationsprogramm zur Berechnung der charakteristischen Schleifen zur Verfügung stand, muß auf eine genaue Angabe des Atomabstandes verzichtet werden. Die "Nachkorrektur" des Einfallswinkels zu den Terrassenebenen, die zum Erscheinen des Doppelstreupeaks bei Streuung senkrecht zu den Stufenkanten führt, ermöglicht es, den Winkel zwischen der (115)-Oberfläche und den (001)-Terrassen zu $16^\circ \pm 2^\circ$ zu bestimmen.

5.2.2. Oberflächen-Channeling

Die Durchführung eines Experiments, welches Aussagen über die Oberflächenstruktur mittels Channeling ermöglicht, wurde am Anfang dieses Kapitels beschrieben, die theoretischen Überlegungen finden sich im Kapitel "Strukturbestimmung - Oberflächen-Channeling". Die Ausnützung des Channeling-Effektes, bei der Strukturbestimmung mit Hilfe von Azimutspektren, erfordert kleine Streuwinkel.

Im allgemeinen Kapitel über das Experiment wurde bereits erwähnt, daß anfänglich als kleinster Streuwinkel ein Winkel von 50° möglich war. Erst durch Umbau der Apparatur, d.h. Ausbau der AES-Elektronenquelle und der Zerstäubungsion Quelle, konnte ein kleinster Streuwinkel von 38° erzielt werden. Welche Änderungen diese Reduktion von 12° brachte, ist in Abbildung 56 dargestellt. Das Signal bei $\varphi=60^\circ$, ist bei kleinerem Streuwinkel, deutlicher zu beobachten.

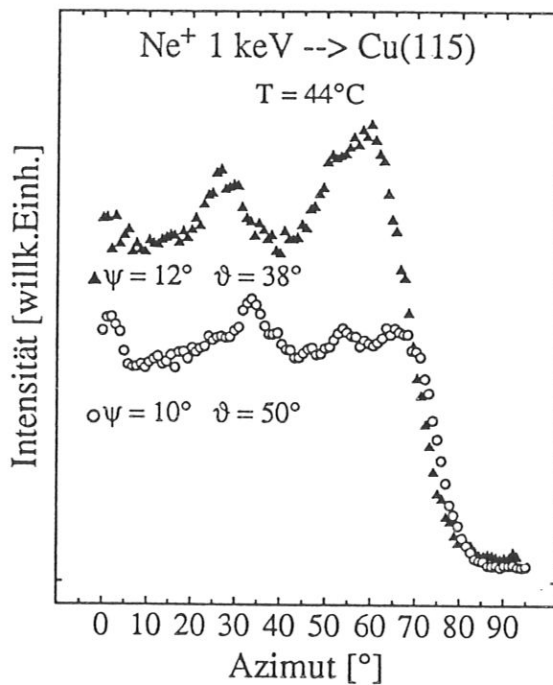


Abbildung 56: Azimutspektren für Ne⁺ 1 keV und verschiedene Streuwinkel (absolute Zählraten).

Vergleicht man diese Spektren mit Abbildung 17, so erkennt man sofort, daß die Täler in diesem Fall nicht so exakt ausgeprägt sind. Daher wurde, zur Sicherstellung der experimentell richtigen Vorgehensweise, der azimutale Winkel in 1° -Schritten variiert

und für jeden Winkel ein Energiespektrum aufgenommen. Die jeweilige Intensität der Maxima der Energieverteilungen über dem Azimut aufgetragen, ergibt ein völlig identisches Spektrum.

Bezieht man auch die Beobachtungen des vorigen Abschnittes ("Mehrfachstreuung") mit ein, nämlich den Einfluß des Atomabstandes d auf die Rückstreueenergie E_1^{aus} , so stellt sich die Frage, bei welcher Energie E_1^{aus} detektiert werden soll. Erleben die Ionen einen reinen Einfachstoß, besitzen sie nach dem Stoß die Energie "S", werden sie jedoch durch ihre Nachbaratome beeinflusst, haben sie die Energie "QS". Diese Energie "QS" ist aber dem Channeling-Effekt eher entsprechend, da die Ionen durch eine ganze Reihe von Atomen fokussiert werden. Zum direkten Vergleich sind zwei Spektren für gleiche Streubedingungen, aber unterschiedliche Analysatorpassenergien gemäß der "S"- und der "QS"-Energie dargestellt. Deutlich sieht man die Unterschiede in den Strukturen der Spektren.

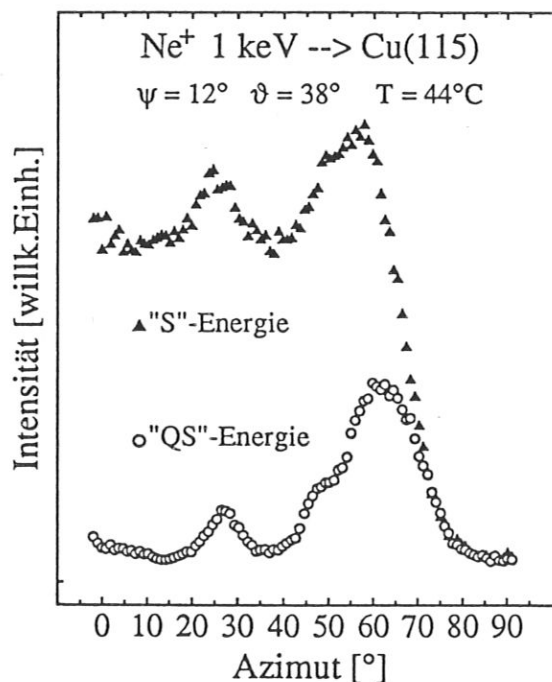


Abbildung 57: Azimutspektren für Ne⁺ 1 keV, einen Streuwinkel von 38° und zwei verschiedene Detektionsenergien (absolute Zählraten).

Die Quasi-Single-Energie repräsentiert die Streuung an dichtgepackten Atomketten mit kurzen Abständen, d.h. Richtungen der Kristalloberfläche, in denen Channeling besonders gut möglich ist. Das niedrige Signal in den Tälern zeigt diese Richtungen an.

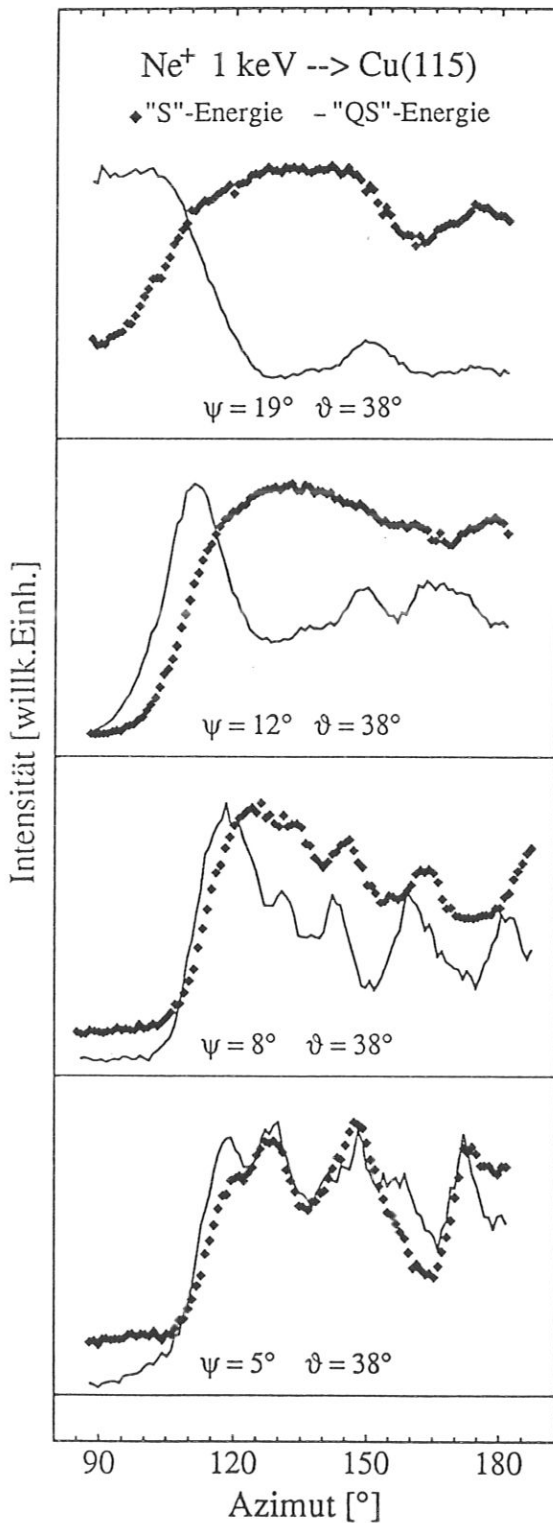


Abbildung 58:

Azimuthspektren für Ne⁺ 1 keV, einen Streuwinkel von 38° und verschiedene Einfallswinkel, detektiert bei der "QS"-Energie (-) und der "S"-Energie (•).

Bei Variation des Einfallswinkels ändert sich die Form der Spektren drastisch, Täler werden zu Peaks, andere Peaks verschwinden hingegen völlig. Besonders beeinflusst ist die Struktur der Spektren von der Wahl der Detektionsenergie. Der kritische Winkel für Channeling ist nach Gl. 18 für Ne⁺ bei 1 keV und einem Gitterabstand von 2.556 Å ungefähr 13° (für 13.28 Å ~ 4°), bei Einfallswinkeln größer ψ_c ist Channeling nicht möglich, daher ist für $\psi=19^\circ$ auch kein typisches Azimutspektrum zu erwarten. Erst bei kleinen Einfallswinkeln (~8°) sind die den dichtgepackten Reihen zuzuordnenden Täler ausgeprägt. Um $\varphi=90^\circ$ ist die "S"-Intensität höher, weil hier Channeling über lange Abstände nicht möglich ist. Bei $\psi=5^\circ$ liegt bereits ein Einfallswinkel in der Nähe von ψ_c (lange Abstände) vor, so daß auch das "S"-Signal ausgeprägte Täler aufweist.

Je größer der Einfallswinkel ist, desto stärker ist der Einfluß der Detektionsenergie. Für große Einfallswinkel ist die Möglichkeit zur Einfachstreuung gegeben, nicht jedoch für kleine ψ .

Die unterschiedlichen "S"- bzw. "QS"-Spektren für $\psi=19^\circ$ lassen sich wie folgt beschreiben: parallel zu den Stufenkanten ($\varphi=90^\circ$) liegen viele dichtgepackte Ketten (Stufenkanten und in den Terrassenebenen) vor, so daß Mehrfachstreuung mit großer Wahrscheinlichkeit möglich ist, die "QS"-Intensität liegt hoch. Bei Variation von φ erreicht man Kristallrichtungen, die keine kurzen Abstände aufweisen, die Intensität sinkt. Spektren aufgenommen bei der "S"-Energie zeigen entsprechend der Detektion langer Atomabstände ein umgekehrtes Verhalten. Diese Effekte sind durchaus mit denen aus Abbildung 49 vergleichbar, wo in Abhängigkeit vom Einfallswinkel, die Änderungen der energetischen Lage des Einfach- und des Doppelstreupeaks beobachtet werden. Aufgrund dieses Experimentes wurde die Streugeometrie $\psi=8^\circ$ und $\vartheta=38^\circ$ und die Detektionsenergie "QS" für weitere Channeling-Experimente ausgewählt.

Zur besseren Interpretierbarkeit der Daten wurden mit dem Programm MARLOWE Azimutspektren berechnet. Abbildung 59 vergleicht experimentelle und simulierte Daten für die Streuung von Na^+ mit einer Energie von 1.5 keV an Cu(115).

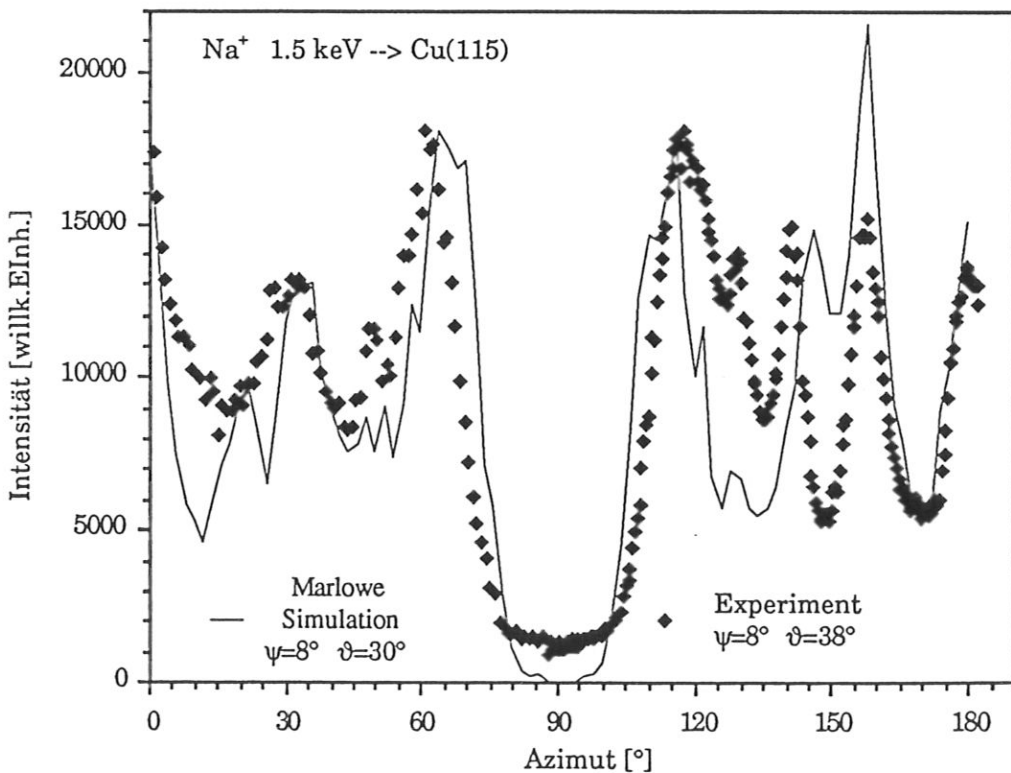


Abbildung 59a: Azimutspektrum für Na^+ 1.5 keV und $\psi=8^\circ$. Die Punkte stellen die Daten aus dem Experiment für $\vartheta=38^\circ$ dar, die Linie die Simulation für $\vartheta=30^\circ$. Die Intensitäten von Experiment und Simulation sind angepaßt.

Die Intensitäten von Experiment und Simulation sind angepaßt. In den Simulationen sind die Intensitäten für die Streuung von 0° bis 90° und die Streuung von 90° bis 180° unterschiedlich. Die zwei Peaks bei $\varphi=65^\circ$ bzw. 115° haben ein Intensitätsverhältnis von 856/511. Diese Differenz ist in der Asymmetrie des Kristalls bezüglich der [110]-Richtung begründet. Für eine detaillierte Aussage benötigt man eine Trajektorienanalyse, die jedoch nicht vorliegt, weil das Verfolgen des Weges jedes einzelnen Ions enorme Rechenzeiten hervorruft. Zu beachten ist der unterschiedliche Streuwinkel für Experiment und Simulation. Außerdem wurde das Experiment bei der Detektionsenergie "QS" durchgeführt, das Simulationsprogramm hingegen detektiert bei der Energie "S".

Die Intensität im ersten Tal um $\varphi=90^\circ$ ist in dem dargestellten Spektrum erhöht. Die Erhöhung ist auf an den Stufenkanten adsorbiertes Natrium zurückzuführen. Bei frischgereinigter Probe und gut präparierter Struktur liegt das Verhältnis zwischen der Intensität im Tal um $\varphi=90^\circ$ und dem ersten Maximum bei einem Faktor größer 110. Dieses Verhältnis ist ein Maß für die Ordnung der Oberfläche. Adsorbate können die Aussagen über die Güte der Oberflächenstruktur beeinflussen. Neonspektren zeigen im Gegensatz zu Natriumspektren auch nach langer Beschußzeit ein sehr niedriges Signal im Winkelbereich von 90° bis 105° , was darauf schließen läßt, daß Neon nicht adsorbiert, und auch keine Defekte erzeugt, die nicht sofort wieder ausheilen. Die Täler 4 und 5 sind stärker ausgeprägt als zum Beispiel das Tal 2, da in in diesen Richtungen die Abstände der Atome kürzer sind, d.h. die Ionen werden länger geführt.

Zum besseren Verständnis der einzelnen Strukturen ist das Azimutpektrum von 90° bis 180° (treppauf) neben einer Aufsicht der Kristallstruktur in Abbildung 59b dargestellt. In diesem Bild stellen die schwarzen Kreise die Stufenkantenatome dar, diese Atome sind die Streuzentren der (115)-Oberfläche. Die offenen Kreise symbolisieren sowohl Atome der (001)-Terrassenebene als auch tieferliegende Atome. Die einzelnen Täler der Spektren sind durch Richtungspfeile im unteren Bild wiederzufinden.

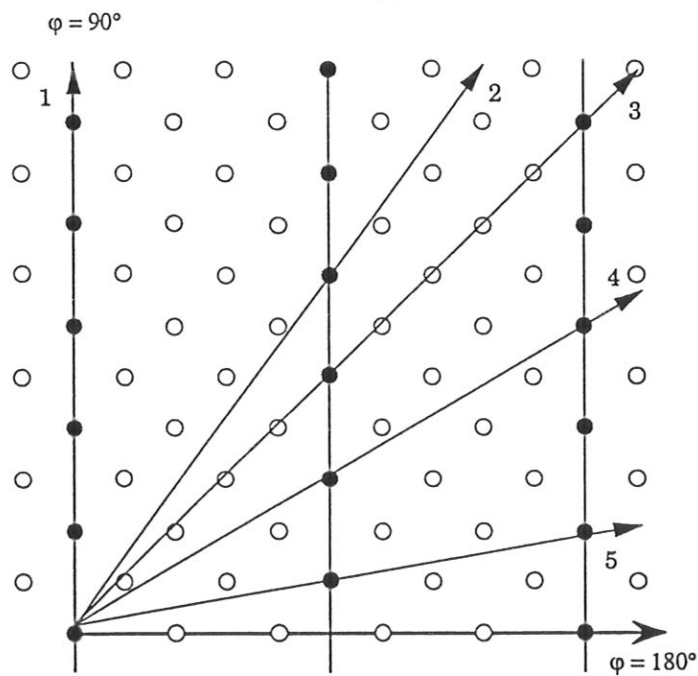
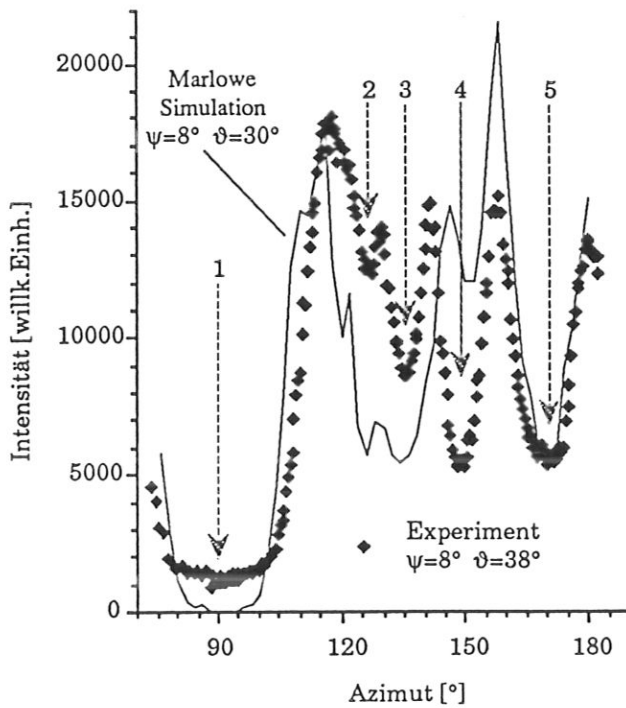


Abbildung 59b: Azimutspektrum und daraus bestimmbare Richtungen an der Oberfläche.

Das Channeling der Ionen an der Kristalloberfläche ermöglicht also eine detaillierte Bestimmung der kristallographischen Orientierung niedrigindizierter, dichtgepackter Atomketten an der Kristalloberfläche. Anhand der Azimutspektren

können Richtungen der Kristalloberfläche mit dichtgepackten Reihen aufgefunden und die genaue azimutale Orientierung der Probe bezüglich des Ionenstrahls definiert werden.

