

# MAX-PLANCK-INSTITUT FÜR PLASMAPHYSIK

GARCHING BEI MÜNCHEN

AUFSAMMELN UND GEGENSEITIGER  
AUSTAUSCH VON HELIUM-3 UND DEUTERIUM  
IN MOLYBDÄN

Richard Schulz

IPP 9/35

März 1981

*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.*

Richard Schulz

Trapping and Mutual Replacement  
of Helium-3 and Deuterium in  
Molybdenum

IPP 9/35, März 1981

#### ABSTRACT

In this work the trapping of helium and deuterium as well as the mutual exchange of trapped and incoming particles were investigated for bombardment of a molybdenum target.

Deuterium and helium ions with energies of 4-16 keV were implanted in glowd polycrystalline molybdenum samples at a temperature of  $-110^{\circ}\text{C}$ . The trapped quantities and depth distributions (depth profiles) of the primary and secondary implanted ion species were measured by the  $^3\text{He}(d,p)^4\text{He}$  nuclear reaction. The parameter was the energy (implantation range) of the ions.

The trapping of the implanted ions was found to be nearly 100 % efficient for low fluences in virgin samples. For higher fluences, reemission of the implanted ions began and increased to 100 % for saturation fluences. Under saturation conditions an ion was reemitted from the sample for each subsequently implanted ion.

The dependence of the trapped amount upon the fluence can be normalized to one curve for all of the various ions and energies in the present measurements. A new model for the trapping mechanism is introduced, which gives a good quantitative description of the experimental results.

Investigation of the exchange behaviour showed that for helium bombardment of deuterium-saturated samples and vice versa, the decrease of the first implanted species was independent of the primary implantation range. Thermal diffusion of the implanted ions was not observed at the target temperature of  $-110^{\circ}\text{C}$ .

The saturation concentration for the implanted ions was nearly independent of the implantation energy for each ion species. For mixed implanted species the saturation concentration, weighted according to the saturation concentration for each ion species, was almost constant. From isochronal annealing of deuterium implanted samples, the binding energy of deuterium in molybdenum was roughly calculated to be 0.5 - 0.7 eV.

## Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wurde das Aufsammeln und der gegenseitige Austausch von Helium und Deuterium bei Einschluß in Molybdän untersucht.

Dazu wurden in ausgeglühten polykristallinen Molybdänplättchen Deuterium- und Heliumionen mit Energien von 4-16 keV bei einer Temperatur von  $T = -110^{\circ}\text{C}$  implantiert. Die aufgesammelten Mengen und Tiefenverteilungen (Tiefenprofile) der zuerst- und nachimplantierten Ionenart wurden mit Hilfe der Kernreaktion  ${}^3\text{He}(d,p){}^4\text{He}$  bestimmt. Parameter war die Einschußenergie und damit die Reichweite der Ionen.

Bei Beschuß einer neuen Probe erhält man zunächst vollständiges Aufsammeln der implantierten Ionen. Bei höheren Beschußdosen setzt Reemission der Ionen ein, bis man schließlich bei Sättigung der Probe 100 % Reemission erhält. In diesem Sättigungszustand wird für jedes eingeschossene Ion im allgemeinen ein bereits implantiertes Ion von der Probe reemittiert.

Die Abhängigkeit der aufgesammelten Menge von der Beschußdosis läßt sich in allen untersuchten Fällen nahezu auf eine einheitliche Kurve normieren. Es wird ein neues Modell für den Aufsammelemechanismus vorgeschlagen, das die Meßergebnisse quantitativ gut beschreibt.

Die Untersuchung des Austauschverhaltens zeigt, daß bei Nachimplantation von Helium in deuteriumgesättigten Proben und umgekehrt, die Abnahme der erstimplantierten Ionen unabhängig von der primären Implantationstiefe ist. Thermische Diffusion der implantierten Ionen konnte bei der Versuchstemperatur von  $T = -110^{\circ}\text{C}$  nicht beobachtet werden.

Die Sättigungskonzentration der implantierten Ionen ist für jede Ionenart nahezu unabhängig von der Implantationsenergie. Die Summe, der entsprechend den Sättigungskonzentrationen der einzelnen Ionenarten gewichteten aufgesammelten Mengen, ist bei gesättigten Proben annähernd konstant. Durch isochrones Aufwärmen von Proben, die mit Deuterium implantiert waren, wurde die Bindungsenergie von Deuterium in Molybdän zu 0,5 - 0,7 eV abgeschätzt.

# INHALTSVERZEICHNIS

---

## ZUSAMMENFASSUNG

1. EINLEITUNG . . . . .	1
1.1 Aufgabenstellung . . . . .	3
2. EINSCHUSS LEICHTER IONEN IN METALLE . . . . .	5
2.1 Energieverlust . . . . .	5
2.1.1 Elektronischer Energieverlust . . . . .	5
2.1.2 Nuklearer Energieverlust . . . . .	7
2.2 Weglängen und Reichweiten . . . . .	8
2.3 Strahlenschäden . . . . .	10
2.4 Aufsammeln von Gasionen in Metallen . . . . .	13
2.5 Reemission von implantierten Gasatomen in Metallen . . . . .	15
3. MESSMETHODEN ZUR BESTIMMUNG DER AUFGESAMMELTEN MENGE UND TIEFENVERTEILUNG VON IMPLANTIERTEN IONEN . . . . .	17
3.1 Die Kernreaktionsmethode . . . . .	18
3.1.1 Auswertung der Spektren . . . . .	22
4. VERSUCHSANORDNUNG . . . . .	23
4.1 Meßapparatur . . . . .	23
4.2 Beschreibung des Meßvorganges . . . . .	27
4.3 Probenpräparation . . . . .	28
4.4 Gitterführungseffekte . . . . .	28
5. MESSERGEBNISSE . . . . .	29
5.1 Aufsammelkurven . . . . .	29
5.2 Austauschkurven an gesättigten Proben . . . . .	30
5.3 Austauschkurven an ungesättigten Proben . . . . .	33
5.4 Tiefenprofile . . . . .	34
5.4.1 Implantation von Helium bzw. Deuterium in unbestrahlten Proben . . . . .	34
5.4.2 Nachimplantation von Helium bzw. Deuterium in gesättigten Proben . . . . .	37
5.5 Reichweiten und Sättigungswerte . . . . .	38

5.6	Desorptionskurven . . . . .	39
5.7	Oberflächenstruktur vor und nach der Implantation . . . . .	40
5.8	Fehlerbetrachtung . . . . .	41
5.8.1	Fehler der Dosismessung bei Implan- tation . . . . .	41
5.8.2	Fehler der Dosismessung bei Analyse. . . . .	42
5.8.3	Fehler bei der Absolutbestimmung der aufgesammelten Mengen . . . . .	42
5.8.4	Fehler bei der Berechnung der Tiefen- profile . . . . .	43
6.	DISKUSSION . . . . .	44
6.1	Aufsammelkurven . . . . .	44
6.1.1	Bestehende Aufsammlmodelle . . . . .	46
6.1.2	Neues Aufsammlmodell . . . . .	51
6.2	Austauschkurven (gesättigte Proben) . . . . .	57
6.3	Austauschkurven (ungesättigte Proben). . . . .	59
6.4	Tiefenprofile . . . . .	59
6.5	Austauschkoeffizienten . . . . .	62
6.6	Abschätzung des Druckes in den Gasblasen . . . . .	64
6.7	Summenkonzentration . . . . .	66
6.8	Thermische Desorption von implantiertem Deuterium aus Molybdän . . . . .	67
6.9	Zusammenfassende Diskussion . . . . .	71
	ANHANG . . . . .	74
	LITERATUR . . . . .	78

## 1. EINLEITUNG

Mit der Möglichkeit, energiereiche Ionen in Gasentladungen /1, 2/ oder mit Beschleunigern zu erzeugen, ergab sich die Frage, welche Veränderungen die Ionen beim Auftreffen auf Festkörperoberflächen und in oberflächennahen Schichten verursachen. Diese Frage ist heute wieder aktuell, da in gegenwärtigen Hochtemperatur-Plasmaexperimenten mit Zielrichtung auf die kontrollierte Kernverschmelzung die Wände des Plasmagefäßes infolge des unvollständigen magnetischen Einschlusses des Plasmas einer intensiven Teilchenstrahlung ausgesetzt sind.

Die für die Kernverschmelzung von Deuterium und Tritium notwendigen Plasmatemperaturen von einigen 100 Millionen Kelvin entsprechen mittleren Teilchenenergien von etwa 10 keV. In heutigen Experimenten wurden bereits mittlere Teilchenenergien von 5 - 6 keV erreicht /3/. Als Füllgase werden hauptsächlich Wasserstoff und Deuterium verwendet, während für künftige Fusionsreaktoren ein Gemisch von Deuterium und Tritium benötigt wird. Als Reaktionsprodukte treten dann Helium und Neutronen auf; das heißt, die Gefäßwände werden mit energetischen D, T, He-Ionen und mit Neutronen beschossen. Während die Neutronen die Gefäßwand durchdringen und fast ausschließlich im Volumen des Materials Strahlenschäden verursachen, haben die bei der Wechselwirkung der Ionen mit den Gefäßwänden stattfindenden Prozesse eine wesentliche Rückwirkung auf das Plasma.

Die Ionen dringen in die Wand ein und werden durch Stöße mit Elektronen und Rumpfatomen abgebremst. Ein Teil wird dabei reflektiert /4/ und in das Plasma zurückgestreut. Der Rest wird im Wandmaterial auf thermische Energien abgebremst, die der Wandtemperatur entsprechen. Dieser Anteil kann sich entweder durch Diffusion in der Wand ausbreiten oder von Gitter- und Strahlenschäden eingefangen werden /5-7/.

Bei genügend tiefen Temperaturen, bei denen die eingeschossenen und im Festkörper zur Ruhe gekommenen Ionen nicht thermisch diffundieren können, werden sie anfänglich nahezu vollständig aufgesammelt /8-10/. Erst bei sehr hohen aufgesammelten Konzentrationen von 0.5 bis 1 aufgesammelten Gasatomen pro Festkörperatom setzt Gasreemission ein, die mit steigender Beschußdosis nahezu 100 % erreicht /9-10/. Bei höheren Temperaturen zeigen Wasserstoff und Helium im allgemeinen ein verschiedenes Verhalten.

Wasserstoff wird in einer Reihe von Metallen bei nicht zu niedrigen Temperaturen mit sehr hoher Löslichkeit, exotherm als Hydrid gebunden /11-12/. In diesen Metallen (z.B. V, Nb, Ta) bildet er ein sogenanntes Gittergas, das sich innerhalb des Festkörpers nahezu frei bewegen kann /12-13/. In anderen Metallen (z.B. Mo, Mn, Fe) erfolgt die Lösung des Wasserstoffs endotherm und die Löslichkeiten sind bei Raumtemperatur und Normaldruck meist kleiner als  $n_{\text{H}}/n_{\text{Metall}} < 10^{-4}$  /14/.

Helium ist bei Raumtemperatur in allen Metallen praktisch unlöslich /15/. Hohe Konzentrationen von Wasserstoff und Helium können jedoch durch Implantation und Aufsammeln an Strahlenschäden im Metall erzeugt werden /16/. Die aufgesammelten Sättigungsmengen hängen dabei von der Ionenenergie, der Temperatur und dem Probenmaterial ab.

Eine praktische Bedeutung haben die Daten aus Aufsammel- und Austauschmessungen von leichten Ionen in Metallen für die Teilchenbilanz von Hochtemperatur-Plasmaexperimenten. Wegen der hohen Teilchenflußdichten von Ionen und Atomen auf die Gefäßwand erhält man nach einigen Plasmaentladungen einen Sättigungszustand, das heißt, es werden durch das Auftreffen und Aufsammeln von neuen Ionen und Atomen aus dem Plasma von der Gefäßwand im Mittel ebensoviele vorher implantierte Teilchen herausgelöst. Im Sättigungszustand befindet sich dabei eine größere Gasmenge in der Gefäßwand als im Plasma. Ihre Zusammensetzung bestimmt dann wesentlich die des Plasmas.

Dieser Zustand des Gas-Metall-Systems mit kleiner Löslichkeit bei hohen, durch Implantation erzeugten Gaskonzentrationen ist bisher nur wenig untersucht worden. Untersuchungen mit dem Transmissionselektronenmikroskop haben gezeigt, daß Helium in Metallen Gasblasen erzeugt, die sich z.T. in Form eines Gitters anordnen /17-19/. Solche Blasengitter wurden z.B. in Kupfer auch für implantierten Wasserstoff beobachtet /20/. In den meisten Fällen tritt bei Erreichen der Sättigungskonzentration eine Verformung der Festkörperoberfläche durch "Blister"-Bildung bzw. ein Ablösen von Oberflächenschichten ein /21-22/. Messungen des Austauschs von Isotopen eines Gases (z.B. H, D oder  $^3\text{He}$ ,  $^4\text{He}$ ) haben gezeigt, daß in gesättigten Proben eine nahezu vollständige Durchmischung der beiden Komponenten stattfindet /10, 23/. Trotz der Unterschiede in der Wechselwirkung zwischen Helium und Metallen einerseits und Wasserstoff und Metallen andererseits, haben die Aufsammel- und die Isotopenaustauschmessungen für beide Systeme sehr ähnliche Ergebnisse gebracht, die vermuten lassen, daß der Aufsammel- und Re-emissionsmechanismus durch die gleichen Gesetzmäßigkeiten bestimmt wird.

### 1.1 Aufgabenstellung

In der vorliegenden Arbeit sollte nun untersucht werden, ob die Ähnlichkeiten, die beim Aufsammeln und gegenseitigem Austausch von Heliumisotopen in Niob und von Wasserstoffisotopen in Edelstahl beobachtet wurden, auf gleichartige Mechanismen zurückgeführt werden können. Weiterhin sollten die Daten über den gegenseitigen Austausch von Deuterium mit Helium und umgekehrt Hinweise zur Verwendbarkeit des untersuchten Materials als Werkstoff für einen zukünftigen Fusionsreaktor liefern. Dazu sollte das Aufsammeln und der Austausch von implantiertem Deuterium durch nachgeschossenes  $^3\text{He}$  sowie von  $^3\text{He}$  durch nachgeschossenes Deuterium untersucht werden. Die sich einstellenden Sättigungswerte für verschiedene Konzentrationsverhältnisse D/He sollten gemessen werden. Bei der Auswahl des Probenmaterials kamen im Hinblick auf die

Verwendbarkeit als Wand- oder Limitermaterial in einem zukünftigen Fusionsreaktor hoch wärmebeständige Metalle in Frage, die zudem Wasserstoff nicht als Hydride binden. In der vorliegenden Arbeit wurde polykristallines Molybdän verwendet. Polykristallin deshalb, weil ein Einkristall außer Gitterführungseffekten, die bei Einschub der Ionen in niedrig-indizierten Kristallrichtungen (z.B. 1 0 0, 1 1 0) Veränderungen in der Reichweite ergeben, bei diesen Experimenten keine wesentlichen Unterschiede zum Polykristall aufweist. Als Parameter sollte die Reichweite der Deuterium- und Heliumionen so gewählt werden, daß die Reichweiten der nachgeschossenen Ionen kleiner, ungefähr gleich, oder größer als die der Vorimplantierten waren. Dadurch ist es möglich, Informationen über die Richtung der Diffusion der erstimplantierten Ionen, die infolge der Nachimplantation einsetzt, zu erhalten. Zur Messung der aufgesammelten Mengen und Konzentrationsprofile sollte die Kernreaktion  ${}^3\text{He}(d,p){}^4\text{He}$  verwendet werden. Diese Kernreaktion hat beim Nachweis von D bzw.  ${}^3\text{He}$  den Vorteil, daß neben einem relativ großen Wirkungsquerschnitt für die Reaktion, die Reaktionsprodukte (p,  ${}^4\text{He}$ ) eine wesentlich größere Energie als die einlaufenden Ionen haben. Dadurch können die Reaktionsprodukte praktisch ohne störenden Untergrund, der durch gestreute Primärionen zustandekommt, gemessen werden. Für die Messungen stand die kombinierte Beschleunigeranlage der Projektgruppe Plasma-Wand-Wechselwirkung (PWW-Gruppe) des MPI für Plasmaphysik zur Verfügung, die den Beschub von Proben mit 3 - 30 keV Deuterium- und Heliumionen und Analysen mit Ionenenergien bis zu 2,5 MeV erlaubt.

Bevor im folgenden auf die eigentlichen Messungen und Auswertungen eingegangen wird, soll zuerst ein kurzer Überblick über die Physik des Ioneneinschusses sowie das Verhalten der implantierten Ionen im Festkörper gegeben werden.

## 2. EINSCHUSS LEICHTER IONEN IN METALLE

### 2.1 Energieverlust

Die Bewegung energiereicher leichter Ionen in Metallen ist wesentlich durch die Wechselwirkung mit den Elektronen und Rumpfatomen bestimmt. Die Bahn der Ionen läßt sich klassisch beschreiben, und die Wechselwirkung eines Ions mit den Elektronen kann in guter Näherung getrennt von der Wechselwirkung mit den Gitteratomen betrachtet werden (Bohr 1948) /24/. Für den Stoß eines einlaufenden Ions mit einem Elektron ergibt sich wegen der wesentlich größeren Masse des Ions ein kleiner Energieübertrag auf das Elektron, der mit einer kleinen Winkeländerung der Ionenbahn verbunden ist. Für eine Vielzahl solcher Stöße nimmt die Energie eines Ions ab, ohne daß seine Bahnkurve eine wesentliche Änderung erfährt.

Anders liegen die Verhältnisse beim Stoß eines leichten Ions an einem Rumpfatom. Für Massenverhältnisse  $m_{\text{ion}} \ll m_{\text{Gitteratom}}$  erfährt das Ion bei kleinem Energieübertrag auf das Atom eine große Impulsänderung und damit eine starke Abweichung von seiner ursprünglichen Bahn. Da die Wirkungsquerschnitte bei Atomstößen für große Ablenkwinkel der Ionen klein sind im Vergleich zum mittleren Abstandsquadrat Gitteratome, kann für die Berechnung der Ionenbahnen die Näherung des Zweierstoßes verwendet werden.

#### 2.1.1 Elektronischer Energieverlust

Für den Energieverlust von Ionen an Elektronen (Abb. 1), der eingehend theoretisch untersucht wurde (E. Fermi, Lindhart, Bethe, Bloch) /25-28/ müssen die Beiträge der gebundenen und freien Elektronen getrennt betrachtet werden. Für hohe Ionenenergien  $v_{\text{ion}} \gg v_0$  ( $v_0 = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 h}$  Bohr'sche Geschwindigkeit) tragen zum elektronischen Energieverlust hauptsächlich die Anregung und Ionisation von Gitteratomen und kollektive

Anregungen des Elektronengases (Plasmonen) bei. In diesem Energiebereich ergibt sich nach Bethe, Bloch /27, 28/ angenähert folgender Ausdruck:

$$\frac{dE}{dx} = S(E) \sim \frac{1}{E} \ln \frac{E}{I} \quad (1)$$

Dabei bedeuten  $\frac{dE}{dx}$  den differentiellen Energieverlust, E die Ionenenergie, und I die effektive Ionisierungsenergie eines Gitteratoms.

Für den Grenzfall kleiner Ionengeschwindigkeiten  $v \ll v_0$  wird der elektronische Energieverlust hauptsächlich durch Abbremsung der Ionen im freien Elektronengas des Targetmetalls verursacht. Verschiedene theoretische Ansätze ergeben für die Energieabhängigkeit Ausdrücke, die proportional zu  $\sqrt{E}$  der Ionen sind /25, 26, 29/.

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_e \sim \sqrt{E} \quad (2)$$

Im Übergangsbereich zwischen hohen und niedrigen Energiebereichen hat der Energieverlust ein breites Maximum (Abb. 1).

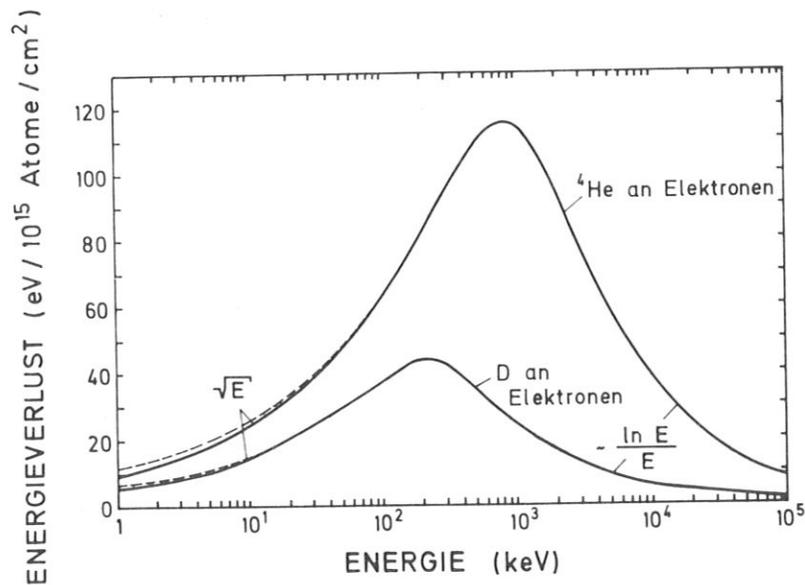


Abb. 1: Differentieller elektronischer Energieverlust von D und He in Mo (durchgezogene Linien). Die gestrichelt eingezeichneten Linien geben die Summe aus nuklearem und elektronischem Energieverlust an.

### 2.1.2 Nuklearer Energieverlust

Unter dem nuklearen Energieverlust versteht man die Energieüberträge eines einlaufenden Ions auf die Gitteratome des Festkörpers durch Stöße. Der maximale Energieübertrag  $T_m$  beträgt dabei für Zweierstöße:

$$T_m = \frac{4 M_1 M_2}{(M_1 + M_2)^2} E_1 \quad (3)$$

Dabei bedeuten  $M_1$  und  $M_2$  die Massen des eingeschossenen Ions und eines Gitteratoms, und  $E_1$  die Energie des Ions vor dem Stoß.

Der gesamte nukleare Energieverlust  $\Delta E$  beim Durchdringen einer Materie der Dicke  $\Delta x$  ergibt sich zu /6/:

$$\Delta E = -N\Delta x \int_0^{\infty} T(E,p)\pi 2p dp \quad (4)$$

Dabei bedeuten  $N$  die Anzahl der Streuzentren pro Volumen und  $T(E,p)$  den Energieübertrag als Funktion des Stoßparameters  $p$ . Um Gleichung (4) auszuwerten, benötigt man einen analytischen Ausdruck für das Potential der Streuzentren, um daraus  $T(E,p)$  zu bestimmen.

Für Ionenenergien von einigen keV kann man hierfür abgeschirmte Coulombpotentiale verwenden. Der nukleare Energieverlust ergibt für den Einschub leichter Ionen (H, D, He) nur einen merklichen Beitrag zum elektronischen Energieverlust für Energien, die kleiner als 1 keV sind. Für größere Energien beträgt er weniger als 1 % des elektronischen Energieverlustes und kann vernachlässigt werden. Experimentelle Daten des differentiellen Energieverlustes sind für Wasserstoff- und Heliumionen in den Tabellen von Anderson und Ziegler /30, 31/ zusammengestellt.

## 2.2 Weglängen und Reichweiten

Die mittlere Weglänge  $x$  eines eingeschossenen Ions in Festkörper ist durch Integration des differentiellen Energieverlustes über die Energie gegeben.

$$x = \int_{E_0}^0 \frac{1}{\frac{dE}{dx}} dE \quad (5)$$

$E_0$  bedeutet dabei die Einschußenergie.

Die Bahn der Ionen wird dabei durch Stöße mit den Rumpfatomen bestimmt. Unter Mithilfe von Computersimulationsmodellen kann man, bei Vorgabe von Potentialen für die Rumpfatome und statistisch verteilten Stoßparametern für die einlaufenden Ionen, solche Bahnen berechnen /32/. Abbildung 2 zeigt als Ergebnis einer Computersimulation die Projektion von Ionenbahnen (4 keV  $^3\text{He} \rightarrow \text{Mo}$ ) in einer zur Einschußrichtung parallelen Ebene. Die Berechnung wurde mit dem Programm TRIM durchgeführt /33/. Die Gitterstruktur wurde als amorph angenommen. Dies dürfte den Verhältnissen einer ursprünglich polykristallinen Probe, in der durch Ionenbeschuß jedes Gitteratom innerhalb des bestrahlten Volumens mehrere Platzwechselfvorgänge macht (Tab. 1) und die implantierten Ionen darin aufgesammelt werden, nahekommen /67/. Die Bahnen der kinematisch reflektierten Ionen (darunter versteht man den Anteil der eingeschossenen Ionen, die infolge von Stößen mit den Gitteratomen die Probe verlassen, ohne vorher innerhalb der Probe auf thermische Energien abgebremst zu werden) sind in Abb. 2 daran zu erkennen, daß sie an der Oberfläche der Probe enden.

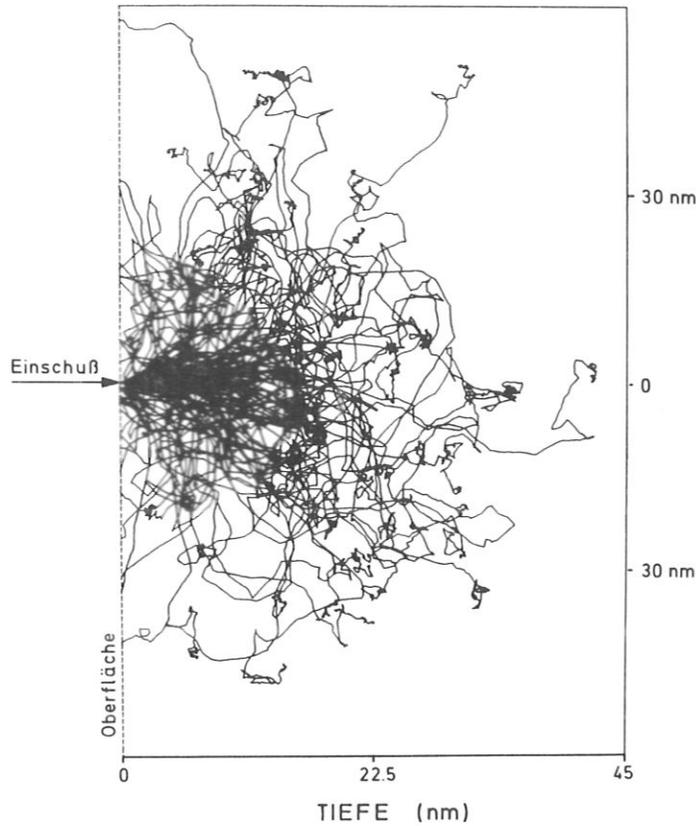


Abb. 2: Projektion von gerechneten Ionenbahnen ( $4 \text{ keV } ^3\text{He} \rightarrow \text{Mo}$ ) in einer zur Einschubrichtung parallelen Ebene für 100 primär einlaufende Teilchen

Unter der Reichweite eines Ions in einem Festkörper versteht man den senkrechten Abstand des Ions von der Festkörperoberfläche nach vollständiger Abbremsung. Die Reichweiten sind bei Einschub leichter Ionen im Festkörper mit Energien von einigen keV wegen der starken Ablenkung der Ionen durch Kernstöße immer erheblich kleiner als die Weglängen. Wegen der statistischen Verteilung der Stoßparameter bei den Kernstößen erhält man bei Einschub vieler Ionen immer eine Reichweitenverteilung mit einer wahrscheinlichsten, mittleren und maximalen Reichweite. Die Reichweiten und Weglängen von Wasserstoff und Helium in allen Elementen sind in den Tabellen von Anderson und Ziegler zusammengestellt /30, 31/.

