

MAX-PLANCK-INSTITUT FÜR PLASMAPHYSIK
GARCHING BEI MÜNCHEN

Rückstreuung von Wasserstoff an Gold:
Ladungszustand und Energieverteilung
(300 eV - 10 keV)

Charge state and energy distribution of
hydrogen backscattered from gold
(300 eV - 10 keV)

F.E.P. Matschke

IPP 9/22

Juli 1977

*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.*

IPP 9/22

F.E.P. Matschke

Charge state and energy
distribution of hydrogen
backscattered from gold
(300 eV - 10 keV)

July, 1977 (in German)

ABSTRACT

The charge state of hydrogen backscattered after bombardment of gold surfaces with hydrogen ions of 1 - 10 keV primary energy has been investigated in the energy range from 300 eV to 10 keV.

For the first time, the charge state of backscattered hydrogen for energies below 5 keV has been determined. For polycrystalline gold there was no evidence of a bulk effect on the charge state. The charge state fractions depend only on the velocity of the backscattered particles. No dependence on penetration depth or pathlength inside the solid has been found.

In backscattering from a gold single crystal however, the charge state depended on the orientation of the target crystal. For particles emerging from certain well-defined directions the neutral charge state was enhanced for particles that travelled inside the crystal. These directions lie between close-packed (low index) planes of the crystal, that have a large separation from one another.

A model is proposed, that can explain the observed behavior:

Protons travelling between close packed crystal planes ("planar channels") experience a reduced electronic screening compared to random directions. This leads to a higher probability of electron capture in the bulk for these particles.

ZUSAMMENFASSUNG

Vorliegende Arbeit befaßt sich mit der Untersuchung des Ladungszustands von Wasserstoff, der nach dem Beschuß einer Goldoberfläche mit Wasserstoffionen von 1 - 10 keV Primärenergie im Energiebereich zwischen 300 eV und 10 keV rückgestreut wird.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde erstmals die experimentell schwierige Bestimmung des Ladungszustands von rückgestreutem Wasserstoff für Energien unter 5 keV vorgenommen. An polykristallinem Gold konnte kein experimenteller Hinweis auf einen Volumeneffekt bei der Ausbildung des Ladungszustands gefunden werden. Der Anteil der einzelnen Ladungszustände an der Gesamtzahl der rückgestreuten Teilchen ist nur von der Geschwindigkeit der rückgestreuten Teilchen, nicht jedoch von der Eindringtiefe in den Festkörper abhängig.

Bei der Rückstreuung an einem Goldeinkristall wurde eine Richtungsabhängigkeit des Ladungszustands festgestellt. Insbesondere zeigte sich für wohldefinierte Austrittsrichtungen aus dem Kristall eine erhöhte Neutralisation bei Teilchen aus dem Inneren. Diese Richtungen liegen zwischen dichtgepackten Ebenen des Kristalls, die einen großen Abstand zueinander haben. Ein Modell wird vorgeschlagen, das diesen experimentellen Befund erklären kann:

Infolge der gegenüber amorphem Material niedrigeren Elektronendichte zwischen den dichtgepackten Ebenen ("planar channels") eines Kristalls ist dort die Abschirmung des Protons durch Metallelektronen herabgesetzt, so daß eine gewisse Wahrscheinlichkeit für den Einfang eines Elektrons durch das Proton im Inneren des Kristalls besteht.

RÜCKSTREUUNG VON WASSERSTOFF AN GOLD:
LADUNGSZUSTAND UND ENERGIEVERTEILUNG (300 eV - 10 keV)

1. EINLEITUNG	1
2. THEORETISCHE GRUNDLAGEN	4
2.1 Volumeneffekte bei der Neutralisation	5
2.2 Neutralisation an der Oberfläche	9
2.2.1 Übergangsraten und -wahrscheinlichkeiten	11
2.2.2 Resonanzübergänge	12
2.2.3 Auger-Übergänge	13
3. EXPERIMENTELLE GRUNDLAGEN UND TECHNIKEN	14
3.1 Nachweis von Neutralteilchen	14
3.1.1 Grundlagen	14
3.1.2 Der Neutralteilchenanalysator und seine Eichung	18
3.1.2.1 Die Nachweiswahrscheinlichkeiten der Kanalelektronenvervielfacher	21
3.1.2.2 Die Eichkurve für den Neutral- teilchenanalysator	24
3.2 Die Apparatur BOMBARDON	25
3.2.1 Gewinnung und Verarbeitung der Meßdaten	27
3.3 Die Targets	29
3.3.1 Polykristallines Gold	29
3.3.2 Einkristallines Gold	31
4. MESSERGEBNISSE	33
4.1 Rückstreuung an polykristallinem Gold	33
4.2 Rückstreuung an einkristallinem Gold	39
4.3 Fehlerbetrachtung	42

5. INTERPRETATION	44
5.1 Rückstreuung an polykristallinem Gold	47
5.2 Rückstreuung an einem Gold-Einkristall	48
5.2.1 Neutralisierung im Volumen	50
5.3 Negative rückgestreute Ionen	56
6. ZUSAMMENFASSUNG	58
7. LITERATURVERZEICHNIS	60

1. EINLEITUNG

Ein schnelles Teilchen, das einen Festkörper oder ein Gas durchdringt, kann Elektronen einfangen oder verlieren. Dieser Vorgang wird als Umladung bezeichnet. Insbesondere die Neutralisation von Protonen beim Durchgang durch dünne Folien wurde schon sehr frühzeitig beobachtet und untersucht. Bereits 1922 berichteten Rausch von Traubenberg und Hahn (Rausch von Traubenberg und Hahn 1922) über die Umladung von Kanalstrahlen beim Durchgang durch eine Goldfolie. Ihre Versuche führten zu dem qualitativen Ergebnis, daß sich beim Durchgang von Wasserstoffkanalstrahlen - also Protonen - "unterhalb einer bestimmten Geschwindigkeit nur ein Durchgang neutral gewordener Teilchen zeigte", von dieser an "ein Durchtritt positiv geladener Teilchen, deren Zahl mit weiterer Steigerung der Geschwindigkeit sehr stark anwuchs".

Quantitative Untersuchungen wurden jedoch nicht durchgeführt, da man bald erkannte (Bartels 1930), daß unter den damaligen Vakuumbedingungen Adsorbatschichten spezifische Unterschiede in den Ladungsverhältnissen bei der Umladung an verschiedenen Targets nicht hervortreten ließen.

Erst in neuerer Zeit sind in deutlich besseren Vakua wieder Untersuchungen zum Ladungszustand von Teilchen beim Durchgang durch Folien und bei der Rückstreuung an massiven Targets durchgeführt worden.

Phillips fand beim Beschuß von dünnen Metallfolien mit Protonen (3 - 200 keV) (Phillips 1955), daß sich das Ladungsverhältnis N^+/N_{total} der durchgedrungenen Teilchen mit der Zeit, die nach dem Aufdampfen einer frischen Oberflächenschicht in situ verstrich, änderte. Während bei frischen Folien aus verschiedenen Materialien unterschiedliche Ladungsverhältnisse N^+/N_{total} beobachtet wurden, war das Ladungsverhältnis nach einer gewissen Zeit nach dem Aufdampfen für alle Folienmaterialien gleich.

Diese Experimente wurden bei einem Druck von 5×10^{-6} Torr in der Streukammer ausgeführt und zeigten, daß auch hier im Laufe der Zeit sich aufbauende Adsorbatschichten einen Einfluß auf den Ladungszustand der durchgedrungenen Teilchen haben.

Desgleichen wurde von Berkner et al. (Berkner et al. 1972) mit einer ähnlichen Technik wie von Phillips der Ladungszustand von Deuterium (8 - 100 keV) nach dem Durchgang durch Folien untersucht. Diese Messungen wurden in einem Vakuum von 2×10^{-8} Torr ausgeführt und stimmen - dort wo sich die Daten überlappen - mit den Werten von Phillips für bedeckte Folien überein. Sowohl bei den Untersuchungen von Phillips, als auch bei denen von Berkner et al. war die Dicke und Zusammensetzung der Adsorbatschichten unbekannt.

Meischner und Verbeek (Meischner und Verbeek 1974), Buck et al. (Buck et al. 1975) und Behrisch et al. (Behrisch et al. 1975) untersuchten den Ladungszustand von Wasserstoff (5 - 150 keV Primärenergie) bei der Rückstreuung an verschiedenen Materialien. Sie fanden nur geringe Unterschiede in den Ladungsverhältnissen N^+/N_{total} . Obwohl in den Vakuumsystemen ein Druck von 2×10^{-8} Torr herrschte, führten wahrscheinlich ebenfalls Adsorbatschichten zu diesem Ergebnis, da die Targets nicht in situ gereinigt wurden.