Richtung	kristall. Orientierung
1	[110]
2	[1 $\bar{1}$ 1]
3	[051]
4	[1 $\bar{4}$ 1]
5	[231]
6	[552]

5.2.3. ICISS

Elastisch gestreute Ionen, die unter einem großen Streuwinkel detektiert werden, haben eine Folge von Kleinwinkelstreuungen erlitten, gefolgt von einer "almost-head-on-collision". Auf dem Weg zum Detektor erfahren sie keine weiteren Stöße. Deshalb kann die Trajektorie jedes einzelnen Ions nachvollzogen und, mit Hilfe des Schattenkegelprinzips, die atomare Struktur der Oberfläche bestimmt werden (siehe Kapitel "Abschattungseffekte"). Beim kritischen Winkel ψ_c treten die Atome aus dem Schatten ihres Nachbarn heraus und tragen selbst zur Streuung bei. Im Winkelbereich $\psi < \psi_c$ ist die Rückstreuintensität aufgrund der Abschattung sehr klein. Dieser Bereich wird infolgedessen "verbotene Zone" genannt.

Im Experiment entstehen ICISS-Spektren durch Variation des Einfallswinkels bei konstantem Streuwinkel und fixer Detektionsenergie. Diese Variation entspricht einem Abtasten der Oberfläche mit dem Schattenkegel. Erreicht der Schattenkegelrand das nächste Nachbaratom in Streurichtung, steigt aufgrund der Fokussierung der Trajektorien die Rückstreuintensität an. Der kritische Winkel des Anstieges ist das Maß für den Abstand der Atome. Als Beispiel ist in Abbildung 60 die Streuung von Neonionen parallel zu den Stufenkanten gezeigt. Der Streuwinkel liegt, wie in allen weiteren ICISS-Spektren, bei $\vartheta = 145^\circ$.

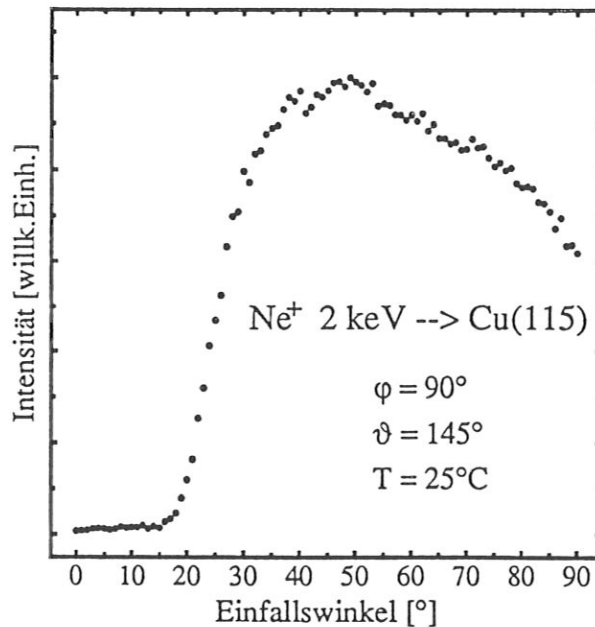


Abbildung 60: ICISS-Spektrum für Ne^+ gestreut mit 2 keV und $\vartheta=145^\circ$, parallel zu den Stufenkanten ($\varphi=90^\circ$).

Aufgrund der Anisotropie der (115)-Oberfläche in den azimutalen Richtungen $\varphi=0^\circ$ bzw. 180° und $\varphi=90^\circ$ sind unterschiedliche kritische Winkel zu erwarten, wenn die azimutale Einfallrichtung des Ionenstrahls geändert wird. In Abbildung 61 sind durch Natriumstreuung an Cu(115)-erzielte ICISS-Spektren dargestellt.

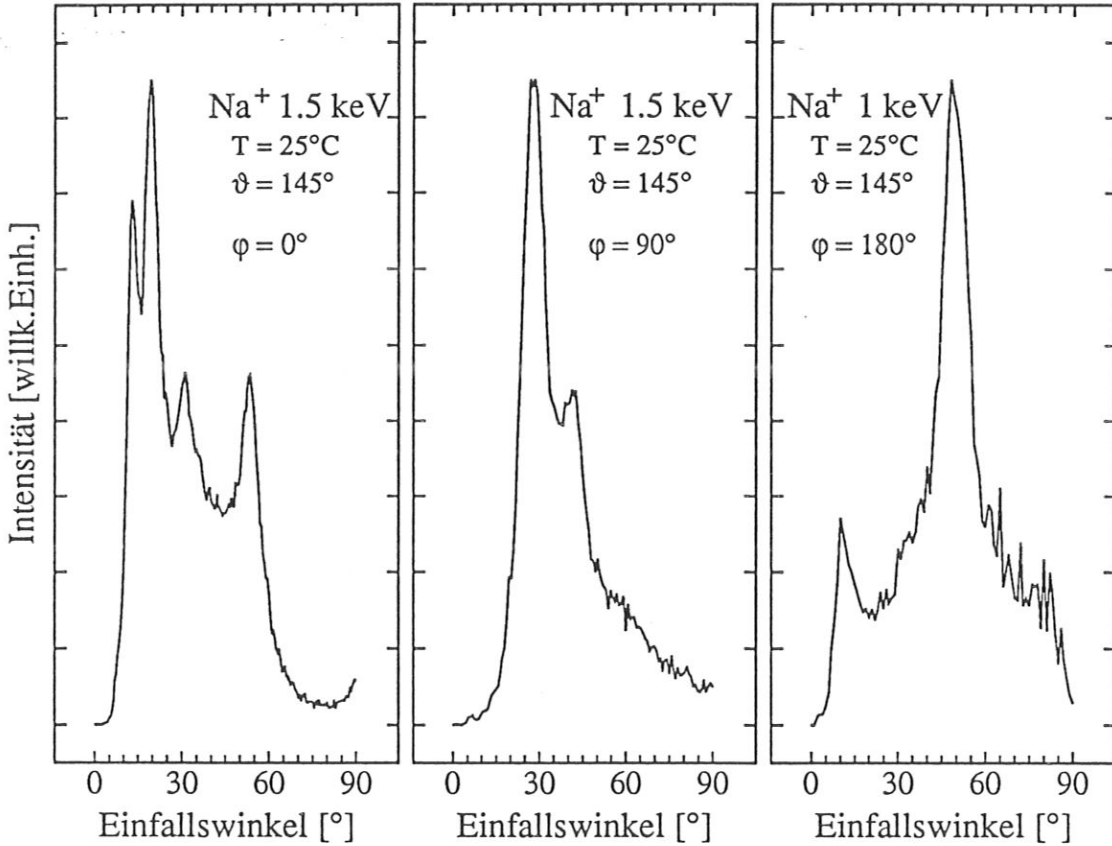


Abbildung 61: ICISS-Spektren für Na^+ mit 1.5 bzw. 1.0 keV und $\vartheta = 145^\circ$. Die Streuung erfolgte parallel zu den Stufenkanten ($\varphi=90^\circ$), treppab ($\varphi=0^\circ$) und treppauf ($\varphi=180^\circ$).

In allen Spektren erkennt man die kritischen Winkel der Abschattung nächster Nachbarn und die ausgeprägten Flußüberhöhungen. Im Vergleich zu Abbildung 60 ist ein deutlicher Unterschied zwischen mit Neon- und Natriumionen erzielten Spektren zu sehen. Die ersten Anstiege sind identisch, da sich Neon- und Natriumionen bei der Streuung in ihrer Schattenkegelgröße nicht wesentlich unterscheiden. Bei Neonspektren fehlen die weiteren Peaks völlig. Diese Strukturen entsprechen der Streuung an tieferen Lagen und sind daher nur bei Natriumstreuung sichtbar.

Zur Zuordnung der einzelnen Peaks zu Atomabständen, wird das, in Kapitel

"Ionenstreuung - Simulation der Experimente" besprochene, Programm ICISS-SIM verwendet. Abbildung 62 zeigt den Vergleich zwischen Experiment und Simulation, für die Streuung von Neon an Cu(115) parallel zu den Stufenkanten.

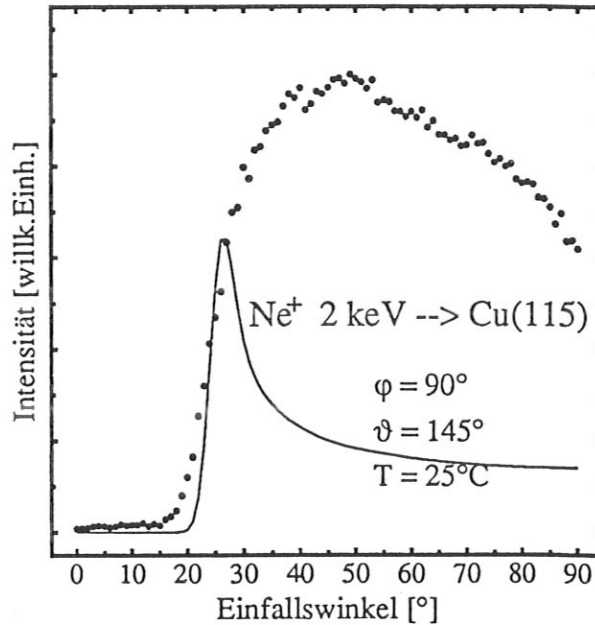


Abbildung 62: ICISS-Spektrum (Punkte) für Ne^+ 2 keV ($\vartheta=145^\circ$, $\varphi=90^\circ$). Die Linie stellt die 2-dim. Simulation dar (Programm ICISS-SIM).

Die experimentellen Daten lassen sich in ihrem Verlauf durch die Simulation nur annähernd beschreiben. Im Kapitel "Abschattungseffekte" und darin im speziellen in Abbildung 21 wurde gezeigt, daß der Verlauf der ICISS-Spektren, d.h. die Flußverteilung, von der Neutralisationswahrscheinlichkeit überlagert werden kann, wenn entsprechende Bedingungen ($E_0 < 3$ keV, $\vartheta < 70^\circ$) vorherrschen. In der vorliegenden Arbeit lagen die experimentellen Grenzen der Primärenergie der Ionen bei 2000 eV, der Verdrehmechanismus des Analysators und die Raumaufteilung im Rezipienten erlaubten einen größten Streuwinkel von $\vartheta=145^\circ$. Edelgasionen sind von der Neutralisation wesentlich stärker beeinflusst, daher ergeben sich auch die nicht "scharfen" Anstiege in den Spektren. Der erste Anstieg ist sowohl für Ne^+ als auch für Na^+ vergleichbar und in den beiden Azimuten $\varphi=0^\circ$ und $\varphi=180^\circ$ identisch. Bei $\varphi=90^\circ$ liegt er entsprechend dem kleinerem Abstand der Atome bei einem größeren Winkel. Bedenkt man, daß die Simulationen keine Neutralisation enthalten, ist der unterschiedliche Verlauf erklärbar.

Mit diesem Wissen der Auswirkung der Neutralisation auf das Experiment ist es besonders interessant, auch die Na^+ -Daten mit einer Simulation zu analysieren. Besonders bei der Streuung von Alkaliionen (Na^+) ist eine direkte Zuordnung der Peaks zu bestimmten Gitterabständen schwierig, da wegen der geringen Neutralisationswahrscheinlichkeit, auch Streuung an tieferen Lagen Beiträge liefert.

Simulationsrechnungen können zur Lösung beitragen. Sie ermöglichen nicht nur eine Identifizierung der einzelnen Streupartner (Lagen), sondern erlauben eine Bestimmung der Atomabstände. Die simulierten Daten sind für definierte Atomabstände berechnet. Stimmen die Strukturen der simulierten und der experimentellen Daten überein, hat man den gesuchten Abstand der Streupartner bestimmt. In den Abbildungen 63, 65 und 66 sind jeweils im unteren Bild die experimentellen Daten (Punkte) mit Simulationen (Linien) verglichen. Die Berechnungen wurden mit dem Programm ICISS-SIM durchgeführt. In den oberen Bildern sind die entsprechenden Streugeometrien skizziert.

Um die Struktur der Spektren vollständig erklären zu können, reicht eine 2-dimensionale Beschreibung in der Streuebene nicht aus. Vielmehr ist es notwendig, auch den seitlichen Rand des Schattenkegels miteinzubeziehen. In den Abbildungen 63, 65 und 66 sind im oberen Teil die entsprechenden Streuereignisse skizziert. Der Übersicht wegen wurde auf eine Darstellung des Schattenkegelrandes verzichtet. In der Streuebene liegende Fokussierung wird mit durchgezogenen Pfeilen dargestellt. Seitliche Fokussierung wird, wenn möglich, mit Hilfe des Schattenkegelrandes, sonst durch gestrichelte Pfeile gekennzeichnet.

Im Experiment spiegeln die Intensitäten der Peaks die Neutralisationswahrscheinlichkeit wieder. Da es in der vorliegenden Arbeit um eine Strukturbestimmung der Oberfläche geht, kommt es im wesentlichen auf die Lage der Peaks, nicht aber auf die absoluten Intensitäten der einzelnen Streuereignisse. Deshalb wurden die simulierten Daten in der Höhe den experimentellen Daten angepaßt. Die Intensitätsabnahme, nach Erreichen des Maximums, in den Simulationen entspricht nicht der Abnahme der experimentellen Daten. Eine Begründung ist in der trajektorienabhängigen Neutralisation zu suchen. *Beckschulte* hat bei Verwendung desselben Simulationsprogramms die simulierten Spektren mit trajektorienabhängigen Neutralisationswahrscheinlichkeiten gefaltet und daraufhin passende Intensitätsverhältnisse erhalten.

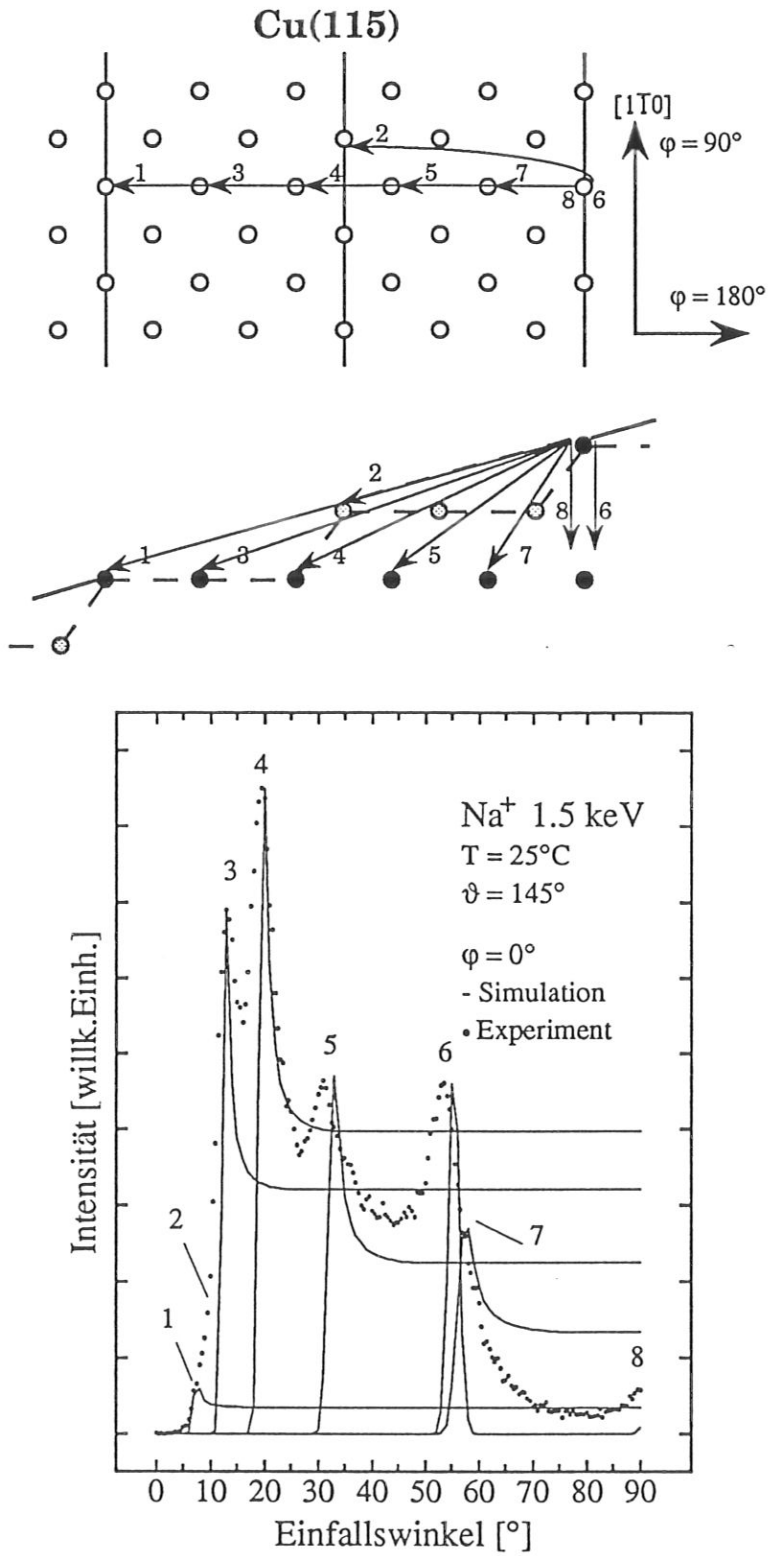


Abbildung 63: Vergleich von Experiment (Punkte) und Simulation (Linie) für Na⁺ 1.5 keV und $\varphi=0^\circ$.

Bildlich gesehen muß man sich den Schnitt des Schattenkegelrandes mit der Kristalloberfläche, auf die der Ionenstrahl trifft, unter Berücksichtigung des Einfallswinkels vorstellen. Dabei erhält man ellipsenähnliche Gebilde, siehe Abbildung 64.

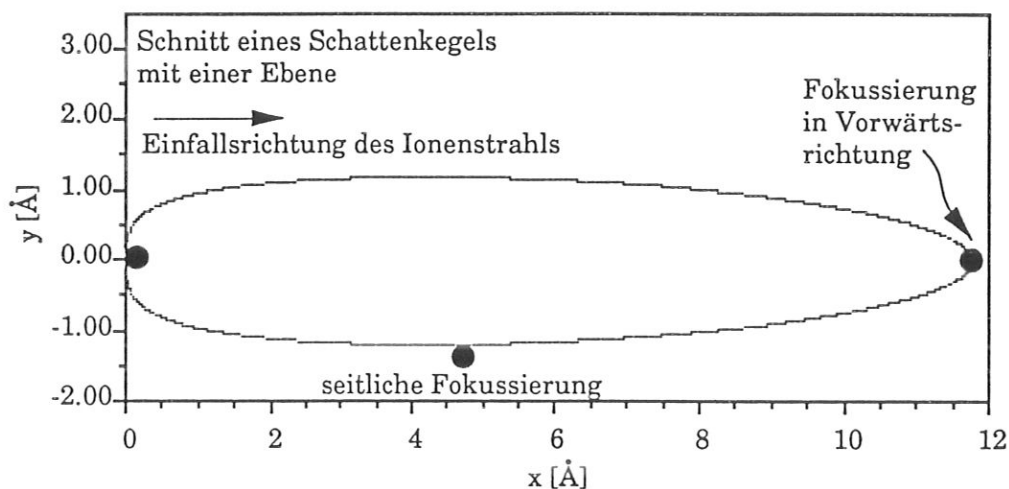
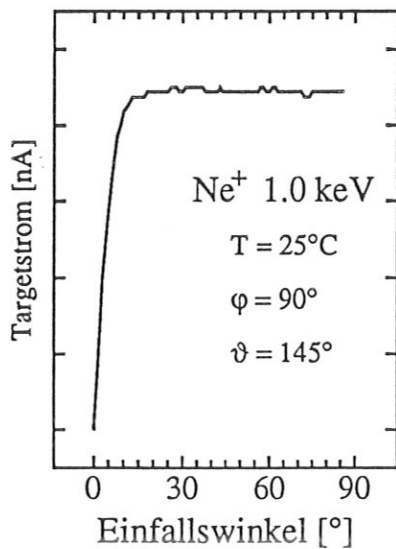


Abbildung 64: Schnitt eines Schattenkegels mit einer Ebene.