Bei Einkristallen treten zusätzlich noch Gitterführungseffekte auf, die zu einer Erhöhung der Reichweite führen, wenn die Ionen in niedrig induzierte Kristallrichtungen eingeschossen werden /34/. Außerdem können sich die berechneten Reichweiten von implantierten Ionen infolge thermischer oder strahlungsinduzierter Diffusion erheblich von den gemessenen Implantationsprofilen unterscheiden.

### 2.3 Strahlenschäden

Bei Einschub leichter Ionen in ein Metall kommt es zu einer mit fallender Energie der Ionen anwachsenden Wahrscheinlichkeit für Kernstöße. Die dabei auf ein Gitteratom übertragene Energie muß einen Schwellwert  $E_d$  (Verlagerungsenergie) überschreiten, um einen Frenkeldefekt (Leerstelle und Zwischengitteratom) zu erzeugen. Für Metalle ergibt sich  $E_d = 20-30$  eV /35, 36/. Da im Kristall die Potentiale für ein Gitteratom nicht isotrop sind, stellt  $E_d$  nur einen Mittelwert dar, der je nach Kristallrichtung über- oder unterschritten werden kann.

Die maximale, von einem Primärteilchen auf ein Gitteratom übertragene Energie  $T_m$  ist klassisch nach Gleichung (3) gegeben. Die mittlere übertragene Energie  $\bar{T}$ , die über der Schwellenergie  $E_d$  liegt, beträgt für Coulombpotentiale /35/:

$$\bar{T} = E_d \ln \frac{T_m}{E_d} \quad (6)$$

Liegt die Energie eines angestoßenen Gitteratoms seinerseits über der Schwellenergie  $E_d$ , so kann dadurch ein weiteres Gitteratom aus seinem Platz herausgelöst werden. Für  $\bar{T} \gg E_d$  sind daher Stoßkaskaden zu erwarten. Kinchin und Pease haben durch eine klassische Abschätzung gezeigt, daß die Anzahl  $g_d$  der in einer Stoßkaskade verlagerten Atome gegeben ist durch:

$$g_d = \frac{T_d}{2 E_d} \quad (7)$$

Hierbei bedeutet  $g_d$  die Anzahl der pro Stoßkaskade verlagerten Atome,  $T_d$  den Energieübertrag des eingeschossenen Ions auf ein Gitteratom, das die Stoßkaskade auslöst.

Der Ableitung der Kinchin-Pease-Formel (Gleichung 7) liegt im wesentlichen zugrunde, daß  $E_d$  eine scharfe isotrope Energieschwelle darstellt, keine Rekombination von Frenkelpaaren innerhalb einer Stoßkaskade stattfindet, und die Stoßpotentiale Harte-Kugel-Potentiale darstellen.

Abschätzungen von Bohr /24/ und Lindhard /82/ zeigen, daß mit der Kinchin-Pease-Formel zu große Werte für  $g_d$  erhalten werden, da die verwendeten Potentiale zu große Rückstoßenergien ergeben und der inelastische Energieverlust vernachlässigt wird. Außerdem ist kein Korrekturfaktor für die Rekombination von Frenkelpaaren angegeben.

Nelson /36/ hat unter Berücksichtigung der oben erwähnten Korrekturen für die Zahl der verlagerten Atome innerhalb einer Stoßkaskade folgende mehr empirische Gleichung angegeben:

$$g_d = \frac{\alpha \cdot \beta(E_p) W(E_p) T_d}{\gamma(E_p) E_F} \quad (8)$$

Dabei ist  $T_d$  die Energie des primär angestoßenen Atoms,  $\alpha$  eine Konstante für die Korrektur der abgeschirmten Coulomb-Potentiale gegenüber den Harte-Kugel-Potentialen;  $\beta(E_p)$  ist ein Rekombinationsfaktor für erzeugte Zwischengitteratome mit Leerstellen;  $W(E_p)$  ist der Anteil der Primärenergie, der an weitere Gitteratome innerhalb einer Stoßkaskade abgegeben wird.  $\gamma(E_p)$  berücksichtigt Gitterführungseffekte;  $E_F$  eine Energieschwelle, unterhalb derer keine neuen Leerstellen erzeugt werden;  $W(E_p)$  und  $\gamma(E_p)$  sind von Nelson tabellierte Funktionen. Nach Nelson wurde in Gleichung (8) für  $\alpha = 0,75$ ,  $\beta = 1$  und  $E_F = 30$  eV eingesetzt. Für  $T_d$  wurde die mittlere übertragene Energie  $\bar{T}$  (Gl.6) eingesetzt.

Die Gesamtzahl der pro eingeschossenem Ion erzeugten Leerstellen  $G$  ergibt sich dann aus der mittleren Anzahl der Leerstellen pro Rückstoßgitteratom  $g_d$ , multipliziert mit der Zahl der Rückstoßgitteratome  $g$ .

$$G = g_d \cdot g \quad (9)$$

Die Zahl der Rückstoßgitteratome  $g$  kann aus dem Quotienten von gesamten nuklearen Energieverlusten  $T_n$  und dem mittleren Energieübertrag pro Atomstoß  $\bar{T}$  (Gleichung 6) abgeschätzt werden.

$$g = \frac{T_n}{\bar{T}} \quad (10)$$

Der gesamte nukleare Energieverlust  $T_n$  eines Ions wurde aus einer Computersimulation mit dem Programm TRIM /33/ berechnet. Mit Gleichung (6, 8-10) kann daraus die Anzahl der Leerstellen pro einlaufendem Ion abgeschätzt werden. Bei bekannten Reichweiten der Ionen und bekanntem Strahldurchmesser kann das bestrahlte Volumen der Probe berechnet werden. Bei gegebener Beschußdosis und bekannter Anzahl der erzeugten Leerstellen pro Ion kann daraus wiederum die mittlere Zahl der Platzwechselforgänge eines Atoms (displacements per atom, d.p.a) innerhalb des bestrahlten Volumens bestimmt werden. Das Ergebnis einer solchen Abschätzung ist in Tab. 1 für eine Beschußdosis von  $5 \times 10^{17}$  Ionen/cm<sup>2</sup> für Deuterium und Helium bei verschiedenen Einschußenergien eingetragen. Für die Reichweiten der Ionen wurden die gemessenen Werte, Tab. 2, zugrundegelegt.

Energie	Erzeugte Leerstellen G pro Ion	d.p.a. bei $5 \times 10^{17}$ Ionen/cm <sup>2</sup>
4 keV <sup>3</sup> He→Mo	16	29
8 keV <sup>3</sup> He→Mo	31	40
16 keV <sup>3</sup> He→Mo	53	40
4 keV D→Mo	7	7
8 keV D→Mo	13	9

Tabelle 1

## 2.4 Aufsammeln von Gasionen in Metallen

Gase sind bei Raumtemperatur mit Ausnahme von Wasserstoff in Metallen nur sehr gering löslich. Edelgase sind in allen Metallen bei Raumtemperatur praktisch unlöslich. Wasserstoff löst sich in einer Reihe von Metallen, wie z.B. Palladium, Niob, Tantal und seltenen Erden exotherm. Es können bei Raumtemperatur und Drücken bis etwa 100 bar Wasserstoffkonzentrationen in diesen Metallen aufgebaut werden, die der Dichte der Wirtsgitteratome entsprechen ( $\sim 10^{23}$  Atome/cm<sup>3</sup>). Wasserstoff ist in diesen Metallen bei Raumtemperatur innerhalb des Gitters praktisch frei beweglich und bildet ein sogenanntes Gittergas. Je nach Temperatur und Dichte kann auch eine Gitterflüssigkeit oder eine geordnete Struktur vorliegen. Die Löslichkeit nimmt in diesen Metallen mit steigender Temperatur ab. In einer Reihe von Arbeiten wurden diese Wasserstoff-Metall-Systeme genau untersucht, von denen hier nur als Auswahl einige zusammenfassende Arbeiten zitiert sind /11-14, 38/.

Mit anderen Metallen, wie dem in dieser Arbeit untersuchten Molybdän, bildet Wasserstoff eine einfache Lösung. Dieser Prozeß ist endotherm, die Temperatur- und Druckabhängigkeit der Löslichkeit C folgt dabei der Beziehung /14/

$$C = \sqrt{p} \cdot a \cdot e^{-\frac{E_S}{kT}} \quad (11)$$

Hierbei bedeuten a eine Materialkonstante und  $E_S$  die Lösungswärme, k die Boltzmannkonstante, T die absolute Temperatur und p den Gasdruck außerhalb des Metalls. Die Löslichkeit von Wasserstoff in Metallen, mit denen er eine einfache Lösung bildet, ist für alle Metalle bei Raumtemperatur sehr gering. Gemessene Werte für die Wasserstofflöslichkeit in Molybdän bei p = 1 betragen nach Martin bei T = 800° C ( $n_H/n_{Mo} = 1,9 \times 10^{-4}$ ) und nach Sieverts und Brüning bei 600° C bis 1100° C  $n_H/n_{Mo} = 0,15 - 0,52 \times 10^{-4}$  /14/. Die Unterschiede in den Ergebnissen der einzelnen Autoren kommen wahrscheinlich daher, daß die zur Verfügung stehenden Proben normalerweise

in einem Sinterverfahren hergestellt werden und die Eigenschaften des Materials dann wesentlich von den Details dieses Verfahrens abhängen. Die Löslichkeit nimmt mit fallender Temperatur ab und liegt weit unter den aufgesammelten Wasserstoffkonzentrationen, die durch Implantation erreicht werden /10, 39/. Dies gilt ebenfalls für implantierte Heliumionen /16, 23/. Diese hohen Konzentrationen können erreicht werden, wenn die einlaufenden Ionen das Oberflächenpotential überwinden und im Inneren des Festkörpers die Aktivierungsenergie für Diffusionsprünge groß ist im Vergleich zur thermischen Energie. Die Sprungrate  $\Gamma$  (Sprünge pro Zeit) von implantierten Ionen ist gegeben durch <sup>+) /40, 41/</sup>

$$\Gamma = v_0 e^{-\frac{E_A}{kT}} \quad (12)$$

---

<sup>+) in Gleichung (12) muß strenggenommen im Exponenten statt  $E_A$  (Aktivierungsenergie)  $G_A$  (freie Enthalpie der Aktivierungsschwelle) stehen.  $G_A$  ist definiert als:</sup>

$$G_A = E_A - T S_A + P V_A.$$

Dabei bedeuten  $E_A$  die Höhe der Aktivierungsschwelle,  $S_A$  die auftretende Entropieänderung und  $V_A$  das Diffusionsaktivierungsvolumen /70/. Unter Normaldruck gilt  $E_A \gg P \cdot V_A$ . Gleichung (12) würde dann lauten:

$$\Gamma = v_0 e^{\frac{S}{k}} \cdot e^{-\frac{E_A}{kT}}$$

Der Faktor  $e^{\frac{S}{k}}$  kann nun in die Schwingungsfrequenz  $v_0$  mit einbezogen werden. Daraus ergibt sich Gleichung (12), wie man sie in verschiedenen Lehrbüchern findet.

Dabei bedeuten  $\nu_0$  eine charakteristische Schwingungsfrequenz der Ionen ( $\nu_0 = 10^{13} - 10^{14}$  Hz),  $E_A$  die Aktivierungsenergie für Platzwechselforgänge,  $k$  die Boltzmannkonstante und  $T$  die absolute Temperatur. Die implantierten Ionen können nach Abbremsung auf thermische Energien nicht diffundieren, wenn  $E_A \gg kT$  ist. Die bei Implantation erzeugten Leerstellen (Frenkel- und Schottky-Defekte) sind für implantierte D- und  $^3\text{He}$ -Ionen-Aufsammlzentren mit höherer Aktivierungsenergie als dies für Zwischengitterplätze der Fall ist. Abhängig von der Temperatur, bei der die Implantation erfolgt, kommen als Aufsammlzentren dann hauptsächlich Zwischengitterplätze und Leerstellen oder praktisch nur Leerstellen in Betracht.

Bei größeren Implantationsdosen treten die Ionen noch zusätzlich untereinander in Wechselwirkung und bilden Ansammlungen, die zum Beispiel für implantiertes Helium zu einer regelmäßigen Anordnung von kleinen Blasen (Durchmesser  $\sim 2$  nm) in Metallen führen /17, 18/. Für implantierten Wasserstoff konnten solche Blasen nicht in allen Fällen beobachtet werden /20, 26/.

## 2.5 Reemission von implantierten Gasatomen in Metallen

Implantierte Gasatome können thermisch (bei Erwärmung der Probe), oder bei Vorhandensein einer sehr hohen Gaskonzentration (Sättigungskonzentration) und weiterer Implantation reemittiert werden. Erhitzt man ein Metall, in das Gasatome implantiert sind, so beobachtet man bei einer oder mehreren bestimmten Temperaturen eine charakteristische Abnahme der implantierten Menge /42, 43/. Daraus kann die Bindungsenergie der Gasatome im Metallgitter abgeschätzt werden.

Anders liegen die Verhältnisse, wenn - wie in dieser Arbeit - auf ein nahezu gesättigtes Target bei Temperaturen, die praktisch keine Diffusion der aufgesammelten Ionen erlauben, weitere Ionen implantiert werden. In diesem Fall sind fast alle verfügbaren Aufsammlplätze besetzt. Das eingeschossene Ion

kann nach Abbremsung auf thermische Geschwindigkeiten nur mit geringer Wahrscheinlichkeit einen Aufsammelplatz finden und diffundiert innerhalb des implantierten Volumens, bis es die Oberfläche erreicht und reemittiert wird. Nach /11/ wurde eine Diffusion von Gasen in Metallen nur durch das Gitter und nicht entlang der Korngrenzen beobachtet. Für sehr große Beschußdosen erhält man nahezu 100 % Reemission der eingeschossenen Ionen. Die aufgesammelte Menge bis zur Sättigung der Probe hängt dabei von deren Temperatur ab, da z.B. bei niedrigen Temperaturen Ionen in Aufsammelzentren mit kleinerer Bindungsenergie (z.B. Zwischengitterplätze) stabil gebunden sein können, während bei höheren Temperaturen nur Aufsammelzentren mit höherer Bindungsenergie (z.B. Leerstellen) in Frage kommen. Makroskopisch betrachtet, entspricht die Reemission einer Erhöhung der Diffusionskonstante innerhalb des implantierten Volumens. Der Nettofluß der Ionen zur Oberfläche ist dabei viel größer als in das Innere des Targets /39, 44/. Die Grenzen des implantierten Volumens bilden für wandernde Zwischengitteratome eine Diffusionsbarriere. Der Grund hierfür liegt wahrscheinlich darin, daß an der Grenze zwischen gestörtem und ungestörtem Gitter für Zwischengitteratome eine Aktivierungsenergieschwelle liegt, die von Atomen mit thermischen Energien von 10 - 20 meV praktisch nicht überwunden werden kann, oder ein Spannungsgradient, der in Richtung Oberfläche zeigt, verursacht eine gerichtete "Diffusion" der Ionen, die entlang dem Gradienten verläuft.

### 3. MESSMETHODEN ZUR BESTIMMUNG DER AUFGESAMMELTEN MENGE UND TIEFENVERTEILUNG VON IMPLANTIERTEN IONEN

Zur Bestimmung der Tiefenverteilung und aufgesammelten Menge leichter implantierter Ionen in Festkörpern wird dieser entweder schichtweise zerstäubt, chemisch abgetragen, oder zerstörungsfrei durch Beschuß hochenergetischer leichter Ionen untersucht.

Bei der Zerstäubungsmethode schießt man schwere Ionen (z.B. Cs, Ar, Kr) auf den Festkörper, die dessen Oberfläche langsam abtragen. Die zerstäubten Atome werden in einem Massenspektrometer analysiert und geben Aufschluß über die implantierte Menge und Tiefenverteilung. Voraussetzung ist dabei, daß keine selektive Abtragung der Gitteratome und implantierten Ionen erfolgt, oder daß diese Größe bekannt ist.

Chemisches Abätzen oberflächennaher Schichten eignet sich besonders zur Mengenbestimmung und Tiefenverteilung implantierter radioaktiver Isotope, da hier über die Messung der Aktivität der abgelösten oder verbleibenden Mengen des implantierten Isotops auf einfache Weise die Mengen- und Tiefenverteilungen bestimmt werden können.

Mit Rutherford-Rückstreuung können leichte implantierte Ionen indirekt über den unterschiedlichen elektronischen Energieverlust, den Ionen beim Durchlaufen einer implantierten Schicht zu einer nichtimplantierten Schicht erfahren, bestimmt werden. Ein direkter Nachweis leichter implantierter Ionen mit Rutherford-Rückstreuung ist für den Gültigkeitsbereich der Rutherford-Formel in den meisten Fällen nicht möglich, da die Wirkungsquerschnitte hierfür zu klein sind. Bei sehr hohen Einschußenergien (z.B.  $H^+$  2,5 MeV) tritt jedoch zusätzlich elastische Kernstreuung an den implantierten Ionen auf, deren Wirkungsquerschnitt um etwa zwei Größenordnungen über dem sich aus der Rutherford-Formel ergebenden liegt und einen Nachweis der implantierten Ionen leicht ermöglicht /45/. Eine weitere, in neuerer Zeit vielfach ver-

wendete Methode, benutzt Kernreaktionen. So kann man zum Beispiel zum Nachweis von D und  $^3\text{He}$  die Reaktion  $^3\text{He}(d,p)^4\text{He}$  mit einer Wärmetönung (Q-Wert) von  $Q = 18,35 \text{ MeV}$  benutzen. Ein wesentlicher Vorteil dieser Methode liegt darin, daß die nachgewiesenen Reaktionsprodukte der Kernreaktion eine höhere Energie als die einlaufenden Ionen haben und in der Nachweiselektronik ohne störenden Untergrund, der durch gestreute Ionen verursacht wird, beobachtet werden können. In der vorliegenden Arbeit wurde deshalb die oben genannte Kernreaktion zur Bestimmung der Tiefenverteilung und aufgesammelten Menge von implantiertem D und  $^3\text{He}$  in Mo benutzt.

### 3.1 Die Kernreaktionsmethode

Die Grundlagen dieser Methode sind in /45-47/ ausführlich dargestellt und sollen hier nur kurz erläutert werden. Bei senkrechtem Einfall des Analysestrahls auf die Targetoberfläche ergibt sich folgendes Versuchsschema (Abb. 3).

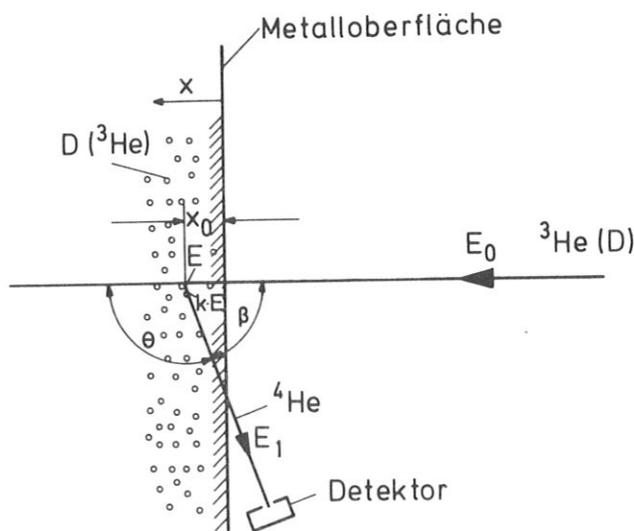


Abb. 3: Versuchsschema der Kernreaktion  $^3\text{He}(d,p)^4\text{He}$  bei senkrechtem Einfall der Primärionen

Ein eingeschossenes  $^3\text{He}$ - oder D-Ion der Energie  $E_0$  verliert längs des Weges  $x$  Energie. Bei  $x_0$  findet mit einem implantierten Deuterium oder  $^3\text{He}$ -Atom die Kernreaktion  $D(^3\text{He},p)^4\text{He}$

(Q-Wert = 18,35 MeV) statt. Von den Reaktionsprodukten p und  $^4\text{He}$  wird das Alpha-Teilchen unter einem Winkel  $\beta$  (im Laborsystem) mit einem Halbleiter-Sperrschichtdetektor nachgewiesen. Die Energie des Alpha-Teilchens beträgt dabei am Entstehungsort  $k \cdot E$  (im Laborsystem). Es verliert längs des Weges  $\frac{x}{\cos \beta}$  Energie, bis es an der Targetoberfläche die Energie  $E_1$  hat, die im Detektor nachgewiesen wird. Der Zusammenhang der einzelnen Energien ist gegeben durch:

$$E_1 = k(E_0 - S_E \cdot x) - \frac{S_A \cdot x}{\cos \beta} \quad (13)$$

Dabei bedeuten  $E_1$  die Energie des im Detektor nachgewiesenen auslaufenden Alpha-Teilchens,  $k(E)$  einen Faktor, der aus der Kernreaktionskinematik kommt und der Energie des einlaufenden Ions unmittelbar vor der Kernreaktion die Energie des auslaufenden Teilchens unmittelbar nach der Reaktion zuordnet,  $S_E$  und  $S_A$  den mittleren elektronischen Energieverlust des einlaufenden bzw. auslaufenden Teilchens, und  $E_0$  die Einschussenergie.

Die Gleichung für die Energieänderung des auslaufenden Teilchens mit der Tiefe  $x$  lautet dann:

$$\frac{dE_1}{dx} = [S] = -k S_E - \frac{S_A}{\cos \beta} \quad (14)$$

womit man eine Tiefenzuordnung der im Energieintervall  $dE_1$  emittierten Teilchen nach der Gleichung

$$dx = \frac{dE_1}{[S]} \quad (15)$$

erhält. Gleichung (14) kann nicht analytisch gelöst werden, da  $S_E$  und  $S_A$  nicht bekannt sind. Eine Möglichkeit, Gleichung (14) zu lösen, besteht darin, die infinitesimalen Werte durch endliche Intervalle zu ersetzen, den Energieverlust des einlaufenden und des auslaufenden Teilchens in einem solchen Intervall als konstant zu betrachten und daraus einem Energieintervall  $\Delta E$  ein Tiefenintervall  $\Delta x$  zuzuordnen. Dieses Verfahren kann iterativ angewendet werden und liefert das ge-

wünschte Tiefenprofil. Für die Konzentration im Tiefenintervall  $\Delta x$  gilt dann:

$$n_i = \frac{H_i}{\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_L \frac{\Delta E_i}{[S]} N_p \Delta \Omega} \quad (16)$$

Dabei bedeutet  $n_i$  die Konzentration im Tiefenintervall  $\Delta x_i = \frac{\Delta E_i}{[S]}$ ,  $H_i$  die Zahl der Reaktionsprodukte im Energieintervall  $\Delta E_i$ ,  $\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_L$  den Wirkungsquerschnitt der Reaktion im Laborsystem,  $[S]$  den Energieverlust nach Gleichung (14),  $N_p$  die eingeschossene Teilchenzahl und  $\Delta \Omega$  den Raumwinkel des Detektors.

Durch Summation über alle Tiefenintervalle erhält man:

$$\sum_i n_i \Delta x_i = \frac{\sum_i H_i}{\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_L N_p \Delta \Omega} \quad (17)$$

$\sum_i n_i \Delta x_i$  bedeutet dabei die gesamte implantierte Menge.

Ein Problem, das bei Auswertung der Gleichung (16) auftritt, ist die Bestimmung des Raumwinkels  $\Delta \Omega$  und die Messung der primär geschossenen Dosis  $N_p$ . Dies kann umgangen werden, indem man das Produkt aus geschossener Dosis und Raumwinkel aus der Höhe des Rutherford-Rückstreu-Spektrums (RBS) der Wirtsgitteratome bestimmt, das man gleichzeitig mit dem Kernreaktionsspektrum erhält. Für die Höhe der Rückstreukante gilt:

$$H_R = n_R \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_R \frac{\Delta E_i}{S_R} N_p \Delta \Omega \quad (18)$$

Der Index R bezieht sich dabei auf die Rutherford-Rückstreuung.

Gleichung (18) nach  $N_p \cdot \Delta\Omega$  aufgelöst und in Gleichung (16) eingesetzt, ergibt

$$\frac{n_i}{n_R} = \frac{H_i \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_R [S]}{H_R \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_L [S]_R} \quad (19)$$

Mit Gleichung (19) kann nun jedem Kanalinhalt  $H_i$  (eines Vielkanalanalysators), der das Kernreaktionsspektrum aufnimmt, eine Konzentration  $n_i$  der implantierten Ionen mit Tiefenintervall  $\Delta x_i$  zugeordnet werden. In Abb. (4) ist schematisch ein Energiespektrum der Kernreaktionsprodukte dargestellt.