Alle diese experimentellen Befunde legen die Vermutung nahe, daß der Ladungszustand rückgestreuter oder transmittierter Teilchen im wesentlichen an der Oberfläche (z. B. durch Adsorbatschichten) bestimmt wird.

Der Ladungszustand bei der Rückstreuung von Wasserstoff an Metalltargets ist von wichtiger technologischer Bedeutung, z. B. beim Bau von Quellen für negative Ionen (Osher 1975) als auch beim Problem der Plasma-Wand-Wechselwirkung in zukünftigen Fusionsreaktoren (APS-Report 1975).

Auch für die grundlagenorientierte physikalische Forschung ist das Problem von Wichtigkeit, da angenommen werden muß, daß der Ladungszustand der rückgestreuten Teilchen von der elektronischen Struktur des Targets und insbesondere der Targetoberfläche abhängt. Die Untersuchung der Ladungsverhältnisse könnte einen Beitrag zur Aufklärung elektronischer Strukturen liefern.

Das Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, einen Beitrag zum Verständnis der bei der Neutralisation ablaufenden Prozesse zu leisten. Insbesondere soll in dem bisher nur wenig untersuchten Energiebereich zwischen 300 eV und 10 keV die Energieabhängigkeit der Ladungsverhältnisse von an Gold rückgestreutem Wasserstoff untersucht werden, sowie nach Hinweisen auf den physikalischen Mechanismus der Neutralisation gesucht werden.

Der Frage, ob der Ladungszustand der rückgestreuten Teilchen vom Weg, den die Teilchen im Festkörper zurückgelegt haben, abhängt, wurde besondere Aufmerksamkeit geschenkt: Findet der Neutralisierungsprozeß im Volumen oder an der Oberfläche statt? Während bei der Streuung von Edelgasionen mit weniger als 5 keV Primärenergie (ISS = Ion Surface Scattering) der scharfe Oberflächenpeak im Energiespektrum der rückgestreuten Ionen oft auf eine erhöhte Neutralisierung von Teilchen, die tiefer als ein bis zwei Atomlagen eingedrungen sind, zurückgeführt wird, gibt es bei hohen Energien (≥ 100 keV) theoretische Argumente, daß die Neutralisierung außerhalb des Festkörpers an der Oberfläche stattfindet. In dem in dieser Arbeit untersuchten Energiebereich kann jedoch bis jetzt keine Theorie die experimentellen Daten zur Neutralisation quantitativ erklären.

Für die Untersuchung der oben aufgeführten Fragestellungen wurden ein polykristallines und ein einkristallines Goldtarget benutzt, da eine Goldoberfläche sich verhältnismäßig einfach säubern läßt.

2. THEORETISCHE GRUNDLAGEN

Theoretische Betrachtungen, die die Neutralisation eines Ions an einem Metalltarget zum Inhalt haben, sind bisher nur wenig angestellt worden. Das liegt daran, daß die Neutralisation eine Kombination einer Reihe möglicher Einzelprozesse ist, die sowohl an der Oberfläche des Metalls als auch im Volumen stattfinden können, und die sich im Zusammenhang nur schwierig beschreiben lassen. Bei den in dieser Arbeit behandelten Bedingungen (senkrechter Ionenbeschuß, Primärenergien zwischen 1 und 10 keV) können die Ionen in den Festkörper eindringen. Die rückgestreuten Teilchen haben im allgemeinen eine breite, kontinuierliche Energieverteilung, die sich von Null bis nahezu zur Primärenergie erstreckt (vgl. die Spektren in Kap. 4). Die maximale Energie, die rückgestreute Teilchen haben können, wird durch die Kinematik des elastischen Stoßes eines Primärteilchens mit einem Oberflächenatom des Targets bestimmt.

Sei m_1 die Masse des Projektils und E_0 seine Energie, m_2 die Masse eines Targetatoms, so gilt für die Energie E_1 eines elastisch gestreuten Projektils:

$$E_1 = \frac{1}{(1+A)^2} \left[\cos \vartheta + (A^2 - \sin^2 \vartheta)^{1/2} \right]^2, \quad (2.1)$$
$$A = \frac{m_2}{m_1} \geq 1,$$

wobei ϑ der Streuwinkel im Laborsystem ist.

Die Rückstreuintensität unterhalb der Energie E_1 stammt von Teilchen, die im Volumen des Festkörpers einen gewissen Weg zurückgelegt haben und dabei durch elastische Stöße mit den Kernen der Targetatome sowie inelastisch durch Anregung von Targetelektronen Energie verloren haben (Lindhard et al. 1968).

Messungen verschiedener Autoren (z. B. Meischner und Verbeek 1974, Behrisch et al. 1975, Buck et al. 1975) zeigen, daß die Teilchen sowohl geladen als auch neutral rückgestreut werden. Das Verhältnis der Zahl der positiv geladenen Teilchen zu der der neutralen steigt mit wachsender Energie.

Es stellt sich nun die Frage, ob die Ionen im Volumen oder an der Oberfläche neutralisiert werden, bzw. ob beide Bereiche beitragen. Im folgenden sollen Prozesse, die zur Neutralisation von Ionen bei der Rückstreuung führen können, diskutiert werden.

2.1 Volumeneffekte bei der Neutralisation

Die Ausbildung des Ladungszustands schwerer Teilchen in Metallen wird üblicherweise - wie beim Durchgang von Ionen durch Gastargets - durch den Einfang und Verlust von Elektronen bei Stößen mit Targetatomen erklärt (Betz 1972). Dabei bleiben in erster Näherung Oberflächeneffekte unberücksichtigt. Ist das Target hinreichend dick, so bildet sich ein Gleichgewicht zwischen Einfang und Verlust aus und der Neutralanteil $N^0/N_{\text{tot.}}$ ist durch

$$N^0/N_{\text{tot.}} = (1 + \sigma_{\ell}/\sigma_c)^{-1} \quad (2.2)$$

bestimmt, wobei σ_{ℓ} und σ_c der Elektronenverlust- und Elektroneneinfangwirkungsquerschnitt, N^0 die Zahl der neutralen und $N_{\text{tot.}}$ die Gesamtzahl der Teilchen nach dem Austritt aus dem Festkörper ist. Dieser Mechanismus setzt voraus, daß im Festkörper ein Zustand des Teilchens existiert, bei dem Valenzelektronen an den Ionenrumpf gebunden sind.

Ein positives Ion im Metall deformiert infolge seiner Ladung die Elektronendichteverteilung der Leitungsbandelektronen. Es bildet sich im Abstand r vom Ion eine erhöhte Elektronendichte $\varrho(r)$ im Gegensatz zur ungestörten Elektronendichte ϱ_0 aus.

Die erhöhte Elektronendichte $\varrho(r)$ führt zur Abschirmung des Ions. Dadurch kommt eine Verschiebung des Atomniveaus gegenüber dem ungestörten Fall zustande.

Im Rahmen der linearen Thomas-Fermi-Näherung (Mott 1936) gilt für die Elektronendichteänderung $\Delta\varrho$

$$\Delta\varrho \equiv \varrho(\tau) - \varrho_0 = (Z/4\pi D_{TF}^2 \tau) \exp(-\tau/D_{TF}), \quad (2.3)$$

wobei Z die Kernladungszahl des Ions und D_{TF} die "Abschirmlänge" ist:

$$D_{TF} = v_F / 3^{1/2} \omega_p = r_s^{1/2} a_0 / 1.56. \quad (2.4)$$

v_F ist die Fermigeschwindigkeit der Metallelektronen, $\omega_p = (4\pi\varrho_0)^{1/2}$ die Plasmafrequenz und r_s der in Bohr'schen Einheiten $a_0 = 0.53 \text{ \AA}$ gemessene Radius des von einem Leitungselektron im Mittel ausgefüllten Wigner-Seitz-Volumens.

Die Energieniveaus des abgeschirmten Ions ergeben sich als Lösung der Schrödingergleichung mit dem abgeschirmten Coulombpotential

$$V(\tau) = (Z e^2 / \tau) \exp(-\tau / D_{TF}). \quad (2.5)$$

In Abb. 2.1 sind die Energieniveaus eines Wasserstoffatoms, des in dieser Arbeit betrachteten Falles, als Funktion der Abschirmlänge D aufgetragen (nach Rogers et al. 1970). Für kleine D , das entspricht nach (2.3) großem $\Delta\varrho$, tritt eine drastische Verschiebung der Energieniveaus auf.