Betrachtet man die Oberfläche in der Aufsicht und legt diese Schnittfläche auf die Oberfläche, sieht man sofort, auf welches Atom der Oberfläche der Ionenstrahl fokussiert wird. Der Einfallswinkel, für den der Schattenkegel in der Streuebene auf das nächste Atom trifft, wird kritischer Winkel genannt.

Für die Streuung senkrecht zu den Stufenkanten sieht man, daß der Schattenkegel das nächste Atom in der Streuebene schon bei sehr kleinem Einfallswinkel ($\sim 8^\circ$) erreicht (Abb. 63, Nr. 1), da der nächste Streupartner erst 2 Stufen weiter liegt. Der seitliche Schattenkegelrand reicht dabei über die Atome der nächsten Stufe hinaus. Es trägt also nur jede zweite Stufenkante zur Streuung bei. Dreht man den Schattenkegel ein wenig weiter in die Oberfläche ($\sim 2^\circ$), so wird der Schattenkegelschnitt schmaler, alle Kantenatome sind den Ionen zugänglich. Die Intensität verdoppelt sich (Abb. 63, Nr. 2).

Alle weiteren Peaks der Abb. 63 resultieren aus Streuung an Atomen in tieferen Lagen. Der starke Anstieg bei Peak 3 läßt sich mit folgender Abbildung erklären, in der der Probenstrom als Funktion des Einfallswinkels dargestellt ist. Fällt der Ionenstrahl unter einem sehr kleinen Winkel auf die Oberfläche, ist der Quellfleck größer als der Analysefleck (siehe Kap. "Experiment"), d.h. die Intensität der in den Analysator gestreuten Ionen ist verringert. Der Winkel, ab dem der Probenstrom einen maximalen und konstanten Wert erreicht, wurde zu $\sim 12^\circ$ bestimmt. Der erste Anstieg bei $\psi=8^\circ$ fällt



daher sehr gering aus. Die Intensitäten im betroffenen Winkelbereich können bezüglich dieses Effektes korrigiert werden. Davon wurde jedoch aus zwei Gründen kein Gebrauch gemacht. Erstens war das Einlesen des Probenstroms in den Computer zu Anfang nicht möglich und zweitens wird beim Heizen der Probe der Probenstrom durch den Elektronenbeschuss verringert. Um alle Daten vergleichen zu können, wurde auf eine Korrektur verzichtet, die außerdem nur eine Erhöhung der Intensitäten, nicht aber eine Positionsänderung der Peaks ergibt und daher auf die weiteren Aussagen keinen Einfluß hat.

Ab Peak Nummer 4 ist eine augenfällige Verschiebung der experimentellen Maxima zu kleineren Winkeln zu beobachten. Die Verschiebung ist für die Maxima 5 und 6 konstant und beträgt 1.5°. Gleichung 23 beschreibt die Zusammensetzung des kritischen Winkels ψ_{eff} für Streuung aus tieferen Lagen ($\psi_{eff} = \psi_c + \alpha$). Wird der Winkel $_{eff}$ einer, überlagern sich die Änderungen von ψ_c und dem Winkel α . Die Kombination beider Größen beschreibt die geänderten geometrischen Verhältnisse, wie sie zum Beispiel bei Relaxationen auftreten. Ähnliche Beobachtungen sind auch in Abbildung 65 und Abbildung 66 zu machen. Im Kapitel "Diskussion" werden diese Winkeländerungen diskutiert und theoretisch berechneten Lagenrelaxationen gegenübergestellt. Bei diesen Betrachtungen darf aber auf keinen Fall die Tatsache außer Betracht gelassen werden, daß Ionen gestreut an tieferen Lagen von oberflächennäheren Atomen an ihrem Weg in den Detektor gehindert werden können. Dies führt von geringen Änderungen der Trajektorien bis zu völliger Abschattung.

Abbildung 65 zeigt die Streuung parallel zu den Stufenkanten, der Peak 1 bei $\psi \sim 29^\circ$ entspricht einem Gitterabstand von 2.56 Å. Der zweite Peak resultiert aus Fokussierung am seitlichen Schattenkegelrand auf ein Atom der 4. Lage. Die Streuung treppauf, d.h. $\phi = 180^\circ$, ist in Abbildung 66 gezeigt. Der Intensitätsanstieg bis zu 10° kann äquivalent der Streuung bei $\phi = 0^\circ$ diskutiert werden. Das Maximum bei 46° entspricht der Streuung 5.

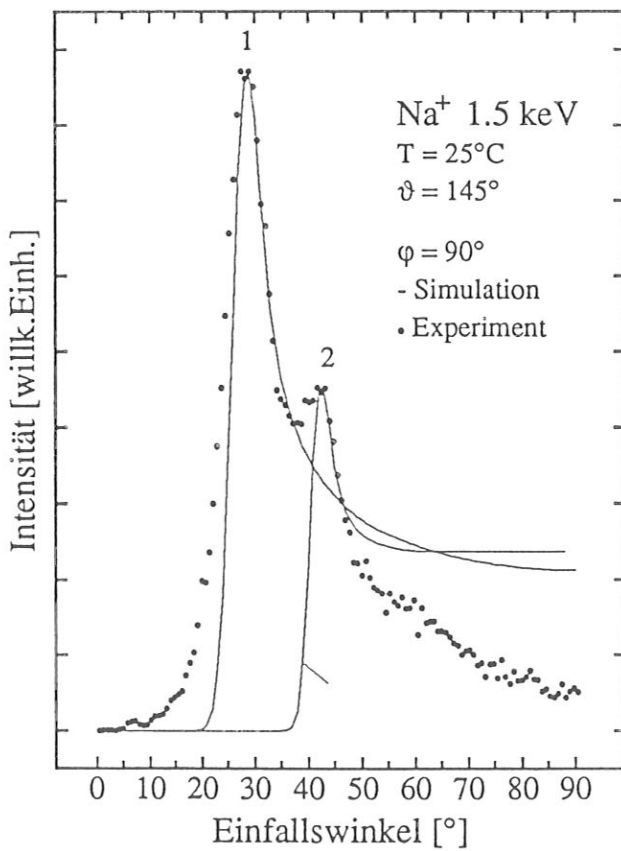
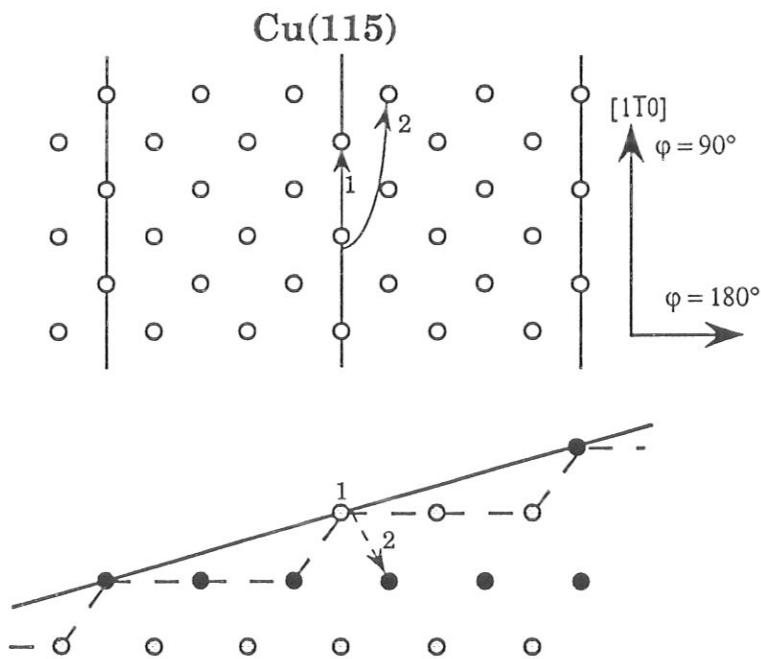


Abbildung 65: Vergleich von Experiment (Punkte) und Simulation (Linie) für Na⁺ 1.5 keV und $\varphi=90^\circ$.

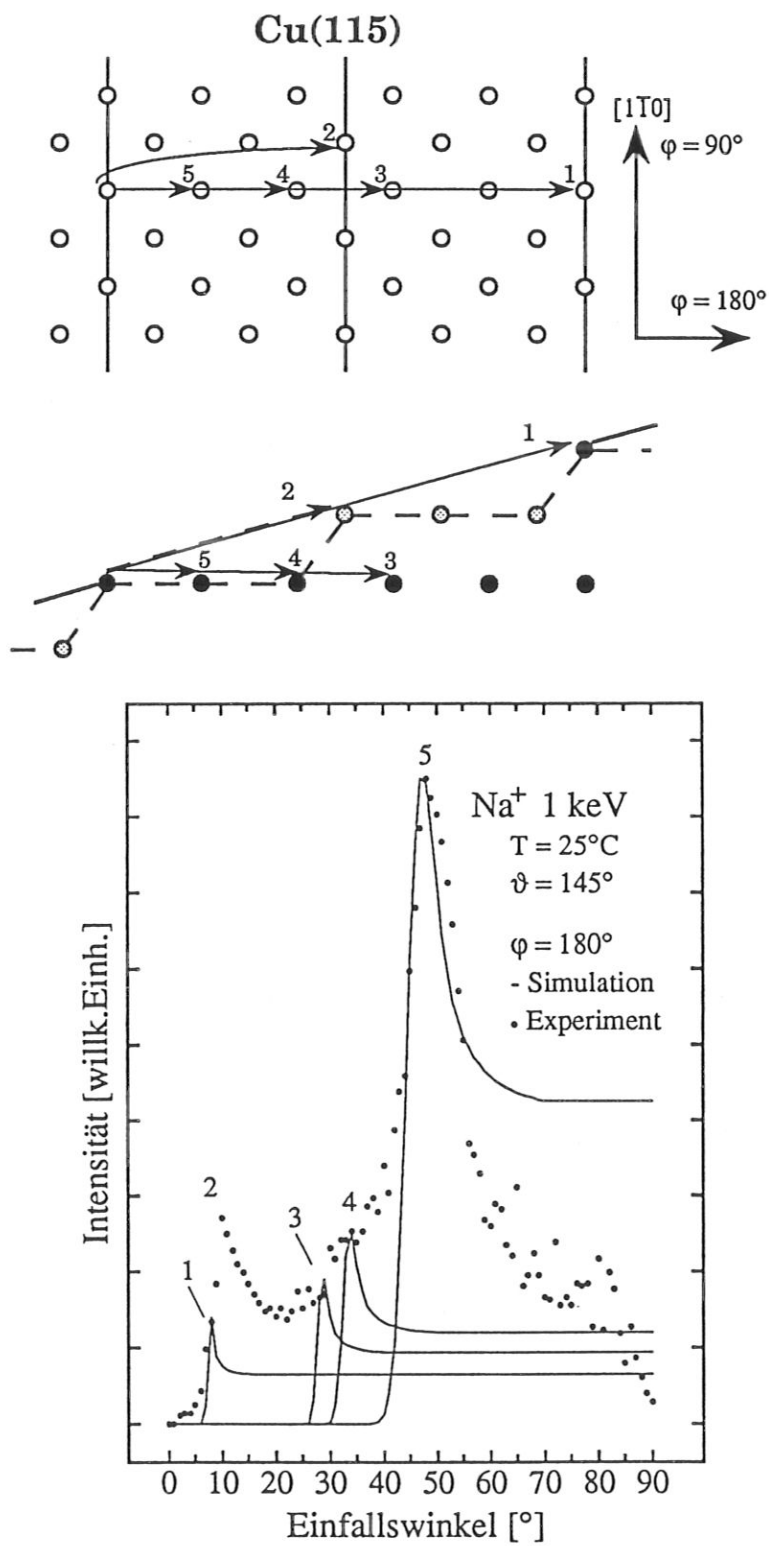
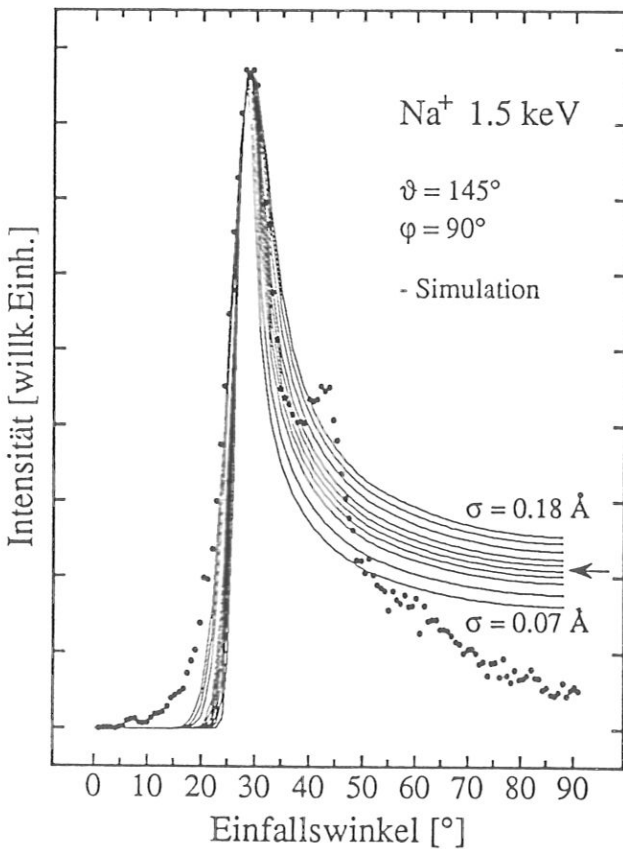


Abbildung 66: Vergleich von Experiment (Punkte) und Simulation (Linie) für Na^+ 1.0 keV und $\varphi=180^\circ$.

In die Simulationsrechnungen gehen die thermischen Schwingungen der Atome ein. Die Winkelverteilung bei $T=0$ K wird mit einer Gaußverteilung, mit einer der Targettemperatur entsprechenden Varianz, gefaltet. Die thermische Schwingung der Atome ist im wesentlichen eine Funktion der Targettemperatur T und der Oberflächen-Debye-Temperatur Θ_D . Die Debye-Temperatur ist spezifisch für die jeweilige Oberfläche des Kristalls und für die (115)-Oberfläche von Kupfer nicht bekannt. Für die (001)-Terrasenebene liegt Θ_D senkrecht zur Oberfläche bei 192 K, parallel zur Oberfläche bei 292 K [Jackson (1974)]. Zur Bestimmung der Debye-Temperatur der Cu(115)-Ebene wurden die experimentellen Daten mit Simulationen mit verschiedener thermischer Schwingungsamplitude (siehe Gl. 26) verglichen (1. Peak). Die beste Übereinstimmung ergab sich für $\Theta_D = 220 \text{ K} \pm 18 \text{ K}$. Änderungen der thermischen Schwingungsamplitude führen in ICISS-Spektren zu Verbreiterungen des Anstiegs um ψ_c . Simulationsrechnungen zeigen das Ausmaß der temperaturbedingten Verbreiterung (Abb. 67). Dieses Bild zeigt außerdem, daß die Festlegung des kritischen Winkels im Maximum erfolgen sollte. Bei der ebenfalls üblichen Wahl von 50-60 % des Maximums, ergeben sich temperaturabhängige



Differenzen von bis zu 3° . Im Winkelbereich (0° bis 20°), in dem bei Raumtemperatur keine Streuintensität zu erwarten ist, ist infolge der thermischen Schwingungen sehr wohl Streuintensität zu finden. Der Bereich der verbotenen Zone ist bei höheren Temperaturen verkleinert (0° bis 15°).

Abbildung 67: Darstellung der thermischen Verbreiterung in ICISS-Spektren, Simulationen (-) mit ICISS-SIM für den 1. Peak des Experimentes (*). Die beste Übereinstimmung ergibt sich für $\sigma=0.12 \text{ \AA}$ (←).

5.3. Punktdefekte und Ausheilverhalten

Die Zerstäubung der Oberfläche durch Ionenbeschuss kann als eine der Möglichkeiten herangezogen werden, Punktdefekte zu erzeugen. Verfolgt man die Anzahl der Defekte über einen bestimmten Zeitraum, während die Probe mit Ionen beschossen wird, kann man die Dynamik der Oberflächenstrukturveränderung beobachten. Dazu sollen drei Bilder gezeigt werden, in denen jeweils ein Spektrum einer frisch gereinigten und ausgeheilten Probe und ein Spektrum einer Probe nach neuerlichem Ionenbeschuss (die Fluenz ist jeweils angegeben) dargestellt ist (Abb. 68).

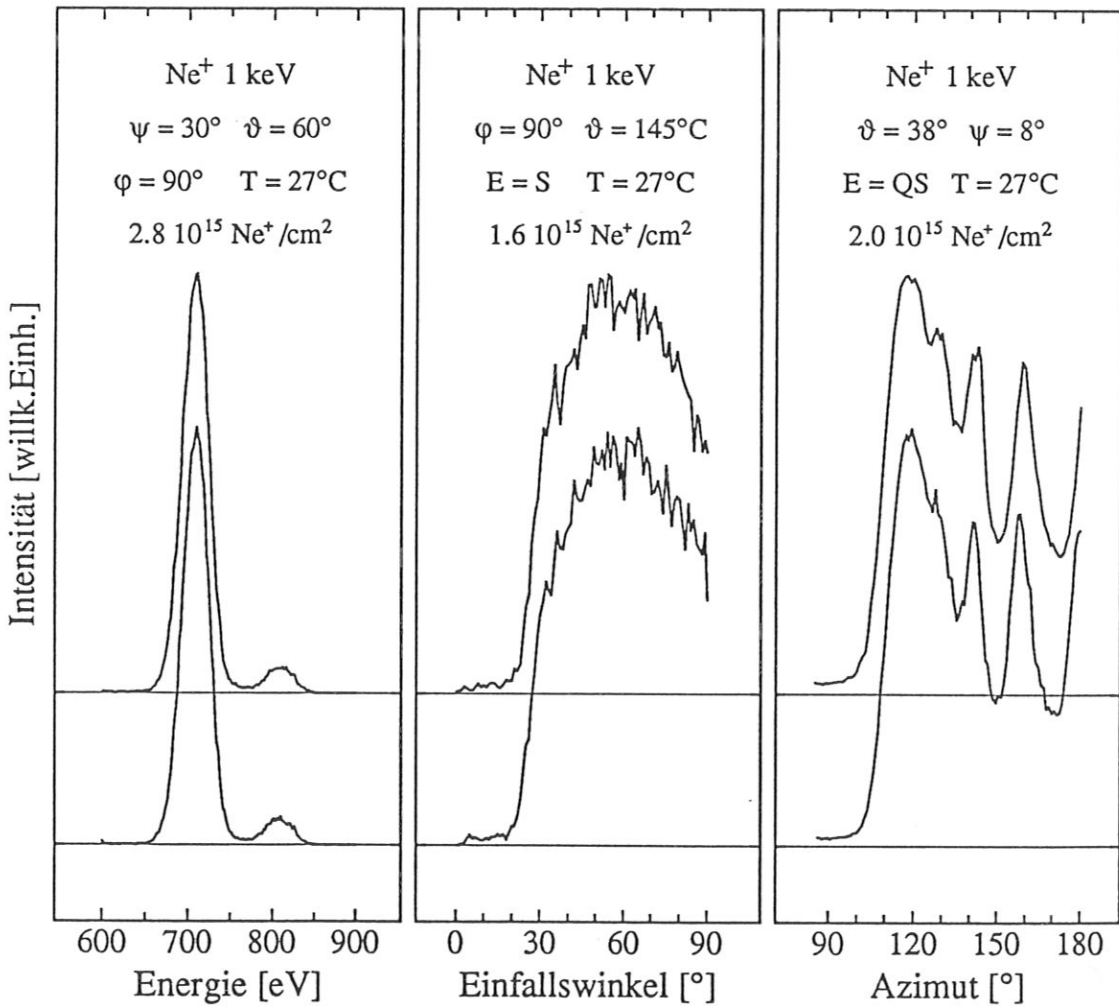


Abbildung 68: Energie- und Winkelverteilungen frisch präparierter Proben im Vergleich zu zerstäubten Proben (normierte Zählraten).

Eine Differenz zwischen den ausgeheilten und den neuerlich zerstäubten Spektren ist in keiner der Darstellungen zu finden. Dies läßt drei Schlüsse zu :

- 1.) Die Abtragungsrate ist zu gering.
- 2.) Die verwendete Methode ist nicht sensitiv für Punktdefekte.
- 3.) Die Defekte werden sofort durch die thermische Mobilität der Atome kompensiert.