Das in Abbildung (4) ebenfalls dargestellte p-Spektrum wird durch hochenergetische (14 MeV) Protonen, die gleichzeitig mit den Alpha-Teilchen bei der Kernreaktion entstehen, hervorge-

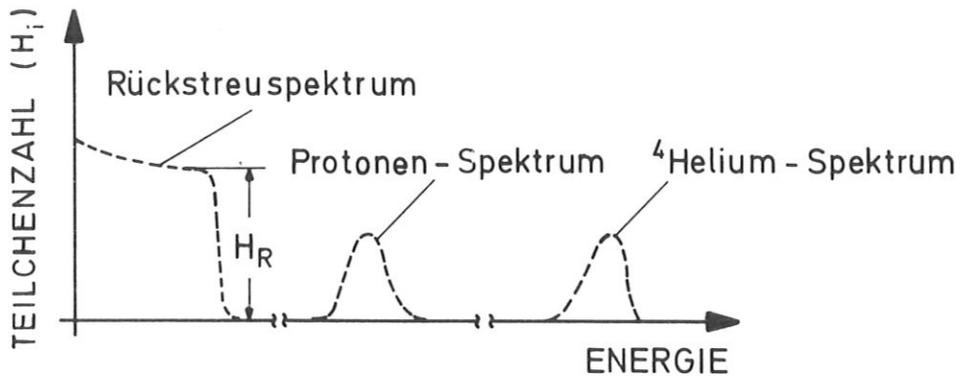


Abb. 4: Gemessenes Energiespektrum der Kernreaktionsprodukte bei Benützung der Reaktion  ${}^3\text{He}(d,p){}^4\text{He}$  (schematisch)

rufen. Die Protonen durchdringen dabei die Sperrschicht des Detektors und deponieren dort nur einen Teil ihrer Energie. Dies führt bei den verwendeten Detektoren zu einer scheinbar kleineren Energie der Protonen gegenüber den Alpha-Teilchen. Durch die Kernreaktionsprodukte (Alpha-Teilchen und Protonen) werden in der Probe praktisch keine zusätzlichen Strahlenschäden erzeugt, da der Wirkungsquerschnitt für Kernstöße, die zu einer Verlagerung von Gitteratomen führen, bei Energien von einigen MeV zu vernachlässigen ist.

### 3.1.1 Auswertung der Spektren

Die Auswertung der Spektren erfolgte mit dem Programm "LORI" /45/. Das Programm berechnet dabei kanalweise aus der gemessenen Energieverteilung des  $^4\text{He}$ -Spektrums nach Gleichung (19) die zugehörige Konzentration. Die benötigten Energieverlustdaten für das einlaufende Ion und das auslaufende Alpha-Teilchen wurden aus den analytischen  $S(E)$ -Beziehungen von Anderson und Ziegler /30, 31/ entnommen. Für den differentiellen Wirkungsquerschnitt der Kernreaktion wurden die gemessenen Werte von /48/ zugrundegelegt.

#### 4. VERSUCHSANORDNUNG

##### 4.1 Meßapparatur

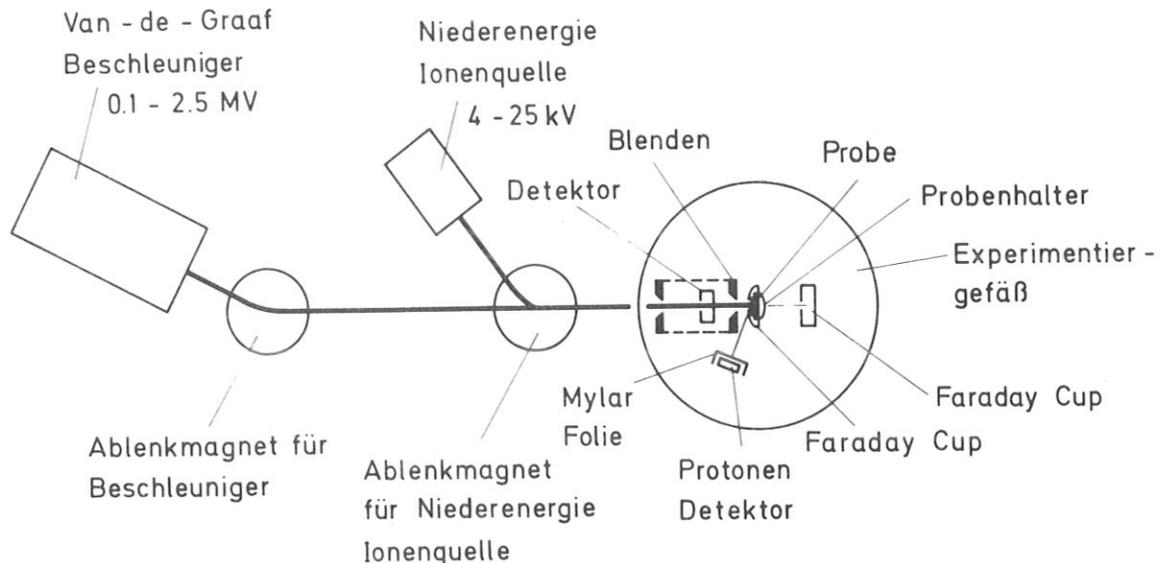


Abb. 5: Experimenteller Aufbau (schematisch)

Abbildung 5 zeigt eine schematische Darstellung der Meßanordnung. Sie besteht aus einem Hochenergiebeschleuniger, der zur Analyse der implantierten Deuterium- bzw. Heliummengen und zur Messung der Tiefenprofile diente. Davor ist die Niederenergieionenquelle eingezeichnet, mit der die Proben implantiert wurden. Rechts im Bild ist die Probenkammer mit dem Blendensystem dargestellt. Sie besteht aus einem zylindrischen Vakuumgefäß, an dessen Deckel der gesamte Meßaufbau montiert ist. Die Messungen wurden bei einem Druck von  $2-3 \cdot 10^{-8}$  mbar durchgeführt. Evakuiert wurde das Vakuumgefäß mit einer Turbopumpe, deren Saugleistung ca. 400 Liter/s beträgt. Die Probe bestand aus einer 0.7 mm dicken polykristallinen Molybdänscheibe von 6 mm Durchmesser. Eine genauere Beschreibung der Probe erfolgt im Abschnitt Probenpräparation. Die Scheibe war mit kleinen Schrauben am Probenhalter befestigt. Der Proben-

halter bestand aus einer ca. 10 mm starken, einseitig abgefrästen Kupferstange (Abb. 6). Er ist um seine Längsachse drehbar und über eine Mikrometerschraube verschiebbar.

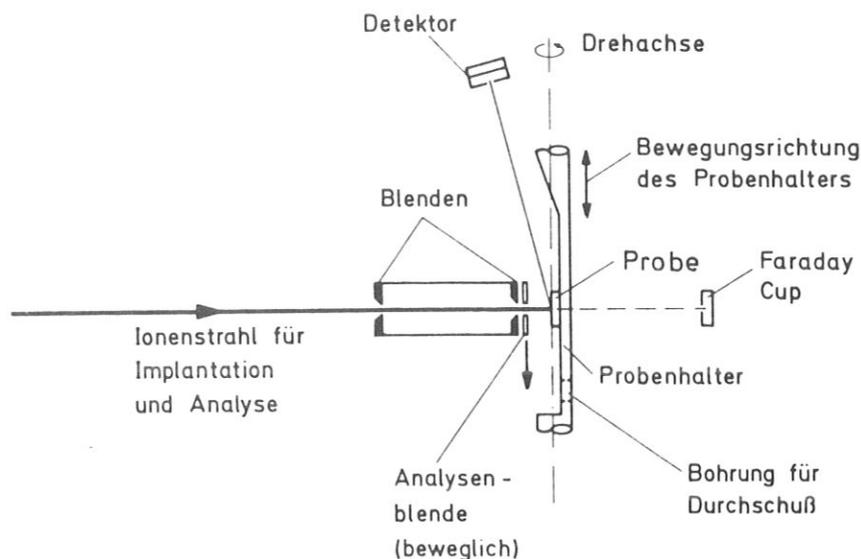


Abb. 6: Probenaufhängung und Nachweisdetektor für  $\alpha$ -Teilchen und rückgestreute Ionen

Um den auftreffenden Ionenstrom messen zu können, war er gegen das Gehäuse elektrisch isoliert. Die Drehachse ging dabei durch die Oberfläche der Probe, so daß sich bei Drehung der bestrahlte Fleck praktisch nicht bewegte. Der Winkel  $\theta$  (Abb. 3) zwischen einfallendem Strahl und Detektor betrug  $105^\circ$ , der Raumwinkel des Detektors war  $\Delta\Omega = 1,5 \cdot 10^{-4}$  sr, der Winkel zwischen einfallendem Strahl und Protonendetektor betrug etwa  $45^\circ$  und der Raumwinkel  $\Delta\Omega \approx 0,2$  sr.

Über zwei Kupferlitzen mit zusammen ungefähr  $150 \text{ mm}^2$  Querschnitt, die an einem Ende über ein dünnes Saphirblättchen thermisch gut an den Probenhalter angekoppelt und am anderen Ende mit einer Kühlfalle verbunden waren, wurde der Probenhalter und damit die Probe abgekühlt. Bei Verwendung von flüssigem Stickstoff in den Kühlfallen konnte eine Temperatur von  $-110^\circ \text{ C}$  an der Probe erreicht werden. Die Temperaturmessung erfolgte über ein Cr-Ni-Thermoelement, das in unmittelbarer Nähe der Probe am Probenhalter montiert war.

Um bei Ionenbeschuss den Probenstrom und als Integral davon die geschossene Dosis genauer zu bestimmen, wurde zur Unterdrückung der Sekundärelektronen eine Abschirmung um die Probe befestigt, welche auf ein Potential von -120 V relativ dazu lag. In Richtung des Detektors war die Abschirmung durch eine schlitzförmige Öffnung durchbrochen, so daß die rückgestreuten Ionen und Kernreaktionsprodukte ungehindert passieren konnten. In Richtung des Protonendetektors, der nur die bei der Reaktion  ${}^3\text{He}(d,p){}^4\text{He}$  auftretenden hochenergetischen Protonen (14 MeV) nachwies, war zur Unterdrückung der gleichzeitig auftretenden  $\alpha$ -Teilchen und rückgestreuten Ionen eine Edelstahlfolie angebracht; deren Dicke (0,2 mm) war so bemessen, daß nur noch die Protonen diese durchdringen konnten. Unmittelbar vor dem Protonendetektor befand sich noch eine Mylarfolie, um Ionen fernzuhalten, die an den Blenden des Strahlführungssystems gestreut wurden. In einer besonderen Stellung des Probenhalters (Durchschußposition, Abb. 6) konnte durch eine Bohrung auf den dahinterliegenden Faraday-cup geschossen werden, um den Ionenstrahl zu justieren. Der Durchmesser der letzten Blende betrug 1,5 mm. Davor konnte eine bewegliche Blende mit 1 mm Durchmesser geschoben werden. Durch den Abstand und den Durchmesser der letzten beiden Blenden sind die Extremalbahnen der Ionen festgelegt (Abb. 7).

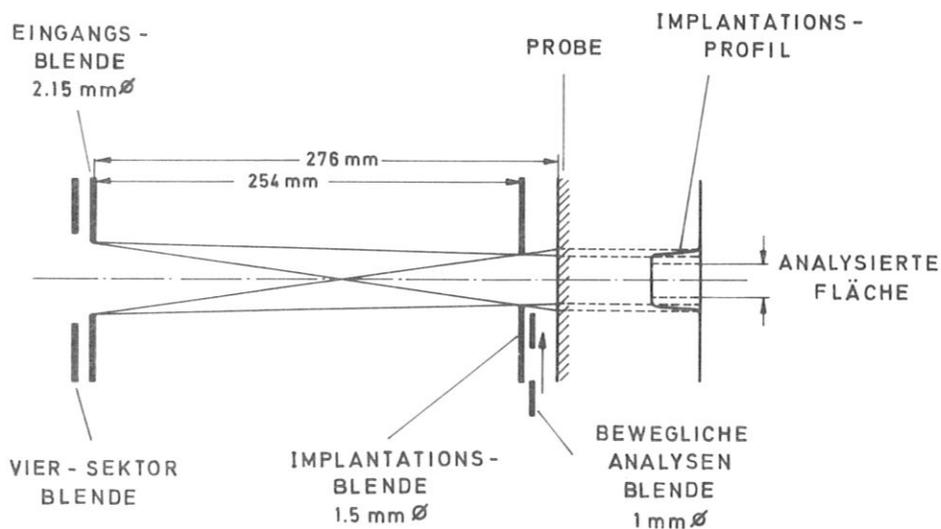


Abb. 7: Geometrie der Implantations- und Analyseblenden

Durch die maximale Divergenz, die sich aus dem Abstand der letzten beiden Blenden ergab, wird eine etwas größere Fläche der Probe implantiert, als geometrisch zu erwarten ist. Mit der Annahme, daß die Intensität im Halbschatten der Blenden linear abnimmt, ergab sich für die verwendete Geometrie ein Wert von 15 % der geschossenen Dosis, die in den Halbschatten implantiert wurde. Analysiert wurde nach jeder Implantation mit 790 keV Helium-3 bis zuweilen 500 keV Deuterium. Bei jeder Analyse war die bewegliche Blende eingefahren und begrenzte den Analysierfleck auf das Zentrum des implantierten Gebietes. Durch das Aus- und Einfahren der beweglichen Blende konnte außerdem vor jeder Implantation über die Strommessung am Faraday-Cup die Homogenität des Ionenstrahls überprüft werden. Für einen völlig homogenen Strahl erhält man als Verhältnis der Ströme bei ein- bis zuweilen ausgefahrener Blende gerade deren Flächenverhältnis. Die Strahlhomogenität wurde dabei durch Änderung der Linsenspannung der Ionenquelle auf Werte eingestellt, die maximal 5 % vom berechneten Wert abwichen. Zum Nachweis der rückgestreuten Ionen und Kernreaktionsprodukte wurden Oberflächensperrschichtzähler der Firma Ortec verwendet, die während des Betriebes auf  $-110^{\circ}$  C gekühlt waren.

Die verwendete Niederenergie-Ionenquelle arbeitete nach dem Prinzip eines Duoplasmatrons. Dieses Prinzip ist in /49/ näher beschrieben. Es wurden damit Ionenströme bei einem Blendendurchmesser von 1,5 mm von 1 - 2  $\mu$ A erreicht. Der Analysenstrahl wurde von einem Van-de-Graaf-Beschleuniger der Firma High-Voltage geliefert, der Ströme von 10 - 20 nA bei einem Blendendurchmesser von 1 mm lieferte. Die maximale Leistungsdichte auf der Probe betrug bei Implantation dann  $1,8 \text{ W/cm}^2$  und während einer Analyse  $2 \text{ W/cm}^2$ . Dies führt zu einer berechneten maximalen Temperaturerhöhung der Probe von etwa 0,1 K, wenn man die Wärmeleitfähigkeit für unbestrahltes Molybdän zugrundelegt. Vor dem Auftreffen auf die Probe wurden sowohl die Ionen für die Implantation als auch für die Analyse mit den in Abb. 5 eingezeichneten Magneten nach

Energien analysiert. Um eine größere Teilchenzahl pro eingeschossener Ladung zu erhalten, wurden für Deuterium sowohl für die Implantation als auch für Analyse Molekülionen ( $D_2^+$ ) verwendet.

#### 4.2 Beschreibung des Meßvorganges

Eine unbestrahlte Probe wurde, nachdem der Niederenergie-Ionenstrahl in Durchschußposition des Probenhalters (Abb. 6) justiert war, nach Abschalten des Ablenkmagneten (Abb. 4) in die Beschußposition gefahren und nach Einschalten des Ablenkmagneten implantiert. Die geschossene Dosis wurde über die elektrische Ladung bestimmt, die mit einem Stromintegrator gemessen wurde. Zur Unterdrückung der entstehenden Sekundärelektronen war um die Probe eine Abschirmung angebracht. Nach Beendigung jedes Implantationsschrittes wurde die aufgesammelte Menge durch eine kleine Analysendosis ( $2 \mu\text{Cb}$ ) von  $790 \text{ keV } ^3\text{He}$  bzw.  $500 \text{ keV D}$  und Bestimmung der Anzahl der Protonen gemessen. Zur Messung der implantierten Konzentration als Funktion der Tiefe (Tiefenprofil) wurde die Energieverteilung der  $\alpha$ -Teilchen nach Gleichung (19) ausgewertet. Die Menge der  $\alpha$ -Teilchen ist proportional zur Menge der gemessenen Protonen. Der Proportionalitätsfaktor hängt von der geometrischen Anordnung beider Detektoren ab und dem Verhältnis ihrer Raumwinkel. Zur Bestimmung eines Tiefenprofils mit guter Tiefenauflösung benötigt man kleine Raumwinkel des Detektors (siehe Anhang). Dies führt zu Meßzeiten für die Messung eines Tiefenprofils mit kleinem statistischem Fehler von einigen Stunden. Um diese langen Meßzeiten zu umgehen, wurde zur Bestimmung der aufgesammelten Mengen nur die Zahl der Protonen mit einem Großwinkelzähler aufgenommen ( $\Delta\Omega = 0,2 \text{ sr}$ ) und nur bei wenigen Implantationen das Tiefenprofil gemessen und dabei der Proportionalitätsfaktor zwischen  $\alpha$ -Teilchen und Protonen bestimmt. Damit konnten die Meßzeiten für die Messung der aufgesammelten Mengen bei kleinen statistischen Fehlern auf wenige Minuten pro Messung beschränkt werden.

#### 4.3 Probenpräparation

Als Probenmaterial wurde geschmolzenes polykristallines Molybdän der Firma Materials Research Corporation in Form von Stäben von 6 mm Durchmesser mit einem Reinheitsgrad von 99,992 % benutzt. Von diesen Stäben wurden Scheiben von ca. 0,7 mm Dicke mechanisch abgestochen. Daran schloß sich ein mehrstufiger mechanischer Poliervorgang mit Diamantpaste abnehmender Körnung an. Nach dem mechanischen Polieren erfolgte eine elektrolytische Politur. Die Scheiben wurden daraufhin im Hochvakuum  $p = 10^{-9}$  mbar bei 2300 K für 30 min geglüht, um eine gute Entgasung zu erreichen. Die Oberflächenstruktur der Proben vor und nach der Implantation ist im Abschnitt 5.7 genauer diskutiert.

#### 4.4 Gitterführungseffekte

Bei unbestrahlten Proben wurde bei Aufnahme von Rückstreuungsspektren manchmal eine geringfügige Abnahme der Höhe der Rückstreuanteile zu niedrigen Energien hin beobachtet, was auf Gitterführungseffekte hindeutet. Bereits bei Beschußdosen von etwa  $2 \cdot 10^{17}$  Ionen/cm<sup>2</sup> verschwand dieser Effekt, da bei diesen Dosen jedes Atom im bestrahlten Volumen mehrmals seinen Platz gewechselt hat (Tab. 1) und eine vorher vorhandene einkristalline Struktur stark geschädigt ist.

## 5. MESSERGEBNISSE

Im Rahmen dieser Arbeit wurden die aufgesammelten Mengen von D und  $^3\text{He}$  als Funktion der Beschußdosis in Mo bei  $T = -110^\circ \text{C}$  gemessen. Parameter war die Einschußenergie und damit die Reichweite der Ionen.

Proben, die bis zur Sättigungsmenge mit D oder  $^3\text{He}$  implantiert waren, wurden mit der jeweils anderen Ionenart nachimplantiert. Dabei wurde die Zunahme der nachimplantierten Ionen- und die Abnahme der erstimplantierten Ionenart gemessen. Gleiche Messungen wurden an Proben gemacht, bei denen die zuerst aufgesammelte Ionenart nicht bis zur Sättigungsmenge implantiert wurde. Parameter war bei beiden Austauschmessungen ebenfalls die Energie und damit die Reichweite der zuerst implantierten Ionen. Konzentrationsprofile als Funktion der Tiefe wurden für verschiedene aufgesammelte Mengen und der zuerst und nachimplantierten Ionen aufgenommen. Verschiedene Proben wurden nach der Implantation erwärmt und dabei die Abnahme der aufgesammelten Gasmenge als Funktion der Temperatur gemessen.

### 5.1 Aufsammelkurven

Die aufgesammelte Menge (Atome/cm<sup>2</sup>) von  $^3\text{He}$  und D bei senkrechtem Einschuß in polykristallines Mo ist in Abb. 8a-c und Abb. 9a-b (jeweils linker Teil) für Energien von 4, 8, 16 keV,  $^3\text{He}$  und für 4,8 keV D als Funktion der Beschußdosis dargestellt. Für kleine Beschußdosen (eingeschossene Ionen pro cm<sup>2</sup>) steigt die aufgesammelte Menge zunächst linear an. Die Aufsammelwahrscheinlichkeit (Steigung der Aufsammelkurven) ist ungefähr eins, wenn man den kinematisch von der Probe reflektierten Anteil /4/ der eingeschossenen Ionen von der Beschußdosis abzieht.

Für größere Beschußdosen biegen die Aufsammlercurven ab und erreichen schließlich einen Sättigungswert. Das Abbiegen der Curven zeigt das Einsetzen der Reemission von implantierten Ionen über den kinematisch reflektierten Anteil hinaus, an. Der Sättigungswert ist erreicht, wenn im Mittel für jedes eingeschossene Ion ein Gasatom aus der implantierten Schicht emittiert wird. Die Aufsammlercurven haben in diesem Bereich dann eine waagerechte Tangente.

## 5.2 Austauschcurven an gesättigten Proben

Wird in eine mit Helium gesättigte Probe Deuterium nachimplantiert, so nimmt die Heliumkonzentration mit zunehmender Deuteriumdosis ab (Abb. 8a-c rechter Teil). Ein qualitativ gleiches Ergebnis erhält man bei deuteriumgesättigten Proben, die mit Helium nachimplantiert wurden (Abb. 9a-b rechter Teil).

Die Abnahme der zuerst implantierten Ionen beträgt zu Beginn des Nachbeschusses 0,19 Heliumatome pro eingeschossenem Deuteriumion für heliumgesättigte Proben und 1.1 Deuteriumatome pro eingeschossenem Heliumion für deuteriumgesättigte Proben. Dies gilt unabhängig davon, ob die Reichweite der nachimplantierten Ionen größer, ungefähr gleich, oder kleiner als die der erstimplantierten Ionen ist. In Abb. 8a-c und Abb. 9a-b (jeweils rechter Teil) entspricht das gleichen Anfangssteigungen der Austauschcurven für  $^3\text{He}$  oder D.

Die nachimplantierten Ionen werden zu Beginn der Implantation zu 100 % aufgesammelt, ausgenommen der Anteil der Ionen, die kinematisch reflektiert werden. Dies gilt sowohl für Deuterium- als auch für Heliumionen. Die Aufsammlercurven der nachimplantierten Ionen weichen für Deuterium bei Dosen zwischen  $2 \cdot 10^{17} \text{ D/cm}^2$  und  $4 \cdot 10^{17} \text{ D/cm}^2$  und für Helium bei etwa  $1 \cdot 10^{17} \text{ He/cm}^2$  von der 100 % Geraden ab. Ein Vergleich mit den Aufsammlercurven, die man an nichtimplantierten Proben

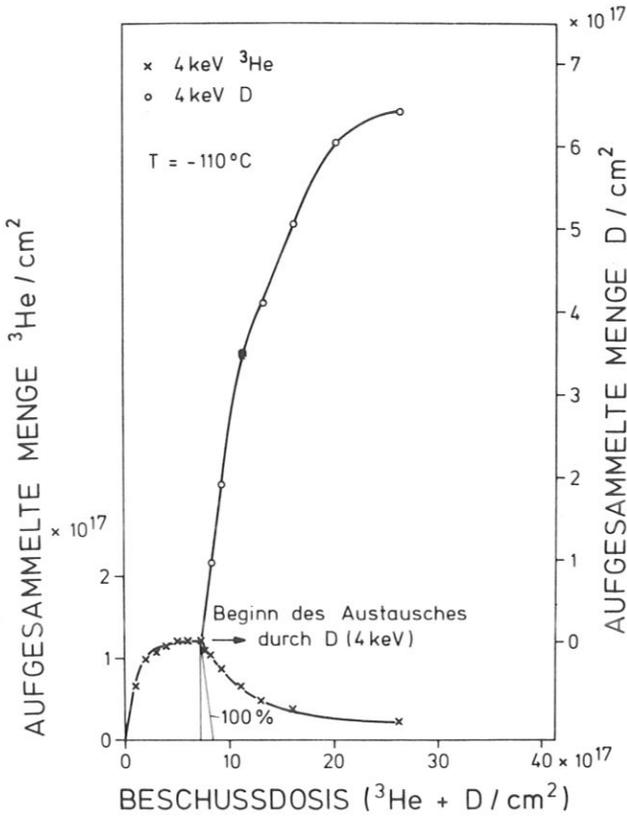


Abb. 8a

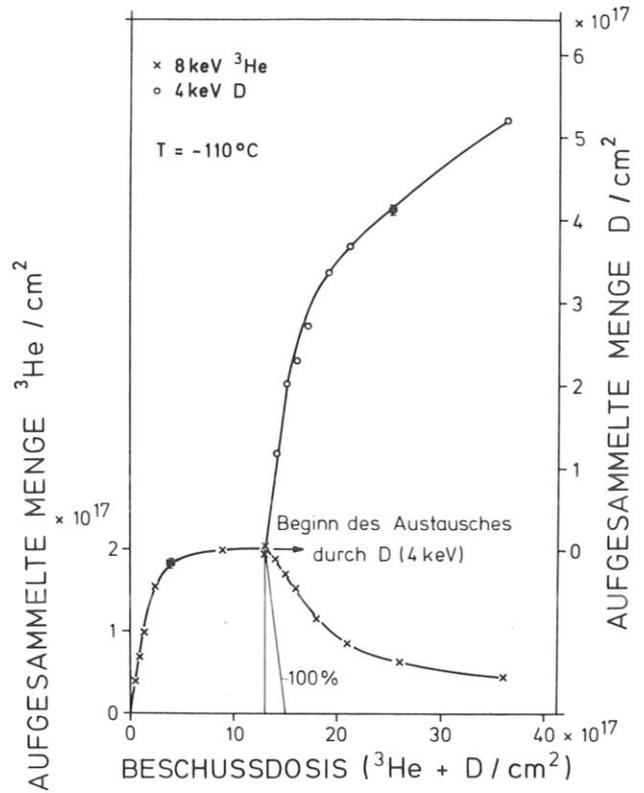


Abb. 8b

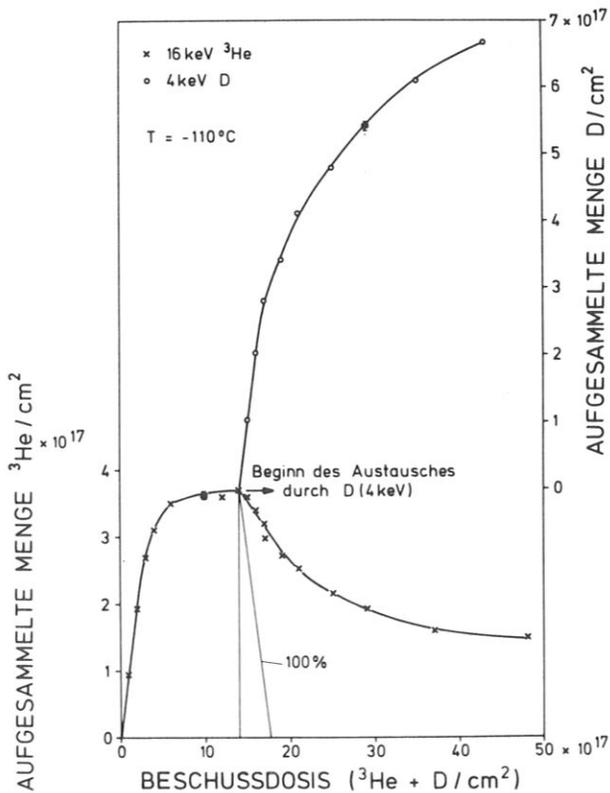


Abb. 8c

Abb. 8a-c:

Aufgesammelte Mengen von 4, 8, 16 keV  $^3\text{He}$  in Mo als Funktion der Beschussdosis (linker Teil).