Für Metalle beträgt die Abschirmlänge in Thomas-Fermi-Näherung $\approx 1 a_0$; das 1 s-Niveau des Wasserstoffatoms wird also bis oder nahezu bis zur Ionisierungsenergie angehoben. Es kann zwar nicht ganz ausgeschlossen werden, daß ein bindendes Wasserstoffniveau existiert, da das Elektron dann aber nur sehr schwach

gebunden wäre, würde es durch Stöße mit Metallelektronen wieder abgestreift und eventuell neu eingefangen. Es ist deshalb nur sinnvoll, eine Polarisationsladung, die vom Projektil im Metall induziert wird, zu betrachten.

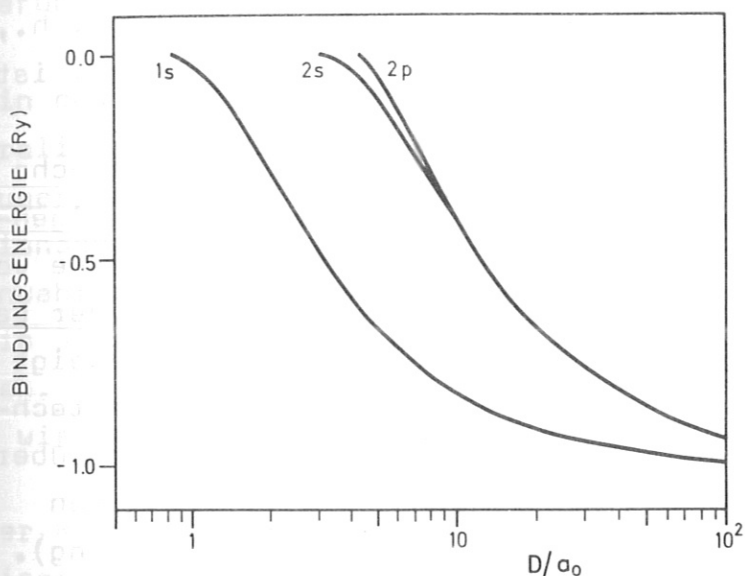


Abb. 2.1

Abhängigkeit der drei niedrigsten Wasserstoffniveaus von der Abschirm-länge D

In einem einfachen hydrodynamischen Modell läßt sich ein ähnlicher Mechanismus, wie er für den Einfang bzw. Verlust von Elektronen durch schwere Ionen in Festkörpern gebräuchlich ist, auch für Wasserstoff in Metallen behandeln. Sei \mathcal{G}_{ind} die von einem Proton im Metall induzierte Polarisationsladung. Für kleine Protonengeschwindigkeiten $v < v_F$ folgt die als Abschirmung wirkende Polarisationsladung dem Proton insofern, als zwar die einzelnen Elektronen am Proton vorbeifließen, die Störung selbst jedoch folgen kann. Fließen keine Elektronen mehr nach, z. B., wenn das Teilchen den Festkörper verläßt, so gibt es für die als Polarisationsladung um das Proton befindlichen Elektronen eine gewisse Wahrscheinlichkeit P , daß sie beim Proton bleiben. Sei $|0\rangle = \mathcal{G}_{ind}(r)^{1/2}$ die Wellenfunktion der statischen Abschirmung, d. h. der Polarisationsladung für ein in Ruhe befindliches Proton und $|q\rangle = e^{i\vec{q}\vec{r}}|0\rangle$ die Wellenfunktion der relativ zum Proton bewegten Abschirmung ($\vec{q} = m\vec{v}/\hbar$). Dann ist die Wahrscheinlichkeit P durch die Projektionsamplitude von $|q\rangle$ auf $|0\rangle$ bestimmt:

$$\begin{aligned} P &= |\langle 0 | q \rangle|^2 \\ &= |\langle 0 | e^{i\vec{q}\vec{r}} | 0 \rangle|^2 \\ &= \left| \int d^3\tau \varphi_{\text{ind}}(\tau) e^{i\vec{q}\vec{r}} \right|^2. \end{aligned} \tag{2.6}$$

Für den Fall, daß das Proton den Festkörper verläßt, ist P die Wahrscheinlichkeit, daß ein Elektron eingefangen wird, d. h., daß es nach der Wechselwirkung mit dem Festkörper neutral ist.

In eine derartige Überlegung geht der Einfluß der Oberfläche nur indirekt ein. Der Ladungszustand wird durch Volumeneigenschaften des Festkörpers bestimmt. Es gibt aber eine Reihe von experimentellen Beobachtungen, die dafür sprechen, daß der Ladungszustand an der Oberfläche bestimmt wird. Abb. 2.2 zeigt das Ladungsverhältnis N^+/N_{tot} von Wasserstoff für eine technische Oberfläche ("wie eingebaut") und für eine saubere Oberfläche ("Target in situ gereinigt") eines polykristallinen Goldtargets bei sonst gleichen Bedingungen (eigene Messung). Der deutliche Unterschied zwischen beiden Kurven kann nur durch an der Oberfläche befindliche Verunreinigungen bewirkt sein.

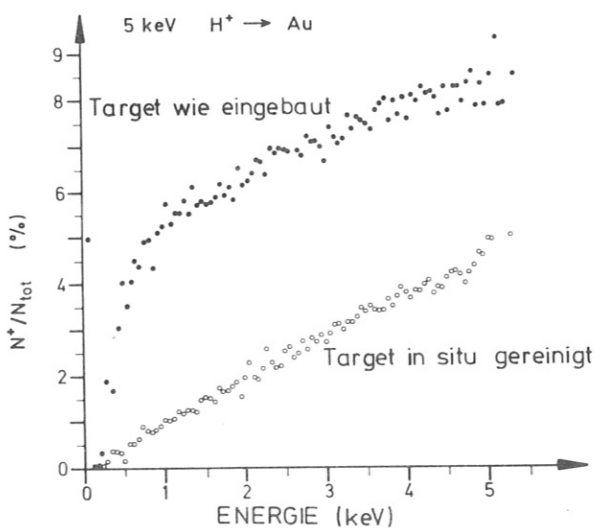


Abb. 2.2

Abhängigkeit des Ladungsverhältnisses N^+/N_{tot} der rückgestreuten Teilchen von der Oberflächen-sauberkeit

2.2 Neutralisation an der Oberfläche

Die Neutralisation eines Ions an einer Metalloberfläche hat zuerst Hagstrum (Hagstrum 1954) ausführlich behandelt, nachdem bereits vorher Shekhter (Shekhter 1937) Rechnungen zum Einfang eines Elektrons durch ein Ion an einer Metalloberfläche durchgeführt hat.

Ein positives Ion kann an einer Oberfläche auf drei Arten neutralisiert werden: durch Strahlungsübergänge, Resonanz- und Augerprozesse. Strahlungsübergänge, bei denen die Neutralisationsenergie als Photon emittiert wird, sind um den Faktor 10^6 unwahrscheinlicher als die beiden anderen Prozesse (Shekhter 1937). Die Strahlungsübergänge sollen deshalb hier nicht diskutiert werden. Im folgenden wird der Fall betrachtet, daß sich ein Ion - wie bei der Rückstreuung - von der Oberfläche entfernt.

Der Resonanzprozeß, ein Tunnelprozeß, ist an Hand des Energie-
diagramms in Abb. 2.3 dargestellt.

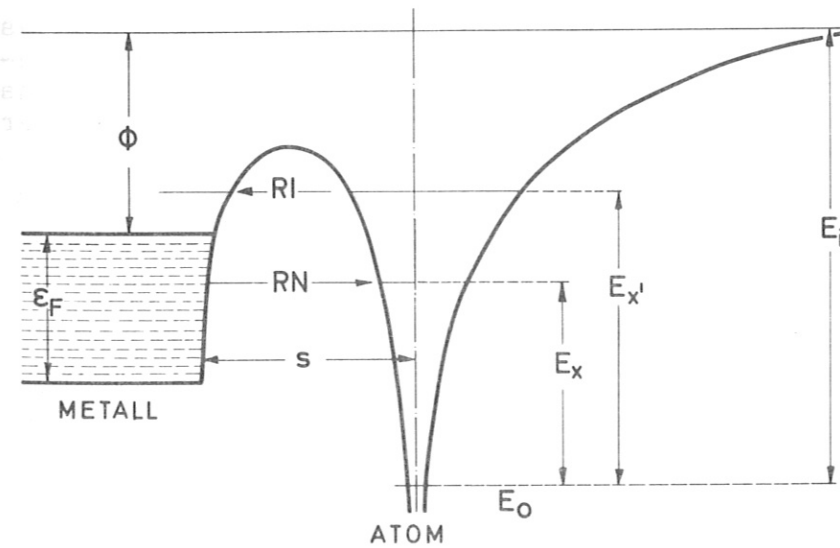


Abb. 2.3

Schematische Darstellung der Resonanzprozesse an einer Metalloberfläche. Die Bedeutung der Abkürzungen ist im Text erklärt.