Der erste der drei Punkte läßt sich sofort ausschließen, wenn man die entsprechenden Abtragungsraten berechnet (siehe Kap. "Zerstäubung"). Ein weiteres Experiment liefert die entscheidende Information (Abb. 69).

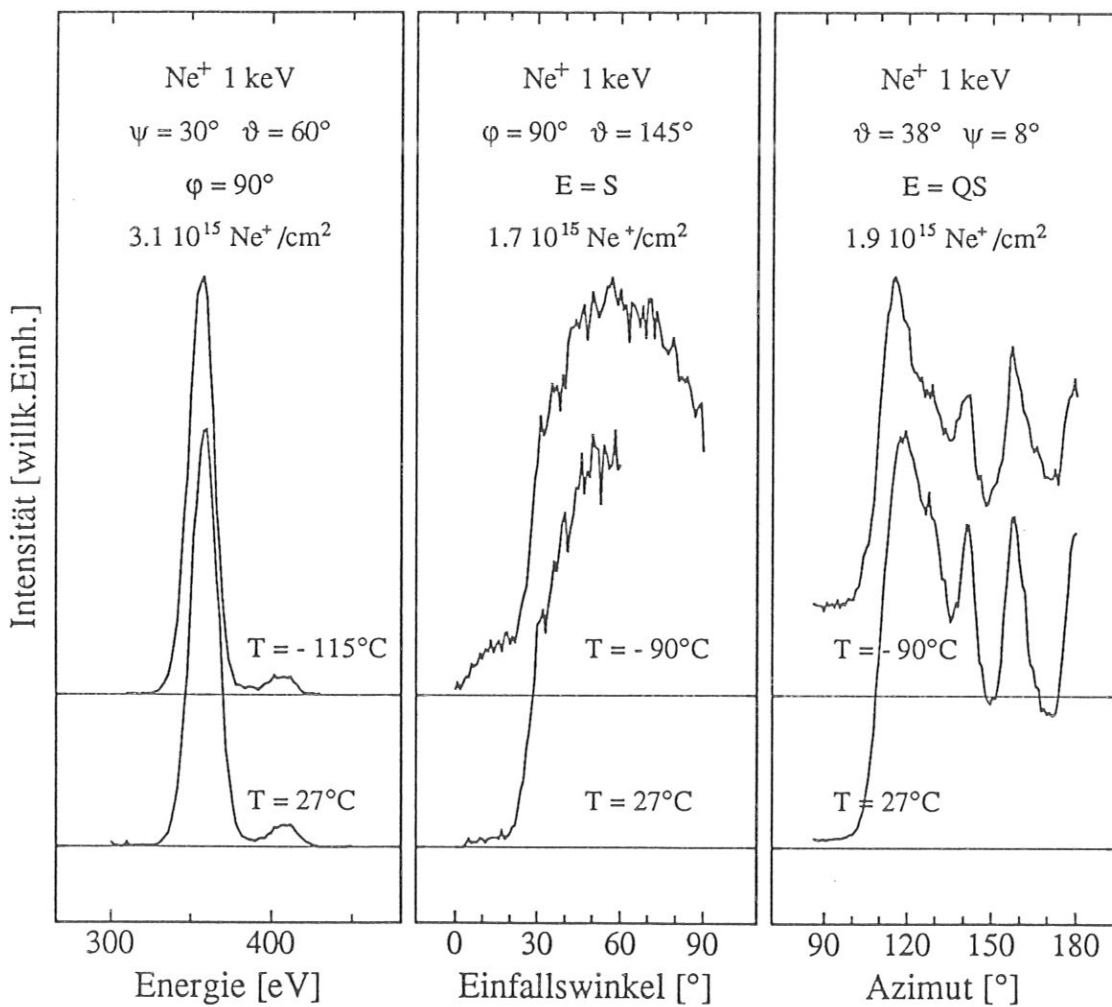


Abbildung 69: Energie- und Winkelverteilungen sauberer und ausgeheilter Proben im Vergleich zu bei tiefen Temperaturen zerstäubten Proben.

Kühlt man die Probe ab und wählt dann wieder die gleichen Experimente und die gleiche Art der Darstellung (Abb. 69), so sind in den Winkelspektren deutliche Veränderungen

zu sehen, die Energieverteilung bleibt im wesentlichen unbeeinflusst. Im ICISS-Spektrum zeigt sich in den ersten 0° bis 20° , also in der "verbotenen Zone" (siehe Kap. "Strukturbestimmung - Abschattungseffekte") eine Intensitätszunahme. Die restliche Struktur der Winkelverteilung bleibt erhalten, der charakteristische Anstieg beginnt an der selben Stelle. Streuintensität in der verbotenen Zone bedeutet, daß Atome an den Stufenkanten bzw. Terrassenebenen "vorstehen" und gleichzeitig komplementäre Leerstellen erzeugt werden.

Eine äquivalente Aussage liefern Azimutspektren. Die erhöhte Intensität in den Tälern entspricht ebenfalls der Streuung an Atomen, die die Kanäle entlang der dichtgepackten Kristallrichtungen "verstopfen". Daß in den Energiespektren keine Änderungen zu beobachten sind, deutet darauf hin, daß sich die Punktdefekte an Gitterplätzen befinden, d.h. daß die Atomabstände an der Oberfläche erhalten bleiben und deshalb im speziellen die Mehrfachstreuung von der Zerstäubung unbeeinflusst bleibt. Ein Vergleich mit Abbildung 68 macht verständlich, daß bei Raumtemperatur die Beweglichkeit der Oberflächenatome ausreicht, um die Struktur der Oberfläche während der Zerstäubung sofort wieder auszuheilen.

Bei allen diesen Experimenten wurde der Ionenstrahl zur Zerstäubung der Probe parallel zu den Stufenkanten auf die Oberfläche gerichtet. Wählt man einen zur Stufenkante schrägen Einfallswinkel ($\varphi=45^\circ$), so wird die Oberfläche derartig zerstört, daß auch ein Erwärmen der Probe auf 280°C die bekannte Form der ICISS- und Azimutspektren nicht wiederbringt. Erst erneutes Zerstäuben der Probe bei hoher Temperatur und anschließendes Ausheilen führt zu einer gut geordneten Struktur.

Diese Experimente liefern den entscheidenden Beweis für die Fähigkeit der Ionenstreuung zur Detektion von Punktdefekten und die notwendige Basis für die Bestimmung der Oberflächenstruktur bei höheren Temperaturen.

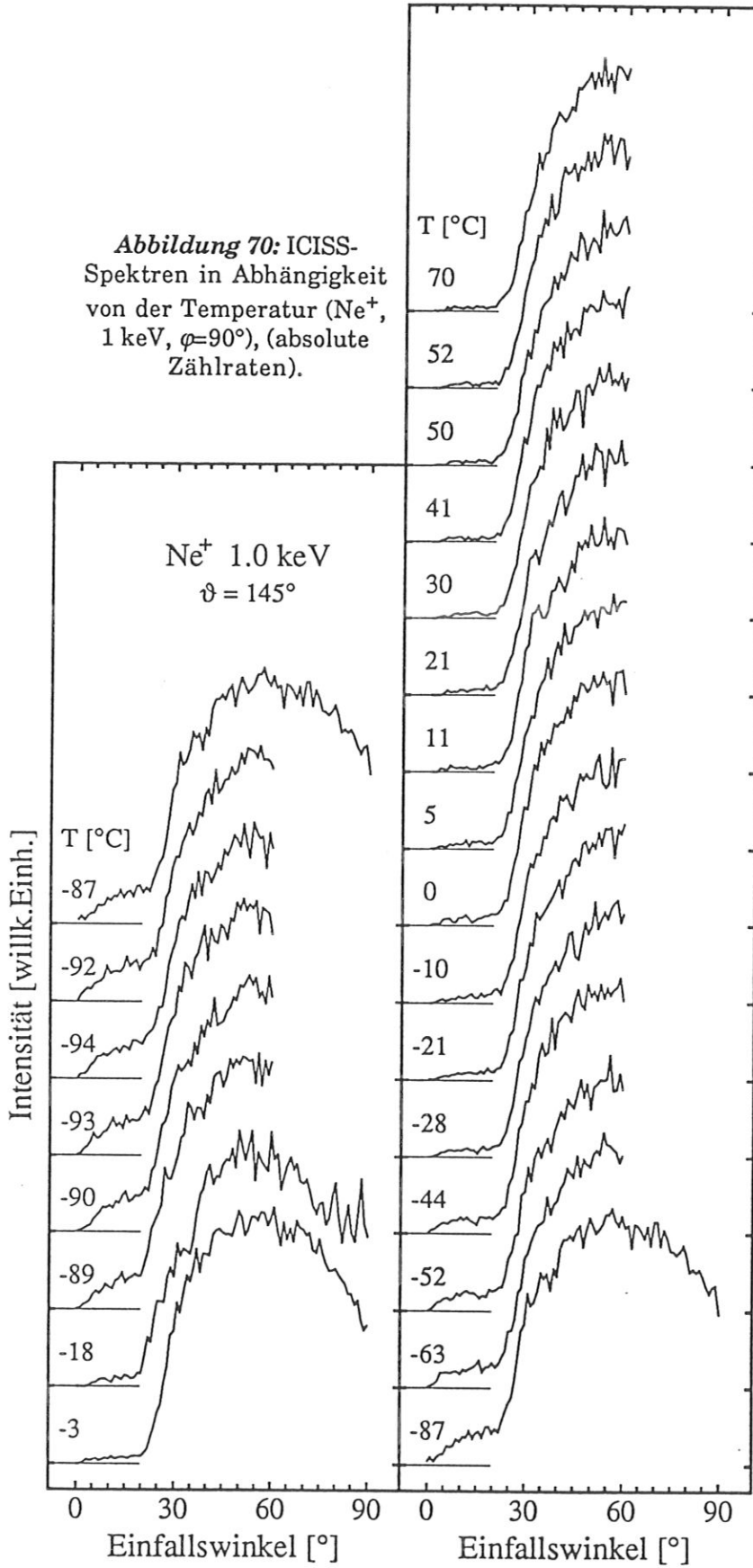
Als Maß für die Unordnung bzw. für entstehende Punktdefekte kann in den ICISS-Spektren die Intensitätsänderung in der verbotenen Zone herangezogen werden. In den Azimutspektren liefert die Intensitätserhöhung in den Tälern die gewünschte Information, wobei sich hier das Tal um $\varphi=90^\circ$ besonders anbietet. Wird das ICISS-Spektrum parallel zu den Stufenkanten aufgenommen, so entspricht die ICISS-Intensität bei niedrigem Einfallswinkel direkt der Intensität im Tal um $\varphi=90^\circ$ des Azimutspektrums.

Diese Informationen werfen die Frage auf, welches Ausheilverhalten die Probe zeigt. Zur Beantwortung wurden folgende Experimente durchgeführt. Nach der Standardpräparation wurden ICISS-Spektren bei einer Proben temperatur von 25°C aufgenommen. Anschließend wurde die Probe über thermischen Kontakt zu einem, mit flüssigem Stickstoff gefüllten, Töpfchen langsam bis zu -90°C abgekühlt, eine bestimmte Zeit auf dieser Temperatur gelassen und daraufhin wieder erwärmt. Dabei war die Abkühlrate experimentell bestimmt und nach oben kaum beeinflussbar. Aufgrund der großen thermischen Trägheit des Probenhalters mußte zur Erwärmung geheizt werden, alleiniges Abdrehen der Stickstoffzufuhr brachte lange Wartezeiten mit sich (30 min, $\Delta T=5^\circ\text{C}$). Während der Abkühl- und Erwärmungsphasen stand die Probe nicht unter ständigem Ionenbeschuss. Die Dauer der einzelnen Spektren bestimmt die Fluenz, ein Spektrum dauerte im Durchschnitt ~2.5 Minuten. Einzelne aus einer Fülle an Daten herausgegriffene Spektren sind bereits in Abbildung 69 dargestellt. Figur 70 zeigt ICISS-Spektren die zeitlich hintereinander aufgenommen wurden und zwar in einem Temperaturbereich von -3°C bis -87°C und von -87°C bis +70°C. Bei -94°C wurde die Kühlung gestoppt, um eine zeitliche Veränderung der erzeugten Defekte beobachten zu können.

Zur Interpretation wurde die über den Winkelbereich von 0°-20° integrierte ICISS-Intensität gemeinsam mit dem Temperaturverlauf über der Strahlzeit aufgetragen (Abbildung 71). Bereits der zweite Meßpunkt (-18°C, 8 min Strahlzeit) zeigt eine leichte Zunahme in der Intensität. Die nächsten 6 Werte liegen nahezu bei der gleichen Temperatur (-90°C \pm 3°C) und wurden mit jeweils 2.5 Minuten Strahlzeit aufgenommen. Die Intensität bei -90°C ist im Vergleich zum Spektrum bei 25°C um einen Faktor ~8 höher und bleibt auch nach weiteren 15 Minuten Beschusszeit auf diesem Wert.

Beim anschließenden Heizen von -94° auf +70°, mit nahezu linearem Temperaturanstieg, sinkt die Intensität wieder ab und pendelt sich, ab etwa Raumtemperatur, auf einen konstanten Wert (135 \pm 8) ein. Die erzeugten Punktdefekte verschwinden trotz weiteren Beschusses bei Erhöhung der Temperatur sofort wieder. Ab Raumtemperatur ist die thermische Mobilität der Cu-Atome groß genug, um Strahlenschäden sofort wieder auszuheilen. Abbildung 72 zeigt die gleiche Auswertung, jedoch stellt die x-Achse in diesem Fall die tatsächlich vergangene Zeit dar (vergangene Zeit = Zeit der Messung (Strahlzeit) + Zeit zwischen den Messungen).

Abbildung 70: ICISS-Spektren in Abhängigkeit von der Temperatur (Ne^+ , 1 keV, $\varphi=90^\circ$), (absolute Zählraten).



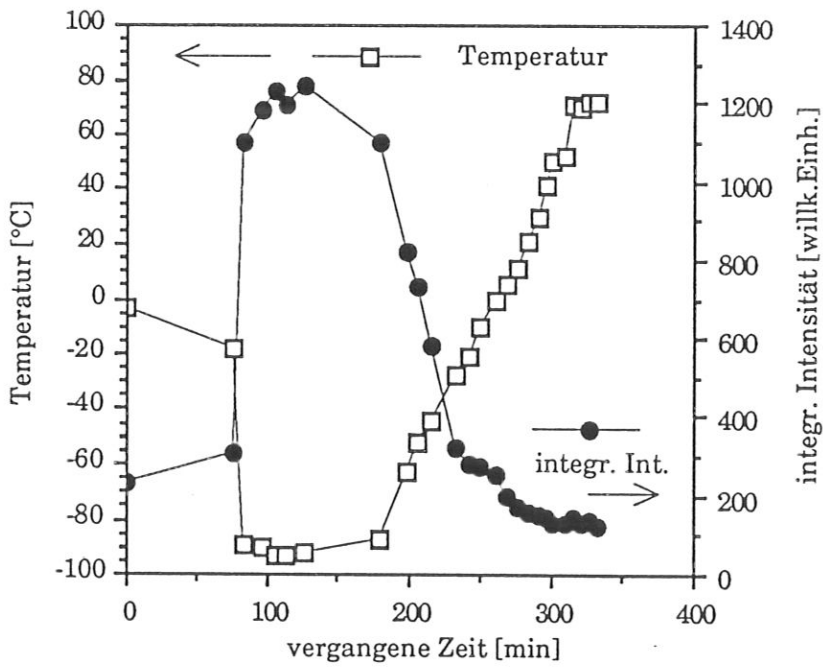
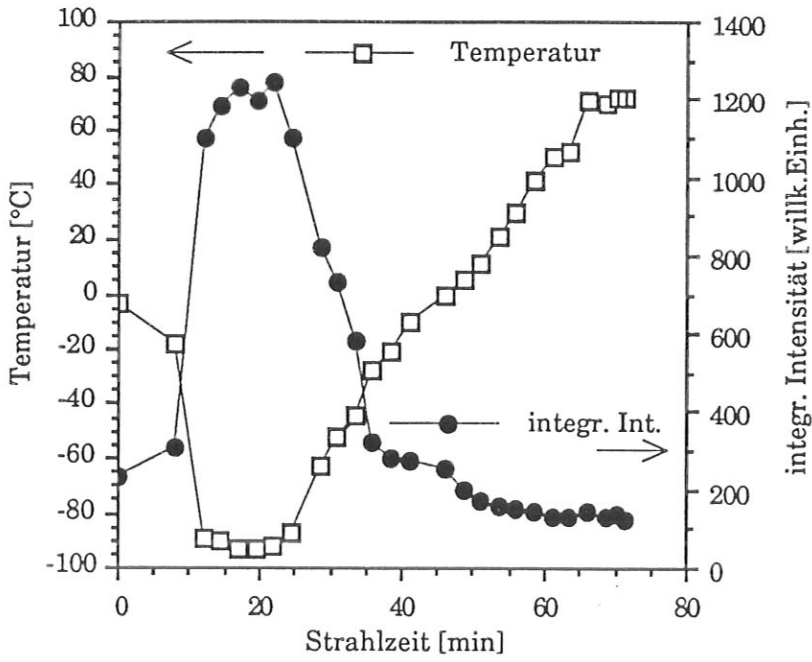


Abbildung 71 und 72: Die über einen Winkelbereich von 0° bis 20° integrierte Intensität der ICISS-Spektren in Abhängigkeit von der Beschußzeit, bzw. von der vergangenen Zeit und die entsprechenden Temperaturverläufe.

Die thermische Mobilität der Oberflächenatome reicht in diesem Temperaturbereich nicht aus, um in den Pausen zwischen den einzelnen Spektren, d.h. während der beschußfreien Zeit, die Defekte wieder auszugleichen.

5.4. Strukturbestimmung bei höheren Temperaturen

Generell bringt die Erhöhung der Proben­temperatur mehrere Effekte mit sich. Einerseits beginnen die Atome um ihre Ruhelage zu schwingen, andererseits heilen Strahlenschäden bei höheren Temperaturen aus (ab etwa Raumtemperatur, siehe Kap. "Punktdefekte und Ausheilverhalten"), so daß man, bzw. der Ionenstrahl, immer eine perfekte Oberfläche vorfindet.

Ein häufig beobachtetes Phänomen ist das Aufrauh­en der Probenoberfläche bei einer, für die jeweilige Struktur der Fläche, spezifischen Temperatur. Ein derartiger Rau­higkeitsübergang tritt auch bei der Cu(115)-Oberfläche auf (Abb. 73).

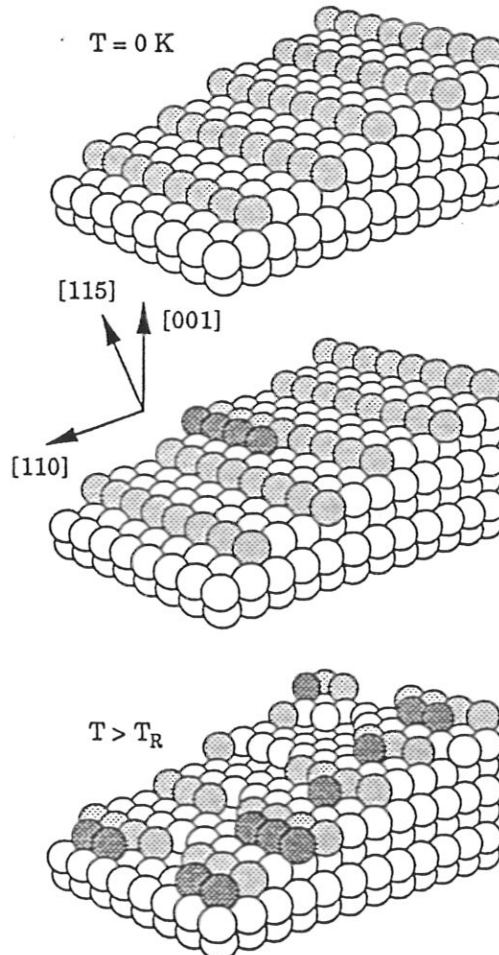


Abbildung 73: Hart-Kugel-Modell der Cu(115)-Fläche und Darstellung des Rau­higkeitsübergangs.