Aufgesammelte Mengen von 4 keV D (nachimplantiert) und gleichzeitige Abnahme der vorimplantierten  $^3\text{He}$ -Mengen als Funktion der nachgeschossenen Dosis (rechter Teil).

Die mit "100 %" bezeichneten Geraden entsprechen der Steigung  $m = 1$  für die Abnahmekurven der erstimplantierten Ionenart.

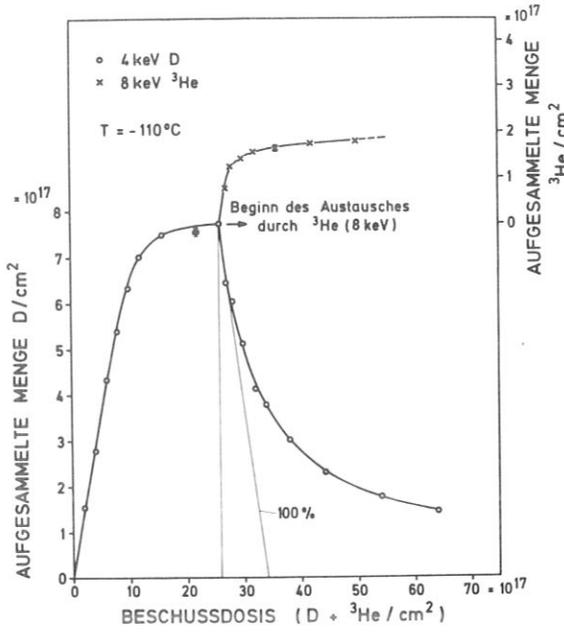


Abb. 9a

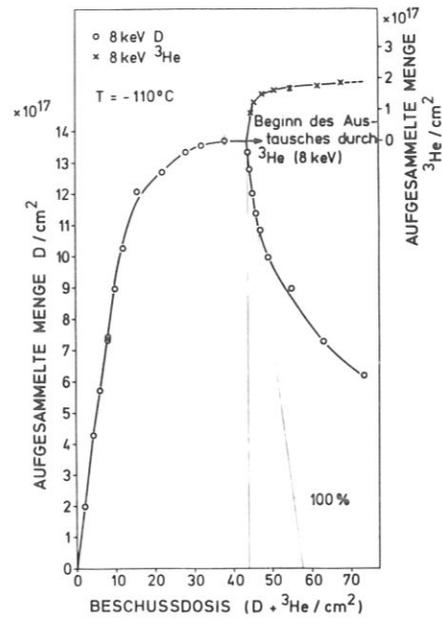


Abb. 9b

Abb. 9a-b: Aufgesammelte Mengen von 4, 8 keV D in Mo als Funktion der Beschußdosis (linker Teil). Aufgesammelte Mengen von 8 keV  $^3\text{He}$  (nachimplantiert) und gleichzeitige Abnahme der vorimplantierten D-Mengen als Funktion der nachgeschossenen Dosis (rechter Teil). Die mit "100 %" bezeichneten Geraden entsprechen der Steigung  $m = 1$  für die Abnahmekurven der erstimplantierten Ionenart.

erhält, zeigt, daß die Reemission der nachimplantierten Ionen in diesem Fall bereits bei viel kleineren Beschußdosen einsetzt. Dies ergibt sich aus dem Vergleich der Aufsammlerkurve Abb. 9a (linker Teil) von 4 keV D mit den Aufsammlerkurven für nachimplantiertes 4 keV D in Abb. 8a-c (rechter Teil).

### 5.3 Austauschkurven an ungesättigten Proben

Für Proben, die nicht bis zur Sättigungsdosis vorimplantiert wurden, ergab sich bei Nachimplantation zunächst ein konstanter Wert für die Konzentration der erstimplantierten Ionen. Bei weiterem Nachbeschuss fiel deren Konzentration dann ab. In den Abbildungen 10 und 11 sind die Austauschkurven für Proben, die mit 4 keV D bzw. 8 keV  $^3\text{He}$  vorimplantiert waren und mit 8 keV  $^3\text{He}$  bzw. 4 keV D nachimplantiert wurden, eingezeichnet. Die Energien beider Ionenarten waren

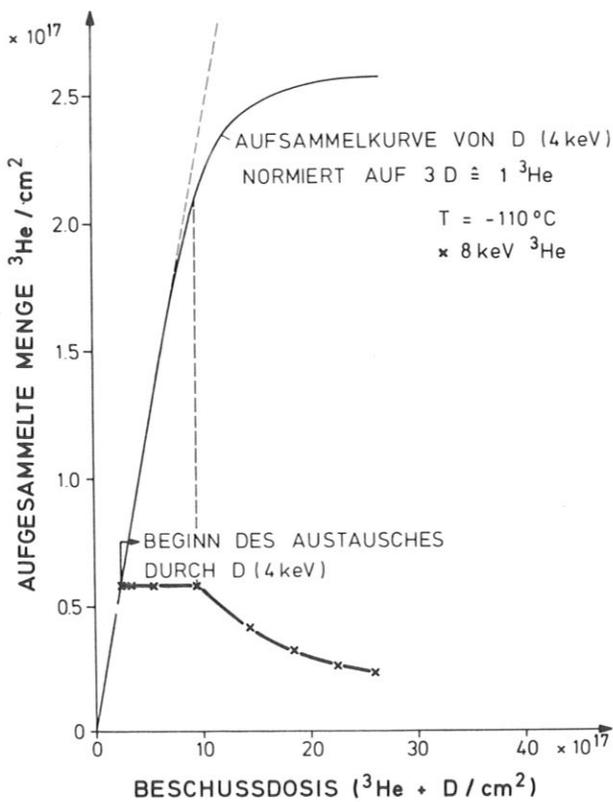


Abb. 10:

Aufgesammelte Menge von 8 keV  $^3\text{He}$  (vorimplantiert) als Funktion der nachgeschossenen Dosis von 4 keV D.

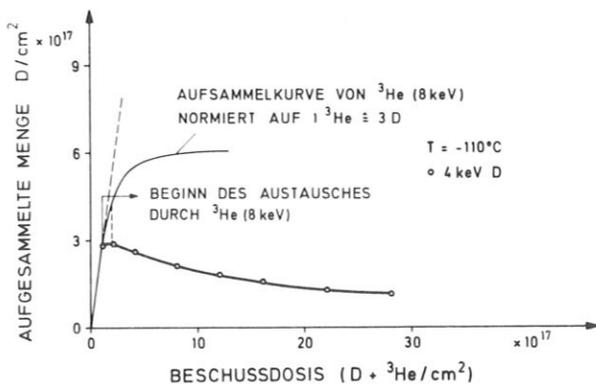


Abb. 11:

Aufgesammelte Menge von 4 keV D (vorimplantiert) als Funktion der nachgeschossenen Dosis von 8 keV  $^3\text{He}$ .

so gewählt, daß die Reichweiten ungefähr übereinstimmen. In beide Abbildungen ist noch die normierte Anstiegskurve der nachimplantierten Ionenart eingezeichnet, wie sie für eine nichtimplantierte Probe gemessen wurde. Die Normierung ( $3 D \hat{=} 1 \text{ } ^3\text{He}$ ) ist im Kapitel Diskussion, Abschnitt Summenkonzentrationen, näher erklärt. Die in beiden Abbildungen eingezeichneten unterbrochenen Linien zeigen, daß der Beginn der Reemission der zuerst implantierten Ionen ungefähr mit dem Beginn der Reemission der nachimplantierten Ionen zusammenfällt. Das bedeutet, daß die Probe nahezu gesättigt sein muß, bevor Reemission einsetzt.

#### 5.4 Tiefenprofile

##### 5.4.1 Implantation von Helium und Deuterium in unbestrahlten Proben

Die Abb. 12a-e zeigen die Tiefenprofile für verschiedene Reichweitekombinationen der vor- und nachimplantierten Ionen. Kurvenparameter auf den einzelnen Abbildungen ist die jeweils nachimplantierte Dosis. Die Konzentrationsprofile der erstimplantierten Ionen bei gesättigten Proben sind in der linken Hälfte der Abbildungen dargestellt, die der nachimplantierten Ionen in der rechten Hälfte. Die Meßkurven sind Faltungen der Konzentrationsprofile mit der apparativen Tiefenauflösung (siehe Anhang). Dadurch sind die gemessenen Profile bis über die Oberfläche hinaus verbreitert. Die durchgezogenen Linien in den Tiefenprofilen stellen keine theoretischen Kurven dar, oder gerechnete Approximationen. Sie sind von Hand durch die Meßpunkte gelegt, um die Darstellungen übersichtlicher zu machen.

TIEFENPROFILE 4 keV  $^3\text{He}$  / 4 keV D  $\rightarrow$  Mo

VORIMPLANTIERT  $9 \cdot 10^{17}$   $^3\text{He}/\text{cm}^2$ , NACHIMPLANTIERT (A) 0  $\text{D}/\text{cm}^2$

(B)  $4 \cdot 10^{17}$   $\text{D}/\text{cm}^2$

(C)  $9 \cdot 10^{17}$   $\text{D}/\text{cm}^2$

(D)  $1.9 \cdot 10^{18}$   $\text{D}/\text{cm}^2$

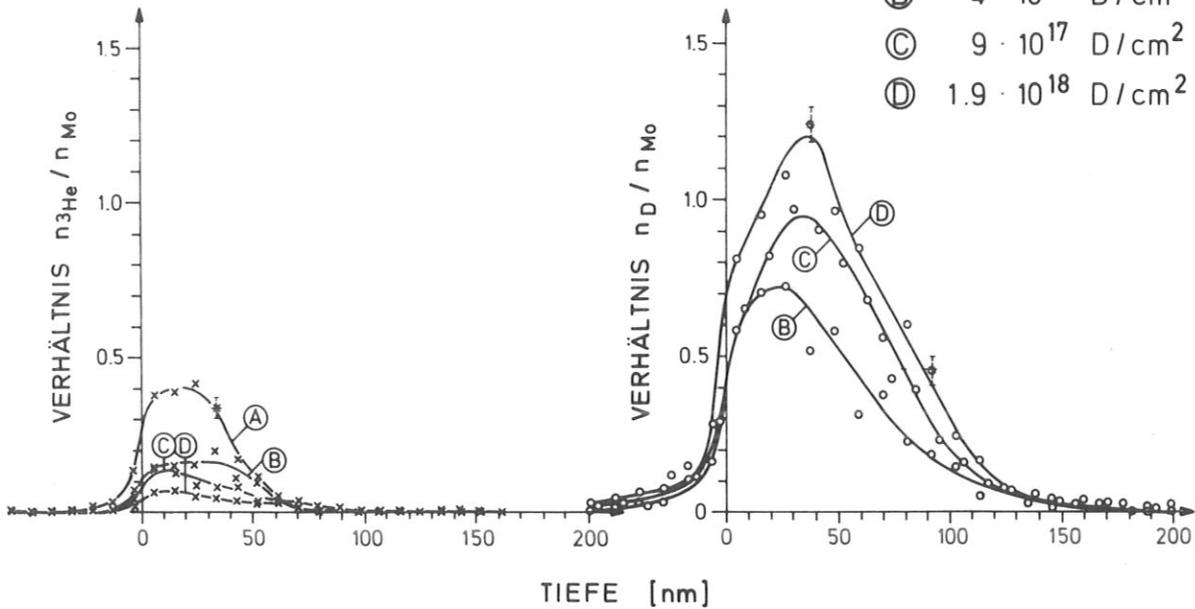


Abb. 12a: Konzentrationsprofile für 4 keV  $^3\text{He}$  und 4 keV D für verschiedene Beschussdosen der nachimplantierten D-Ionen

TIEFENPROFILE 8 keV  $^3\text{He}$  / 4 keV D  $\rightarrow$  Mo

VORIMPLANTIERT  $1.3 \cdot 10^{18}$   $^3\text{He}/\text{cm}^2$ , NACHIMPLANTIERT (A) 0  $\text{D}/\text{cm}^2$

(B)  $4 \cdot 10^{17}$   $\text{D}/\text{cm}^2$

(C)  $2.3 \cdot 10^{18}$   $\text{D}/\text{cm}^2$

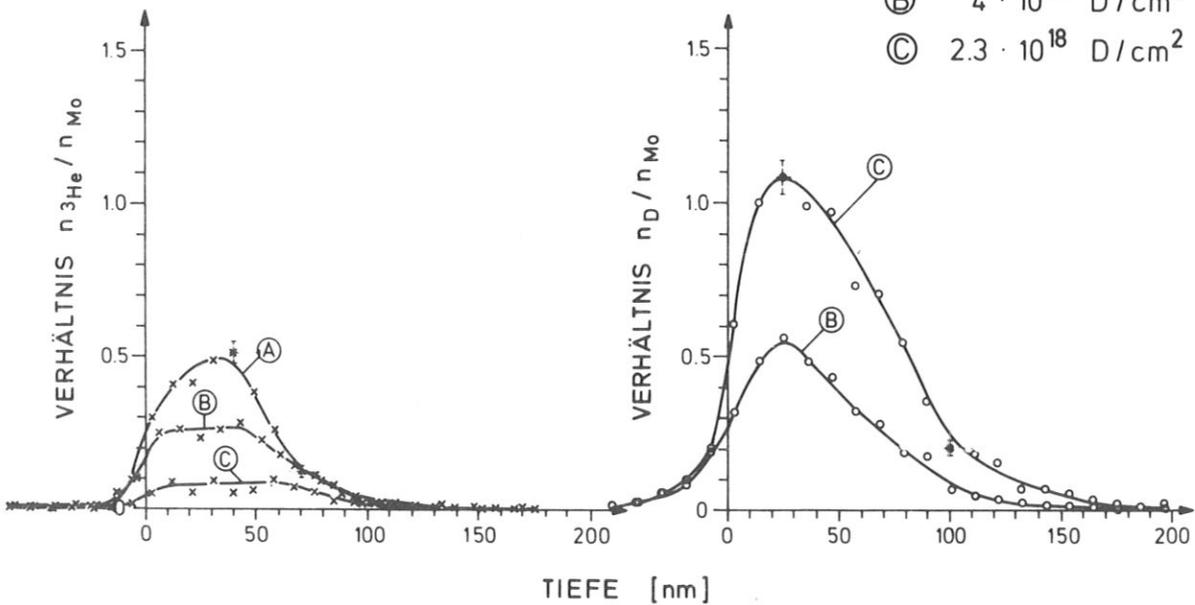


Abb. 12b: Konzentrationsprofile für 8 keV  $^3\text{He}$  und 4 keV D für verschiedene Beschussdosen der nachimplantierten D-Ionen

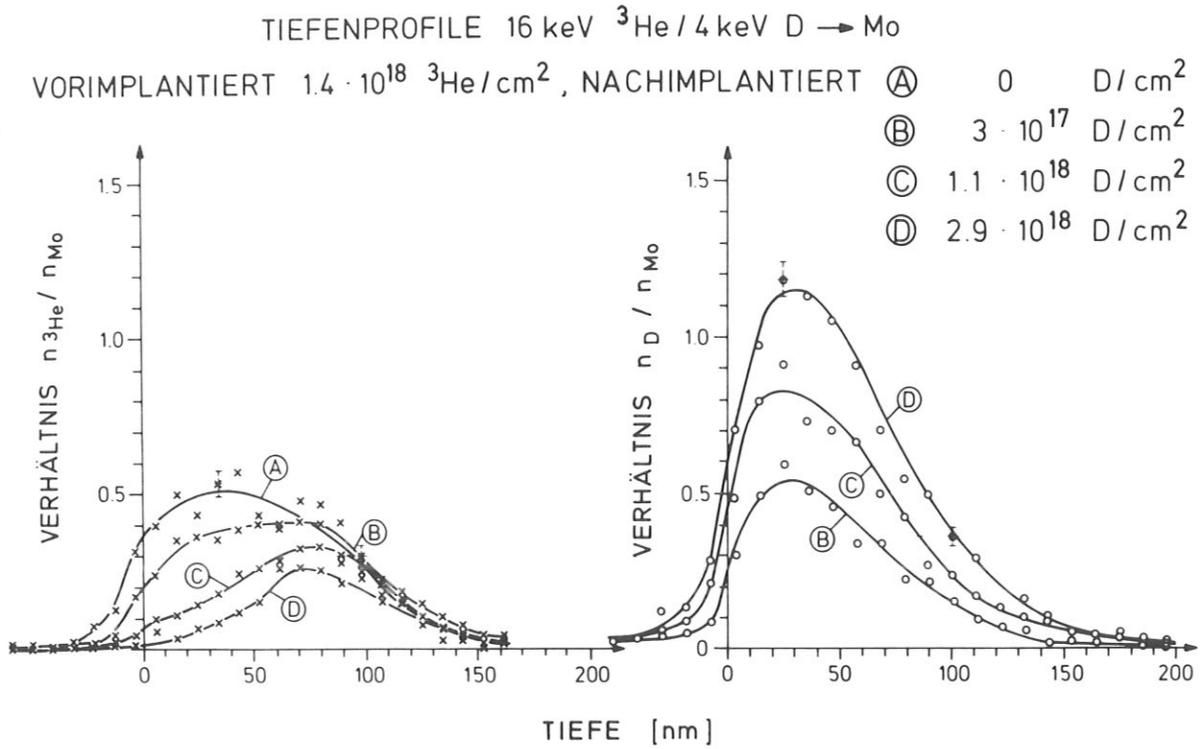


Abb. 12c: Konzentrationsprofile für 16 keV  $^3\text{He}$  und 4 keV für verschiedene Beschussdosen der nachimplantierten D-Ionen

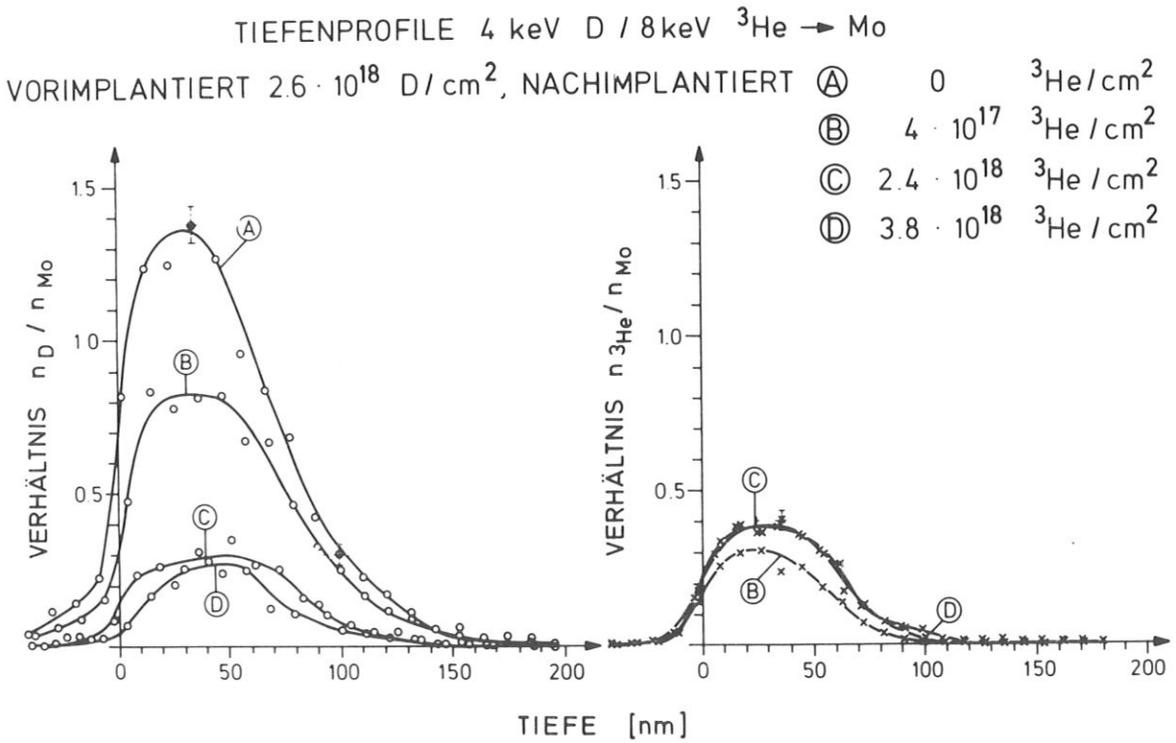


Abb. 12d: Konzentrationsprofile für 4 keV D und 8 keV  $^3\text{He}$  für verschiedene Beschussdosen der nachimplantierten  $^3\text{He}$ -Ionen

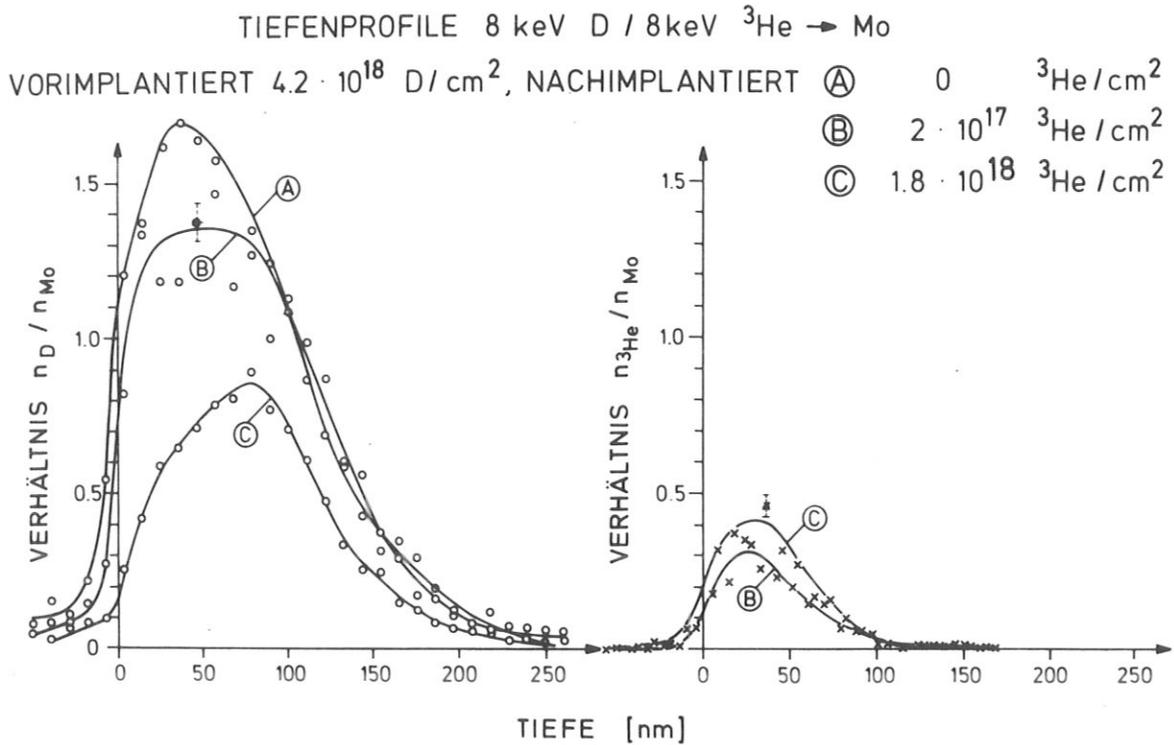


Abb. 12e: Konzentrationsprofile für 8 keV D und 8 keV  $^3\text{He}$  für verschiedene Beschussdosen der nachimplantierten  $^3\text{He}$ -Ionen

#### 5.4.2 Nachimplantation von Helium bzw. Deuterium in gesättigten Proben

Nachimplantation von Helium auf eine mit Deuterium gesättigte Probe und umgekehrt ergibt allgemein eine Abnahme der Konzentration der erstimplantierten Ionen bei einer Zunahme der Konzentration der nachimplantierten Ionen. Für den Fall, daß die erstimplantierten Ionen eine erheblich größere Reichweite haben als die nachimplantierten, wie das für die Kombination 8 keV D/8 keV  $^3\text{He}$  und 16 keV  $^3\text{He}$ /4 keV D zutrifft, findet die Abnahme der Konzentration der erstimplantierten Ionen in dem Bereich statt, welcher innerhalb der Reichweite der nachgeschossenen Ionen liegt (Abb. 12c und 12e, linker Teil).

### 5.5 Reichweiten und Sättigungswerte

Für die Reichweiten der implantierten Ionen bei Sättigungskonzentration ergaben sich experimentell folgende Werte:

Energie	4 keV	8 keV	16 keV	4 keV	8 keV
Ionen	$^3\text{He}$	$^3\text{He}$	$^3\text{He}$	D	D
Reichweite (nm)	$43 \pm 4$	$60 \pm 4$	$104 \pm 10$	$76 \pm 6$	$113 \pm 8$
Sättigungswerte $n_{\text{impl}}/n_{\text{Mo}}^*$	$0,41 \pm 0,04$	$0,5 \pm 0,04$	$0,5 \pm 0,04$	$1,4 \pm 0,06$	$1,6 \pm 0,06$

Tabelle 2

\* n bedeutet die Atomdichte (Atome/Volumen),  $n_{\text{Mo}} = 6,407 \cdot 10^{22} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^3}$

Als Reichweite ist dabei die Implantationstiefe definiert, bei der die gemessene Konzentration auf die Hälfte des Maximalwertes abgefallen ist. Für Proben, die bis zur Sättigung mit D oder  $^3\text{He}$  implantiert waren und daraufhin mit  $^3\text{He}$  oder D nachimplantiert wurden, konnte innerhalb der Meßgenauigkeit keine Änderung der Ionenreichweite der nachimplantierten Ionen gegenüber deren Reichweite in nichtimplantierten Proben festgestellt werden. Eine Verbreiterung des Konzentrationsprofils der erstimplantierten Ionen durch Nachimplantation mit Ionen von größerer Reichweite (Abb. 12a, linker Teil) konnte ebenfalls nicht beobachtet werden.

Die in Tabelle 2 angegebenen Fehler sind statistische Fehler der Messung. Der absolute Fehler kann größer sein und ist im Abschnitt Fehlerbetrachtung näher diskutiert.