Der besetzte Teil des Leitungsbands des Metalls ist schraffiert angedeutet. E_F ist die Fermienergie der Metallelektronen, ϕ die Austrittsarbeit, E_x bzw. E_x' sind Anregungsenergien des Atoms im Abstand s von der Oberfläche vom Grundzustand E_0 aus

betrachtet. Resonanzneutralisation (RN) tritt auf, wenn ein Elektron aus dem Leitungsband durch den von Ion und Oberfläche gebildeten Potentialwall auf ein freies Atomniveau tunnelt. Dabei befindet sich das Elektron vor und nach dem Tunneln auf gleichem Energieniveau. Auch der umgekehrte, in Abb. 2.3 mit RI bezeichnete Prozeß, der Resonanzübergang von einem im allgemeinen angeregten Atomniveau in ein freies Leitungsbandniveau ist prinzipiell möglich, kann jedoch, wie in Kap. 2.2.3 gezeigt wird, beim Weglaufen eines Atoms von einer Oberfläche, an der es zuvor neutralisiert wurde, nicht auftreten.

In Abb. 2.4 ist die Auger-Neutralisation schematisch dargestellt.

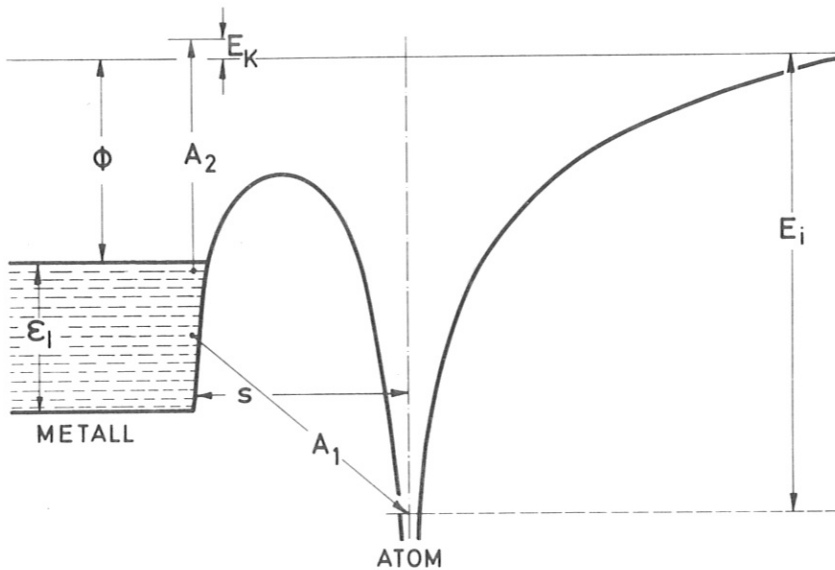


Abb. 2.4
Schematische Darstellung des zur Neutralisation eines Ions führenden Augerprozesses an einer Metalloberfläche.

Bei diesem Zwei-Elektronenprozeß tunnelt ein Elektron aus dem Leitungsband des Metalls in den Grundzustand des Atoms (Übergang A_1), während ein zweites Elektron gleichzeitig aus seinem Niveau im Leitungsband angeregt wird (A_2). Beide Elektronen verlieren bzw. gewinnen jeweils denselben Energiebetrag. Falls die Anregung A_2 hoch genug war, kann das zweite Elektron den Festkörper mit der kinetischen Energie E_K verlassen. Die übrigen Bezeichnungen in Abb. 2.3 sind wie in Abb. 2.2 definiert.

2.2.1 Übergangsraten und -wahrscheinlichkeiten

Die Wahrscheinlichkeit für einen der aufgeführten Prozesse läßt sich an Hand der Übergangsrate $R_t(s)$ diskutieren. $R_t(s)$ ist die Übergangswahrscheinlichkeit pro Zeiteinheit. Sie hängt von der Art des Übergangs und vom Abstand des Teilchens von der Oberfläche ab. Nach Hagstrum (Hagstrum 1954) werden zwei Wahrscheinlichkeiten $P_o(s,v)$ und $P_t(s,v)ds$ definiert. $P_o(s,v)$ sei die Wahrscheinlichkeit, daß ein Teilchen mit der Geschwindigkeit v den Abstand s von der Oberfläche in seinem ursprünglichen Ladungszustand erreicht, $P_t(s,v)ds$ die Wahrscheinlichkeit für einen ladungsändernden Übergang im Abstand s im Bereich ds . Für ein die Oberfläche verlassendes Teilchen gilt:

$$dP_o(s,v)/ds = - (R_t(s)/v) P_o(s,v), \quad (2.7)$$

$$P_o(s,v) = \exp\left[- \int_0^s (R_t(s)/v) ds\right] \quad (2.7a)$$

sowie

$$P_t(s,v) = (R_t(s)/v) P_o(s,v). \quad (2.8)$$

Damit sind beide Wahrscheinlichkeiten, $P_o(s,v)$ und $P_t(s,v)ds$ auf eine einzige Größe, die Übergangsrate $R_t(s)$ zurückgeführt. $R_t(s)$ hängt noch speziell von der Elektronendichte an der Oberfläche ab. Nimmt man einen exponentiellen Abfall der Elektronendichte an und folgert daraus eine exponentiell abfallende Übergangsrate $R_t(s) = C \exp(-cs)$, wobei C und c Konstanten sind, die von der Art des betrachteten Prozesses abhängen, so erhält man:

$$P_o(s,v) = \exp\left\{ - C/cv \left[\exp(-cs) - 1 \right] \right\} \quad (2.9)$$

$$\text{und } P_t(s,v) = (C/v) P_o(s,v) \exp(-cs). \quad (2.10)$$

Die Annahme eines exponentiellen Abfalls der Elektronendichte ist etwas willkürlich. Weit außerhalb der Oberfläche, also für große s , kommt sie der Realität näher, als für $s \rightarrow 0$.

2.2.2 Resonanzübergänge

Aus dem Energiediagramm der Abb. 2.3 geht hervor, daß die Lage der Atomniveaus relativ zur Fermikante darüber entscheidet, ob die Prozesse Resonanzneutralisation und/oder Resonanzionisierung stattfinden. Im folgenden soll der spezielle Fall eines Wasserstoffions vor einer Goldoberfläche betrachtet werden.

Die Elektronendichteverteilung und damit auch die Abschirmlänge D ist an der Oberfläche nicht isotrop. Die genaue Form der Elektronendichteverteilung ist nicht bekannt. Die Verschiebung der Atomniveaus zur Ionisierungsgrenze hin, wie es in Abb. 2.1 dargestellt ist, tritt jedoch auch hier auf. Es gibt deshalb einen kritischen Abstand s_c , bei dem das Grundzustandsniveau auf die Höhe der Fermikante angehoben ist. s_c teilt den Raum vor der Oberfläche in zwei Regionen auf, in denen entweder Resonanzneutralisation oder Resonanzionisierung auftritt. Da die Austrittsarbeit ϕ für Gold ≈ 5 eV beträgt (Huber 1966), der erste angeregte Zustand - das 2s-Niveau - des Wasserstoffatoms jedoch eine Ionisierungsenergie von nur 3.4 eV besitzt, kann es nur Resonanzneutralisation in den Grundzustand - das 1s-Niveau - geben. Die Bedingung dafür, nämlich $\phi \leq E_i \leq \phi + \epsilon_F$, kann nur dann erfüllt werden, wenn sich das Teilchen in einer Entfernung s von der Oberfläche befindet, bei der bereits infolge elektronischer Abschirmung das 1s-Niveau bis in die Höhe des Leitungsbandes angehoben ist. Befindet sich das Teilchen näher an der Oberfläche als es dem Abstand s_c entspricht, gilt also $E_i(s) < \phi$, so ist die Resonanzneutralisation nicht möglich. Wenn das Teilchen die Oberfläche bereits als Ion verläßt, gibt es natürlich auch keine Resonanzionisierung.