Bei Erhöhung der Proben­temperatur auf bis zu 800K wird die Rau­higkeitsübergangs­temperatur von $380 \text{ K} \pm 15 \text{ K}$ deutlich überschritten. Da es sich bei dem betrachteten

Phasenübergang um einen kontinuierlichen Phasenübergang handelt, kann man per Definition keine abrupten Änderungen irgendwelcher Art erwarten. Makroskopisch gesehen macht sich der Phasenübergang durch eine Aufrauhung der Oberfläche bemerkbar. Ob nur eine teilweise Aufrauhung erfolgt, das heißt, ob die Grundstruktur der Oberfläche erhalten bleibt und lediglich Punktdefekte auftreten, oder die Anisotropie der Kristalloberfläche bezüglich der Kristallrichtungen parallel und senkrecht zu den Stufenkanten vollständig verschwindet, ist zu klären (siehe Abbildung 73).

Es ist zu erwarten, daß sich alle temperaturbedingten Effekte überlagern, so daß einer der wichtigsten Punkte in der Dateninterpretation die Differenzierung dieser Effekte ist. Die Einflüsse thermischer Vibrationen auf die Streuung von Ionen wurden in Kapitel "Einflüsse der thermischen Schwingungen ..." erläutert. Die Fähigkeit von ISS Punktdefekte zu detektieren wurde im vorigen Kapitel experimentell bestätigt. Mit Hilfe der Spektroskopie an einer abgekühlten Probe, d.h. einer Probe mit reduzierter thermischer Schwingungsamplitude, ist es möglich, die Auswirkungen von Defekten und thermischen Schwingungen zu differenzieren. Besonders Azimutspektren (Oberflächen-Channeling) und ICISS-Spektren (Schattenkegeleffekte) sind geeignet, Defekte zu analysieren.

Aus diesem Grund wird die Hochtemperaturphase nur mit diesen beiden Varianten der ISS untersucht. Da Azimut- und ICISS-Spektren in ihren Aussagen zu vergleichen sind, wird auf eine Trennung der Daten wie in den vorigen Kapiteln verzichtet.

Will man temperaturbedingte Umordnungen einer Oberfläche beobachten, so stellt sich die Frage nach der Zeit, die das System braucht, um nach Erhöhung der Temperatur in einen, für diese Temperatur spezifischen, Gleichgewichtszustand zu kommen (siehe Kap. "Gleichgewichtszustand").

Das Kapitel "Rauhigkeitsübergang" gilt der Beschreibung dieses Überganges, der Bestimmung der Rauhigkeitsübergangstemperatur und der Untersuchung der Reversibilität der Strukturänderung.

5.4.1. Gleichgewichtszustand

Zur Bestimmung der notwendigen Zeit zum Erreichen eines temperaturspezifischen Gleichgewichtszustandes wurden folgende Experimente ausgeführt. Nach Erhöhung der Probentemperatur auf einen konkreten Wert wurden in bestimmten Zeitabständen Azimut- (oder ICISS-) Spektren aufgenommen. Nach jeder Messung wurde die Probe sofort aus dem Ionenstrahl gedreht, um sicher zu stellen, daß keine Zerstäubung stattfinden kann. Als Maß für die Zahl der entstehenden Defekte wird, wie in Kapitel "Punktdefekte und Ausheilverhalten" beschrieben, die Intensität in der verbotenen Zone bei ICISS-Spektren bzw. die Intensität um $\varphi=90^\circ$ bei Azimutspektren herangezogen. Abbildung 74 zeigt im oberen Bild die von 0° bis 20° integrierte Intensität aus ICISS-Spektren gegenüber der Zeit, im unteren Bild ist der Temperaturverlauf dargestellt.

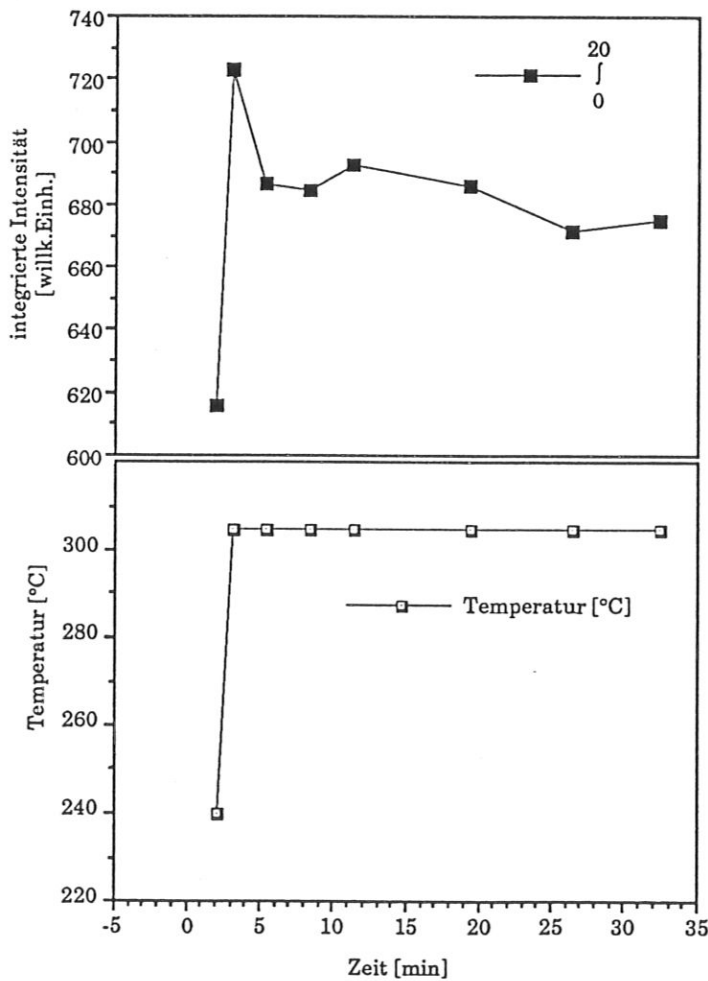


Abbildung 74: Zum Erreichen des Gleichgewichtszustandes bei $T=305^\circ\text{C}$. Integrierte Intensität aus ICISS-Spektren (Ne^+ 1 keV, $\varphi=90^\circ$, $\vartheta=145^\circ$).

Aus diesen Darstellungen ist zu erkennen, daß die Probe etwa 20 Minuten braucht, um einen Gleichgewichtszustand zu erreichen. Überraschend ist das "Überschwingen" der Intensität gleich zu Anfang ($t=3$ min). Höhere Intensität bedeutet eine größere Anzahl von Punktdefekten an der Oberfläche. Zu Beginn verlassen also viele Atome ihren Platz und finden erst nach einiger Zeit die energetisch günstigste Position, die offensichtlich einer größeren Ordnung entspricht - die Intensität sinkt ab.

Ebenso ist es interessant, den umgekehrten Prozeß, das Abkühlen der Probe, zu beobachten. Abbildung 75 zeigt wiederum die integrierte Intensität aus ICISS-Spektren gegenüber der Zeit und den entsprechenden Temperaturverlauf. Bei $t=0$ Minuten befindet sich die Probe zum ersten Mal auf 260°C , es folgt die Phase der Gleichgewichtseinstellung, bei $t=30$ min wird die Probenheizung abgedreht.

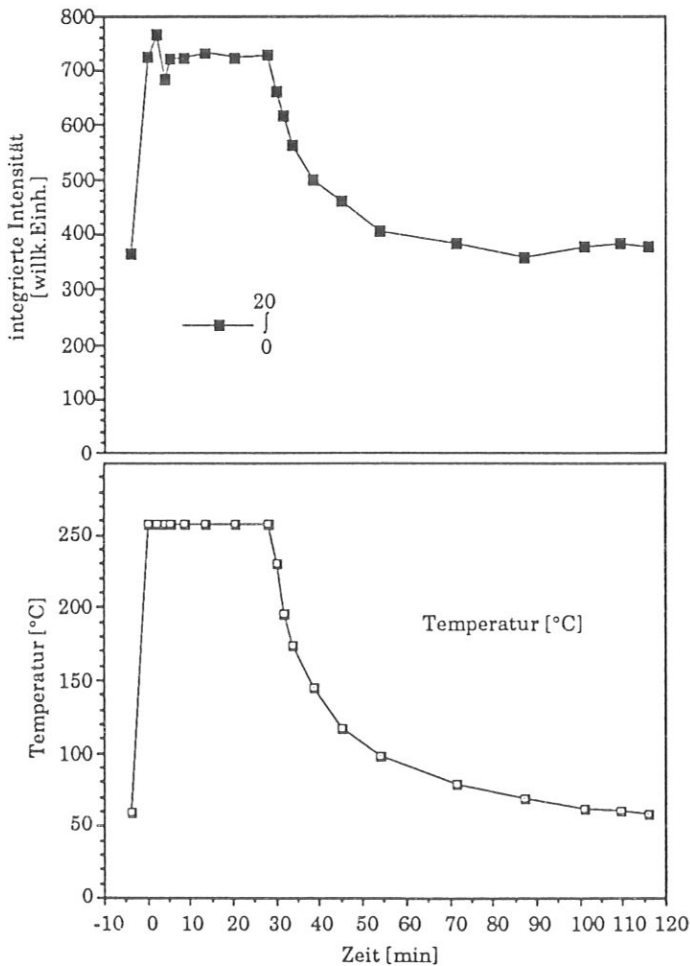


Abbildung 75: Das Abkühlen der Probe. Integrierte Intensität aus ICISS-Spektren (Ne^+ 1 keV, $\varphi=90^{\circ}$, $\vartheta=145^{\circ}$).

Die Probe reagiert sofort auf die Temperaturänderung, die Intensität sinkt. War die Probe zu Beginn der Messungen in einem perfekten Zustand, so liegt die Intensität nach der Abkühlung wieder bei dem gleichen Wert wie zuvor. Geht man von einer nicht ganz optimal präparierten Oberfläche aus, so liegt der endgültig erreichte Wert unter dem Ausgangswert, die Probe wurde ausgeheilt.

Das oben erwähnte Überschwingen der Intensität zu Beginn kann bei jeder eingestellten Probentemperatur beobachtet werden, wenn die Aufheizphase entsprechend kurz (~2-3 min) und der Temperaturunterschied groß genug ($\Delta T=50^\circ\text{C}$) ist. Abbildung 76 zeigt dieses Phänomen des Überschwingens für verschiedene Temperaturen.

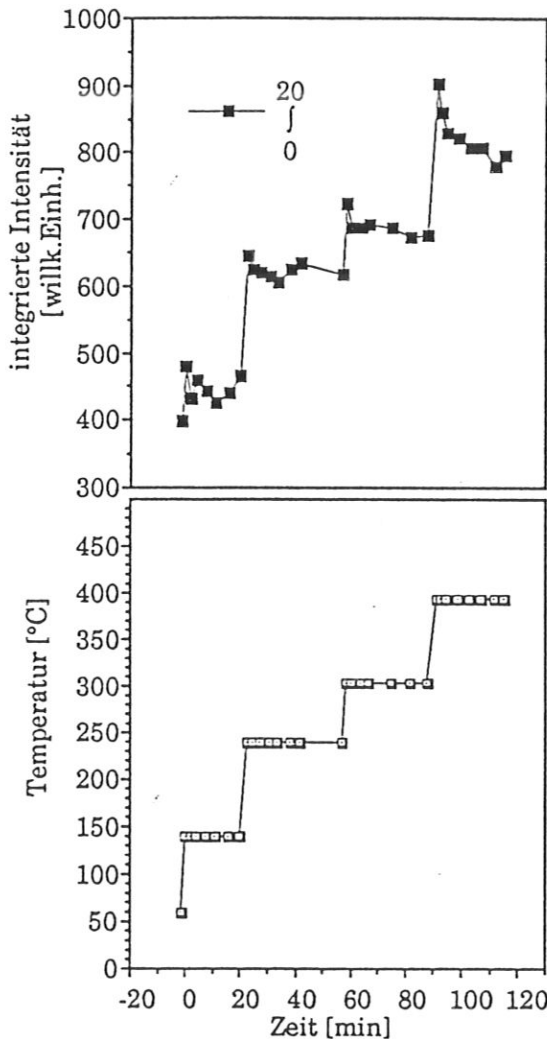


Abbildung 76:

Das Überschwingen der Intensität vor dem Erreichen des Gleichgewichtszustandes. Integrierte Intensität aus ICISS-Spektren (Ne^+ 1 keV, $\varphi=90^\circ$, $\vartheta=145^\circ$).

Wird die Intensität im Maximum als $I_{\text{Überschwinger}}$ bezeichnet und die Intensität nach Erreichen des Gleichgewichts als $I_{\text{Gleichgewicht}}$, so lassen sich die Intensitätsunterschiede zwischen $I_{\text{Überschwinger}}$ und $I_{\text{Gleichgewicht}}$ unabhängig von der Temperatur zu etwa 10% bestimmen.

5.4.2. Bestimmung des Rauigkeitsübergangs

Zur Bestimmung des Rauigkeitsübergangs wurde die Probe in kleinen Schritten auf Temperaturen bis zu 500°C erhitzt, also bis zu $\sim 0.5 T_m$. Die einzelnen Meßpunkte sind jeweils, angelehnt an die Aussagen des vorigen Kapitels, 30 Minuten nach Erreichen der jeweiligen Temperatur aufgenommen worden. Die Probe befand sich also immer im thermischen Gleichgewicht. Azimut- und ICISS-Spektren, sowohl mit Edelgas- (Ne^+) als auch mit Alkaliionen (Na^+), wurden zur Beobachtung der Strukturänderungen herangezogen. Die folgenden Abbildungen (Abb. 77, 78, 79 und 80) zeigen die entsprechenden Spektren.

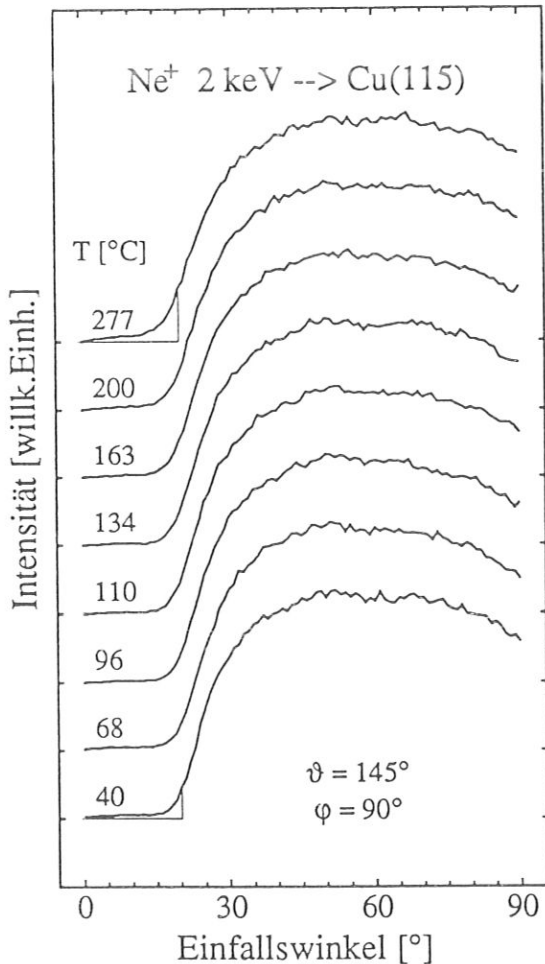


Abbildung 77:
Temperaturabhängigkeit von ICISS-Spektren. (Ne^+ , 2 keV, $\varphi=90^\circ$, $\vartheta=145^\circ$) (absolute Zählraten).

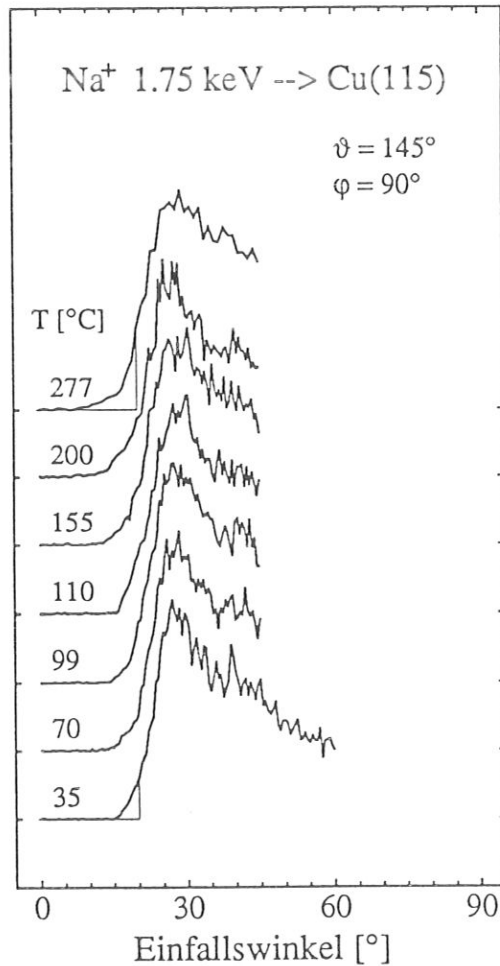


Abbildung 78:
Temperaturabhängigkeit von ICISS-Spektren. (Na^+ , 1 keV, $\varphi=90^\circ$, $\vartheta=145^\circ$) (absolute Zählraten).

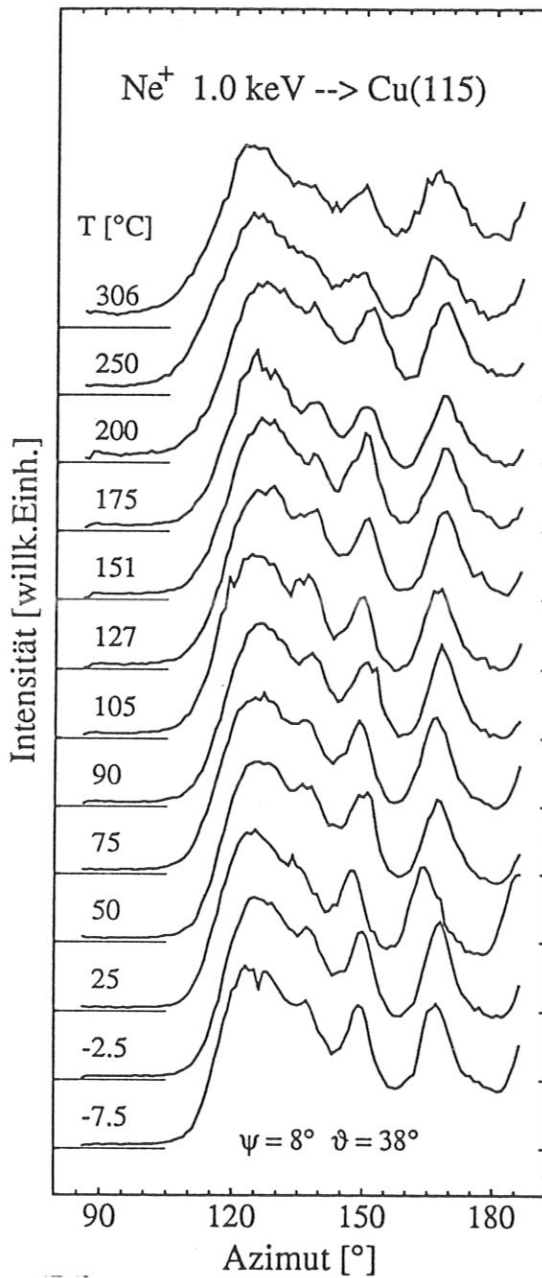


Abbildung 79:

Temperaturabhängigkeit von Azimutspektren. (Ne⁺, 1 keV, ψ=8°, ϑ=38°) (absolute Zählraten).

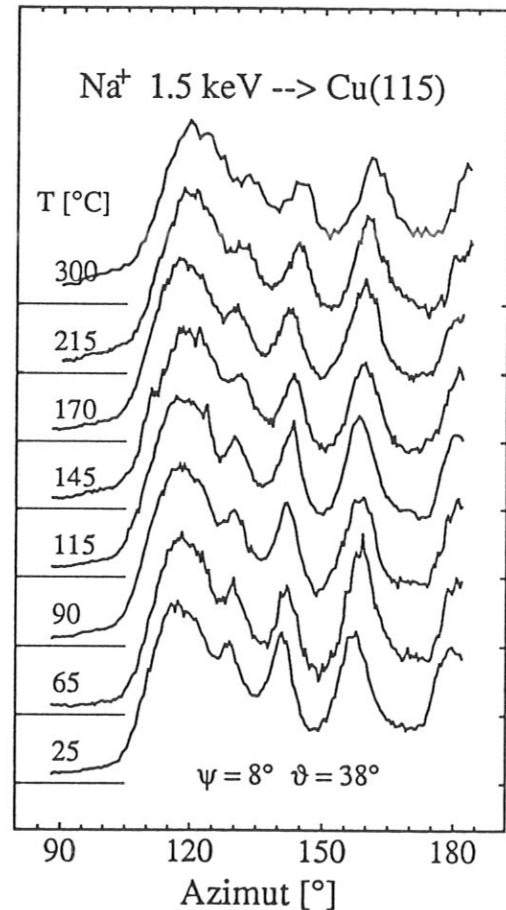


Abbildung 80:

Temperaturabhängigkeit von Azimutspektren. (Na⁺, 1.5 keV, ψ=8°, ϑ=38°) (absolute Zählraten).