Die gemessenen Reichweiten stimmen mit den angegebenen Reichweiten von Ziegler und Andersen /30, 31/ innerhalb etwa 10 % überein, wenn man zur mittleren Reichweite deren dreifache Standardabweichung addiert und so die Reichweite erhält, innerhalb derer etwa 97 % aller implantierten Ionen auf thermische Energien abgebremst sind.

### 5.6 Desorptionskurven

Es wurden mehrere Proben nach erfolgter Implantation bei  $T = -110^{\circ}\text{C}$  langsam auf Raumtemperatur aufgewärmt und dabei in Abständen von  $10^{\circ}\text{C}$  die noch verbliebene aufgesammelte Menge mit Hilfe der Kernreaktion  ${}^3\text{He}(d,p){}^4\text{He}$  bestimmt. Die Temperatur stieg dabei mit ungefähr  $1,2^{\circ}\text{C}/\text{min}$  an. Bei Temperaturen über  $-60^{\circ}\text{C}$  wurde der Probenhalter zusätzlich über ein Koaxialkabel geheizt, um den Temperaturanstieg aufrecht zu erhalten. Für eine mit Deuterium (4 keV) gesättigte Probe ergab sich dabei für Temperaturen  $T < -70^{\circ}\text{C}$  ein schwaches Ausdiffundieren, zwischen  $-70^{\circ}\text{C}$  und  $-50^{\circ}\text{C}$  setzte starke Diffusion der implantierten Atome ein (Abb. 13). Bei  $-50^{\circ}\text{C}$  waren etwa 85 % der implantierten Menge herausdiffundiert. Ab diesem Sprung ergab sich mit steigender Temperatur

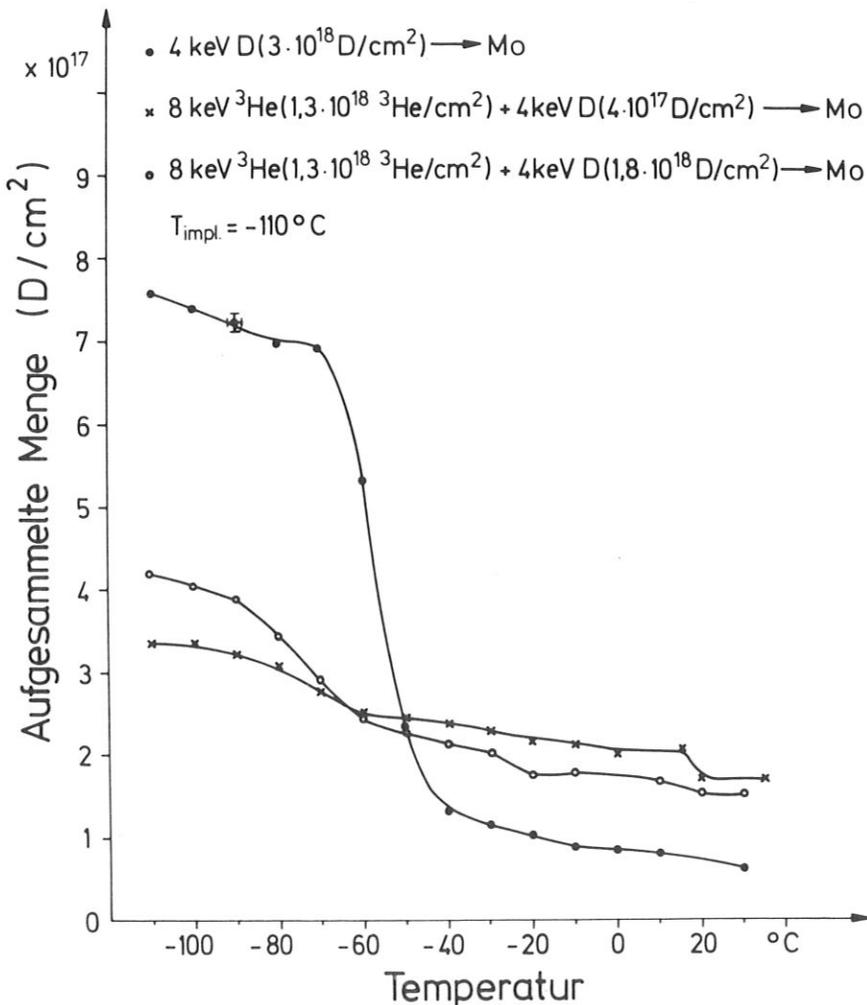


Abb. 13:

Desorptionskurven von D (4 keV) aus nicht implantierten und mit (8 keV <sup>3</sup>He) vorimplantierten Proben.

eine weitere langsame Abnahme der Menge bis zur Temperatur von  $+30^{\circ}$  C. Der Sprung bei  $-60^{\circ}$  C deutet dabei auf eine thermische Aktivierung der implantierten Deuteriumatome hin.

Für die mit Helium gesättigten Proben, bei denen einmal  $4 \cdot 10^{17}$  D/cm<sup>2</sup> und im anderen Fall  $1,8 \cdot 10^{18}$  D/cm<sup>2</sup> nachimplantiert wurden, ergab sich nur ein relativ langsamer gleichmäßiger Abfall der aufgesammelten Menge mit steigender Temperatur. Die aufgesammelte Deuteriummenge ist dabei bei Vorimplantation von Helium bei  $T = -60^{\circ}$  C größer als im Falle von reiner Deuteriumimplantation. Dies deutet darauf hin, daß eine größere Menge Deuterium in den heliumimplantierten Schichten mit höherer Bindungsenergie gebunden wird, als dies ohne Vorimplantation mit <sup>3</sup>He der Fall ist.

Eine Abkühlung der Probe nach dem jeweiligen Erwärmen zur Messung der verbleibenden Restmenge war nicht erforderlich, da in das Meßergebnis nicht die Temperatur der Probe eingeht.

#### 5.7 Oberflächenstruktur vor und nach der Implantation

Vor dem Beschuß einer Probe konnte im Rasterelektronenmikroskop keine Oberflächenstruktur beobachtet werden (Abb. 14). Korngrenzen wurden ebenfalls nicht beobachtet.

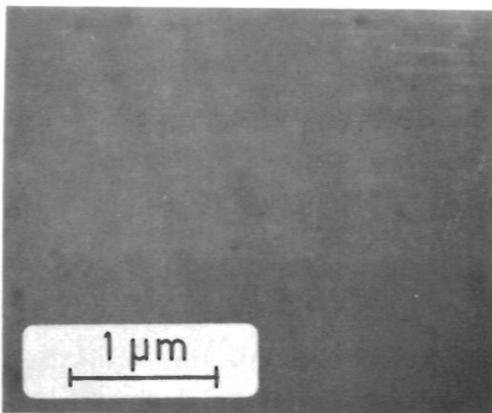


Abb. 14: Oberflächenstruktur  
einer unbeschossenen Probe

Nach dem Beschuss wurde jede Probe nach Aufwärmen auf Raumtemperatur ebenfalls im Rasterelektronenmikroskop untersucht. Proben, die bis zur Sättigung implantiert wurden, zeigten dabei die typischen kuppelförmigen Aufwölbungen (Blister) (Abb. 15a, 15b), die man auch an vielen anderen Metallen beobachtet hat. Die Blisterdurchmesser betragen im Mittel etwa  $0,5 \mu\text{m}$  mit der Tendenz der Durchmesserzunahme bei steigender Beschussenergie. Bei Proben, die weit unter der Sättigungsdosis implantiert wurden, konnten im Rasterelektronenmikroskop keine Veränderungen der Oberflächenstruktur beobachtet werden.

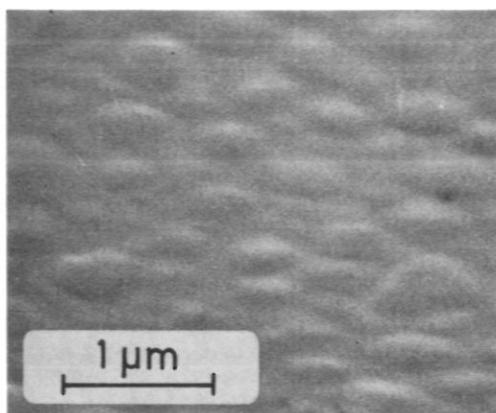


Abb. 15a:

Oberflächenstruktur einer Mo-Probe nach Beschuss mit  $1,4 \cdot 10^{18} \text{ } ^{18}\text{He}/\text{cm}^2$  (16 keV) und  $3,4 \cdot 10^{18} \text{ } ^{18}\text{D}/\text{cm}^2$  (4 keV) bei  $T = -110^\circ \text{C}$

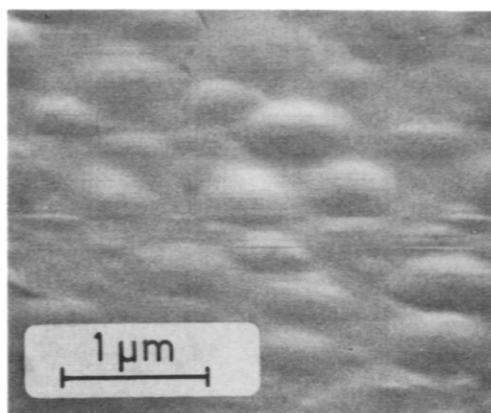


Abb. 15b:

Oberflächenstruktur einer Mo-Probe nach Beschuss mit  $4,4 \cdot 10^{18} \text{ } ^{18}\text{D}/\text{cm}^2$  (8 keV) und  $2,9 \cdot 10^{18} \text{ } ^{18}\text{He}/\text{cm}^2$  (8 keV) bei  $T = -110^\circ \text{C}$

## 5.8 Fehlerbetrachtung

### 5.8.1 Fehler der Dosismessung bei Implantation

Während der Implantation wird die geschossene Dosis über die Integration des gemessenen Ionenstromes mit der Zeit bestimmt. Der Meßfehler des verwendeten Stromintegrators der Firma Ortec beträgt  $\sim 1\%$ . Eine weitere mögliche Fehlerquelle ist durch die aus den Proben austretenden Sekundärelektronen

gegeben, die einen scheinbar höheren Probenstrom verursachen. Der größte Teil dieser Sekundärelektronen konnte durch das Anbringen eines auf negatives Potential gelegten Abschirmbleches um die Probe unterdrückt werden. Vergleichsmessungen mit einem Faraday-Cup, der hinter der Probenhalterung angebracht war und wegen seiner kleinen Eintrittsöffnung praktisch keine Sekundärelektronen emittierte, ergaben Abweichungen zwischen dem gemessenen Probenstrom und dem Strom im Faraday-Cup, die bei maximal 2 % lagen.

### 5.8.2 Fehler der Dosismessung bei Analyse

Der statistische Fehler, der sich aus der Zahl der nachgewiesenen Protonen ergibt, beträgt bei mittleren Zählraten eines Protonenspektrums von etwa 10 000 Impulsen 1 %. Mehrmaliges Messen eines Protonenspektrums bei gleicher geschossener Analysendosis ergab Abweichungen der einzelnen Werte von etwa 0,9 %. Die quadratische Summe beider Fehler beträgt dann 1,35 %. Dieser Fehler ist in den gemessenen Aufsammlerkurven eingezeichnet.

### 5.8.3 Fehler bei der Absolutbestimmung der aufgesammelten Mengen

Zur Absolutbestimmung der aufgesammelten Helium- bzw. Deuteriummenge diente die Zahl der nachgewiesenen  $\alpha$ -Teilchen. Diese lag zwischen etwa 100 und 1000 je nach implantierter Menge. Der statistische Fehler beträgt dann entsprechend 10 % bzw. 3,3 %. Die Dosisbestimmung des Analysestrahls erfolgte dabei über die Höhe der Rückstreakante des Rutherford-Spektrums, so daß entstehende Sekundärelektronen keinen Einfluß auf die Messung hatten. Die Zuordnung der gemessenen Protonenzahl zu den implantierten Mengen erfolgte über deren Proportionalität zur Zahl der gemessenen  $\alpha$ -Teilchen. Zu beachten ist, daß der Wirkungsquerschnitt der Kernreaktion

${}^3\text{He}(d,p){}^4\text{He}$  und die Energieverluste des ein- und auslaufenden Teilchens jeweils nur auf etwa 10 % genau bekannt sind. Diese Größen gehen in die Bestimmungsgleichung für die aufgesammelte Menge ein.

Bei einem Vergleich der Ergebnisse mehrerer Autoren sind deshalb die zur Berechnung der Tiefenverteilungen und implantierten Mengen verwendeten Wirkungsquerschnitte und Energieverlustdaten zu berücksichtigen. Diese unterscheiden sich um etwa 10 %.

#### 5.8.4 Fehler bei der Berechnung der Tiefenprofile

Der relative statistische Fehler  $\frac{\Delta F}{F}$ , der sich aus der Anzahl  $N$  der Teilchen ergibt, die in einem Energieintervall  $\Delta E$  nachgewiesen werden, das einem Tiefenintervall  $\Delta x$  im Tiefenprofil entspricht, ist gegeben durch:

$$\frac{\Delta F}{F} = \frac{1}{\sqrt{N}}$$

Für die höchsten gemessenen Konzentrationen beträgt er etwa 5 % und steigt mit fallender Konzentration. Dieser Fehler ist in die Tiefenprofile als senkrechter Fehlerbalken eingezeichnet. Eine Diskussion der Tiefenauflösung erfolgt im Anhang.

## 6. DISKUSSION

### 6.1 Aufsammlerkurven

Die gemessenen Aufsammlerkurven zeigen zunächst unabhängig von der implantierten Ionenart (D oder  $^3\text{He}$ ) einen linearen Anstieg der aufgesammelten Menge als Funktion der Beschußdosis. In einem Übergangsbereich biegen die Kurven ab, bis bei der Sättigungsdosis auch bei weiterem Beschuß keine weitere Zunahme der aufgesammelten Menge mehr erfolgt (Abb. 12a-e, linker Teil). Ähnliche Kurven erhält man für implantiertes Helium bei Raumtemperatur in Niob /9/, für Deuterium bei  $T = -120^\circ\text{C}$  in Edelstahl /10/, und Deuterium in Graphit und Silizium bei Raumtemperatur /50, 51/. Gemeinsam ist diesen Messungen, daß die implantierten und aufgesammelten Ionen im Festkörper bei diesen Temperaturen nicht thermisch diffundieren konnten.

Normiert man die Beschußdosis und die aufgesammelte Menge auf die Sättigungsmenge  $m_s$ , so ergibt sich, daß alle in dieser Arbeit gemessenen Aufsammlerkurven für Deuterium und Helium annähernd auf eine Kurve fallen (Abb. 16, S. 54). In dieser Darstellung ist der kinematisch von der Oberfläche zurückgestreute Anteil der Ionen von der tatsächlichen Beschußdosis bereits abgezogen. Dieser Anteil beträgt nach /4/ für:

Energie und Ionenart	zurückgestreuter Anteil %
4 keV $^3\text{He} \rightarrow \text{Mo}$	23
8 keV $^3\text{He} \rightarrow \text{Mo}$	16
16 keV $^3\text{He} \rightarrow \text{Mo}$	10
=====	
4 keV D $\rightarrow$ Mo	17
8 keV D $\rightarrow$ Mo	9

Die Möglichkeit einer normierten Darstellung für alle in dieser Arbeit gemessenen Aufsammlerkurven legt die Annahme nahe, daß es sich bei dem Aufsammeln und der Reemission von

Wasserstoff und Helium in Molybdän bei  $-110^{\circ}\text{C}$  um ähnliche physikalische Mechanismen handelt.

Anhand bekannter Daten über die gemessenen und gerechneten Aktivierungsenergien  $E_A$  von D und He auf Zwischengitterplätzen und Leerstellen, die Anzahl der erzeugten Leerstellen pro eingeschossenem Ion, die gemessenen Sättigungskonzentrationen und die mikroskopische Struktur des bestrahlten Volumens kann man nun versuchen, bestehende Modelle, die das Aufsammeln und den Austausch von leichten Ionen in Festkörpern beschreiben, zu diskutieren.

Im Folgenden sind zunächst die bekannten Daten zusammengestellt.

Für Helium betragen die Aktivierungsenergien  $E_A$  nach Rechnungen von /52/ in Mo ungefähr 5 eV für Bindung an Leerstellen und für Bindung an Zwischengitterplätzen etwa 0,20 eV. Bei einer Temperatur von  $-110^{\circ}\text{C}$  bedeutet dies, daß das aufgesammelte Helium nur an Leerstellen stabil gebunden sein kann (Gl. 12).

Für Deuterium ergeben sich gemessene Aktivierungsenergien von 0,3 bis 1,5 eV /53-57/. Diese Energien werden von den verschiedenen Autoren zum Teil als Aktivierungsenergien für Zwischengitterdiffusion oder als Aktivierungsenergien für Diffusion aus Leerstellen betrachtet. Gerechnete Werte /58/ ergeben 0,05 eV als Aktivierungsenergie für Zwischengitterdiffusion. Betrachtet man die gemessenen Werte als Aktivierungsenergien für Zwischengitterdiffusion, so kann Deuterium bei  $-110^{\circ}\text{C}$  sowohl auf Zwischengitterplätzen als auch in Leerstellen stabil gebunden werden. Aufgrund der gerechneten Werte wäre jedoch ein Aufsammeln auf Zwischengitterplätzen bei  $-110^{\circ}\text{C}$  nicht möglich. Bei Bindung an Leerstellen ist zu beachten, daß mehrere Ionen an eine Leerstelle gebunden werden können und ebenso mehrere Leerstellen sich zusammenlagern können. Die Aktivierungsenergie eines Wasserstoff-

oder Heliumatoms an eine solche Ein- oder Mehrfachleerstelle hängt dann von der Art der Leerstelle und von der Anzahl der bereits gebundenen Atome ab. Für die Aktivierungsenergie von He, das an Leerstellen gebunden ist, berechnete L.M. Caspers /59/ an einem Molybdäneinkristall 4,2 eV für ein Heliumatom, das an eine Einfachleerstelle gebunden ist, und 2,5 eV für ein Heliumatom an einer Leerstelle, an der bereits 3 weitere Heliumatome gebunden sind. Für die Aktivierungsenergie von Deuterium, das an Leerstellen gebunden ist, berechnete A.E. Gorodetsky /56/ 1.4 eV für eine unbesetzte Einfachleerstelle und 1.15 eV für eine Einfachleerstelle, die bereits mit 5 Deuteriumatomen besetzt ist. Weiterhin ergab sich experimentell, daß die Sättigungskonzentration nahezu unabhängig von der Einschußenergie für eine Ionenart ist (Tab. 2, S. 38). Dies deutet darauf hin, daß nahezu der gleiche Prozentsatz von Aufsammelzentren besetzt sein muß, bevor Reemission einsetzt. Die Anzahl der erzeugten Leerstellen pro eingeschossenem Ion sind in Tab. 1 (S. 12) eingetragen.

#### 6.1.1 Bestehende Aufsammelmodelle

Die nachfolgend kurz diskutierten Modelle stellen eine Auswahl hinsichtlich der implantierten Ionenart und der Implantationstemperatur dar. Modelle, bei denen die Oberflächenzerstäubung eine wesentliche Rolle spielt, oder die thermische Diffusion der implantierten Ionen /61-63/, werden nicht diskutiert, da diese Effekte im vorliegenden Fall entweder eine untergeordnete Rolle spielen oder experimentell nicht beobachtet wurden. Unter thermischer Diffusion soll hier die Diffusion von implantierten Ionen aus Aufsammelzentren verstanden werden, die infolge der Proben temperatur erfolgt. Sind die Aufsammelzentren z.B. Leerstellen, so soll also aus diesen nach Beendigung der Implantation keine Diffusion auftreten. Werden die implantierten Ionen jedoch infolge von Ionenbeschuß energetisch so angehoben, daß sie das Auf-

sammelzentrum (Leerstelle) verlassen, so ist eine thermische Diffusion auf Zwischengitterplätzen bis zum nächsten Aufsammlungszentrum oder zur Oberfläche wegen der in diesem Fall viel kleineren Aktivierungsenergie natürlich möglich. Dieser Diffusionsprozeß ist dann strahlungsinduziert und spielt in den nachfolgenden Modellen eine Rolle.

Gemeinsam ist den hier diskutierten Modellen, daß sie Aufsammlungszentren innerhalb des bestrahlten Volumens annehmen. Die Unterschiede der einzelnen Modelle liegen in der Annahme der Anzahl der verschiedenen Typen von Aufsammlungszentren, der Mechanismus der Sättigung verursacht, und der Art des Diffusionsprozesses der reemittierten Ionen innerhalb der Probe.

Modelle von Hotston /64/ und Braganza et al. /39/, die das Aufsammeln nach dem Austausch von H, D in Edelstahl beschreiben, nehmen zwei verschiedene Arten von Aufsammlungszentren an, die sich durch die Bindungsenergie für aufgesammelte Ionen unterscheiden. Danach werden zuerst die Plätze mit der höheren Bindungsenergie aufgefüllt. Erst bei Auffüllung der Plätze mit niedriger Bindungsenergie tritt strahlungsinduzierte Diffusion ein, und es beginnt eine teilweise Reemission der implantierten Ionen. Da sich die Bindungsenergien von stark und schwach gebundenen D-Ionen, die im Bereich von  $\sim 1$  eV liegen, nach Hotston nur um etwa 30 % unterscheiden, erscheint die Annahme, daß strahlungsinduzierte Diffusion nur zwischen den schwach gebundenen Wasserstoffatomen stattfindet, nicht plausibel, wenn sie nicht durch andere Daten gestützt wird. Für die beste Anpassung der theoretischen Kurven an die gemessenen Werte benötigt man außerdem für den Wirkungsquerschnitt der strahlungsinduzierten Diffusion Werte von  $\sigma = 10^{-13}$  cm<sup>2</sup>, der um Größenordnungen über den Wirkungsquerschnitten liegt, die man für Ionenstoßprozesse erwartet.

Aus den Annahmen ergeben sich drei Parameter, nämlich die Anzahl der schwach und stark bindenden Aufsammlerzentren und ein Wirkungsquerschnitt für die strahlungsinduzierte Diffusion. Hotston konnte damit gemessene Aufsammlerkurven von D und H in Edelstahl /10/ beschreiben. Diese Aufsammlerkurven sind den in dieser Arbeit gemessenen sehr ähnlich, und es erscheint daher möglich, daß bei entsprechender Wahl der drei Parameter eine Anpassung an die hier gemessenen Werte ebenfalls erfolgen kann, ohne daß der Aufsammlerprozeß mit dem in diesem Modell erwähnten übereinstimmen muß.

Die Modelle von Staudenmaier et al. /65/, Cohen und McCracken /51/, Doyle et al. /66/ nehmen an, daß die implantierten Ionen mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit im Abstand  $z$  von der Oberfläche zur Ruhe kommen. Diese Verteilung kann mit verschiedenen Computersimulationsmodellen berechnet werden. Ist nun in einem bestimmten Tiefenintervall die Sättigungskonzentration erreicht, so werden alle weiteren Ionen, die dort zur Ruhe kommen, reemittiert. Eine Aussage über den Aufsammler- und Reemissionsmechanismus der Ionen in der Probe wird in diesen Modellen nicht gemacht. Diese Modelle benötigen als Parameter die Sättigungskonzentration und die Reichweitenverteilung für die Tiefe  $z$ , in der die einlaufenden Ionen auf thermische Energie abgebremst sind. Da sich die Tiefenverteilungen, die man mit verschiedenen Computersimulationsmodellen erhält, nicht wesentlich voneinander unterscheiden, bleibt als Parameter praktisch nur die Sättigungskonzentration übrig. Cohen und McCracken konnten damit die Aufsammlerkurven von implantiertem D und H in Si und C gut beschreiben. Staudenmaier et al. konnten ebenfalls Aufsammlerkurven von D in C damit beschreiben. Doyel et al. konnten mit diesem Modell gemessene Aufsammlerkurven von Blewer et al. /10/, die an Edelstahl (316 SS) mit D bei  $T = 153$  K im Energiebereich von 1 - 14 keV durchgeführt wurden, gut approximieren. Die Aufsammlerkurven von D und He in Mo bei 160 K sind den von D in Edelstahl gemessenen ähnlich, und es scheint daher möglich, sie mit diesen Modellen ebenfalls zu beschreiben.

Ein Nachteil dieser Modelle liegt darin, daß sich beide Annahmen, von denen man ausgeht, nur mit Hilfe weiterer Annahmen widerspruchsfrei zusammenfügen lassen. Nimmt man nämlich an, daß jedes Ion, das in einer Tiefe  $z_0$  auf thermische Energien abgebremst ist, dort im Intervall  $z_0 \pm \Delta z$  aufgesammelt wird, solange es noch unbesetzte Aufsammlzentren gibt, so erfordert dies sehr große Einfangquerschnitte der Aufsammlzentren für die Ionen. Die weitere Annahme, daß ein Ion, das bei  $z_0 \pm \Delta z$  auf eine gesättigte Schicht trifft, zur Oberfläche diffundiert und dabei durch ungesättigte Schichten kommt, in denen es nicht aufgesammelt wird, setzt kleine Einfangquerschnitte der Aufsammlzentren voraus und ist nicht ohne weitere Zusatzannahmen mit der ersten Annahme zu vereinbaren. Eine solche Zusatzannahme wäre, daß die implantierte Schicht von Kanälen durchzogen ist, die senkrecht zur Oberfläche verlaufen und in denen das implantierte Gas dann zur Oberfläche gelangt. Ähnliche Strukturen wurden von /67/ bei heliumimplantiertem Edelstahl und Nickel im Transmissions-elektronenmikroskop beobachtet.

Ein weiteres Modell von Braganza et al. /39/ und Erents et al. /68/ nimmt an, daß bereits aufgesammelte Ionen durch weitere einlaufende Ionen mit gewissen Wirkungsquerschnitten energetisch angehoben werden und danach herausdiffundieren (strahlungsinduzierte Diffusion). Bei Annahme eines Wirkungsquerschnittes (Erents et al.) erhält man einen exponentiellen Anstieg der Aufsammlkurven als Funktion der Beschußdosis, welchen man bei den experimentellen Kurven nicht beobachtet. Läßt man mehrere Wirkungsquerschnitte zu, so kann man damit die experimentellen Kurven beschreiben, bekommt aber mehrere freie Parameter, ähnlich wie bei den bereits erwähnten Modellen von Hotston und Braganza, in denen zwei verschiedene Arten von Aufsammlzentren zugrundegelegt wurden.