Das zur Erklärung des Resonanzprozesses herangezogene Potentialwellmodell ist für $s \rightarrow 0$ nicht anwendbar, da dann der Potentialwell nicht definiert ist. Da im Fall von Wasserstoff an einer Goldoberfläche Resonanztunneln jedoch erst ab einer gewissen kritischen Distanz $s_c > 0$ auftritt, ist dieser prinzipielle Einwand in dem speziellen Fall irrelevant.

2.2.3 Auger-Übergänge

Auger-Übergänge, an denen jeweils zwei Elektronen beteiligt sind, sind weniger starken Einschränkungen unterworfen als Resonanzprozesse, wie schon aus Abb. 2.4 hervorgeht. Da ein Elektron sich stets auf ein Niveau niedrigerer Energie begibt (Übergang A1), ist die einzige Einschränkung $E_i(s) \gg 0$. Die kritische Distanz s_c , die beim Resonanztunneln den Raum vor der Oberfläche in zwei Regionen aufteilte, in denen entweder Resonanzneutralisation oder Resonanzionisierung auftritt, spielt bei Auger-Übergängen die Rolle eines minimalen Abstands: Die Bedingung $E_i(s) \gg 0$ ist äquivalent mit $s \gg s_c$. Anders als beim Resonanztunneln gibt es hier jedoch keine maximale Entfernung von der Oberfläche.

3. EXPERIMENTELLE GRUNDLAGEN UND TECHNIKEN

3.1 Nachweis von Neutralteilchen

3.1.1 Grundlagen

Für die Energieanalyse von Neutralteilchen kommen prinzipiell mehrere Methoden in Betracht. Die Wahl einer geeigneten Methode hängt wesentlich von der Energie der zu untersuchenden Teilchen ab. Bei Neutralteilchen ist die Bestimmung der Energie mit einem elektrostatischem Spektrometer nicht ohne vorherige Ionisierung der Teilchen möglich.

Eine Bestimmung der Teilchenenergie aus ihrer Geschwindigkeit durch eine Flugzeitmessung stößt auf Schwierigkeiten. Wasserstoffatome in dem hier betrachteten Energiebereich sind bereits so schnell ($10 \text{ keV} = 1.38 \times 10^8 \text{ cm/sec}$), daß bei einer Laufstrecke von 1 m Laufzeiten der Größenordnung $1 \mu\text{sec}$ erreicht werden. Solche kurzen Zeiten zusammen mit Fragen der Statistik führen zu einem großen meßtechnischen Aufwand (vgl. van der Weg et al. 1976).

Oberflächensperrschichtzähler sind sowohl für geladene als auch für neutrale Teilchen empfindlich. Sie liefern ein der Teilchenenergie proportionales Signal. Das Signal-Rausch-Verhältnis wird jedoch zu kleineren Energien hin immer schlechter. Unterhalb von $\approx 15 \text{ keV}$ ist selbst mit gekühlten Sperrschichtzählern keine Energieanalyse mehr möglich.

Ein weiteres Problem bei den bisher betrachteten Analysemethoden ist der Nachweis der Teilchen. Die Nachweiswahrscheinlichkeit von Detektoren nimmt mit sinkender Energie stark ab. Beim Nachweis von Ionen läßt sich diese Schwierigkeit umgehen, indem die Teilchen nachbeschleunigt werden. Für Neutralteilchen entfällt diese Möglichkeit und infolge der bei kleinen Teilchenenergien drastisch abgefallenen Nachweiswahrscheinlichkeit wird die gemessene Zählrate so niedrig, daß keine statistisch

gesicherten Werte mehr angegeben werden können. Durch Ionisierung der Neutralteilchen kann man diese Schwierigkeiten umgehen. Verfügt man über ein Verfahren, das die Energie der Teilchen bei der Ionisierung nicht ändert, so können elektrostatische oder magnetische Spektrometer zur Energieanalyse benutzt werden. Gleichzeitig läßt sich die Nachweiswahrscheinlichkeit erhöhen, indem die Ionen nachbeschleunigt werden, ehe sie auf den Detektor treffen.

Die geeignete Ionisierungsmethode hängt von der Energie der Neutralteilchen ab.

Durch Photoionisation lassen sich Ionisierungswahrscheinlichkeiten bis zu einigen 10^{-9} erreichen (Hunter et al. 1965). Die Elektronenstoßionisation ist bei kleinen Energien und schweren Atomen anwendbar (Van Veen und Fluit 1976, Parks et al. 1971). Für Wasserstoff lassen sich jedoch nur Ionisierungswahrscheinlichkeiten von einigen 10^{-8} erreichen (Wynter und Hasted 1974). Für eine höhere Ionisierungswahrscheinlichkeit müßte die Elektronendichte so groß gemacht werden, daß Raumladungseffekte eine wesentliche Rolle spielen. Dadurch werden die Ionen abgebremst und die Energieinformation der Teilchen geht weitgehend verloren. Die Ionisierungswahrscheinlichkeit für Wasserstoffatome von 650 eV Energie ist 1×10^{-8} und steigt zu niedrigen Teilchenenergien infolge des durch die Raumladung bewirkten ionenoptischen Effekts nicht mehr wesentlich an (Wynter und Hasted 1974).

Eine andere Möglichkeit, Neutralteilchen zu ionisieren, besteht darin, die Atome durch ein Gas- oder Festkörpertarget zu schießen. Dabei können sie ein oder mehrere Elektronen abstreifen ("stripping"). Mit den derzeit herstellbaren Folien ist es nicht möglich, Teilchen mit Energien unter 1 keV zu untersuchen (Gott und Telkovskij 1962), denn selbst wenn die Folien so dünn gemacht werden, daß sie durchdrungen werden können, haben die Teilchen durch Streuung in der Folie eine so große Energieverbreiterung erfahren, daß eine genaue Energiebestimmung nicht mehr möglich ist (Bernstein et al. 1970).

Als Alternative bleibt die Umladung an einem Gastarget in einer Gaszelle. In Abb. 3.1 ist der Wirkungsquerschnitt σ_{01} für "stripping" von H^0 in Stickstoff als Funktion der Teilchenenergie aufgetragen (Nach Fleischmann und Tuckfield 1968, Bardet und Dupas 1972, Fleischmann und Young 1969).

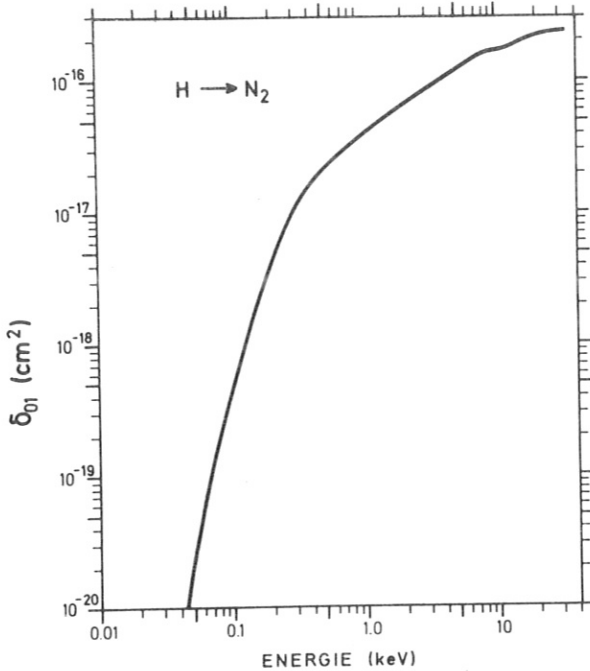


Abb. 3.1

Wirkungsquerschnitt σ_{01} für die Ionisierung von Wasserstoff an einem Stickstofftarget

Unterhalb von 200 eV fällt der Wirkungsquerschnitt steil ab. In Tab. 3.1 sind die Ionisationswirkungsquerschnitte für Wasserstoff beim Stoß mit verschiedenen Gasatomen aufgetragen.