Bei Betrachtung dieser Spektren fällt sofort auf, daß die Grundstruktur der Spektren weit über die theoretische Rauigkeitsübergangstemperatur $T_R \sim 110^\circ\text{C}$ erhalten bleibt. Die Anisotropie der Oberfläche, bezüglich der Richtungen parallel und senkrecht zu den Stufen, bleibt erhalten. Änderungen sind vor allem in den Azimutspektren in den Tälern, in den ICISS-Spektren in der verbotenen Zone zu beobachten. Die Intensi-

tätzzunahme im ersten Tal im Na^+ -Azimutspektrum ist höher als die Zunahme im entsprechenden Neonspektrum. Das deutet auf eine Adsorption des Natriums an der Oberfläche hin. Energiespektren, die mit Neon nach dem letzten Azimutspektrum aufgenommen wurden, zeigen ein Natriumsignal in der gleichen Größe wie das Kupfersignal. Zur quantitativen Beschreibung des Rauigkeitsübergangs werden daher die Neonspektren verwendet.

Wiederum sollen die Intensität um $\varphi=90^\circ$ in den Azimutspektren und von 0° bis 15° in den ICISS-Spektren ($\varphi=90^\circ$) über die temperaturbedingten Veränderungen Auskunft geben. Die Abbildungen 81 und 82 stellen diese Intensitäten als Funktion der Probestemperatur dar.

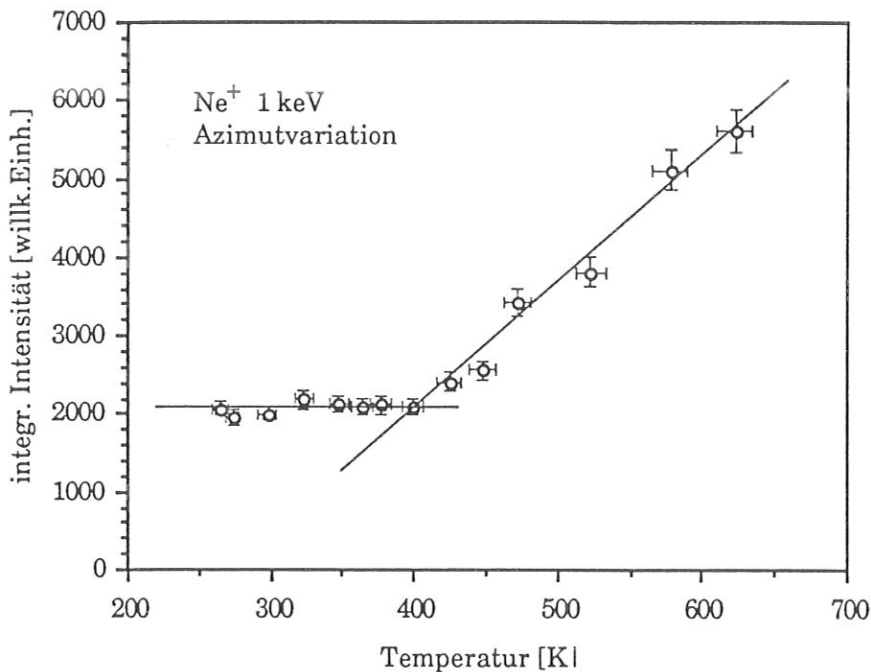


Abbildung 81: Integrierte Intensität als Funktion der Temperatur Azimutspektren (Ne^+ , 1 keV, $\psi=8^\circ$, $\vartheta=38^\circ$).

Bis zu ~ 400 K bleibt die Intensität nahezu konstant, und nimmt dann linear mit der Temperatur zu. Mit dem Wissen aus Kapitel "Punktdefekte" kann diese Intensitätserhöhung einer Erhöhung der Anzahl von Defekten an der Oberfläche zugeschrieben werden. Adatome und Kinks an den Stufenkanten werden nicht abgeschattet, da sie keinen unmittelbaren Nachbarn haben, sie tragen daher schon bei sehr kleinen Einfallswinkel zur Rückstreuintensität bei. Bei Streuung senkrecht zu den Stufenkanten sind Adatome und Kinks schwer zu beobachten, da hier der charakteristische Anstieg schon bei sehr kleinem Einfallswinkel beginnt. Definiert man die Temperatur

bei der der Anstieg beginnt als die Aufrauhtemperatur der Oberfläche, so läßt sich diese zu $390 \text{ K} \pm 15 \text{ K}$ bestimmen. *Derks* und *Hetterich* definieren die charakteristische Temperatur der Aufrauhtemperatur ebenfalls auf diese Weise.

In Abbildung 82 ist bei den offenen Kreisen zu Anfang eine Abnahme der Intensität zu beobachten. Dies bedeutet, daß die Probe anfänglich nicht optimal ausgeheilt war. Anschließend ist ebenso ein linearer Anstieg der Intensität zu verzeichnen, wie bei der gut ausgeheilten Probe (schwarze Kästchen).

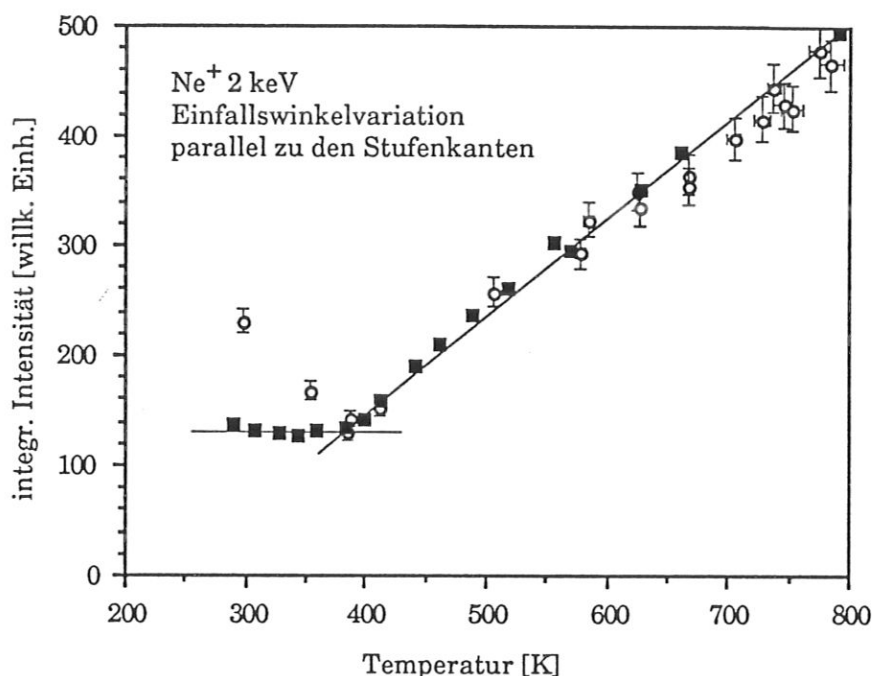


Abbildung 82: Integrierte Intensität als Funktion der Temperatur. ICISS-Spektren (Ne^+ , 2 keV, $\varphi=90^\circ$, $\vartheta=145^\circ$)
 ○ schlecht ausgeheilte, ■ gut ausgeheilte Probe

Die Reversibilität des Rauigkeitsübergangs zeigt die folgende Abbildung 83. Die Probentemperatur wurde auf einen bestimmten Wert eingestellt, 30 Minuten konstant gehalten, anschließend wurde die Heizung abgedreht. Die Meßpunkte sind bei abkühlender Probe aufgenommen, also in keinem thermischen Gleichgewicht. Die Probe reagiert sofort auf die geänderte Temperatur, die Intensität nimmt ab. Die offenen Symbole bezeichnen die integrierte Intensität bei zunehmender, die geschlossenen Symbole bei abnehmender Probentemperatur. Die Kreise stellen Daten aus Azimutspektren dar, die Quadrate sind ICISS-Spektren entnommen.

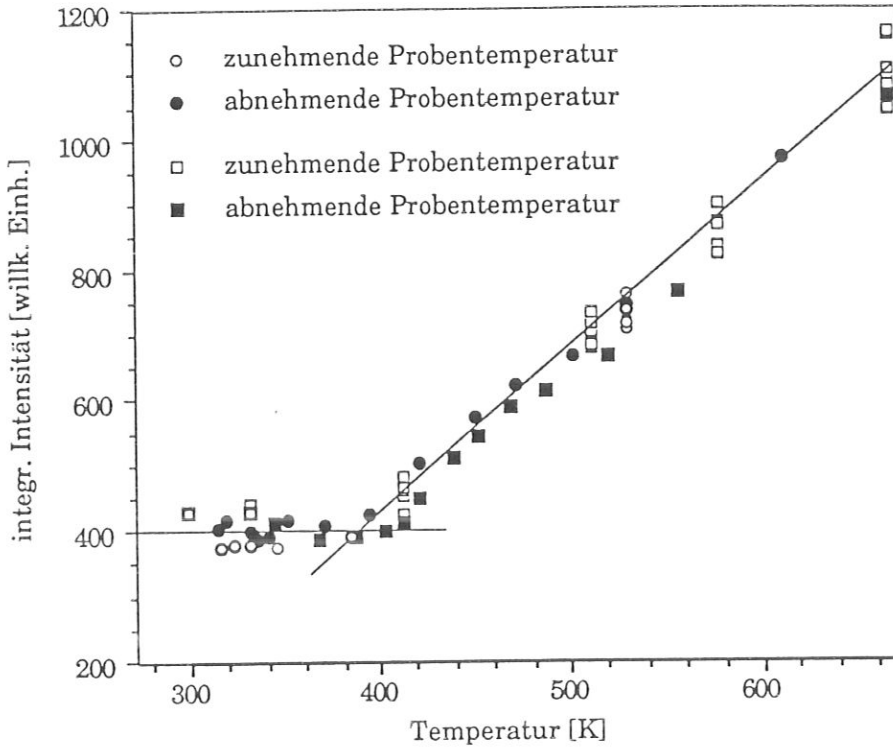


Abbildung 83: Die Reversibilität der Aufrauhung.

Da bei Erhöhung der Temperatur sofort nach Erreichen des gewünschten Wertes mit der Messung begonnen wurde, sind für eine Temperatur mehrere Werte aufgetragen, die das Überschwingen und das langsame Einpendeln auf den Gleichgewichtswert beschreiben.

Der Rauigkeitsübergang ist also, im Sinne des Experimentators "Gott sei Dank", reversibel.

6. Diskussion - Vergleich der Ergebnisse mit der Literatur

Die Bestimmung des Rauigkeitsübergangs einer Oberfläche erfordert eine genaue Definition des Ausgangszustandes der Struktur. Kenntnisse über die Mobilität der Kupferatome sind ebenso zu diskutieren, wie eventuell bestehende Relaxationen.

Mobilität von Adatomen und Kinks an Cu(115)

In guter Übereinstimmung zu *Breeman et al.* kann die Mobilität von Kupferatomen an der Cu(115)-Oberfläche beobachtet werden. *Breeman et al.* (1992) untersuchten das Wandern von Kupferatomen auf einer gestuften Cu(100)-Oberfläche - (1,1,17) - mit niederenergetischer Ionenstreuung. Die Kupferadatome wurden durch Ionenbeschuss (Neon, 6 keV) erzeugt. *Breeman et al.* erwarteten, daß man Adatome besonders bei Streuung parallel zu den Stufenkanten beobachten kann. Diese Erfahrung ist auch im Zuge dieser Arbeit gemacht worden (siehe Abb. 69). Weiters zeigten *Breeman et al.*, daß an einer gestuften Oberfläche Adatome von den Stufenkanten, die selbst als Defekte bezeichnet werden, "getrappt" werden. Entlang der geraden Kanten sind sie beweglich, bis sie auf hervorstehende Ecken stoßen. Die Temperatur, ab der Adatome an der Cu(100)-Oberfläche beweglich werden, liegt bei 140 K. Unter 140 K bleibt die Anzahl der Adatome bei weiterem Beschuss nahezu konstant bei einem, gegenüber $T = 200$ K, um den Faktor 8.1 höheren Wert.

Fabre et al. untersuchten mit Helium-Atomstreuung das Verhalten der Cu(115)-Oberfläche bei niedrigen Temperaturen. Zur Bestimmung der Schwellentemperatur für die Mobilität der Kupferatome wurde die Oberfläche durch Ionenbeschuss bei tiefen Temperaturen zerstäubt. Anschließend wurde die Probe möglichst schnell auf die gewünschte Temperatur gebracht (30 K/s). Sie kommen zu dem Schluß, daß zwischen 70 K und 230 K eine sehr langsame und nur teilweise erfolgende Ordnung zu einer metastabilen Phase mit Defekten führt. Aus Selbstdiffusionsmessungen von *Bonzel et al.* im Temperaturbereich von 770 bis 1230 K extrapolieren sie die Mobilitätsschwellentemperatur zu 250 - 300 K. Mit dem angegebenen Diffusionskoeffizienten ermitteln sie die für den Platzwechsel (2.56 Å) notwendige Zeit zu $1.4 \cdot 10^{-2}$ s bei 400 K, bzw. 8 min bei 300 K. Aufgrund dieses Zeitfaktors könnte eine geordnete Phase bei tiefen Temperaturen zwar

kurzreichweitig erzielt werden, auf langreichweitiger Skala besteht aber nachwievor ein eingefrorener ungeordneter Zustand.

In der vorliegenden Arbeit wurde mit Ionenstreuung beobachtet, daß die Kupferatome bei 160 K bereits wandern, die Mobilitätsschwellentemperatur ist daher kleiner 160 K. Da ISS kurzreichweitige Informationen liefert, wird schon bei niedrigeren Temperaturen, als von *Fabre et al.* angegeben, ein Ausheilen beobachtet. Im Gegensatz zu *Fabre et al.*, wird bei der gewählten experimentellen Vorgehensweise den Probenatomen mehr Zeit gegeben (mindestens 15 Minuten), sich nach dem Beschuß zu ordnen. Dadurch wird selbst bei tiefen Temperaturen auf kurzreichweitiger Skala eine geordnetere Struktur erreicht und eine deutlich niedrigere Schwellentemperatur bestimmt. Bei 160 K bleibt die Zahl von Defekten bei weiterem Beschuß konstant (siehe Abb. 71, 72). Eine Temperaturerniedrigung auf unter 160 K war leider nicht möglich. Ein Anstieg der Adatom- und Kink-Anzahl um einen Faktor 8, bei Erniedrigung der Proben temperatur von 300 K auf 160 K, wurde beobachtet. Aufgrund der Tatsache, daß bei weiterem Beschuß eine Sättigung der Zerstörung erreicht wird und sich der gleiche Faktor der Defektzunahme wie bei *Breeman et al.* ergibt wird geschlossen, daß ebenfalls der Bereich der Mobilitätsschwellentemperatur erreicht wurde, zumal der experimentelle Fehler beim Messen von niedrigen Temperaturen mit Ni-CrNi-Thermoelementen recht groß ist.

Struktur der Cu-Oberfläche bei Raumtemperatur

Vergleiche von Alkali-ICISS-Spektren mit Simulationen bei Raumtemperatur lassen eine Relaxation der Cu(115)-Oberfläche vermuten (siehe Abbildungen 63, 65 und 66). Die experimentellen Maxima (Peaknummern 4, 5, 6 und 7 in Abb. 63), die der Streuung der Alkaliionen an tieferen Lagen zuzuordnen sind, sind zu kleineren Winkeln verschoben.

Loisel et al. beschreiben die an vizinalen Oberflächen auftretenden Relaxationen mit Hilfe eines Modells (Vielteilchenpotential, "tight-binding"-Rechnungen), welches für Cu(113) experimentell gut bestätigte Werte ergibt [*Loisel et al.*]. Für Cu(115) berechnen sie die in Tabelle 3 dargestellten Relaxationen der einzelnen Lagenabstände $d_{i\ i+1}$, wobei $d_{i\ i+1}$ der Abstand der i -ten zur $(i+1)$ -ten Lage ist. Der Lagenabstand der

Cu(115)-Oberfläche beträgt im unrelaxierten Fall in [115]-Richtung 0.696 Å. Trotz bis zu 8%-igen Relaxationen muß man sehen, daß diese im Experiment nur sehr schwer zu detektieren sind. Das besondere Problem dabei liegt darin, daß diese Abstandsänderungen senkrecht zur Oberfläche gelten. Rechnet man diese in die Abstände l der Atompaare ein, so ändern sich diese nur um wenige hundertstel Ångström (Tab. 4).

Relaxation	d_{12}	d_{23}	d_{34}	d_{45}	d_{56}
Δd [%]	- 8.0	- 5.1	+ 7.0	-3.3	-3.1
Δd [Å]	- 0.056	-0.035	+ 0.049	-0.023	-0.022
Lagenabstand [Å]	0.640	0.660	0.744	0.673	0.674

Tabelle 3: Relaxation der Cu(115)-Ebene in [115]-Richtung nach *Loisel et al.* .

Aus Abbildung 24 kann abgelesen werden, welche Änderungen des kritischen Winkels bei Längenänderungen dieser Größenordnung zu erwarten sind. Die beobachteten Winkelverschiebungen sind aber kein alleiniges Resultat der geänderten Atomabstände, vielmehr muß die Änderung des Winkels α zur Oberfläche in die Bestimmung des kritischen Winkels miteinbezogen werden (Gl. 44).

$$\Delta\psi_{eff} = \Delta\psi_c + \Delta\alpha \quad (44)$$

Die unter Annahme der Relaxationen aus Tabelle 3 auftretenden Änderung der Abstände und Winkel für Streuung in $\varphi=0^\circ$ sind in Tabelle 4 eingetragen.

Atompaar	3	4	5	6	7
$\Delta\alpha$ [°]	0.293	0.608	0.368	0.398	0.657
Δl [Å]	0.003	0.015	0.014	0.083	0.041

Tabelle 4: Berechnete Winkelverschiebungen und Längenänderungen aufgrund von Relaxationen nach *Loisel et al.* .

Die Abbildungen 84a und 84b zeigen Simulationsrechnungen, die die angege-

benen Lagenrelaxationen [Loisel et al.] beinhalten. Die experimentell beobachteten Verschiebungen der Peaks aus den tieferen Lagen (4, 5 und 6) können durch die simulierten Relaxationen nicht beschrieben werden. Bei Peak 3 (Abb. 84a, erster Lagenabstand) geht die Verschiebung zu kleinerem Winkel, bei den anderen Maxima ist nur eine minimale Änderung zu sehen (Vergleich zu Abb. 63). Die Größe der experimentellen Winkeländerungen fordert eine Berücksichtigung von 20%-igen Lagenrelaxationen in den Simulationen. Dieser Wert erscheint überhöht. Daher soll nochmals darauf hingewiesen werden, daß diese Verschiebungen auch durch den Einfluß oberflächennäherer Atomlagen auf die Trajektorien der austretenden Ionen verursacht sein können.

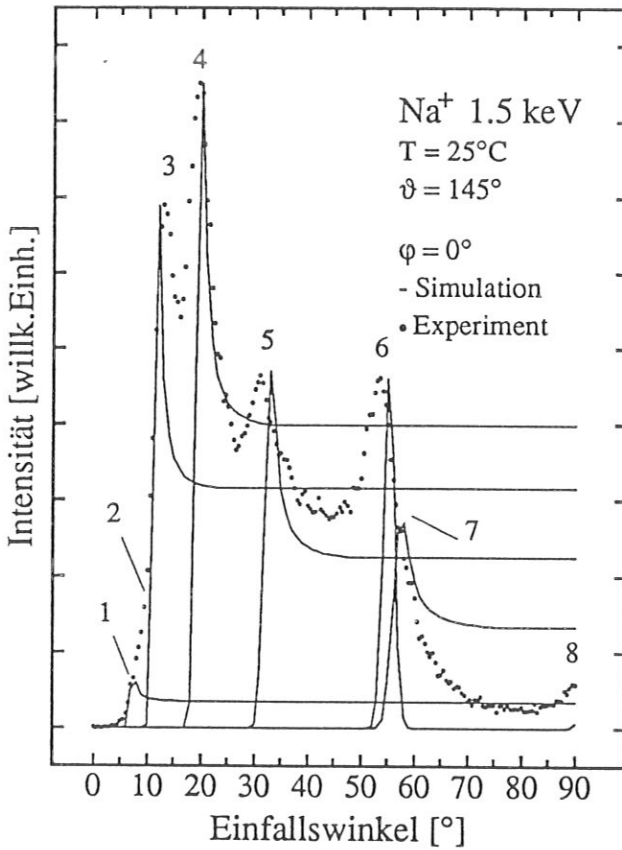


Abbildung 84a: Vergleich von Experiment und Simulationen, die Relaxationen nach Loisel et al. berücksichtigen.