Weiterhin würde man erwarten, daß die Sättigungskonzentration von der Einschußenergie abhängt, da der Wirkungsquerschnitt für das Herauslösen von implantierten Atomen aus Aufsammlzentren energieabhängig ist. Experimentell konnte jedoch nahezu keine Abhängigkeit der Sättigungskonzentration bei He und D von der Einschußenergie beobachtet werden.

Braganza et al. /39/ stellten ein weiteres Modell vor, das annimmt, daß jedes Ion, das auf thermische Geschwindigkeit abgebremst wurde, mit einer Wahrscheinlichkeit, die vom Abstand des nächsten Aufsammlzentrums abhängt, dort hinspringt und aufgesammelt wird, solange bis das Aufsammlzentrum gesättigt ist. Jedes Aufsammlzentrum kann dabei maximal  $n$  Ionen binden. Trifft ein Ion auf ein besetztes Zentrum, so springt es weiter, bis es einen unbesetzten Platz gefunden hat oder die Oberfläche erreicht und desorbiert wird. Dieser Prozeß wurde eindimensional mit einem Computerprogramm simuliert. Um die Reemissionskurven von D, das in Edelstahl implantiert wurde (Energie 5 - 20 keV  $T = 77$  K), zu beschreiben, mußten jedoch noch zusätzliche Annahmen über Strahldichteverteilung des einlaufenden Ionenstrahls und für die höheren Beschußenergien (15 - 20 keV) Normalisierungsfaktoren eingeführt werden. Damit erhält man dann 3 freie Parameter, nämlich die Anzahl  $n$  der Atome, die ein Aufsammlzentrum besetzen können, die Dichteverteilung des einlaufenden Ionenstrahls und Normalisierungsfaktoren, mit denen die theoretisch gerechnete Beschußdosis multipliziert werden muß. Im Prinzip scheint jedoch ein solches oder ähnliches Modell am besten von den hier diskutierten Modellen geeignet, den Aufsammlvorgang zu beschreiben; denn die hier zugrundeliegenden Annahmen, nämlich Diffusion der implantierten Ionen zwischen besetzten Aufsammlzentren und Einfang der Ionen in ungesättigten Zentren widersprechen nicht experimentellen Ergebnissen und scheinen physikalisch plausibel.

### 6.1.2 Neues\_Aufsammelmodell

Ein eigenes Modell, das für die gemessenen Aufsammelkurven analytische Ausdrücke liefert und diese gut beschreibt, wurde entwickelt. Anhand der eingangs zusammengefaßten experimentellen und gerechneten Daten ist der nachfolgend beschriebene Aufsammelprozeß für D und He in Mo ebenfalls möglich.

Jedes einlaufende Ion erzeugt im Mittel mehrere Leerstellen im Metallgitter (Tab. 1). Die Sättigungskonzentration für erzeugte Leerstellen wird dann bei Beschußdosen erreicht, die wesentlich kleiner als die Sättigungsdosis für implantierte Ionen sind. Für Beschußdosen, die klein sind im Vergleich zur Sättigungsdosis, besteht ein großer Überschuß an ungesättigten Leerstellen und für ein einlaufendes He- oder D-Ion, das auf thermische Energie abgebremst ist, besteht eine nahezu hundertprozentige Wahrscheinlichkeit, an einer Leerstelle eingefangen zu werden. Für D-Ionen wird angenommen, daß diese bei  $T -110^{\circ} C$  ebenfalls nur an Leerstellen gebunden werden, wie das Rechnungen von Bisson et al. /58/ ergeben. Auf Zwischengitterplätzen sind sowohl D- als auch He-Ionen beweglich. Ausgenommen von diesem Prozeß ist der Anteil der Ionen, die vor Abbremsung auf thermische Energien das Metall verlassen (kinematisch reflektiert werden). Mit zunehmender Beschußdosis werden nun die Aufsammelzentren (Leerstellen) besetzt und die Wahrscheinlichkeit, daß ein Ion zur Oberfläche diffundiert, ohne aufgesammelt zu werden, steigt.

Sind alle Aufsammelzentren gefüllt (Sättigung), so wird im Mittel für jedes einlaufende Ion ein Atom reemittiert. Die Kurvenform im Übergangsbereich zwischen vollständigem Aufsammeln und vollständiger Reemission ist dann durch die Einfangwahrscheinlichkeit eines herausdiffundierten Ions an Aufsammelzentren gegeben. Dies ist ein freier Parameter des Modells, der den Meßergebnissen angepaßt wird.

Eine weitere Annahme ist, daß im Mittel ein Ion pro Aufsammlungszentrum gebunden wird. Helium und Deuterium können jedoch Leerstellen mehrfach besetzen, oder es können sich Mehrfachleerstellen bilden. Für die mehrfach besetzten Aufsammlungszentren muß noch zusätzlich angenommen werden, daß der Wirkungsquerschnitt für das Aufsammeln eines weiteren Ions mit zunehmender Besetzung eines Aufsammlungszentrums abnimmt.

Für die Einfangwahrscheinlichkeit nimmt das Modell an, daß jedes Ion, das auf thermische Energien abgebremst wurde, innerhalb des bestrahlten Volumens diffundieren kann, bis es zur Oberfläche kommt und desorbiert wird. Die Grenzschicht zwischen bestrahltem und unbestrahltem Volumen bildet für implantierte Ionen eine Diffusionsbarriere, die experimentell beobachtet wurde /39, 44/. Es diffundieren also keine oder sehr wenig implantierte Ionen in das Innere der Probe.

Ein diffundierendes Ion hat im Mittel  $k$  Möglichkeiten, innerhalb seines Weges zur Oberfläche an ein Aufsammlungszentrum zu gelangen. Die Wahrscheinlichkeit, dort aufgesammelt zu werden, ist gerade  $P$  und hängt vom Besetzungsgrad der Aufsammlungszentren ab. Sind alle Aufsammlungszentren leer, so gilt  $P = 1$ . Für vollständige Besetzung der Aufsammlungszentren gilt  $P = 0$ . Dazwischen wird angenommen, daß die Wahrscheinlichkeit  $P$  mit zunehmender Besetzung linear abnimmt. Es gilt dann:

$$P = 1 - \frac{m}{m_s}, \quad (20)$$

wobei  $m$  die Anzahl der aufgesammelten Atome ist und  $m_s$  ihre maximal mögliche Anzahl. Die Wahrscheinlichkeit  $W$  für ein Ion, an irgendeinem der  $k$ -Aufsammlungszentren, die ein Ion antrifft, festgehalten zu werden, beträgt dann /69/:

$$W = \sum_{u=1}^k \binom{k}{u} P^u \cdot (1-P)^{k-u} \quad (21)$$

Das  $u$ -te Glied dieser Summe gibt dabei die Wahrscheinlichkeit an, daß das Aufsammeln bei  $k$  Möglichkeiten  $u$ -mal ( $u \leq k$ ) eintritt. Summiert wird über alle  $u$ , da nur die Wahrscheinlichkeit interessiert, ob das Aufsammeln bei irgendeiner der  $k$ -Möglichkeiten auftritt. Die Wahrscheinlichkeit  $W$  ist nun gleich der Steigung  $\frac{dm}{dF}$  der Aufsammelkurven. Dabei bedeuten  $dm$  die Zunahme der aufgesammelten Ionen und  $dF$  die Zahl der zusätzlich implantierten Ionen. In Gleichung (21) kann man die linke Seite durch  $\frac{dm}{dF}$  ersetzen und Gleichung (20) einsetzen. Man erhält dann:

$$\frac{dm}{dF} = \sum_{u=1}^k \frac{k!}{u!(k-u)!} \left(1 - \frac{m}{m_s}\right)^u \left(\frac{m}{m_s}\right)^{k-u} \quad (22)$$

Um den gewünschten Zusammenhang zwischen der aufgesammelten Menge  $m$  und der eingeschossenen Menge  $F$  zu erhalten, muß Gleichung (23) integriert werden und ergibt:

$$F = \int \frac{dm}{\sum_{u=1}^k \frac{k!}{u!(k-u)!} \left(1 - \frac{m}{m_s}\right)^u \left(\frac{m}{m_s}\right)^{k-u}} + C \quad (24)$$

Die Anfangsbedingung ist dabei immer  $F = 0$ , für  $m = 0$ . Die sich im Nenner ergebenden Polynome vom Grad  $k$  sind bis  $k = 3$  elementar integrierbar. Die Lösungskurven sind in Abb. 16 für  $k = 1 - 4$  eingezeichnet. Für  $k > 3$  kann man die Gleichung numerisch oder graphisch lösen.

Für  $k = 1$  ergibt sich dabei gerade eine exponentielle Abhängigkeit für  $m(F)$ . Für  $k \rightarrow \infty$  nähern sich die Lösungskurven immer besser an die beiden asymptotischen Geraden (100 % Aufsammelwahrscheinlichkeit und 100 % Reemission) an.

In Abb. 16 sind die normierten Lösungskurven von Gleichung (24) eingezeichnet. Für niedrige Implantationsenergien (4 keV  $^3\text{He}$ , 4 keV D) stimmen die experimentellen Werte besser mit im Mittel zwei angetroffenen Aufsammelzentren überein, während

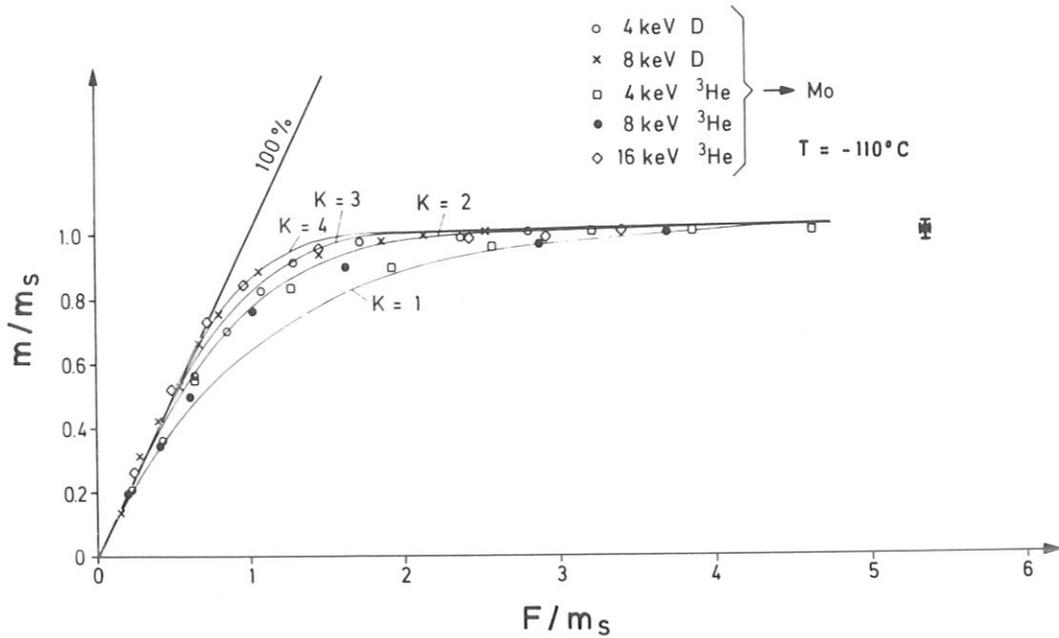


Abb. 16: Normierte Darstellung der Aufsammlercurven für implantiertes D und  $^3\text{He}$  bei verschiedenen Implantationsenergien. Normiert ist auf die Sättigungsmenge  $m_s$  der jeweiligen Ionenart und Ionenenergie. Die durchgezogenen Kurven sind Lösungen des vorher beschriebenen Modells für verschiedene Parameter  $k$ .

für höhere Implantationsenergien (8 keV D, 8 keV  $^3\text{He}$ , 16 keV  $^3\text{He}$ ) eher drei bis vier Aufsammlerzentren angetroffen werden. Unter der Annahme einer gleichmäßigen Verteilung der Aufsammlerzentren bedeutet das, daß die Ionen mit höherer Einschubenergie im Mittel einen längeren Weg im Metall zurücklegen, um bis zur Oberfläche zu gelangen, was wegen der größeren Implantationstiefe dieser Ionen plausibel erscheint. Nimmt man an, daß die Ionen beim Herausdiffundieren völlig isotrop wandern, so ist der mittlere zurückgelegte Weg  $x$  bis zur Oberfläche proportional zu  $\sqrt{f}$  (Sprungzahl), was für doppelte Implantationstiefe etwa die vierfache Sprungzahl bedeuten würde, mit einer entsprechend größeren Aufsammlerwahrscheinlichkeit. Das heißt, die Anzahl der Möglichkeiten  $k$  eines

diffundierten Ions, die zum Aufsammeln führen, ist proportional zu  $f$  und würde dann quadratisch mit der mittleren Implantationstiefe (Reichweite) der Ionen zunehmen. Experimentell konnte diese Abhängigkeit nicht gefunden werden (Abb. 16). Es ergab sich eher eine lineare Abhängigkeit von  $k$  mit der Ionenreichweite  $r$ . Dies würde bedeuten, daß die Ionen gerichtet zur Oberfläche diffundieren. Nimmt man an, daß die Gitterkonstante zur Oberfläche hin wegen Blisterbildung zunimmt (siehe Abschnitt Oberflächenstruktur) und die Ionen entlang diesem Spannungsgradienten sich bewegen, wäre dieser Prozeß denkbar. Für beide Möglichkeiten, ungerichtete Diffusion und Diffusion entlang einem Spannungsgradienten, der in Richtung Oberfläche zeigt, kann der Wirkungsquerschnitt  $\sigma$  abgeschätzt werden.

Der Wirkungsquerschnitt für das Aufsammeln von Ionen bei Annahme von besetzten Einfachleerstellen kann abgeschätzt werden zu:

$$\sigma = \frac{k}{\rho_s \cdot S} \quad (25)$$

Dabei bedeuten  $k$  die mittlere Anzahl der Aufsammelzentren, die entlang des Diffusionsweges eines Ions bis zur Oberfläche der Probe angetroffen werden,  $\rho_s$  die Sättigungsdichte (Ionen/cm<sup>3</sup>) für implantierte Ionen und  $S$  die mittlere Weglänge, die ein Ion bis zur Oberfläche der Probe zurücklegt. Diese Wegstrecke ist bei gerichteter Diffusion dann im Mittel gerade durch die mittlere Reichweite  $r_p$  der Ionen gegeben. Der Wirkungsquerschnitt  $\sigma$  ergibt sich dann zu:

$$\sigma = \frac{k}{\rho_s r_p} \quad (26)$$

Nimmt man dagegen ungerichtete Diffusion an, so gilt für den Zusammenhang zwischen mittlerer Entfernung und Sprungzahl /70/:

$$\sqrt{\bar{x}^2} = \sqrt{\bar{f}} \cdot a \quad (27)$$

f bedeutet die Anzahl der Sprünge und a die Sprungweite ( $\sim$  Gitterkonstante). x (mittlere Entfernung eines Ions nach f-Sprüngen vom Ausgangspunkt.) Die gesamte von einem Ion zurückgelegte Wegstrecke S ist dann

$$S = f \cdot a \quad (28)$$

für  $x = r_p$  ergibt sich durch Einsetzen von Gl.(27) in Gl.(28)

$$S = \frac{r_p^2}{a} \quad (29)$$

eingesetzt in Gleichung (25) ergibt

$$\sigma = \frac{k \cdot a}{\rho_s \cdot r_p^2} \quad (30)$$

Für 8 keV  $^3\text{He} \rightarrow \text{Mo}$  ist die mittlere Reichweite  $r_p$  der Ionen 30 nm. Für  $k = 3$ ,  $\rho_s = 3.2 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ , eingesetzt in Gleichung (26), ergibt sich  $\sigma = 3,1 \times 10^{-17} \text{ cm}^{-2}$  als maximaler Wert, und bei Annahme der Gültigkeit von Gl. (30) mit  $a = 0,25 \text{ nm}$  ergibt sich  $\sigma$  zu  $\sigma = 2,6 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2$ . Der Aufsammelquerschnitt, der sich aus Gl. (30) ergibt, ist um etwa zwei Größenordnungen kleiner als der geometrische Querschnitt eines Wasserstoffatoms und es scheint daher unwahrscheinlich, daß das Herausdiffundieren der Ionen ungerichtet erfolgt.

Der Querschnitt, der sich bei mehr oder weniger geradlinigem Herausdiffundieren in Richtung Oberfläche ergibt (Gl.26), ist zwar ebenfalls um etwa einen Faktor zwei kleiner als der geometrische Querschnitt eines H-Atoms, liegt aber in der richtigen Größenordnung. Ein Diffundieren der Ionen entlang eines Spannungsgradienten scheint daher der wahrscheinlichere Prozeß zu sein. Eine Veränderung des implantierten Volumens, wie Z.B. die Bildung von Rissen und kleinen Kanälen senkrecht zur Oberfläche, die im Rasterelektronenmikroskop nicht sichtbar sind, könnte jedoch ebenfalls die Ursache dafür sein, da dann die Wegstrecke eines Ions bis zu einer

Oberfläche (Kanal oder Riß) nicht mehr von der Implantationstiefe abhängt. Weiterhin kann man aus der Gleichartigkeit der normierten Aufsammlercurven von D und  $^3\text{He}$  unter Zugrundelegung dieses Modells schließen, daß sowohl das implantierte Deuterium als auch das Helium bei 160 K nur an Leerstellen stabil gebunden ist. Nimmt man nämlich an, daß das Deuterium auch auf Zwischengitterplätzen stabil gebunden wird, so wäre die Zahl  $k$  der Aufsammlerzentren, die ein Ion auf seinem Weg zur Oberfläche antrifft, wesentlich größer als 2 - 4, da ja dann jeder Diffusionssprung zu einem Aufsammlerzentrum führt. Dies würde zu Aufsammlercurven führen, die wesentlich schärfer abknicken als dies gemessen wurde.

## 6.2 Austauschcurven (gesättigte Proben)

Die Reichweiten der implantierten Ionen sind im Abschnitt Meßergebnisse in Tabelle 2 zusammengestellt. Die Tiefenverteilung ist dabei nahezu rechteckig, wie an einem entfaltenen Sättigungsprofil (4 keV D) im Abschnitt Tiefenprofile gezeigt wird. Unter der Annahme, daß der Austausch bei Nachbeschuß mit einer anderen Ionenart durch reine Platzwechsellvorgänge hervorgerufen wird, ist zu erwarten, daß bei 16 keV  $^3\text{He}$  Sättigung und nachfolgendem 4 keV D Implantation die maximale Heliummenge pro eingeschossener Deuteriumdosis ausgetauscht wird. Denn für diese Reichweitenkombination kommt jedes nachgeschossene Deuteriumion innerhalb der heliumgesättigten Schicht zur Ruhe. Für die beiden anderen Kombinationen (8 keV  $^3\text{He}$ /4 keV D und 4 keV  $^3\text{He}$ /4 keV D) trifft das nicht zu, denn hier läuft ein Teil des nachgeschossenen Deuteriums in Tiefen, die nicht mit Helium gesättigt waren. Experimentell erhält man jedoch zu Beginn des Nachbeschusses einer heliumgesättigten Probe mit Deuterium praktisch immer etwa 0,19 reemittierte Heliumatome pro eingeschossenem Deuteriumatom, was sich in der gleichen Steigung der Austauschcurven für Helium zeigt (Abb. 8a-c, rechter Teil). Eine mögliche Erklärung ist, daß zu Beginn des Austausches nicht Platztauschvorgänge zwischen  $^3\text{He}$  und D

der dominierende Vorgang sind, sondern die energetische Aktivierung der implantierten Ionen in oberflächennahen Schichten durch den einlaufenden Ionenstrahl. Diese diffundieren danach zur Oberfläche und werden dort desorbieren. Diese strahlungsinduzierte Diffusion tritt auch an deuteriumgesättigten Proben auf, die mit Helium nachimplantiert wurden. Hier konnte für beide Kombinationen 4 keV D/8 keV  $^3\text{He}$  und 8 keV D/8 keV  $^3\text{He}$  beobachtet werden, daß die Proben bei Nachbeschuß mit  $^3\text{He}$  auch dann Reemission von Deuterium zeigten, wenn die Heliumkonzentration bereits ihren Sättigungswert erreicht hatte und für jedes eingeschossene  $^3\text{He}$ -Ion im Mittel ein  $^3\text{He}$ -Atom aus der Probe herausgelöst wurde (Abb. 9a-b, rechter Teil).

Die verschiedenen im Abschnitt "Aufsammelkurven" kurz diskutierten Modelle für das Aufsammeln und den Austausch von leichten Ionen in Festkörpern legen zugrunde, daß die vor- und nachimplantierten Ionen an derselben Art von Aufsammelplätzen gebunden werden und bei gesättigten Proben die nachimplantierten Ionen ideal mischen. Das bedeutet, daß die Wahrscheinlichkeit für die nachimplantierten Ionen, reemittiert zu werden, proportional zu ihrer lokalen Konzentration des Ortes, an dem sie zur Ruhe kommen, ist. Besonders die zweite Annahme ist für den gegenseitigen Austausch von  $^3\text{He}$  mit D nicht erfüllt, da der Austauschkoefizient (Zunahme der nachimplantierten Ionen/Abnahme der vorimplantierten Ionen) nicht von der Reichweite der nachimplantierten Ionen abhängt. Formal läßt sich die Abnahme der zuerst implantierten Ionen bei Nachbeschuß durch die andere Ionenart durch Annahme mehrerer Wirkungsquerschnitte für strahlungsinduzierte Diffusion und entsprechender Fraktionen der implantierten Menge, die mit diesen Wirkungsquerschnitten ausgetauscht werden, beschreiben. Man erhält dabei mehrere Parameter, die dann den experimentellen Werten angepaßt werden müssen. Es scheint jedoch physikalisch wenig sinnvoll, eine solche Beschreibung vorzunehmen, solange man nicht aus anderen Daten diese Parameter bestimmen kann.

### 6.3 Austauschkurven an ungesättigten Proben

Zeichnet man in die Austauschkurven von 4 keV D ( $2,9 \times 10^{17}$  D/cm<sup>2</sup>) und 8 keV He ( $0,59 \cdot 10^{17}$  <sup>3</sup>He/cm<sup>2</sup>) die normierten Aufsammelkurven der nachimplantierten Ionen (8 keV <sup>3</sup>He bzw. 4 keV D) ein, so fällt der Reemissionsbeginn der erstimplantierten Ionen mit dem Einsetzen der Reemission der nachimplantierten Ionen zusammen, die durch das Abbiegen der Aufsammelkurve gegeben ist (Abb. 10-11). Das heißt, der Reemissionsprozeß setzt erst ein, wenn nahezu alle Aufsammelzentren besetzt sind. Daraus kann man schließen, daß der Wirkungsquerschnitt von ungesättigten Aufsammelzentren für das Aufsammeln von Ionen, die innerhalb des bestrahlten Volumens diffundieren, genügend groß sein muß, um diese nicht zur Oberfläche gelangen zu lassen, solange nicht nahezu alle Aufsammelzentren besetzt sind. Aus dem im Abschnitt Aufsammelkurven durchgerechneten Modell erhält man dafür Wirkungsquerschnitte, die in der Größenordnung von  $\sigma \approx 10^{-17}$  cm<sup>2</sup> liegen.

### 6.4 Tiefenprofile

Die Tiefenauflösung der Kernreaktionsmethode ist im Anhang genauer diskutiert. Wie aus Abb. 20b (Anhang) ersichtlich, ist zum Beispiel die Tiefenauflösung für implantiertes Deuterium in einer Tiefe von 113 nm (Reichweite von 8 keV D) 69 nm. Damit erreicht die Tiefenauflösung die Größe der Implantationstiefe. Die gemessene Tiefenverteilungskurve wird also stark durch die Auflösung beeinflusst. Um eine Aussage über das wirkliche Tiefenprofil zu gewinnen, muß die gemessene Tiefenverteilung mit der Tiefenauflösung entfaltet werden. In einem hierzu verwendeten Rechenprogramm (FOLD) von W. Möller kann eine vorgegebene Verteilung mit der Tiefenauflösung gefaltet und mit der gemessenen Verteilung verglichen werden. Am Beispiel des Sättigungsprofiles von 8 keV D ergibt sich - wie Abb. 17 zeigt - eine gute Übereinstimmung mit der gemessenen Verteilung, wenn man annimmt, daß das

wirkliche Profil rechteckig ist. In Abb. 17a ist ein Rechteckprofil dargestellt. Es hat eine Breite von 115 nm und beginnt 5 nm innerhalb der Oberfläche. Mit der Tiefenauflösung der Meßmethode gefaltet, ergibt es eine Verteilung, die in Abb. 17b dargestellt ist. Abbildung 17c zeigt das gemessene Spektrum. In Abb. 17d sind das gemessene und das berechnete Spektrum übereinander gezeichnet. Die Differenzfläche zwischen beiden ist schraffiert.

Ein solches Rechteckprofil ist nur für Sättigungsverteilungen zu erwarten, da hier die statistischen Reichweiteverteilungen und damit tiefenabhängige Konzentration der implan-

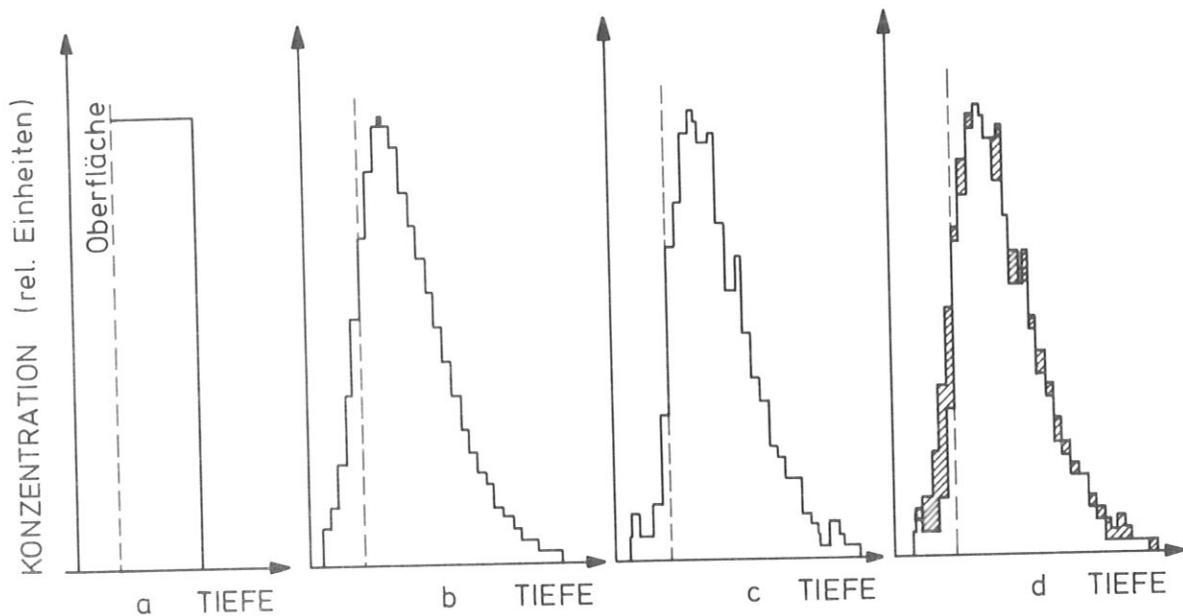


Abb. 17:

Vergleich eines mit der Tiefenauflösung gefalteten Rechteckprofils mit dem gemessenen Tiefenprofil (8 keV D)

- a) angenommenes Rechteckprofil (Reichweite 115 nm)
- b) Profil von Abb. 17a gefaltet mit der Tiefenauflösung (Anhang)
- c) gemessenes Tiefenprofil
- d) Überlagerung von Abb. 17b mit Abb. 17c. Die schraffierten Flächen entsprechen der Differenz zwischen beiden Profilen

tierten Ionen durch die hohen Beschußdosen in allen Tiefen durch die Sättigungskonzentration ersetzt werden. Für kleinere Beschußdosen, z.B.  $1 \cdot 10^{17}$  D/cm<sup>2</sup> bei 8 keV D ergeben sich angenähert Gaußverteilungen für die Konzentration als Funktion der Tiefe.