Bei niedrigem Druck in der Gaszelle, wenn die zu analysierenden Teilchen im Mittel nicht mehr als einen Stoß mit den Targetatomen machen, gilt für die Ionisierungswahrscheinlichkeit $\eta(E)$

$$\eta(E) = k \cdot \sigma_{01}(E) \cdot l \cdot g \quad (3.1)$$

wobei l die Länge der Gaszelle und g die Teilchendichte der Targetatome in der Gaszelle ist. k ist eine Konstante; im Idealfall gilt $k = 1$. Dann ließe sich mit (3.1) aus σ_{01} die Ionisierungswahrscheinlichkeit η berechnen. In Wirklichkeit treten jedoch Abweichungen vom Idealfall auf, z. B. Verluste durch Streuung in der Gaszelle. Deshalb muß die Ionisierungswahrscheinlichkeit $\eta(E)$ experimentell bestimmt werden.

Energie(eV)	$\sigma_{01} \text{ (cm}^2\text{)}$				
	N ₂	O ₂	A	CO ₂	H ₂ O
50	2×10^{-20}	4×10^{-20}		$1,5 \times 10^{-20}$	
100	4×10^{-19}	$5,2 \times 10^{-19}$	$5,2 \times 10^{-20}$	$3,3 \times 10^{-19}$	$2,9 \times 10^{-20}$
150	$1,6 \times 10^{-18}$	$1,4 \times 10^{-18}$	$4,8 \times 10^{-19}$	$1,2 \times 10^{-18}$	$1,75 \times 10^{-19}$
200	4×10^{-18}	$3,2 \times 10^{-18}$	$1,7 \times 10^{-18}$	$2,9 \times 10^{-18}$	$5,2 \times 10^{-19}$
250	$6,8 \times 10^{-18}$	$4,4 \times 10^{-18}$	$3,9 \times 10^{-18}$	$4,8 \times 10^{-18}$	$9,5 \times 10^{-19}$
300	1×10^{-17}	6×10^{-18}	$6,5 \times 10^{-18}$	7×10^{-18}	$1,5 \times 10^{-18}$

Tab. 3.1 Ionisierungswirkungsquerschnitte des Wasserstoffatoms beim Stoß mit verschiedenen Gasen (Nach H.-H. Fleischmann und R.G. Tuckfield 1968)

Der bei der Ionisation ablaufende Prozeß ist im Fall des in dieser Arbeit untersuchten neutralen Wasserstoffs mit Stickstoff als Targetgas



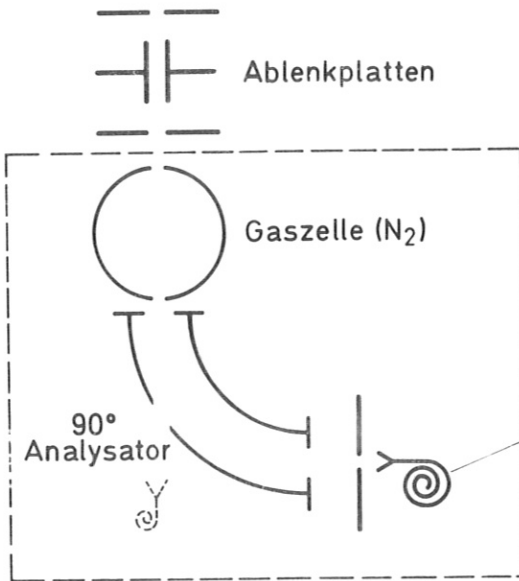
Zusätzlich besteht auch die Möglichkeit, daß das neutrale Wasserstoffatom ein Elektron einfängt und ein negatives Ion bildet (Kuckes 1970):



Dieser Prozeß kann jedoch im Fall eines Stickstofftargets gegenüber der Ionisation nach (3.2) vernachlässigt werden (Kuckes 1970) und soll deshalb hier nicht betrachtet werden.

3.1.2 Der Neutralteilchenanalysator und seine Eichung

Die Messung der Energieverteilung der das Plasma verlassenden Neutralteilchen ist bei Fusionsexperimenten eine bereits mehrfach angewandte Methode, um die Plasmatemperatur zu bestimmen (u. a. Fleischmann und Tuckfield 1968, Eubank und Wilkerson 1963, Barnett und Ray 1972). Der für die in dieser Arbeit beschriebenen Experimente benutzte Neutralteilchenanalysator basiert auf einem ursprünglich für Messungen der Plasmatemperatur konzipierten Gerät (Equipe TFR 1970) und wurde für die Rückstremmessungen geringfügig modifiziert. Abb. 3.2 zeigt schematisch den Aufbau des Neutralteilchenanalysators.



CEM Abb. 3.2

Schematische Darstellung des Aufbaus der zum Nachweis der Neutralteilchen benutzten Apparatur

Das Gehäuse des Geräts besteht aus Weicheisen, um magnetische Felder abzuschirmen. Die Neutralteilchen werden in einer Gaszelle von 5 cm Durchmesser ionisiert. Bei kleinen Teilchenenergien erwies es sich günstig, Stickstoff als Targetgas zu benutzen (vgl. Tab. 3.1). Der Druck in der Gaszelle wurde durch ein automatisches Regelventil, das von einer in der Gaszelle befindlichen Ionisationsmeßröhre gesteuert wurde, konstant gehalten. Der Teilchenstrahl erfährt in der Gaszelle durch Streuung eine Winkelaufweitung (Barnett und Ray 1972). Die Ausgangsblende der Gaszelle wurde so gewählt, daß bei 250 eV 90 % des durch die Eingangsblende fallenden Strahls die Gaszelle wieder verlassen können (nach den experimentellen

Daten von Barnett und Ray). Die Eingangsblende bestimmt den Raumwinkel, aus dem die zu analysierenden Teilchen kommen.

Zur Energieanalyse der ionisierten Teilchen dient ein elektrostatischer Energieanalysator (90° -Zylinderanalysator). Um den Untergrund infolge von Streuung im Energieanalysator möglichst klein zu halten, müssen im Zylinderanalysator möglichst wenig Flächen, an denen Teilchen gestreut werden könnten, vorhanden sein. Deshalb wurden die beiden Zylinderschalen durch in Richtung des Krümmungsradius der Sollbahn angeordnete Rasierklingen realisiert (siehe Abb. 3.5).

Durch eine Öffnung in der äußeren Zylinderschale konnte der nicht ionisierte Anteil des Strahls den Energieanalysator verlassen.

Die Energie E der Teilchen, die vom Energieanalysator durchgelassen werden, hängt von der Potentialdifferenz ΔV zwischen beiden Zylinderschalen linear ab. Mit zwei variablen Spalten am Ein- und Ausgang des Zylinderkondensators kann die Energieauflösung $\Delta E/E$ variiert werden. Sie wurden so eingestellt, daß $\Delta E/E = 1/18$ galt.

Zum Nachweis der Teilchen nach Durchgang durch den Energieanalysator wurden Kanalelektronenvervielfacher (CEM = Channel Electron Multiplier) benutzt. Diese haben ein günstiges Signal-Rausch-Verhältnis sowie eine hohe Nachweiswahrscheinlichkeit (Crandall et al. 1975).

Ein- und Ausgang des CEM wurden isoliert aus dem Vakuumgefäß geführt. Dadurch war es möglich, den CEM-Eingang auf ein Potential zu legen, durch das die nachgewiesenen Ionen nachbeschleunigt wurden.

Die Umladewahrscheinlichkeit η des Neutralteilchenanalysators ist die Zahl der umgeladenen ("gestrippten") Teilchen N^+ bezogen

auf die Zahl der einfallenden Neutralteilchen $N^{\text{tot.}}$:

$$\eta = \frac{N^+}{N^{\text{tot.}}} = \frac{N^+}{N^0 + N^+ + N^- + \tilde{N}} \approx \frac{N^+}{N^+ + N^0}, \quad (3.4)$$

wobei N^0 die Anzahl der im Strahl verbleibenden Neutralteilchen, N^- die Anzahl der negativ umgeladenen Ionen und \tilde{N} die Zahl der aus dem Strahl gestreuten Teilchen ist. N^- ist für Stickstoff als Targetgas nicht größer als N^+ (Kuckes 1970). Der sich durch die Näherung (3.4) ergebende Fehler beträgt bei 250 eV ca. 10 % des absoluten Wertes von η und fällt für höhere Energien stark ab.

Um den Neutralteilchenanalysator zu eichen, wurde in einer separaten Apparatur aus einem Ionenstrahl der festen, jedoch variierbaren Energie E durch Umladung an einem Gastarget ein Neutralteilchenstrahl erzeugt (Matschke et al. 1975). Der verbleibende Ionenanteil wurde durch zwei Ablenkplatten aus dem Strahl entfernt. Das zwischen den Platten liegende Feld beträgt 1000 V/cm. Es reichte aus, um vorhandene metastabile Wasserstoffzustände (2s) durch Aufhebung der Entartung der Nebenquantenzahl (Stark-Effekt) zu quenchen.