In Abbildung 84b stellen die Punkte das Experiment, die strichlierte Linie die Simulation unter Berücksichtigung der Lagenrelaxation dar. Auch hier wird durch Berücksichtigung der Lagenrelaxation der Peak 5 (≈ Peak 3 aus Abb. 84a) zu kleinerem

Winkel verschoben. Die Übereinstimmung zu den experimentellen Daten ist nicht mehr so gut gegeben. Die Vermutung liegt nahe, daß eine Relaxation senkrecht zur Oberfläche zur Beschreibung nicht ausreicht. Gerade wegen der offenen Struktur scheint auch eine laterale Relaxation möglich. Berücksichtigt man eine laterale Verschiebung des Stufenkantenatoms a in Richtung des Atoms b um $0.15 \pm 0.03 \text{ \AA}$ (verkürzter Abstand zwischen Atom a und Atom b), liegt der Peak bei höheren Winkeln (durchgezogene Linie). In Abbildung 84a hat diese laterale Relaxation keine Auswirkungen, da die Längenänderung bezüglich des dort vorliegenden langen Atomabstandes zu gering ist. Die Berücksichtigung der Relaxation hat zur Folge, daß der theoretische Wert des Winkels zwischen der (115)- und der (001)-Ebene von 15.8° zu 15.6° geändert ist.

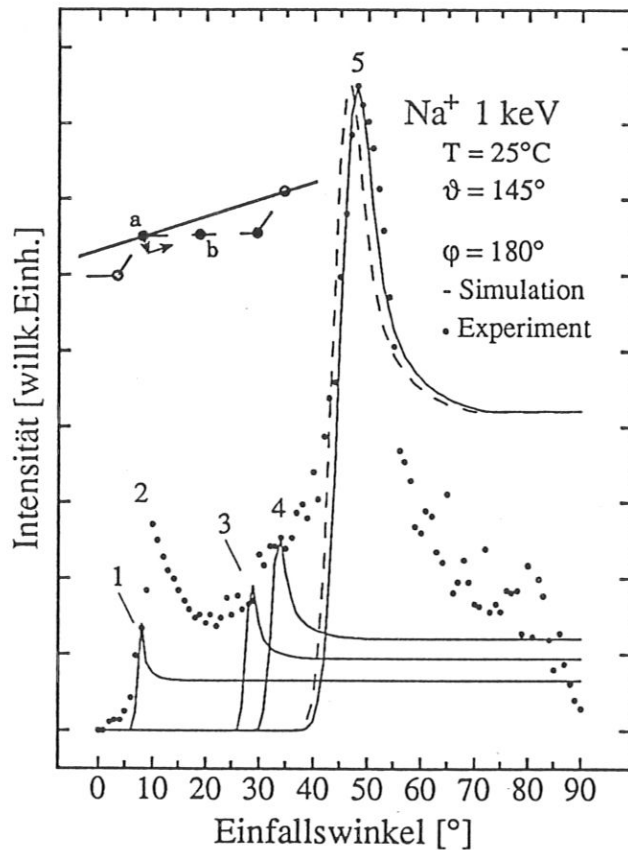


Abbildung 84b: Vergleich von Experiment und Simulationen, die Lagenrelaxationen nach *Loisel et al.* (---) und eine laterale Verschiebung des Stufenkantenatoms (—) berücksichtigen.

Trotz aller Problematik bei der Zuordnung der Peaks aus tieferen Lagen zu konkreten Atomabständen zeigt sich, daß die Struktur der Cu(115)-Oberfläche bei Raumtemperatur einer (115)-Ebene entspricht, die jedoch, wie bei einer derartigen

Struktur erwartet, Relaxationen aufweist.

In die Simulationsrechnungen geht die Oberflächen-Debye-Temperatur ein. Aus Vergleichen von experimentellen Daten und Simulationen kann die Oberflächen-Debye-Temperatur zu $\Theta_D = 220 \text{ K} \pm 18 \text{ K}$ bestimmt werden. Aus der Literatur stehen leider keine Werte für die Debye-Temperatur einer Cu(115)-Oberfläche zur Verfügung. Nach *Jackson (1974)* liegt Θ_D für die (001)-Terrassenebene senkrecht zur Oberfläche bei 192 K, parallel zur Oberfläche bei 292 K.

Der Rauigkeitsübergang

Der Rauigkeitsübergang einer Oberfläche zeichnet sich durch die Bildung von Adatomen, Defekten und Clustern aus. Durch die erhöhten thermischen Schwingungen der Atome kommt es zu Spannungen, die durch Verringerung der Dichte der Atome in den ersten Lagen abgebaut werden. Die Bildung von Adatomen und Stufen ist die Folge [*Cao et al.*]. *Tosatti* bezeichnet die Aufrauhung einer Oberfläche als Vorstufe zum Oberflächenschmelzen. Gerade die statistische Verteilung der Adatome usw. führt dazu, daß in den ICISS- und Azimutspektren der Phasenübergang nicht vom Erscheinen neuer Strukturen begleitet ist. Erreicht die Probe die Übergangstemperatur, geht die freie Energie der Stufen gegen Null. Die Höhenkorrelationsfunktion (siehe Kap. "Rauigkeitsübergänge -Modelle") divergiert. Diese beiden den Übergang beschreibenden Größen sind aber dem Experiment nicht unmittelbar zugänglich. Zur Charakterisierung des Rauigkeitsübergangs wird die Anzahl von Adatomen an der Oberfläche benutzt. Diese Größe ist direkt aus den ICISS- und Azimutspektren abzuleiten (siehe Kap. "Punktdefekte"). Das Anwachsen der Intensität in den Tälern der Azimutspektren ist nicht in allen Kristallrichtungen (Tälern) im gleichen Ausmaß zu beobachten, was darauf schließen läßt, daß die Aufrauhung nicht durch statistisch verteilte Adatome an der Oberfläche, sondern durch die Anlagerung von Kinks an den Stufenkanten hervorgerufen wird.

Wie schon im Kapitel "Rauigkeitsübergang" aufgezeigt wurde, sind alle experimentellen Daten zur Bestimmung des Rauigkeitsübergangs der Cu(115)-Fläche bis jetzt mit langreichweitigen Methoden gewonnen worden. *Lapujoulade, Fabre, Gorse, Salanon, Villain* uvm. verwenden die Streuung thermischer Helium-Atome zur Cha-

rakterisierung der Oberfläche. Der aus diesen Daten extrahierte Rauigkeitsparameter X_Q zeigt in Abhängigkeit von der Proben temperatur einen ähnlichen Verlauf, wie die in dieser Arbeit verwendete integrierte Intensität. X_Q liegt bis knapp unterhalb der Phasenübergangstemperatur bei einem konstant niedrigen Wert und steigt um T_R rapid an. Molecular-Dynamics-Rechnungen [Gorse *et al.*] ergeben für Cu(115) eine Rauigkeits temperatur von 570 K, die im Vergleich zu den experimentell bestimmten Werten von 380 K zu hoch liegt.

Conrad beobachtet eine Rauigkeit der Oberfläche bei tiefen Temperaturen und schließt daraus auf eine Rauigkeitstemperatur von unter 70 K. *Lapujoulade* hält dieser Aussage entgegen, daß die Atome bei so niedrigen Temperaturen nicht mobil genug sind, um eine Aufrauung der Oberfläche hervorzurufen.

Die Streuung niederenergetischer Ionen brachte neue Informationen über den Rauigkeitsübergang auf kurzreichweitiger Skala. Sowohl mit Alkali- als auch mit Edelgasstreuung läßt sich die Aufrauung der Oberfläche beobachten. Die Rauigkeitsübergangstemperatur kann in guter Übereinstimmung zu den oben erwähnten Experimenten zu 390 ± 15 K bestimmt werden. Die Quantifizierung des Rauigkeitsüberganges, d.h. die Bestimmung der Anzahl der Atome, die ihren Platz verlassen und zu Adatomen und Kinks werden, wurde durch den Vergleich mit bei tiefen Temperaturen zerstäubten Oberflächen, gewonnen.

Taglauer et al. (1988) untersuchten die Temperaturabhängigkeit der Streuung von Ne^+ 1 keV an Cu(110). Vergleicht man die dort diskutierten Daten, so ist eine Intensitätszunahme aufgrund der Zerstäubung um einen Faktor 3 (80 Einheiten bei 300 K zu 250 Einheiten bei 100 K) zu verzeichnen, die Temperaturerhöhung von 300 K auf 600 K bringt lediglich einen Anstieg um einen Faktor 1.5 (von 80 Einheiten auf 120 Einheiten).

Möller et al. (1986) verwenden, zur Beschreibung des (1x2) - (1x1) - Überganges der Au(110)-Fläche, Strukturen in ICISS-Spektren, die der Streuung an der zweiten Lage entsprechen (Na^+ 2 keV, $\vartheta=123^\circ$). Die Streuintensitäten, an bestimmten Winkelpositionen der Spektren, aufgetragen über der Temperatur, ergeben bei einer Temperaturvariation von 300 K zu 900 K einen Anstieg um einen Faktor von ~ 1.8 .

Dürr erhält für Cu(110) bei $T = 900$ K eine Adatomkonzentration von 7%, bei $T_R = 1100$ K einen Adatomanteil von 12%. Die quantitative Auswertung der Adatom-

konzentration erfolgte durch Vergleich mit einem um 0.5° in [001]-Richtung schräg geschnitten Kristall.

Abbildung 85 zeigt die integrierte Intensität aus ICISS-Spektren, die ein Maß für die Anzahl von Punktdefekten an der Oberfläche darstellt, als Funktion der Temperatur. Die bei tiefen Temperaturen durch Zerstäuben erzeugten Defekte heilen mit zunehmender Temperatur aus, ein neuerlicher Anstieg deutet auf das Entstehen von Defekten an der Oberfläche hin. Das Ausheilen der Defekte zeigt ein exponentielles Verhalten, die gezeigte Kurve ist das Ergebnis einer numerischen Anpassung mit einem Korrelationskoeffizienten von $R^2=0.981$. Ab 390 K beginnt die thermische Aufrauung der Oberfläche. Sie kann in einem Temperaturbereich von 390 K bis 800 K durch eine lineare Zunahme der Intensität beschrieben werden ($R^2=0.974$). In dem untersuchten Temperaturbereich sind die Daten aber auch durch ein exponentielles Verhalten zu beschreiben ($R^2=0.959$). Aus experimentellen Gründen war eine Erhöhung der Proben temperatur über 800 K ausgeschlossen. *Conrad et al.*(1986) weisen ebenfalls auf eine konstante Anzahl von Mäandern bei Temperaturen kleiner T_R und einen anschließenden linearen Anstieg hin (Ni(115)).

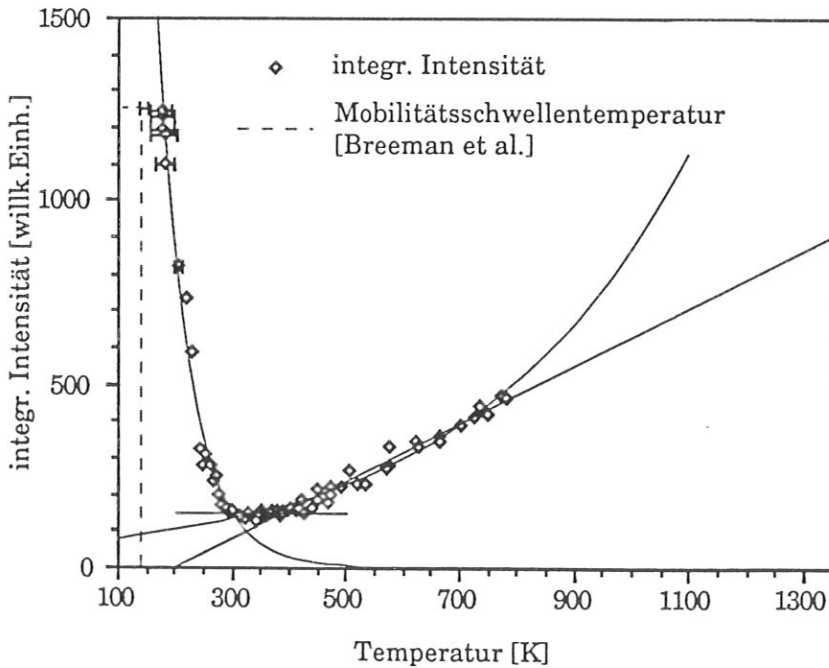


Abbildung 85: Das Ausmaß der Aufrauung im Vergleich zur Zerstörung der Oberfläche durch Ionenbeschuss bei tiefen Temperaturen.

Definiert man die bei 160 K erreichte Zerstörung der Oberfläche als maximale Zerstörung, d.h. 50 % der Oberflächenatome befinden sich nicht an ihrem ursprünglichen Gitterplatz, so kann an Hand dieser Größe die Defektkonzentration der Oberfläche nach Durchlaufen der Aufrauungstemperatur bestimmt werden. Maximale Zerstörung bedeutet, daß jedes zweite Atom sich nicht an seinem Platz befindet. Durch Vergleich der Intensitäten bei Raumtemperatur (geordnete Struktur) und bei 160 K berechnet sich ein Faktor 8 in der Defektkonzentration. Die Anzahl der Defekte bei 620 K liegt um einen Faktor 2.5 ± 0.1 über dem Wert bei Raumtemperatur, bei 770 K um einen Faktor 3.4 ± 0.2 . Aus diesen Überlegungen ergibt sich, daß im Mittel bei 620 K jedes 6.4-te und bei 770 K jedes 4.7-te Atom disloziert ist, d.h. rund $15.6 \% \pm 0.6 \%$ bzw. $21.25 \% \pm 1 \%$ der Oberfläche sind aufgeraut. Diese Werte sind gegenüber den Angaben für die Aufrauung glatter Oberflächen (7% bei 900 K [Dürr]) deutlich erhöht. Die minimal erreichte Intensität weist auf eine Defektkonzentration von $\sim 6.25 \%$ hin. Adatome besitzen an Flächen in der Nähe von Stufen nur eine kurze Verweilzeit. Sie wandern sofort an die Stufenkanten und bilden dort Kinks, an denen sich weitere Adatome anlagern. Einzelne Adatome sind der Streuung besser zugänglich als Kinks. Adatome werden von keinem nächsten Nachbarn abgeschattet, Kinks schatten sich jedoch gegenseitig ab, so daß eine geringere Rückstreuintensität die Folge ist. Unter diesem Aspekt sind auch die Prozentangaben für die Aufrauung zu sehen, d.h. es liegt möglicherweise eine größere Aufrauung der Oberfläche vor.

Zur Bestimmung der Bildungsenergie von Kinks an der Oberfläche wird in Abbildung 86 (rechtes Bild) ein Arrhenius-Diagramm gezeigt. Unter der Annahme eines exponentiellen Verhaltens der Aufrauung, ergibt sich aus Abbildung 86 (der Steigung der Geraden) eine Bildungsenergie von 0.08 ± 0.002 eV (938 K). Fast die gleiche Energie, 0.078 ± 0.03 eV (912 K), berechnet sich beim Ausheilen ionenbeschußinduzierter Defekte bei niedrigen Temperaturen (Abbildung 86 (linkes Bild)).

In der Literatur finden sich sehr unterschiedliche Angaben für die Bildungsenergie von Kinks an der Cu(115)-Oberfläche. Während theoretische Werte [Loisel et al., Villain et al., Lapujoulade (1978)] zwischen 1500 K und 3400 K divergieren, erhalten Fabre et al. (1987) ebenfalls eine Energie von 900 ± 100 K und Salanon et al. (1988) 700 K.

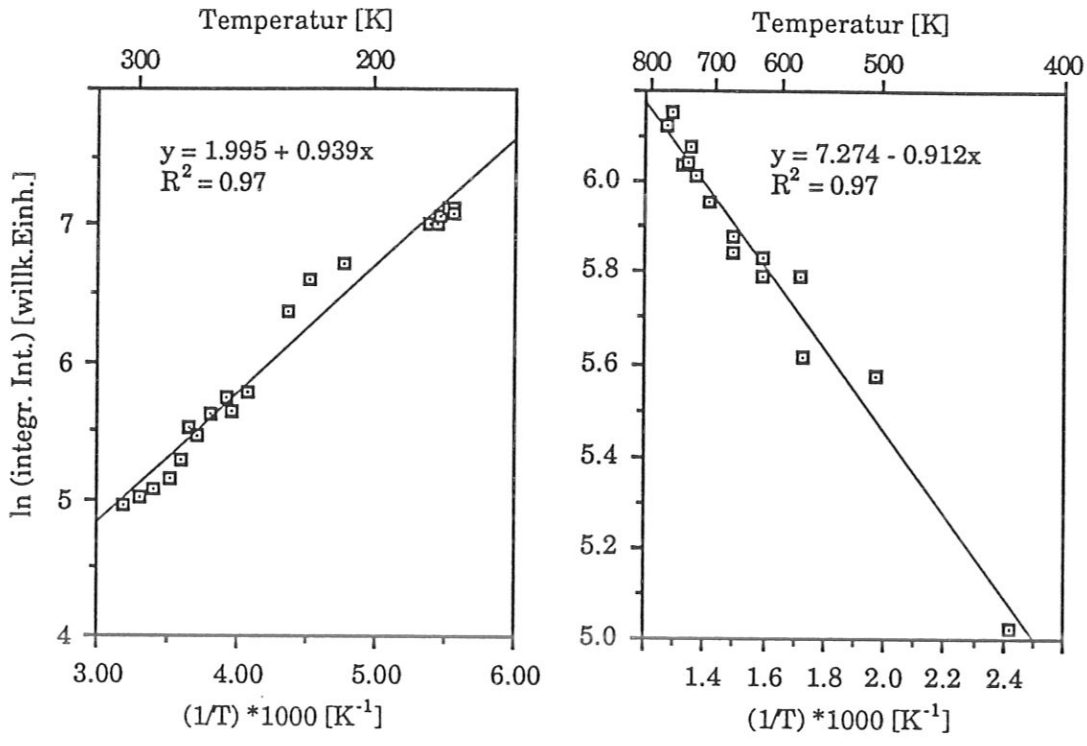


Abbildung 86: Arrhenius-Diagramme.

Linkes Bild: Ausheilen von ionenbeschußinduzierten Punktdefekten.

Rechtes Bild: Die thermische Aufrauung der Oberfläche.

Abschließend kann festgestellt werden, daß die Aufrauungstemperatur der Cu(115)-Oberfläche in guter Übereinstimmung zu experimentellen Daten aus der Literatur zu $T=390 \text{ K} \pm 15 \text{ K}$ bestimmt werden konnte und daß die Oberfläche bis zur maximal untersuchten Temperatur von 800 K ihre kristallographische Stufenstruktur beibehält.

7. Zusammenfassung

Ziel dieser Arbeit war die Charakterisierung der Oberflächenstruktur eines Cu(115)-Kristalls in Abhängigkeit von der Probertemperatur, im Hinblick auf die thermische Aufrauung (roughening) der Oberfläche.

Als Untersuchungsmethode wurde die Streuung niederenergetischer Ionen (ISS) angewendet. Mit dieser Methode kann Information über die äußersten Atomlagen gewonnen werden. Zwei spezielle Effekte, die bei der Ionenstreuung auftreten, ermöglichen eine kristallographische Beschreibung der Probenoberfläche. Dies sind der Effekt der Abschattung, welcher in "Impact Collision Ion Scattering Spectroscopy" (ICISS) genutzt wird und das Oberflächenchanneling der einfallenden Ionen entlang dichtgepackter Reihen an der Oberfläche. Mit Hilfe der Mehrfachstreuung der Ionen konnte eine erste Information über die azimutale Orientierung der Probenoberfläche gewonnen werden. Außerdem konnte auf diese Weise der Winkel der (115)-Fläche zu den (001)-Terrassen zu $16^\circ \pm 2^\circ$ bestimmt werden (geometrischer Wert von 15.8° ohne, bzw. 15.6° mit Berücksichtigung der Relaxationen).