Die gemessenen Tiefenverteilungen zeigen sowohl für implantiertes Deuterium als auch für Helium, daß während der Nachimplantation mit der jeweils anderen Ionenart keine Diffusion außerhalb der nachimplantierten Tiefen auftritt. So zeigen die Kurven für implantiertes Helium (Reichweite 104 nm) für die Kombination (16 keV <sup>3</sup>He/4 keV D) bei Nachbeschuß mit Deuterium (Reichweite 76 nm) praktisch nur innerhalb der Reichweite des Deuteriums eine Abnahme der Konzentration. Die geringe Konzentrationsabnahme in Tiefen, die größer als die Reichweite des nachgeschossenen Deuteriums sind (Tiefenprofil D, Abb. 12c), wird wesentlich durch die Tiefenauflösung des Meßverfahrens vorgetäuscht. Das gleiche gilt für die Kombination 8 keV D/ 8 keV <sup>3</sup>He mit einer Reichweite von 60 nm für Helium und von 114 nm für Deuterium. Ist die Reichweite der nachimplantierten Ionen größer wie bei der Kombination (4 keV <sup>3</sup>He/4 keV D) mit einer Reichweite des Heliums von 43 nm und des Deuteriums von 76 nm, so erhält man eine gleichmäßige Abnahme der Heliumkonzentration mit zunehmender Deuteriumdosis über die gesamte Tiefe. Ein Diffundieren des Heliums während des Deuteriumnachbeschusses in größere Tiefen konnte nicht beobachtet werden. Dies läßt darauf schließen, daß selbst bei Vorhandensein von unbesetzten Leerstellen in größeren Tiefen, die durch den Nachbeschuß mit Deuterium entstehen, kein oder nur sehr wenig Helium in diese Tiefen diffundiert. Die im Abschnitt Auf-sammelkurven diskutierte, zur Oberfläche gerichtete Diffusion entlang einem Spannungsgradienten würde gerade ein solches Verhalten ebenfalls ergeben. Kanäle oder Risse in der Probe, die in Richtung Oberfläche verlaufen, würden dagegen eine Diffusion der Heliumatome in größere Tiefen nicht verhindern. Es scheint daher, daß die gerichtete Diffusion der implantierten Atome entlang eines Gradienten der wahrscheinlichere Prozeß ist.

### 6.5 Austauschkoeffizienten

Die Austauschkoeffizienten sind definiert als die Zunahme der aufgesammelten Menge der nachgeschossenen Ionen zur Abnahme der vorher implantierten Ionen, also als das Verhältnis der Steigungen der Austauschkurven gewichtet mit einem Faktor, der sich aus dem Verhältnis der Sättigungskonzentrationen  $\frac{m_{\text{He}}^{\text{sätt}}}{m_{\text{D}}^{\text{sätt}}} \approx \frac{1}{3}$  ergibt. Für heliumgesättigte Proben

zeigt sich dabei nach anfänglichem starkem Abfall ein Plateau, das für die Kombination 8 keV  $^3\text{He}$ /4 keV D eine Breite von  $\sim 8 \cdot 10^{17} \text{ D/cm}^2$  und bei 16 keV  $^3\text{He}$ /4 keV D eine Breite von  $\sim 1,0 \cdot 10^{18} \text{ D/cm}^2$  hat (Abb. 18a).

Die Plateauwerte liegen bei Werten  $\frac{\Delta n_{\text{D}}}{3 \Delta n_{\text{He}}}$  von 0.6 bis 0.7, was etwa einem Austauschverhältnis von Deuterium zu Helium von 2 entspricht. Dieses Verhältnis ergibt sich ebenfalls gerade, wenn man die Kovolumen von  $\text{D}_2$  und He betrachtet. Diese betragen /71/ für  $\text{H}_2$   $26,7 \text{ cm}^3/\text{Mol}$  und für He  $23,5 \text{ cm}^3/\text{Mol}$ .

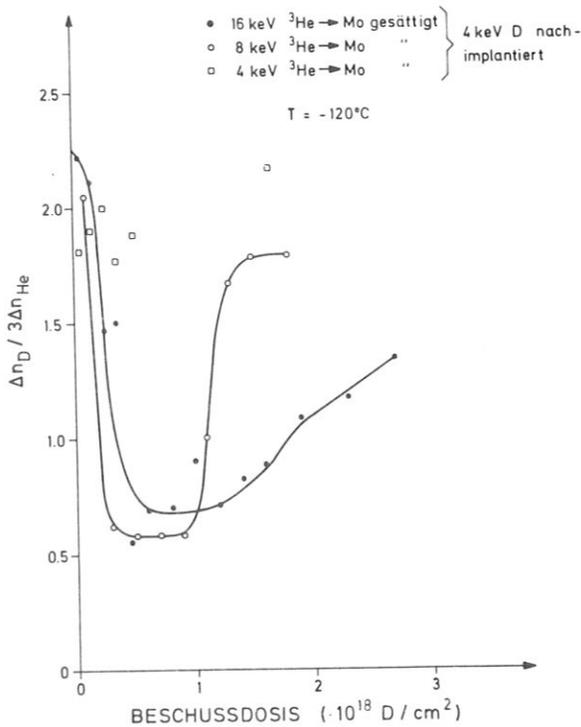


Abb. 18a:

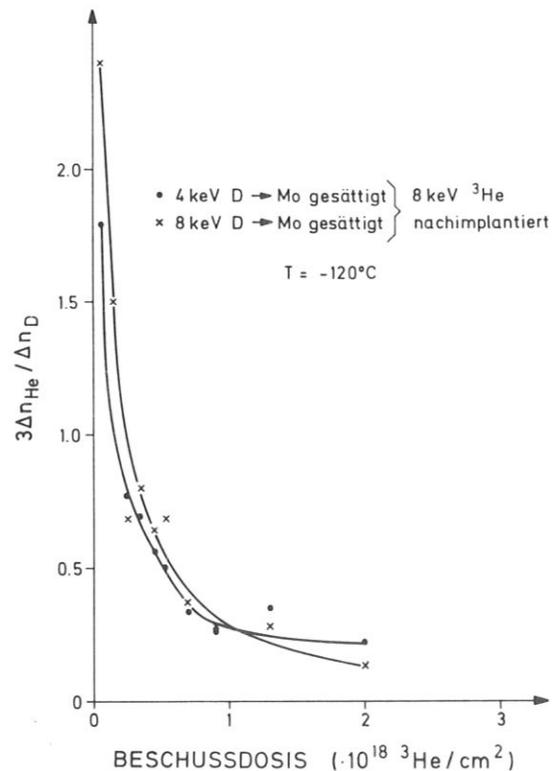


Abb. 18b:

Normierte Austauschkoeffizienten als Funktion der nachgeschossenen Dosis für verschiedene vor- und nachimplantierte Ionenarten und Ionenenergien.

Die um etwa 20 % größere Breite des Plateaus bei 16 keV He/4 keV D kommt dann daher, daß sich in diesem Falle die nachgeschossenen Ionen vollständig in dem vorimplantierten Gebiet befinden und diese nicht wie im Falle von 8 keV He/4 keV D eine etwa 25 % größere Reichweite haben. Wegen des Auftretens dieser Austauschverhältnisse kann man vermuten, daß hier die Atome in den von mehreren Autoren /17, 72, 73/ beobachteten kleinen Gasblasen ( $d \sim 2 \text{ nm}$ ) austauschen. Für die Kombination 4 keV  $^3\text{He}$ /4 keV D tritt dieses Plateau jedoch nicht auf. Betrachtet man hier die Reichweiten der vor- und nachimplantierten Ionen, so ergibt sich für die nachgeschossenen Deuteriumionen etwa die doppelte Reichweite wie für die Heliumatome. Das würde bedeuten, daß der Austausch in Blasen nur etwa mit dem Teil der eingeschossenen Ionen stattfinden könnte, deren Reichweiteprofile sich überlappen. Experimentell findet man jedoch keine Anzeichen für einen solchen Austausch.

Im Falle der deuteriumgesättigten Proben, die mit Helium nachimplantiert wurden, erhält man für die Austauschkoeffizienten in beiden Fällen einen stetigen Abfall mit zunehmender Austauschdosis (Abb. 18b). Die Gleichartigkeit beider Kurven läßt sich verstehen, da hier in beiden Fällen das vorher implantierte Deuterium eine größere Reichweite als das Helium hat, was für die nachimplantierten Heliumatome bedeutet, daß sie immer in Bereiche eingeschossen werden, die bereits mit Deuterium gesättigt waren. Würde hier ebenfalls ein Austausch in Blasen stattfinden, so wäre ein Plateau bei  $\frac{3 \Delta n_{\text{He}}}{\Delta n_{\text{D}}} = 1,5$  zu erwarten. Dies konnte experimentell nicht gefunden werden, was gegen die Existenz von Blasen, welche durch Deuteriumimplantation erzeugt wurden, spricht.

Der Austauschkoeffizient für deuteriumgesättigte Proben, die mit Helium nachimplantiert wurden, erreicht bei Austauschdosen von  $2 \cdot 10^{18} \text{ D/cm}^2$  Werte von 15 bis 20 ausgetauschten Deuteriumatomen pro in der Probe verbleibendem

Heliumatom. Diese Werte können nur erreicht werden, wenn eingeschossene Heliumatome (bei Sättigung), die ihrerseits wieder aus der Probe herausdiffundieren, dort Deuteriumatome energetisch anregen, die dann ebenfalls ausdiffundieren.

Die Zerstäubungsausbeute von Molybdän beträgt nach Messungen von /75/ bei 8 keV Heliumbeschuß  $\frac{n_{Mo}}{n_{He}} = 2,5 \cdot 10^{-2}$ . Das heißt, daß für jedes eingeschossene Heliumatom im Mittel  $2,5 \cdot 10^{-2}$  Molybdänatome zerstäubt werden, mit denen gleichzeitig implantierte Deuteriumatome von der Oberfläche abgetragen werden. Dieser Prozeß kann also nicht für die hohen Austauschwerte von  $\frac{\Delta n_D}{3\Delta n_{He}} = 5 - 7$  in Betracht kommen.

#### 6.6 Abschätzung des Druckes in den Gasblasen

Legt man dem bei den Austauschkoeffizienten Abb. 18a beobachteten Plateau einen Austausch der Atome in Gasblasen zugrunde, wie unter Punkt 6.5 näher diskutiert, so kann unter Zugrundelegung einer Gasgleichung, die für Drücke im Kilobar-Bereich noch gültig ist, eines mittleren Blasen volumens und einer gemessenen Blasendichte bei bekannter Gasmenge der Druck abgeschätzt werden. Aus der Plateaubreite der Austauschkoeffizienten erhält man über die Austauschkurven Abb. 18a, die Menge des in Blasen ausgetauschten Heliums. Für die Kombination 8 keV  $^3\text{He}/4$  keV D beträgt diese Menge etwa  $1,05 \cdot 10^{17} \text{ } ^3\text{He}/\text{cm}^2$  und für 16 keV  $^3\text{He}/4$  keV D etwa  $1,15 \cdot 10^{17} \text{ } ^3\text{He}/\text{cm}^2$ . Experimentelle Werte für das Blasengitter wurden von /17/ gemessen. Die Gitterkonstante beträgt danach 3,7 nm und der Blasendurchmesser 2 nm. Daraus kann das Gasvolumen abgeschätzt werden. Das implantierte Volumen beträgt dabei bei einer Tiefe von 60 nm (8 keV  $^3\text{He}$ ) und einer Strahlfläche von  $1,77 \text{ cm}^2$ ,  $V = 1,06 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^3$ .

Für das Gasblasenvolumen ergibt das  $6.57 \cdot 10^{-7} \text{ cm}^3$ . Daraus folgt für das Volumen pro Heliumatom  $3.53 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^3$  für 8 keV  $^3\text{He}/4 \text{ keV D}$ . Bei 16 keV  $^3\text{He}/4 \text{ keV D}$  ergeben sich ähnliche Werte. Aus der Gleichung von Carnahan und Starling /76/, die das Eigenvolumen von Helium aus einem Harte-Kugel-Gasmodell ableiten, erhält man für das Eigenvolumen pro Heliumatom  $V_{\text{He}} = 7,31 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^3$ .

Das so abgeschätzte Eigenvolumen eines Heliumatoms wäre damit nur etwa halb so groß wie das von Carnahan und Starling berechnete. Diese Abschätzung führt zu Gasdrücken, die im Bereich von Megabar liegen. Diese Drücke können aber vom Metallgitter nicht aufgenommen werden. Eine Möglichkeit, die experimentellen Ergebnisse zu deuten, besteht darin, daß man die Existenz weiterer kleinerer, im Elektronenmikroskop nicht mehr sichtbarer Blasen annimmt, die das restliche Helium beinhalten und somit das pro Heliumatom zur Verfügung stehende Volumen entsprechend vergrößern.

Eine andere Möglichkeit, den Gasdruck in dem bestrahlten Volumen zu bestimmen, besteht in der Messung der Volumenzunahme (Swelling). Mazey /74/ erhielt bei 36 keV He-Beschuß auf Molybdän ungefähr 10 %. Daraus folgt ein Atomvolumen für ein implantiertes Heliumatom von  $5.7 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^3$ , welches ebenfalls kleiner als das berechnete Harte-Kugel-Volumen ist und damit zu unrealistisch hohen Drücken führt. Erst Volumenzunahmen, die größer als etwa 15 % sind, führen zu realistischen Drücken, die dann im Bereich von Kilobar liegen.

Bei einer genaueren Abschätzung müßte auch berücksichtigt werden, daß das Harte-Kugel-Modell ebenfalls eine Näherung darstellt und somit für Atomvolumen von He, die in die Nähe des Eigenvolumens kommen, zu hohe Drücke ergibt.

### 6.7 Summenkonzentration

Die annähernde Konstanz der gewichteten Summenkonzentration  $3 n_{\text{He}} + n_{\text{D}}$  (Abb. 19) zeigt, daß die implantierten Ionen (D und  $^3\text{He}$ ) bei Sättigungskonzentrationen miteinander wechselwirken. Diese Wechselwirkung kann sowohl direkt über das Potential zwischen  $^3\text{He}$  und D erfolgen, oder über Gitterverzerrungen, welche ein implantiertes  $^3\text{He}$ - oder D-Ion in seiner Umgebung verursacht. Die anfängliche Zunahme der Summenkonzentration deutet darauf hin, daß zu Beginn der Nachimplantation zuerst noch zusätzliche Aufsammlerzentren besetzt werden und man eine bestimmte Mindestkonzentration von nachimplantierten Ionen braucht, um den Wechselwirkungsprozeß

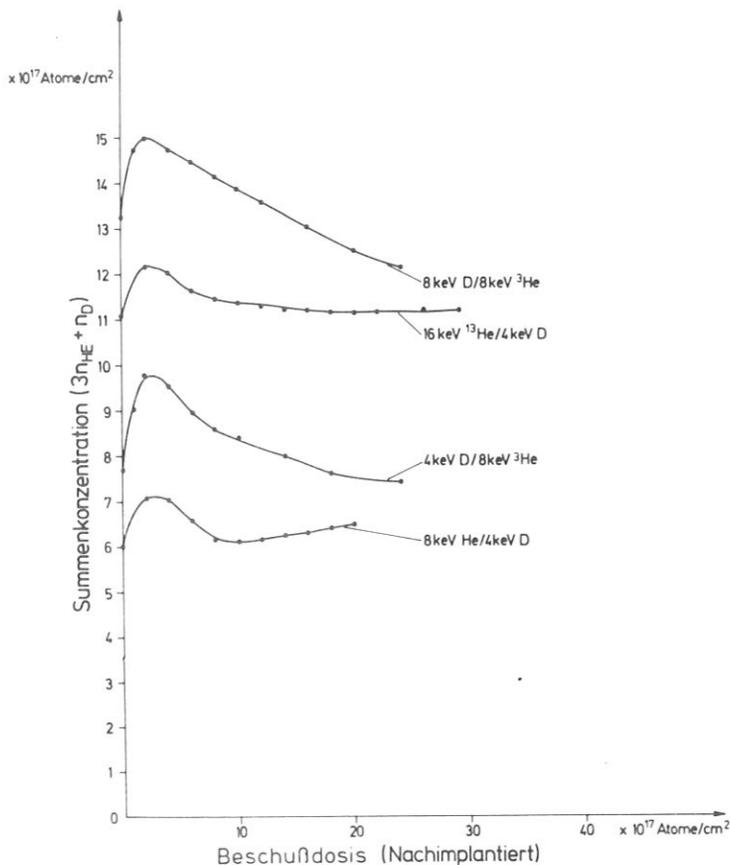


Abb. 19: Gewichtete Summenkonzentration für verschiedene Kombinationen und Energien von vor- und nachimplantierten Ionen als Funktion der nachgeschossenen Dosis.

einzuleiten. Der kontinuierliche Abfall der Kurven (4 keV D/8 keV  $^3\text{He}$ ) und (8 keV D/8 keV  $^3\text{He}$ ) zu höheren nachimplantierten Dosen bis unter das Anfangsniveau wird wesentlich durch Zerstäubung der oberen Schichten der Probe durch die nachimplantierten  $^3\text{He}$ -Ionen verursacht. Für nachimplantiertes Deuterium tritt dieser Effekt nicht auf, da hier die Zerstäubungsrate etwa um eine Größenordnung kleiner ist als bei  $^3\text{He}$ .

Die Summenkonzentration für die Kombination (4 keV  $^3\text{He}$ /4 keV D) ist in Abb. 19 nicht eingezeichnet, da hier die Reichweite der nachimplantierten Ionen etwa doppelt so groß ist als die der Erstimplantierten. Das bedeutet, daß durch die Nachimplantation das bestrahlte Volumen etwa verdoppelt wird und somit die Summenkonzentration sich ebenfalls stark erhöht. Konstant bleibt die Summenkonzentration hier nur bis zu der Tiefe, in welcher sich beide Tiefenprofile überlappen.

#### 6.8 Thermische Desorption von implantiertem Deuterium aus Molybdän

Unter der Annahme, daß Deuterium bei  $T = -110^\circ \text{C}$  in Mo an Leerstellen gebunden und auf Zwischengitterplätzen frei beweglich ist, wie es Berechnungen von Bisson et al. /58/ ergeben, erhält man unter Zugrundelegung des im Abschnitt Aufsammlercurven durchgerechneten Modells im Mittel etwa 1 - 3 Diffusionssprünge von D-Atomen aus Leerstellen, bis die Oberfläche erreicht wird. Die Sprungrate eines Ions ist gegeben durch Gleichung (12):

$$\frac{df}{dt} = \Gamma = v_0 e^{-\frac{E_A}{kT}} \quad (12)$$

dabei bedeuten  $\Gamma$  die Sprünge pro Zeiteinheit,  $v_0$  die Schwingungsfrequenz der Ionen ( $v_0 = 10^{14}$  Hz),  $E_A$  die Aktivierungsenergie und  $kT$  die thermischen Energien bei der Temperatur  $T$ .

Integriert man Gleichung (12) für  $T = \text{const}$  nach der Zeit, so ergibt sich:

$$f = v_0 t e^{-\frac{E_A}{kT}} + C \quad (30)$$

$C$  ist eine Integrationskonstante und kann hier gleich null gesetzt werden.

Gleichung (30) nach  $E_A$  aufgelöst, ergibt:

$$E_A = kT \ln \frac{t v_0}{f} \quad (31)$$

Setzt man in Gleichung (31) für  $t = 1000 \text{ sec}$  (das ist etwa die Zeit zwischen Beginn und Ende des Diffusionsvorgangs in Abb. 13, wenn man eine Temperaturerhöhung von  $1,2^\circ \text{ C/min}$  annimmt)  $v_0 = 10^{14} \text{ Hz}$  und  $T = -60^\circ \text{ C}$  und  $f = 2$ , so erhält man:

$$E_A = 0,7 \text{ eV.}$$

Nimmt man jedoch an, daß sich das Deuterium auf Zwischen-gitterplätzen befindet, so ergibt sich eine wesentlich größere Anzahl von Sprüngen (von denen jeder thermisch aktiviert werden muß) für ein Ion, bis es die Oberfläche erreicht. Die mittlere Reichweite  $s$  eines Ions nach  $f$  Sprüngen ist bei ungerichteter Diffusion durch Gleichung (27) gegeben.

$$\sqrt{s}^2 = \sqrt{f} \cdot a \quad (27)$$

Darin bedeuten  $f$  die Sprungzahl und  $a$  die Sprungweite (Gitterkonstante). Einsetzen von Gleichung (27) in Gleichung (31) und Umformen ergibt:

$$E_A = kT \ln \frac{t a^2 v_0}{s^2} \quad (32)$$

Am Beispiel von 4 keV D→Mo (T impl.  $-110^{\circ}$  C) kann dann die Aktivierungsenergie  $E_A$  der implantierten D-Atome abgeschätzt werden. Wählt man für t etwa die maximale Zeit zwischen Beginn und Ende des Diffusionsvorgangs  $t = 1000$  sec und für  $T = -60^{\circ}$  C als mittlere Temperatur, bei der die implantierte Menge etwa zur Hälfte ausdiffundiert ist und die mittlere Reichweite der Ionen zu  $s = 36,0$  nm (4 keV D → Mo), so erhält man für  $E_A$  nach Gl. (32):

$$E_A = 0,53 \text{ eV.}$$

Nimmt man an, daß die Ionen entlang eines Spannungsgradienten mehr oder weniger geradlinig zur Oberfläche diffundieren, so kann Gl. (27) ersetzt werden durch Gl. (33)

$$s = f \cdot a \tag{33}$$

Eingesetzt in Gl. (31) ergibt sich nach Einsetzen der oben genannten Zahlenwerte für  $t = 1000$  sec.

$$E_A = 0,63 \text{ eV.}$$

Ein anderes Verfahren, das die lineare Temperaturerhöhung der Probe während der Desorption und die Implantationstiefe berücksichtigt, ist von D. Edwards /77/ angegeben. Als Ergebnis erhält man mit der Annahme, daß die Desorption eine Reaktion erster Ordnung ist, folgenden Ausdruck:

$$E_A = kT \ln \frac{T^2 \nu_0 k}{\beta E_A p^2} \tag{34}$$

Darin bedeuten k die Boltzmannkonstante, T die absolute Temperatur, bei der die größte Steigung der Desorptionskurve auftritt, die Schwingungsfrequenz  $\nu_0$  ( $10^{14}$  Hz),  $\beta$  die Temperaturerhöhung pro Zeit,  $E_A$  die Aktivierungsenergie und p die mittlere Tiefe (gemessen in Atomabständen des Wirtsgitters), aus der die Ionen zur Oberfläche diffundieren. Gleichung (34) kann entweder graphisch, oder durch Probieren mehrerer Werte für E, bis Selbstkonsistenz erreicht ist, gelöst werden.

Für 4 keV D Mo erhält man für  $T = 213 \text{ K}$ ,  $\nu_0 = 10^{14} \text{ Hz}$ ,  
 $\beta = 1,2 \text{ K/min}$ ,  $P = \frac{36 \text{ nm}}{0,25 \text{ nm}} = 144$

$$E_A = 0,51 \text{ eV.}$$

A.E. Goretsky /56/ berechnete für D in Mo aus Messungen der Adsorptions- und Lösungswärmen die Aktivierungsenergie für D zu 0,8 eV.

S.K. Erents /53/ berechnete aus thermischen Desorptionsmessungen von implantiertem D in Mo ( $E_0 = 7 \text{ keV}$  und  $14 \text{ keV}$ ) bei Annahme eines Desorptionsprozesses zweiter Ordnung eine Aktivierungsenergie von 0,51 - 0,6 eV und erhielt bei Annahme von  $\nu_0 = 10^{13} \text{ Hz}$  eine gute Anpassung an die gemessenen Desorptionskurven. Die bei Annahme eines Prozesses erster Ordnung berechneten Aktivierungsenergien betragen nur 0,29 - 0,36 eV. Dieses Ergebnis scheint jedoch zweifelhaft, da man hier zusätzlich Vibrationsfrequenzen der implantierten Ionen von  $\nu_0 = 10^7 \text{ Hz}$  annehmen muß, um die gemessenen Kurven anzupassen. Verschiedene andere Werte aus der Literatur /57/ ergeben für die Aktivierungsenergie  $E_A$  Werte zwischen 0,4-0,96 eV. Die eingangs beschriebenen einfachen Abschätzungen der Aktivierungsenergie liefern also Ergebnisse, die mit den Resultaten anderer Autoren übereinstimmen. Die Frage, ob das implantierte Deuterium auf Zwischengitterplätzen oder Leerstellen sitzt, kann aus den Desorptionsmessungen nicht beantwortet werden, da sich die Aktivierungsenergien, die man für beide Fälle errechnet, (Diffusion zwischen Leerstellen oder Diffusion über Zwischengitterplätze) nicht wesentlich unterscheiden und innerhalb von den in der Literatur angegebenen gemessenen Werten liegen.

Die mit Helium (8 keV) bis zur Sättigung implantierten Proben, in die verschiedene Dosen von D nachimplantiert wurden, zeigen diese Desorptionsstufe bei  $-60^\circ \text{ C}$  nicht. Daraus kann man schließen, daß hier das Deuterium durch den vorangegangenen Heliumbeschuß an Aufsammelzentren mit höherer Bindungsenergie sitzt. Ähnliche Ergebnisse wurden bei Raumtemperatur von Böttiger /78/ und Picraux /79/ gefunden.