Zur Bestimmung der Umladewahrscheinlichkeit $\eta(E)$ des Neutralteilchenanalysators wurden die Zählraten $N^+(E)$ und $N^0(E)$ gleichzeitig gemessen. Dazu wurde in Strahlrichtung hinter der Öffnung der äußeren Zylinderschale ein zweites CEM montiert, mit dem die Zählrate des Neutralanteils bestimmt wurde.

Die gemessenen Zählraten hängen von den Nachweiswahrscheinlichkeiten $\gamma(E)$ der CEMs sowie von der Umladewahrscheinlichkeit $\eta(E)$ ab:

$$N^+(E) = \eta(E) \gamma^+(E) N^{\text{tot.}}(E) \quad (3.5)$$

und
$$N^0(E) = \gamma^0(E) [N^{\text{tot.}}(E) - N^+(E)], \quad (3.6)$$

wobei $\gamma^+(E)$ und $\gamma^0(E)$ die Nachweiswahrscheinlichkeiten der

beiden CEMs für positive resp. neutrale Teilchen sind. Unter der Voraussetzung, daß $\gamma^+(E) = \gamma^0(E)$ gilt (siehe Kap. 3.1.2.1), kann man aus (3.5) und (3.6) die Umladewahrscheinlichkeit $\eta(E)$ des Neutralteilchenanalysators bestimmen.

$\eta(E)$ ist unabhängig von der Spektrometertransmission. Deshalb ist es notwendig, daß alle ionisierten Teilchen mit der Energie E , die die Gaszelle verlassen, bei der entsprechenden festen Spektrometerspannung gezählt werden. Das ist dann der Fall, wenn der Austrittsspalt des Spektrometers so weit geöffnet ist, daß alle Teilchen mit der festen Energie E in den Spalt und in den Detektor fallen. Bei der Eichung spielt die Energieauflösung keine Rolle.

3.1.2.1 Die Nachweiswahrscheinlichkeiten der Kanalelektronenvervielfacher

Die Bedingung $\gamma^+(E) = \gamma^0(E)$, die für die experimentelle Bestimmung der Umladewahrscheinlichkeit $\eta(E)$ wesentlich ist, bedarf einer näheren Betrachtung.

CEMs streuen bezüglich der Nachweiswahrscheinlichkeit selbst innerhalb derselben Serie. Indem die beiden benutzten CEMs untereinander ausgetauscht wurden und so das Verhältnis N^+/N_{tot} zweimal bestimmt wurde, konnte sichergestellt werden, daß CEMs mit gleichen Nachweiswahrscheinlichkeiten benutzt wurden.

Die Nachweiswahrscheinlichkeit von CEMs hat bei Teilchenenergien oberhalb von 3 keV einen Plateaubereich und ist dort eins, während sie mit kleiner werdender Energie rasch abfällt (Crandall et al. 1975). Deshalb werden positive Ionen üblicherweise nachbeschleunigt, indem man den Eingang des CEMs auf ein Potential von -3 kV legt. Da bei der Bestimmung von $\eta(E)$ jedoch gleichzeitig auch neutrale Atome nachgewiesen werden müssen, ist dieses Verfahren hier nicht anwendbar. Der Eingang der CEMs wurde deshalb auf Massepotential gelegt, wodurch

erreicht wurde, daß sowohl die positiven Ionen als auch die neutralen Atome mit der gleichen kinetischen Energie auf ihren Detektor auftreffen.

Es gibt zwei Mechanismen, die zur Emission von Sekundärelektronen auf der CEM-Oberfläche führen können: Die Potentialemission und die "kinetische" Emission (Krebs 1968). Potentialemission tritt auf, wenn die potentielle Energie des auftreffenden Teilchens größer ist als die Austrittsarbeit der Oberfläche. Sie ist unabhängig von der kinetischen Energie. Bei neutralen Atomen im Grundzustand ist keine Potentialemission möglich.

Oberhalb einer gewissen Schwellenenergie, die vom Targetmaterial und der Art der auftreffenden Teilchen abhängt, überlagert sich der Potentialemission die kinetische Emission. Bei der kinetischen Emission wird ein Teil der kinetischen Energie der Teilchen auf Targetelektronen übertragen, von denen ein gewisser Teil die Oberfläche verlassen kann. Kinetische Emission wird sowohl durch Ionen als auch durch Neutralteilchen ausgelöst.

Die beiden unterschiedlichen Mechanismen, durch die Sekundärelektronen emittiert werden, führen zu unterschiedlichen Nachweiswahrscheinlichkeiten für Ionen und neutrale Atome. Bei gleicher Teilchenenergie sollte für positive Ionen die Nachweiswahrscheinlichkeit etwas höher sein als für neutrale Atome, da zusätzlich zur kinetischen Emission die Potentialemission wirksam ist. Um zu überprüfen, bei welcher Schwellenenergie die kinetische Emission einsetzt und wie Potential- und kinetische Emission zur Nachweiswahrscheinlichkeit beitragen, wurde die Nachweiswahrscheinlichkeit der benutzten CEMs für Ionen experimentell bestimmt. Dazu wurden Ionen konstanter Intensität abwechselnd mit -3 kV nachbeschleunigt und mit ihrer ursprünglichen, bekannten Energie mit dem CEM nachgewiesen. Da bei Teilchenenergien oberhalb von 3 keV die Nachweiswahrscheinlichkeit eins ist, läßt sich aus beiden Zählraten die Nachweiswahrscheinlichkeit als Funktion der Energie der auftreffenden Ionen bestimmen.

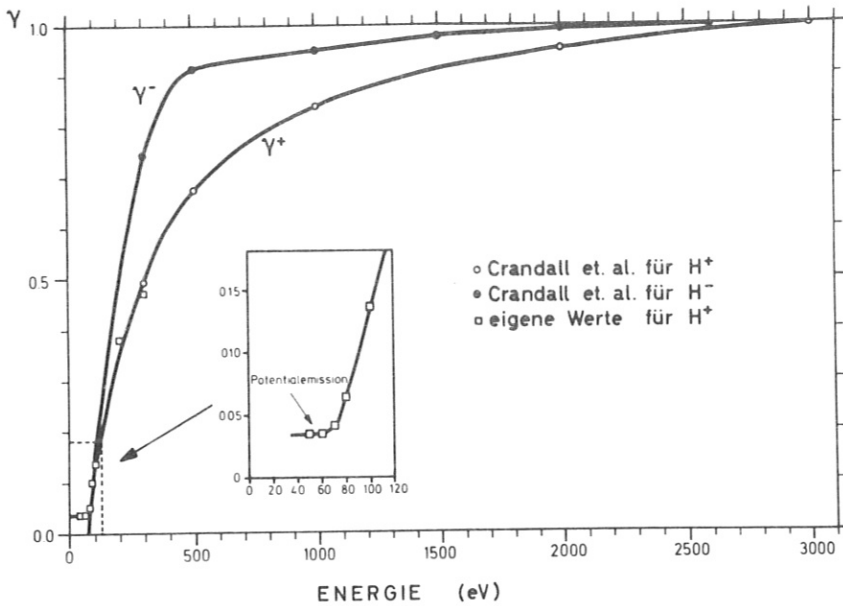


Abb. 3.3
 Nachweiswahrscheinlichkeit von CEMs für positive (γ^+) und negative (γ^-) Wasserstoffionen

Abb. 3.3 zeigt die Nachweiswahrscheinlichkeit für positive und negative Wasserstoffionen. Die Nachweiswahrscheinlichkeit $\gamma^+(E)$ bei Energien unterhalb 300 eV ist auf die oben beschriebene Weise durch eigene Messungen bestimmt, während $\gamma^+(E)$ oberhalb von 300 eV sowie γ^- von Crandall et al. (Crandall et al. 1975) auf andere Weise gemessen wurde. Bei 300 eV gehen die Ergebnisse beider Messungen für $\gamma^+(E)$ ineinander über. Der Rückgang der kinetischen Emission mit sinkender Energie, sowie der Bereich, in dem ausschließlich Potentialmission mit konstanter Nachweiswahrscheinlichkeit auftritt, ist deutlich zu erkennen. Die Schwellenenergie für kinetische Emission liegt für Wasserstoff bei 70 eV.