Im ersten Teil dieser Arbeit wurde die Basis für die erforderlichen Untersuchungen geschaffen, indem die Möglichkeiten der Ionenstreuung im Bereich der Strukturbestimmung und der Detektion von Punktdefekten (wie Adatome, Fehlstellen und Kinks an Stufenkanten) unter Beweis gestellt wurden. Im speziellen wurde die Möglichkeit der Unterscheidung von Fehlordnungen der Atome und thermischen Vibrationen der Atome um ihre Ruhelage aufgezeigt. Punktdefekte können sowohl mit ICISS als auch mit Oberflächenchanneling erfolgreich untersucht werden.

Als entscheidender Parameter bei Messungen mit Hilfe des Channelingeffektes erwies sich die Detektionsenergie. Da bei Channeling-Experimenten kleine Einfallswinkel vorliegen, erleiden die Ionen auf ihrem Weg zum Detektor eine Reihe von Stößen. Ihre Energie entspricht deshalb nicht der Energie "S" eines Teilchens nach einem einfachen binären Stoß. Die Energie "S" eignet sich zum Ausmessen langer Atomabstände an der Oberfläche, während die "QS"-Energie, welche Mehrfachstreuung beschreibt, zur Bestimmung kurzer Abstände entlang dichtgepackter Reihen herangezogen werden muß. Channeling und Mehrfachstreuung sind in dieser Hinsicht äqui-

valent; beide fordern kurze Atomabstände und kleine Einfallswinkel. Bei ICISS-Experimenten ist die Detektionsenergie eindeutig. Hier liegt die Rückstreuenergie eindeutig an der "S"-Position, da der Energieverlust durch einen einzigen "head-on"-Stoß verursacht wird, die zahlreichen Kleinwinkelstöße zuvor tragen kaum bei.

Die Struktur der Cu(115)-Oberfläche wurde sowohl mit Edelgas- (Ne^+) als auch mit Alkaliionen (Na^+) untersucht. Die unterschiedliche Neutralisationsrate von Neon- und Natriumionen an der Oberfläche bewirkt, daß die Informationstiefe bei Ne^+ auf die absolut erste Lage beschränkt ist, während mit Na^+ ein Blick in die innere Kristallstruktur, bis zu 6 Lagen, möglich ist. Die charakteristischen Merkmale der Struktur sind in Alkalispektren deutlicher ausgebildet, da die Form der Spektren nicht von Neutralisationseffekten überlagert ist. Gerade aber die Information aus tieferen Lagen fordert eine Auswertung der experimentellen Daten mit Hilfe von Simulationen.

Aus Vergleichen von experimentellen Daten mit 2- und 3-dimensionalen Simulationsrechnungen wurde die Oberfläche bei Raumtemperatur charakterisiert. ICISS-Messungen zeigen, daß bei Raumtemperatur die Struktur einer (115)-Fläche vorliegt, sich an der Oberfläche jedoch Adatome befinden. In der Literatur angegebene Lagenrelaxationen senkrecht zur Oberfläche beschreiben die auftretenden Relaxationen nicht vollständig. Die Berücksichtigung einer lateralen Verschiebung der Stufenkantenatome in $[\bar{5}52]$ -Richtung ist erforderlich.

Weiters wurde das Ausheilverhalten von Ionenbeschußinduzierten Punktdefekten beobachtet. Es zeigt sich, daß bereits bei einer Temperatur von 160 K die Defekte an der Oberfläche mobil sind. Bei Raumtemperatur reicht die thermische Beweglichkeit der Atome aus, um beschußinduzierte Defekte sofort auszuheilen.

Die Struktur der Oberfläche zeigt in Abhängigkeit von der Temperatur einen Rauigkeitsübergang. Die charakteristische Temperatur dieses Übergangs wurde zu $390 \text{ K} \pm 15 \text{ K}$ bestimmt. Die Grundstruktur der Oberfläche bleibt über den gesamten betrachteten Temperaturbereich erhalten, die Oberfläche erfährt also eine Aufrauhung und kein Oberflächenschmelzen. Die Quantifizierung zeigt eine, im Vergleich zur Aufrauhung glatter Flächen, höhere Konzentration von Adatomen und Kinks.

Die Position von Sauerstoffatomen, die aus dem Restgas an der Oberfläche adsorbieren, wurde bestimmt. Vergleiche von experimentellen Daten mit Modell-

vorstellungen lassen auf Cu-O-Cu-Ketten entlang der Stufenkanten schließen.

Als interessante Fragestellungen für die Zukunft ergeben sich das Verhalten der Cu(115)-Fläche bei Adsorption von z.B. Sauerstoff, wobei man erwartet, daß Adsorbate die Stufenkantenatome über einen höheren Temperaturbereich festhalten. Ebenso interessant scheint eine Erhöhung der Proben temperatur bis in die Nähe des Schmelzpunktes der Probe. Besonders die Charakterisierung der Oberflächenstruktur mit Hilfe eines Rastertunnelmikroskops sollte weitere interessante Aspekte liefern.

8. Literaturverzeichnis

- Aono M., Hou Y., Souda R., et al., (1982), Jap. Journ. of Appl. Phys. Vol. 21, Nr. 11, L670
- Aono M., Oshima C., Zaima S., Otani S., Ishizawa Y., (1981),
Jap. Journ. of Appl. Phys. Vol.20, Nr.11, L829
- Aono M., Souda R., (1987), Nucl. Instr. and Methods in Phys. Res. B 27, 55
- Ashcroft N.W., Mermin N.D., (1976), Solid State Physics, Holt Saunders, New York
- Baretzky B., (1985), IPP-Report 9/53
- Beckschulte M., (1988), IPP Report 9/68
- Beckschulte M., (1992), Doktorarbeit Techn. Universität München
- Begemann S.H.A., Boers A.L., (1972), Surf. Science 30, 134
- Behrisch R., (1981), Sputtering by Particle Bombardement I,
Topics in Appl. Phys. Vol. 47
- Behrisch R., (1983), Sputtering by Particle Bombardement II,
Topics in Appl. Phys. Vol. 52
- Behrisch R., Wittmaack K., (1991), Sputtering by Particle Bombardement III,
Topics in Appl. Phys. Vol. 64
- Beijeren van H., (1977), Phys. Rev. Lett. 38, 993
- Bohr N., (1948), Mat.-Fys. Medd. Kgl. Dan. Vid. Selsk 18(8)
- Bonzel H., Gjostein N., (1969), in "Molecular Processes in Solid Surfaces",
Eds.: Dranglis E., Gretz R.D., Jaffee R.I., McGraw-Hill, New York
- Breeman M., Boerma D.O., (1992), Surf. Science 269/270, 224
- Brongersma H.H., Hazewindus N., Nieuwland van J.M., Otten A.M.M., Smets A.J.,
(1976), J. Vac. Sci. Techn. 13, 670
- Brunnee C., (1957), Z. Physik 147, 161

- Burton W.K., Cabrera N., (1949), Disc. Faraday Soc. Nr.5, 33, 40
- Burton W.K., Cabrera N., Frank F.C., (1951),
Philos. Trans. Roy. Soc. London Ser.A 243, 299
- Cao Y., Conrad E.H., (1990), Phys. Rev. Lett. 64, 447
- Chui S.T., Weeks J.D., (1976), Phys. Rev. B Vol. 14, Nr. 11, 4978
- Conrad E.H., (1987), Surf. Science 187, 265
- Conrad E.H., Allen L.R., Blanchard D.L., Engel T., (1987) Surf. Science 187, 265
- Conrad E.H., Aten R.M., Kaufman D.S., Allen L.R., Engel T., Nijs den M.,
Riedel E.K., (1986), J. Chem. Phys. 84 (2), 1015
- Conrad E.H., Aten R.M., Kaufman D.S., Allen L.R., Engel T., Nijs den M.,
Riedel E.K., (1986), J. Chem. Phys. 85 (2), 4756 (E)
- Daley R.S., Huang J.H., Williams R.S., (1989), Surf. Science 215, 281
- Derks H., (1990), Dissertation Universität Osnabrück
- Dürr H., (1990), Dissertation Universität Bayreuth
- Eckstein W., (1980), in "Inelastic Particle-Surface Collisions,
Eds.: E.Taglauer, W.Heiland, Springer Verlag, Berlin
- Eckstein W., private Mitteilungen
- Engelmann G., (1987), IPP-Report 9/62
- Engelmann G., Taglauer E., Jackson D.P., (1985), Surf. Science 162, 921
- Fabre F., Gorse D., Salanon B., Lapujoulade J., (1986), Surf. Science 175, L393
- Fabre F., Gorse D., Salanon B., Lapujoulade J., (1987), J. Phys. (Paris) 48, 1017
- Fabre F., Salanon B., Lapujoulade J., (1987), Solid State Comm. Vol.64, Nr.8, 1125 113

- Fano U., Lichten W., (1965), Phys. Rev. Lett. 14, 627
- Fauster Th., (1988), Vacuum 38, 129
- Fauster Th., Dürr H., Hartwig D., (1986), Surf. Science 178,657
- Fauster Th., Hartwig D., Dürr H., (1988), Appl. Phys. A45,63
- Fauster Th., Metzner M.H., (1986), Surf. Science 166, 29
- Firsov O.B., (1958), Sov. Phys. JETP 6, 534
- Fluit J.M., Kistemaker J., Snoek C., (1964), Physica 30, 870
- Frenkel J., (1945), J. Phys. USSR. 9, 392
- Frenken J.W.M., Hamers R.J., Demuth J.E., (1990), J. Vac. Sci. Techn. A8(1), 293
- Fu S.S., Somorjai G.A., (1992), Surf. Science 262, 68
-
- Gilmer G.H., (1980), Science 208, 4442
- Goldstein E., (1902), Verh. Dtsch. Phys. Ges. 4, 228
- Gorse D., Lapujoulade J., Pontikis V., (1986), Surf. Science 178, 434
- Grundner M., Heiland W., Taglauer E., (1973), IPP-Report 9/8
-
- Hagstrum H.D., (1954), Phys. Rev. 96, 325
- Hagstrum H.D., (1954), Phys. Rev. 96, 336
- Heiland W., Taglauer E., Robinson M.T., (1976), Nucl. Instr. and Methods 132, 655
- Heinz K., (1991), priv. Mitteilung
- Hetterich W., (1991), Dissertation Universität Osnabrück
- Hou M., Robinson M.T., (1976), Nucl. Instr. and Methods 132, 641
- Hou M., Robinson M.T., (1978), Appl. Phys. 17, 371
- Hulpke E., (1975), Surf. Science 52, 615
- Jackson D.P., (1974), Surf. Science 43, 431

- Jayaprakash C., Saam W.F., (1984), Phys. Rev. B 30, 3916
- Karpuzov D.S., Yurasova V.E., (1971), Phys. Status Solidi 47, 41
- Kittel Ch., (1976), Einführung in die Festkörperphysik, Oldenburg
- Kosterlitz J.M., Thouless D.J., (1973), J. Phys. C : Solid State Phys. 6, 1181
- Lang B., Joyner R.W., Somorjai G.A., (1972), Surf. Science 30, 440
- Lapujoulade J., (1986), Surf. Science 178, 406
- Leybold Heraeus, Grundlagen der Vakuumtechnik, Berechnungen und Tabellen
- Liang K.S., Sirota E.B., D'Amico K.L., Hughes G.J., Sinha S.K., (1988)
J. Vac. Sci. Techn. A6(3), 654
- Lindemann F.A., (1910), Phys. Zeitschrift, Jahrgang 11, Nr. 14, 609
- Lindhard J., (1965), Mat.-Fys. Medd. Kgl. Dan. Vid. Selsk 34, Nr. 14
- Loisel B., Gorse D., Pontikis V., Lapujoulade J., (1989), Surf. Science 221, 365
- Martin D.J., (1980), Surf. Science 97, 586
- Mashkova E.S., Molchanov V.A., (1963), Sov. Phys. Dokl. 7, 829
- Matsunami N., (1983), IPPJ-AM-32
- Mochrie S.C., (1987), Phys. Rev. Lett. 59, 304
- Molière G., (1947), Z. Naturf. 2a, 133
- Möller J., Snowdon K.J., Heiland W., Niehus H., (1986), Surf. Science 178, 475
- Nenow D., Trayanov A., (1989), Surf. Science 213, 488
- Niehus H., Comsa G., (1984), Surf. Science 140, 18

- Nijs den M., Riedel E.K., Conrad E.H., Engel T., (1985),
Phys. Rev. Lett., Vol.55, Nr.16, 1689
- Oen O.S., (1965), Phys. Letters 19, 358
- Oen O.S., (1983), Surf. Science 131, L407
- Onderdelinden D., (1966), Appl. Phys. Lett. 8, 189
- Onsager L., (1944), Phys. Rev. 65, 117
- Panin B.V., (1962), Sov. Phys. JETP 15, 215
- Parilis E.S., (1965), Proc. 7th Int. Conf. on Phen. in Ionized Gases, Belgrade, 129
- Poelsema B., Boers A.L., (1979), Rad. Effects 41, 229
- Poelsema B., Verheij L.K., Boers A.L., (1976), Nucl. Instr. and Methods 132, 623
- Poelsema B., Verheij L.K., Boers A.L., (1976), Surf. Science 56, 445
- Riet van de E., Smeets J.B.J., Fluit J.M., Niehaus A., (1989), Surf. Science 214, 111
- Robinson M.T., Torrens I.M., (1974), Phys. Rev. B, Vol.9, Nr.12, 5008
- Roosendaal H.E., (1981), in "Sputt. by Part. Bomb.I", Topics in Appl. Phys. Vol. 47, 240
- Rutherford Sir E., Geiger H., Marsden E., (1911), Phil. Mag. 21, 699
- Rys F.S., (1986), Surf. Science 178, 419
- Salanon B., Fabre F., Gorse D., Lapujoulade J., Selke W., (1988),
J. Vac. Sci. Techn. A 6 (3), 655
- Salanon B., Fabre F., Lapujoulade J., Selke W., Phys. Rev. B in press
- Selke W., (1987), J.Phys.C., Solid State Phys. 20, L455
- Selke W., Szpilka A.M., (1986), Z. Phys. B 62, 381

- Sigmund P., (1981), in "Sputt. by Part. Bomb.", Topics in Appl. Phys., Vol. 47, 11
- Smith D.P., (1967), J. Appl. Phys. Vol.38, Nr.1, 340
- Speller S., Schleberger M., Niehof A., Heiland W., (1992),
Phys. Rev. Lett. Vol.68, Nr. 23, 3452
- Stark J., Wendt G., (1912), Ann. Phys. 38, 921
- Taglauer E., (1990), Appl. Phys. A51, 238
- Taglauer E., (1991), in "Ion Spectroscopies for Surface Analysis",
Eds.: A.W.Czanderna, D.M.Hercules, Plenum Press, New York
- Taglauer E., Beckschulte M., Margraf R., Mehl D., (1988),
Nucl. Instr. and Methods in Phys. Res. B35, 404
- Taglauer E., Heiland W., (1972), Surf. Science 33, 27
- Taglauer E., Heiland W., (1976), Appl. Phys. 9, 261
- Tosatti E., (1988), in "The structure of surfaces II",
Eds.: J.F. van der Veen, M.A. Van Hove, Spriger Verlag Berlin, 535
- Trayanov A., Levi A.C., Tosatti E., (1990), Surf. Science 233, 184
- Tromp R.M., van d. Veen J.F., (1983), Surf. Science 133, 159
- Veen van der J.F., Frenken J.W.M., (1991), Surf. Science 251/252, 1
- Verheij L.K., Poelsema B., Boers A.L., (1976), Nucl. Instr. and Methods 132, 565
- Villain J., Gempel D.R., Lapujoulade J., (1985), J. Phys.F: Metal. Phys. 15, 809
- Walker R.P., Martin D.J., (1982), Surf. Science 118, 659
- Weeks J.D., (1980), in "Ordering in Strongly Fluctuating Condensed Matter Systems",
Eds.: T.Riste, Plenum, New York, 293
- Weg van d. W.F., Biermann D.J., (1969), Physica 44, 177

Woodruff D.P., (1982), Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B27, 55

Yamamura Y., Itikawa Y., Itoh N., (1983), IPPJ-AM-26

Danksagung

Für die Ermöglichung der Promotion und die finanzielle Voraussetzung für die Durchführung dieser Arbeit - das Stipendium der Max-Planck-Gesellschaft - möchte ich mich beim Direktorium des Max-Planck-Institutes in Garching bedanken.

Herrn Prof. V.Dose danke ich für die freundliche Aufnahme in seine Abteilung.

Mein ganz besonderer Dank gilt Herrn Dr. E.Taglauer. Er ermöglichte durch die interessante Themenstellung und die Aufnahme in seine 'Kindergruppe' die Durchführung dieser Arbeit. Sein Stil eine Arbeitsgruppe zu führen, ermöglicht allen Mitarbeitern ein freies Arbeiten in einer freundschaftlichen und humorvollen Umgebung. Diskussionen, Anregungen, hilfreiche Kritik und Schulterklopfen zur rechten Zeit lassen ein angenehmes Arbeitsklima entstehen, in dem man täglich Freude an der Arbeit findet.

Einer ganzen Reihe von Menschen bin ich zu Dank verpflichtet. Sie alle haben zum Gelingen dieser Arbeit, sei es durch physikalische Diskussionen und tatkräftiges Zupacken oder einfach durch ihre Freundschaft, beigetragen. Auf diesem Wege möchte ich bei ihnen allen recht herzlich bedanken:

- besonders bei Herrn Univ.Doz.Dr. P.Varga für die spontane Bereitschaft zur Übernahme der akademischen Betreuung und sein stetes Interesse am Fortgang der Arbeit.

- bei Herrn Franz Schuster und Herrn Klaus Gehringer für Ihren Pannendienst am ALI und die Verwirklichung so mancher 'fraulicher' und dazu noch österreichischer Idee.

- bei der ganzen Arbeitsgruppe von Herrn Dr. Taglauer für ihre Freundschaft und Hilfe nicht nur während der Arbeitszeit, sondern auch in der Freizeit und beim Einleben in die bayerischen Sitten und Gebräuche. Vor allem aber für ihre stete Bereitschaft zu helfen, wenn Not am Mann war.

- Herr Christian Linsmeier, hat stets mehr oder weniger erfolgreich versucht, einem eingeschworenen Macintosh-Fan die Qualitäten eines IBM-kompatiblen PC's nahezubringen und meinen PC bei anstehenden Reparaturen stets auf Vordermann gebracht.

- bei Herrn Dr. Martin Beckschulze für die vielen Diskussionen und die tatkräftige Hilfe beim Aufspüren des plötzlich auftretenden, heimtückischen Rauschsignals

beim letzten Endspurt , das intensive Korrekturlesen und die Pflege meiner Blumen, wenn ich 'Heimaturlaub' hatte.

- bei Herrn Jürgen Schulz für die Einweisung in die experimentelle Arbeit am ALI.
- bei Herrn Dr. Reinhard Drube, der mit seinem elektronischem Geschick und seiner Selbstverständlichkeit bei der Bewältigung computerbedingter Probleme stets bereit war zu helfen. Vor allem danke ich ihm für die großartige Hilfe bei ICISS-SIM.
- bei den 'Besitzern' des Macintosh der Abteilung Oberflächenphysik für die Ermöglichung der Mitbenützung.
- bei den Herren Utz, Klaas und Neff von der Kristallographie der TU München für die Mühe mit der Kristallpräparation - besonders dem Ablösen des Kristalls vom Halter nach der Präparation - und die Laue Aufnahmen.
- Frau Treske half durch ihre prompte und sorgfältige Anfertigung einiger Grafiken.
- bei allen Mitarbeitern der Abteilung Oberflächenphysik.
- und nicht zuletzt bei ALI für sein tapferes Durchhalten, auch wenn er so manches Mal verweigert hat.

Bedanken möchte ich mich auch bei Michael Vonbank, der in den 3 Jahren so manche Stunde tapfer neben mir ausgeharrt hat, wenn mich die Meßwut bis in die frühen Morgenstunden gepackt hat.