## 6.9 Zusammenfassende Diskussion

In ausgeglühten polykristallinen Molybdänplättchen (Durchmesser 6 mm, Dicke 0.7 mm) wurden Deuterium- und Helium-Ionen mit Energien von 4 - 16 keV bei einer Temperatur von  $T = -110^{\circ} \text{C}$  implantiert. Einige Proben wurden mit Helium bzw. Deuterium bis zur Sättigung implantiert und dann mit Deuterium bzw.  $^3\text{He}$  nachbeschossen. Andere Proben wurden nicht bis zur Sättigung mit Deuterium oder  $^3\text{He}$  vorimplantiert und ebenfalls mit  $^3\text{He}$  bzw. Deuterium nachbeschossen. Dabei wurden die aufgesammelten Mengen und Tiefenverteilungen (Tiefenprofile) der zuerst- und nachimplantierten Ionenart mit der Kernreaktion  $^3\text{He}(d,p)^4\text{He}$  bestimmt. Parameter war die Einschußenergie und damit die Reichweite der Ionen. Mehrere Proben wurden nach dem Beschuß aufgewärmt und dabei die Abnahme der implantierten Menge als Funktion der Temperatur gemessen.

Bei Beschuß einer neuen Probe erhält man zunächst ein vollständiges Aufsammeln der implantierten Ionen mit der Beschußdosis. Bei höherer Beschußdosis setzt Reemission der implantierten Ionen von der Probe ein und schließlich wird Sättigung erreicht, d.h. im Mittel wird für jedes eingeschossene Ion ein Ion von der Probe reemittiert. Alle gemessenen Aufsammelkurven lassen sich durch eine normierte Kurve darstellen. Der physikalische Mechanismus für das Aufsammeln von  $^3\text{He}$  und Deuterium in Mo läßt sich durch mehrere Modelle beschreiben, die jedoch z.T. unrealistische Parameter enthalten. Daher wurde ein eigenes Modell durchgerechnet, das im Abschnitt "Aufsammelkurven" diskutiert wird und dessen Ergebnisse mit den Meßkurven gut übereinstimmen.

Aus dem Modell folgt, daß die Diffusion von implantierten Ionen hauptsächlich in Richtung der Probenoberfläche erfolgt. Aus der Möglichkeit einer normierten Darstellung für alle gemessenen Aufsammlercurven kann man unter Zugrundelegung des Modells schließen, daß außer dem Helium auch das implantierte Deuterium an Leerstellen gebunden ist.

Bei Nachimplantation von  $^3\text{He}$  in deuteriumgesättigte Proben und umgekehrt ergibt sich, daß die Abnahme der erstimplantierten Ionen als Funktion der Beschußdosis der nachimplantierten Ionen unabhängig ihrer Implantations-tiefe ist. Daraus kann gefolgert werden, daß der Austausch beider Ionenarten durch strahlungsinduzierte Diffusion in oberflächennahen Schichten erfolgt. Diese strahlungsinduzierte Diffusion ist in dem oben erwähnten Modell nicht enthalten.

Proben, die nicht bis zur Sättigung vorimplantiert sind, zeigen bei Nachimplantation mit der jeweils anderen Ionenart, daß erst dann eine Abnahme der erstimplantierten Ionen eintritt, wenn die Aufsammlercurven der nachimplantierten Ionen ebenfalls abbiegen und damit Reemission einsetzt. Legt man strahlungsinduzierte Diffusion zugrunde, so folgt daraus, daß implantierte Ionen, die durch den nachfolgenden Beschuß genügend Energie erhalten haben, um ihre Aufsammlerplätze (Leerstellen) verlassen zu können, sofort wieder auf unbesetzten Plätzen eingefangen werden, solange nicht nahezu alle Plätze besetzt sind und die Probe fast gesättigt ist.

Thermische Diffusion der implantierten Ionen aus Auf-sammelzentren (Leerstellen) konnte bei der Versuchstemperatur von  $T = -110^{\circ} \text{C}$  nicht beobachtet werden. Aus den gemessenen Tiefenprofilen und dem gerechneten Aufsammelmodell kann man schließen, daß die Wanderungsrichtung von implantierten Ionen infolge strahlungsinduzierter Diffusion zur Probenoberfläche gerichtet ist. Am Beispiel des Tiefenprofils (8 keV D) bei Sättigungskonzentration wurde gezeigt daß dieses einem äquivalenten Rechteckprofil entspricht, das mit der Tiefenauflösung der Meßmethode gefaltet wird. Daraus kann man schließen, daß bei Sättigung die Konzentrationsprofile der implantierten Ionen nahezu rechteckig sind. Die Sättigungskonzentrationen für Helium und Deuterium betragen nahezu unabhängig von der Implantationsenergie für  $^3\text{He}$   $n_{\text{He}}/n_{\text{Mo}} = 0,5$  und für D etwa  $n_{\text{D}}/n_{\text{Mo}} = 1,5$ . Dabei bedeutet  $n_{\text{Mo}}$  die Atomdichte von Molybdän und beträgt  $n_{\text{Mo}} = 6,4 \cdot 10^{22}$  Atome/cm<sup>2</sup>. Addiert man die aufgesammelten Mengen der erst- und nachimplantierten Ionen und wichtet die Beiträge entsprechend den Sättigungskonzentrationen der einzelnen Ionenart ( $3 n_{\text{H}} \hat{=} 1 n_{\text{D}}$ ) zu der Summe  $3n_{\text{He}} + n_{\text{D}}$ , so ergibt sich für gesättigte Proben, daß diese nahezu konstant ist. Dies läßt auf intensive Wechselwirkung beider Ionenarten schließen. Proben, die bis zur Sättigung mit Deuterium (4 keV) implantiert wurden, zeigten bei isochronem Aufwärmen mit etwa  $1,2^{\circ} \text{C}/\text{min}$  bei einer mittleren Temperatur von  $-60^{\circ} \text{C}$  ein starkes Ausdiffundieren des implantierten Deuteriums. Daraus kann die Bindungsenergie des Deuteriums in Molybdän abgeschätzt werden. Man erhält dafür Werte von etwa 0,5 - 0,7 eV. Dieser Wert liegt mit den gerechneten Werten von Bisson et al. /58/ ( $E_{\text{A}} = 0,3 \text{ eV}$ ) für die Aktivierungsenergie von Deuterium an Leerstellen in der gleichen Größenordnung.

A N H A N G

Tiefenauflösung

Im Idealfall (Gl. 13) gibt es eine eindeutige Zuordnung zwischen der Energie  $E_1$  des auslaufenden Teilchens und der Tiefe  $x$  des Entstehungsortes. Die erreichbare Tiefenauflösung  $\Delta x$  hängt dann nur von der Energieauflösung  $\Delta E$  des Detektors (Gl. 15) ab. Abweichend davon gibt es mehrere Effekte, welche die tatsächlich erreichbare Tiefenauflösung wesentlich gegenüber dem Idealfall verschlechtern. Nachfolgend werden die einzelnen Effekte kurz diskutiert.

a) Energieauflösung des Oberflächen-Sperrschicht-Detektors

Die Energieauflösung der verwendeten Halbleiterzähler beträgt für Helium bei einer Energie von 3 MeV etwa 20 keV.

b) Einfluß der Streugeometrie, der Detektorapertur, des Analysestrahldurchmessers und der Oberflächengüte auf die Auflösung

Der Einfluß der Streugeometrie auf die Tiefenauflösung wird durch den Faktor  $k$  (Gl. 13) bestimmt. Dieser Faktor ergibt sich aus der Kernreaktionskinematik /80, 81/ und nimmt für Streuwinkel  $\theta$ , die größer als etwa  $80^\circ$  sind, negative Werte an. Beide Terme in Gl. (14) haben dann entgegengesetzte Vorzeichen und kompensieren sich teilweise. Im Grenzfall können sich beide Terme nahezu vollständig kompensieren, wie das bei implantiertem Deuterium in Molybdän und Streuwinkeln von  $\theta = 130^\circ - 150^\circ$  ( $\beta = 180^\circ - \theta$ ) der Fall ist (Abb. 20a). In diesem Bereich divergiert die Tiefenauflösung und die Methode ist dann ungeeignet zur Bestimmung von Tiefenprofilen.

Die endliche Detektorapertur bewirkt, daß auslaufende Teilchen aus etwas verschiedenen Tiefen  $x$  und verschiedenem Streuwinkel  $\theta$ , die gleiche Weglängen im Festkörper zurücklegen, mit nahezu gleicher Energie den Festkörper verlassen und im Detektor nachgewiesen werden. Es kann aus der Teilchenenergie also nur innerhalb eines Intervalls  $\Delta x$  auf den Reaktionsort geschlossen werden.

Der endliche Strahldurchmesser des Analysestrahls führt zu etwas verschiedenen Streuwinkeln bezüglich des Reaktionsortes der Kernreaktion, und damit zu einer Änderung des Faktors  $k$  in Gl. (13).

Die Oberflächenstruktur der Probe vermindert ebenfalls die erreichbare Auflösung. Gleichung (13) gilt nur für völlig "glatte" Oberflächen, d.h. die Oberflächenrauigkeit soll klein gegen die Implantationstiefe sein. Wölbt sich bei hohen Beschußdosen die Oberfläche teilweise auf (Blister), so legen Teilchen, die unter flachen Winkeln  $\theta$  auslaufen, verschieden lange Wege in der Probe zurück, je nachdem, an welchem Ort innerhalb des Analysierfleckes sie entstehen.

c) Winkel "Straggling"

Beim Durchlaufen der Probe werden die Ionen durch Mehrfachstreuprozesse an Elektronen und Atomen aus ihrer ursprünglichen Bahn abgelenkt, was zu einer Strahlaufweitung für die ein- und auslaufenden Ionen führt. Diese Aufweitung bedingt eine Bahnänderung der Ionen, besonders, wenn längere Wegstrecken im Festkörper zurückgelegt werden. Dies führt wiederum zu einer Unschärfe in der Ortsbestimmung.

d) Energie "Straggling"

Wegen des statistischen Charakters der Stöße der Ionen mit den Metallelektronen kommt es zu einer Energieverbreiterung der einlaufenden Ionen mit zunehmender Tiefe. Das heißt,

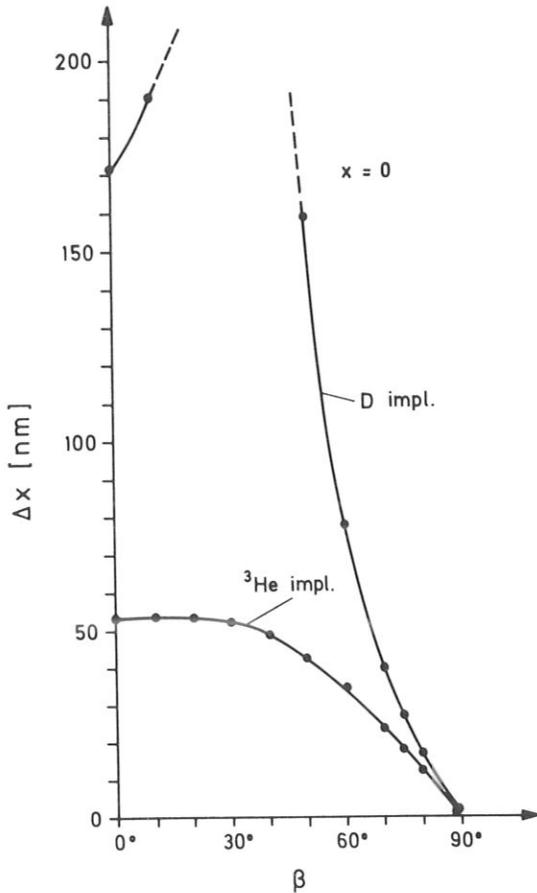


Abb. 20a:

Gerechnete Gesamttiefenauflösung  $\Delta x$  als Funktion des Detektorwinkels  $\beta$  der Kernreaktionen  $^3\text{He}(d,p)^4\text{He}$  bzw.  $D(^3\text{He},p)^4\text{He}$  in Mo bei senkrechtem Einschuss (Abb. 3). Parameter ist die Implantationstiefe  $x$  ( $x=0$ ).

Eingabeparameter sind:

Energieauflösung (Detektor)

$$\Delta E = 20 \text{ keV}$$

Raumwinkel (Detektor) =

$$\Delta \Omega = 1.45 \cdot 10^{-4} \text{ sr}$$

Strahldurchmesser 1 mm

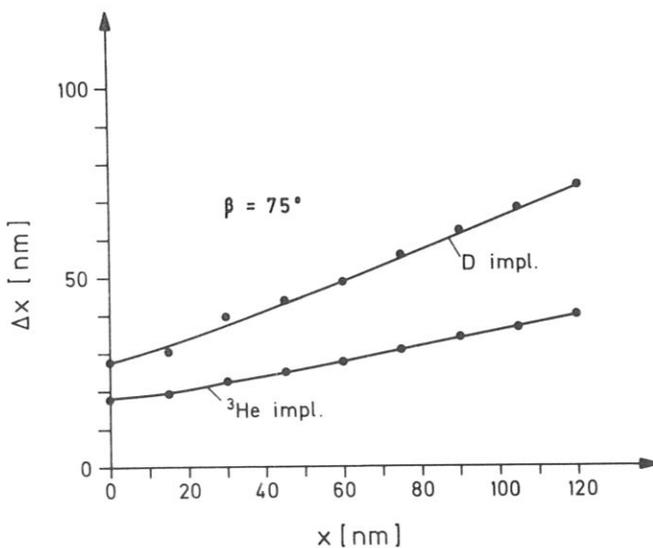


Abb. 20b:

Gerechnete Gesamttiefenauflösung  $\Delta x$  als Funktion der Implantationstiefe  $x$  für die Kernreaktionen  $^3\text{He}(d,p)^4\text{He}$  bzw.  $D(^3\text{He},p)^4\text{He}$  bei senkrechtem Einschuss (Abb. 3). Parameter ist der Detektorwinkel  $\beta$  ( $\beta = 75^\circ$ ). Eingabeparameter wie in Abb. 20a

einer bestimmten Tiefe  $x$  kann keine scharfe Energie  $E$ , sondern ein Energieintervall  $E \pm \Delta E$  zugeordnet werden.

Bei größeren Implantationstiefen  $x > 200$  nm nehmen die unter c) und d) genannten Beiträge stark zu und überwiegen gegenüber allen anderen Termen, für  $\theta = 105^\circ$  und senkrechten Einschub. Die einzelnen Beiträge zur Tiefenauflösung sind statistisch nicht korreliert und tragen daher als Terme einer quadratischen Summe zur Gesamtauflösung bei. Die Gesamtauflösung und die Einzelbeiträge wurden in einem Computerprogramm von W. Eckstein für verschiedene Streuwinkel und Implantationstiefen berechnet. Die erzielbare gesamte Tiefenauflösung ist als Funktion des Streuwinkels und der Implantationstiefe in Abb. (20a - 20b) dargestellt.

LITERATUR

- /1/ J. Plücker, Pogg. Ann. 105, 84 (1958)
- /2/ E. Pietsch, Ergebn. exakt. Naturw. 5, 213 (1926)
- /3/ H.Eubank et al., Nucl.Fusion Supplement Vol.1, 167 (1979)
- /4/ W. Eckstein, H. Verbeek, IPP-Report 9/32 (1979), Max-Planck-Institut für Plasmaphysik, 8046 Garching b. München
- /5/ McCracken, P.E. Stott, Nucl. Fusion 19, 889 (1979)
- /6/ G.Dearnely, J.H. Freeman, R.S. Nelson and J. Stephen, Ion Implantation Series Defects in crystalline solids, Vol. 8, North Holland publ. company 1973
- /7/ Carter, G., J.S. Colligon, Ion bombardment of solids, Heinemann, London 1968
- /8/ G.M. McCracken, J.H.C. Maple, Report CLM-P118 (1966) Culham Laboratory, Culham, Abingdon, Berkshire
- /9/ R.Behrisch, J.Böttiger, W. Eckstein, J.Roth and B.M.U.Scherzer, J.Nucl.Mat. 56,365 (1975)
- /10/ R.S.Blewer, R.Behrisch, B.M.U.Scherzer, and R.Schulz, J.Nucl.Mat. 76 & 77, 305 (1978)
- /11/ Nikurudse-Ulbrich, Das Zwischenstoffsystem Gas-Metall Verlag R.Oldenburger München 1950
- /12/ G.Alefeld, J.Völkl, Hydrogen in Metals Topics in applied physics, Vol. 28-29 Springer-Verlag Berlin-Heidelberg -New York 1978
- /13/ G.Alefeld, Phys.Stat.Sol. 32,67 (1969)
- /14/ W.M.Mueller, J.P. Blackedge, G.G. Libowitz, Metal Hydrides Academic Press, New York and London 1968
- /15/ R.Seeliger, Die Naturwissenschaften 30/31,461 (1942)
- /16/ R.Behrisch, J.Böttiger, W.Eckstein, U.Littmark, J.Roth,B.M .U.Scherzer, Appl.Phys.Lett., Vol.27, No.4 199 (1975)
- /17/ S.L. Sass, B.L. Eyre, Phil.Mag.27,1447 (1973)
- /18/ P.B.Johnson, D.J.Mazey, Nature 276,595(1978)
- /19/ G.Debras, J.M.Gilles, A.A.Lucas, Phys.State Sol.a 51, 559 (1979)

- /20/ P.B. Johnson, D.J. Mazey, UKAEA, Report AERE R 9685  
Harwell, Oxfordshire, England, OX 11 ORA
- /21/ S.K. Das and M.Kaminsky, in Radiation Effects on  
Solid Surfaces, ed.by M.Kaminsky, Adv.in Chemistry  
Series, Vol.158, Am.Chem.Soc.Wash., 1976, Ch.5
- /22/ B.M.U.Scherzer, wird veröffentlicht
- /23/ J.Roth, B.M.U.Scherzer, R.Behrisch, P.Børgesen,  
Nucl.Instr.and Meth.149, 53 (1978)
- /24/ N.Bohr, Mat.Fys.Medd.Dan.Vid.Selsk 18, 8 (1948)
- /25/ E.Fermi, G.Teller, Phys.Rev.72,399 (1947)
- /26/ J.Lindhard, M.Scharff. Phys.Rev. 124, 128 (1961)
- /27/ H.A.Bethe, Ann. Phys.5,325 (1930)
- /28/ F.Bloch, Ann.Phys.16,285 (1933)
- /29/ J.Lindhard, Mat.Fys.Medd.Dan.Vide Selsk 28,18 (1954)
- /30/ H.H.Andersen and J.F.Ziegler, Hydrogen stopping  
powers and ranges in all elements, vol.3, Pergamon  
Press, New York 1977
- /31/ J.F.Ziegler, Helium stopping powers and ranges in all  
elements, Vol.4 Pergamon Press, New York 1977
- /32/ O.S.Oen and M.T.Robinson, J.Nucl.Mat. 76/77, 370 (1978)
- /33/ L.G.Haggmark and J.P.Biersack, J.Nucl.Mat.(wird veröff.)
- /34/ J.Lindhard, Mat.Phys. Medd.Dan.Vid.Selsk 34,19 (1965)
- /35/ G.Leibfried, Bestrahlungseffekte in Festkörpern,  
Teubner Verlag, Stuttgart 1965
- /36/ R.S.Nelson, E.W. Etherington, M.F.Smith, U.K.A.E.A.  
eport TR6 2152 (D) , (1972)
- /37/ H.G.Kinchin, R.S.Pease, Reports on Progress in Physics 18, 1  
(1955)
- /38/ H.Peisl, Physik in unserer Zeit 2, 37 (1978)

- /39/ C.M. Braganza, S.K. Erents, E.. Hotston and G.M.McCracken, J.Nucl. Mat. 76 & 77, 298 (1978).
- /40/ Ch.Weißmantel, C.Hamann, Grundlagen der Festkörperphysik, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York 1979
- /41/ Ch.Kittel, Einführung in die Festkörperphysik, R.Oldenburg Verlag, München, Wien, 3.Aufl. 1973
- /42/ P.A. Redhead Vacuum 203, (1962)
- /43/ E.V. Kornelson, Radiat.Eff.13, 227 (1972)
- /44/ S.K.Erents, Proc.VIII SOFT, Nordwijkerhout, June 17-21 895 (1974)
- /45/ B.M.U. Scherzer, H.L. Bay, R.Behrisch, P.Børgesen, and J.Roth, Nucl.Instr. and Meth.157,75 (1978)
- /46/ R.A.Langley, Rad.Eff.and Tritium Techn. for Fusion Reactors (eds.J.Watson and F.W.Wiffen, Oak Ridge, 158, (1976)
- /47/ O.Meyer, G.Linker, F.Käppeler, Ion Beam Surface Layer Analysis, Vol.2, Plenum Press, N.Y.-London 1976
- /48/ J.L.Yarnell, R.H. Lovberg and W.R. Stratton, Phys.Rev. 90,292 (1953)
- /49/ Manfred von Ardenne, Tabellen der Elektronenphysik, Ionenphysik und Übermikroskopie Bd.1, VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften Berlin 1956
- /50/ B.M.U.Scherzer, R.Behrisch, W.Eckstein, U.Littmark, J.Roth, M.K. Sinha, J.Nucl.Mat. 63,100 (1976)
- /51/ S.A.Cohen and G.M.McCracken, J.Nucl.Mat. 89, 157 (1979)
- /52/ W.D.Wilson, R.A. Johnson, Interatomic Potentials and Simulation of Lattice Defects, ed.P.C. Gehlen, Plenum Press N.Y. (1972)
- /53/ S.K. Erents, Vacuum Vol.24, No 10, 445 (1974)

- /54/ C.R. Caskey, Jr. M.R. Luthan Jr., D.G.Derrick,  
J.Nucl.Mat. 55, 279 (1975)
- /55/ S.T. Picraux, Ion Implantation for Materials  
Science and Technology, Academic Press, N.Y. 1979
- /56/ A.E. Gorodetsky, A.P. Zakharov, V.M. Sharapov and  
V.Kh. Alimov, 4th Int.Conf.Plasma Surface Interaction,  
wird veröffentlicht in J.Nucl.Mat. (October 1980)
- /57/ A.S.Nowick, J.J.Barton, Diffusion in Solids,  
Academic Press, New York 1975
- /58/ C.L.Bisson, W.D. Wilson, SANDIA Report, SAND 80-8642  
Sandia Laboratories Albuquerque, N.M. 87185 (1980)
- /59/ L.M. Caspers, A.Van Veen, A.A. van Gorkum, A.van der  
Beukel, C.M. van Baal, Phys.State Sol.(a) 37, 371 (1976)
- /60/ J.W. Corbett, Surface Science Vol.90,No.2, (1979)
- /61/ G.Carter, J.S.Colligon, J.H.Leck, Proc.Phys.Soc. 19,  
299 (1962)
- /62/ J.P.Biersack, Rad.Eff. 19, 249 (1973)
- /63/ R.Collins, G.Carter, Rad.Eff. 26,181 (1975)
- /64/ E.S. Hotston, J.Nucl.Mat. 88, 279 (1980)
- /65/ G.Staudenmaier, J.Roth, R. Behrisch, J.Bohdansky,  
W. Eckstein, P.Staib, S. Matteson, S.K. Erents,  
J.Nucl. Mat. 84,149 (1979)
- /66/ B.L. Doyle, W.R.Wampler, D.K. Brice and S.T.Picraux,  
4th Int.Conf. Plasma Surface Interactions, wird  
veröffentlicht in J.Nucl.Mat. (Oktober 1980)
- /67/ W.Jäger, J.Roth, 4th Int.Conf. Plasma Surface Inter-  
actions, wird veröffentlicht J.Nucl.Mat. (Oktober 1980)
- /68/ S.K. Erents, G.M.McCracken, J.Vince, J.Phys. D: Appl.  
Phys. Vol.11,227 (1978)

- /69/ H.J. Bartsch, Mathematische Formeln, Ernst Battenberg Verlag, Stuttgart 1967
- /70/ Gerhard Fritsch Transport, Akademische Verlagsgesellschaft Wiesbaden 1979
- /71/ R. Becker, Theorie der Wärme, Springer-Verlag 1966, Berlin-Heidelberg-New York
- /72/ R.S. Barnes, D.J. Mazey, Phil.Mag.Ser. 8, Vol. 5, 1247 (1960)
- /73/ G.Debras, J.M. Gilles, A.A. Lucas, Phys.Stat. Sol. (a) 51, 559 (1979)
- /74/ D.J. Mazey, B.L. Eyre, J.H. Evans, S.K. Erents, G.M. McCracken, J.Nucl.Mat. 64, 145 (1977)
- /75/ J. Roth, J. Bohdanský, W. Ottenberger, IPP-Report 9/26, MPI für Plasmaphysik, 8046 Garching b. München
- /76/ N.F. Carnahan, K.E. Starling, J.Chem.Phys. 51, 635 (1969)
- /77/ D. Edwards Jr., J.Appl.Phys. 46, 1444 (1975)
- /78/ J. Bøttiger, S.T. Picraux, N.Rud, T.Laursen, J.Appl.Phys. Vol. 48, No. 3, 920 (1977)
- /79/ S.T. Picraux, J.Bøttiger, N.Rud, J.Nucl.Mat.63, 110 (1976)
- /80/ J.B. Marion, F.C. Young, Nuclear Reaction Analysis, North Holland Publishing 1970
- /81/ R.D. Evans, The Atomic Nucleus, McCraw N.Y. 1970
- /82/ J. Lindhard, M. Scharff, H.E. Schiøtt, Mat. Fys.Medd. Dan. Vid. Selsk. 33, 14 (1963).

Herrn Professor Dr. E. Lüscher danke ich für sein wohlwollendes Interesse an dieser Arbeit.

Mein Dank gilt auch Herrn Dr. R. Behrisch und Herrn Dr. B.M.U. Scherzer, die mit vielen Ratschlägen und Diskussionen zum Gelingen dieser Arbeit beitrugen.

Herrn Dr. W. Eckstein sei an dieser Stelle für seine wertvolle Hilfe bei Arbeiten an der Rechenanlage gedankt.

Für die technische Hilfe beim Durchführen der Experimente bedanke ich mich bei Herrn H. Schmidl, Herrn A. Wiederer und Herrn H. Wacker. Für ihre Geduld beim Schreiben des Textes und der Anfertigung der Zeichnungen sei hiermit Frau E. Kraus, Fräulein G. Daube und Frl. M.-L. Hirschinger gedankt.

Weiterhin danke ich allen Doktoranden und Mitarbeitern des Projekts Plasma-Wand-Wechselwirkung für das angenehme Arbeitsklima.