Die Nachweiswahrscheinlichkeit γ^0 für neutrale Atome erhält man aus der Nachweiswahrscheinlichkeit γ^+ , wenn man berücksichtigt, daß es für neutrale Atome keine Potentialmission gibt.

Für 200 eV Teilchenenergie unterscheiden sich die Nachweiswahrscheinlichkeiten für H^0 und H^+ um weniger als 10 %; bei höheren Energien wird der Unterschied völlig vernachlässigbar.

Negative Ionen brauchen nur mit + 2 keV nachbeschleunigt werden, um in den Plateaubereich der Nachweiswahrscheinlichkeit γ^- zu kommen (Crandall et al. 1975).

3.1.2.2 Die Eichkurve für den Neutralteilchenanalysator

Für die in dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen wurde als Targetgas Stickstoff bei einem Druck von 2.2×10^{-3} Torr in der Gaszelle benutzt. Stickstoff läßt sich mit den an der Apparatur vorhandenen Pumpen (Ti-Sublimation u.a.) gut pumpen und führt außerdem zu einer hohen Ionisationswahrscheinlichkeit (siehe Tab. 3.1).

Abb. 3.4 zeigt die gemessenen Ionisierungswahrscheinlichkeiten $\eta(E)$ für den Neutralteilchenanalysator. Die Meßpunkte sind Mittelwerte aus einer größeren Anzahl von Einzelmessungen. Die Schwankungsbreite der Meßpunkte ist durch senkrechte Balken angegeben.

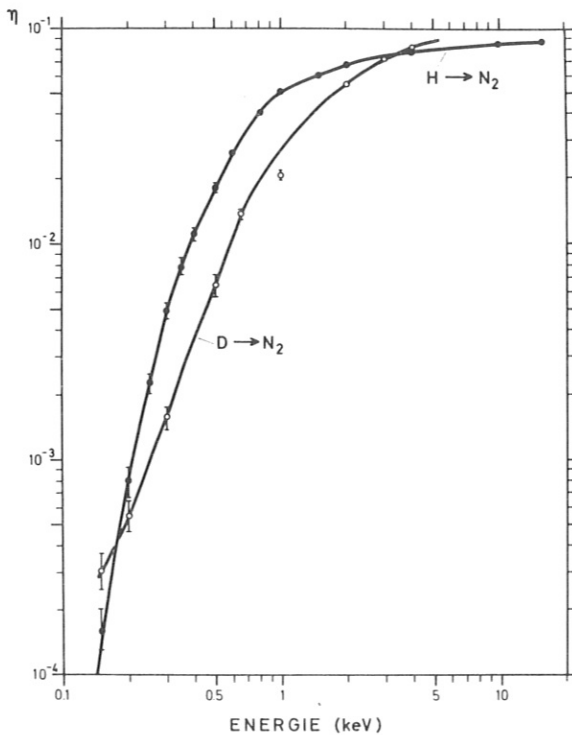


Abb. 3.4

Die Eichkurven des Neutralteilchenanalysators für H und D

Für Energien unterhalb 200 eV, d. h. für $\eta < 10^{-3}$ sind die Meßpunkte mit relativ großen Fehlern behaftet. Das ist eine Folge des begrenzten dynamischen Bereichs der CEMs. Die von einem Kanalelektronenvervielfacher noch einwandfrei zu verarbeitende Zählrate liegt bei 2×10^4 Pulse/s. Soll bei der

Eichung die Zählrate an dem CEM, mit dem die neutralen Teilchen gemessen werden, 10^4 Pulse/s nicht überschreiten, so erhält man in dem CEM, mit dem die ionisierten Teilchen registriert werden, bei 150 eV eine Zählrate von ≈ 2 Pulse/s. Das liegt schon sehr dicht an der Untergrundzählrate von 1 Puls/s. Auf diese Weise erhält man eine untere Grenze der Energie, bei der der Neutralteilchenanalysator geeicht werden kann. Sie liegt für Wasserstoff und Deuterium bei ≈ 150 eV.

3.2 Die Apparatur BOMBARDON

Die für diese Arbeit benötigten Messungen wurden an der Apparatur BOMBARDON (Eckstein und Verbeek 1973) durchgeführt. Abb. 3.5 zeigt eine schematische Darstellung.

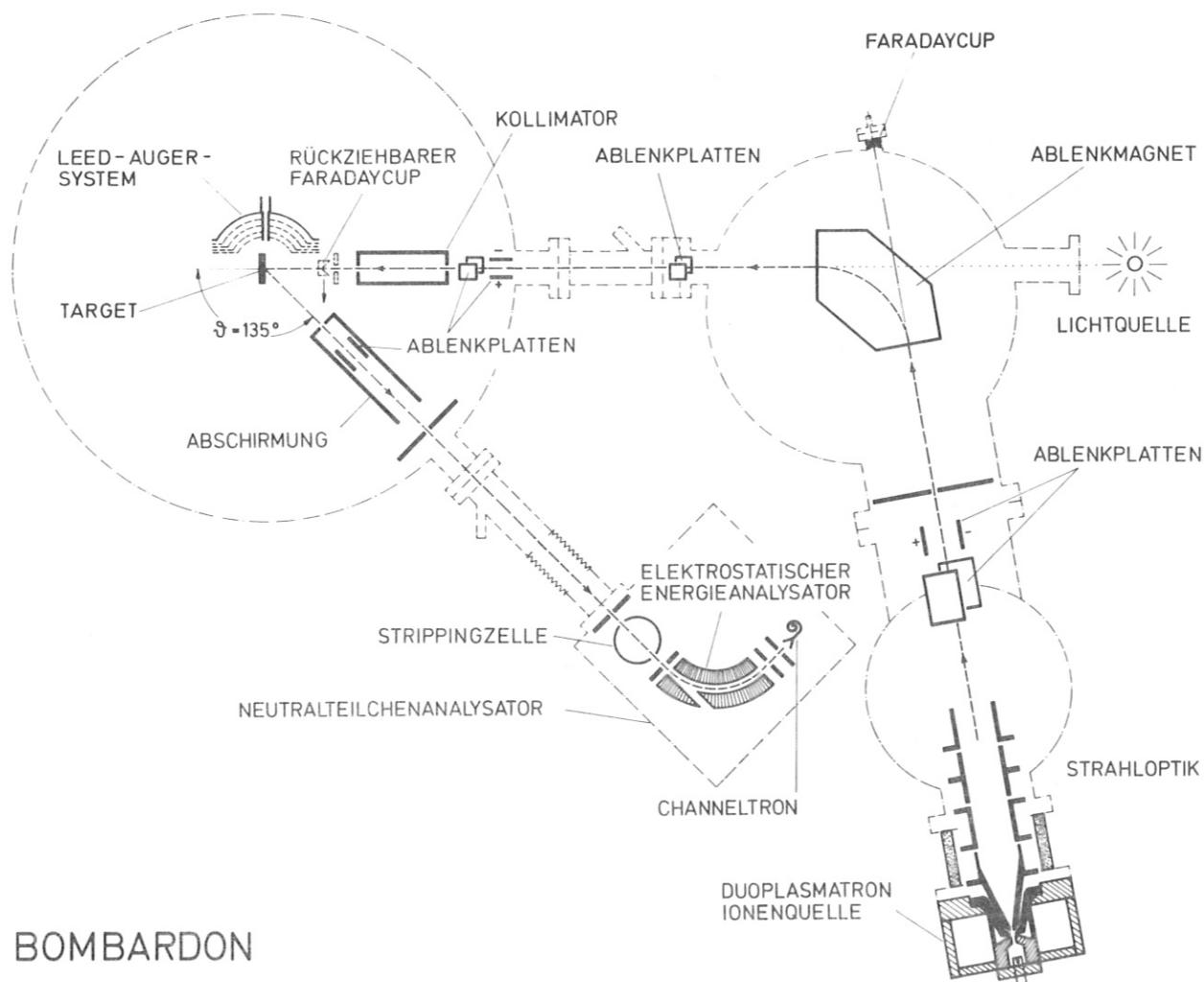


Abb. 3.5 Schematische Darstellung der Apparatur BOMBARDON

In einer Duoplasmatron-Ionenquelle werden Ionen erzeugt. Die Teilchen können auf Energien zwischen 2 und 15 keV beschleunigt werden. Eine Einzellinse fokussiert den Ionenstrahl auf eine Blende, die die Ionenquelle von der Magnetkammer trennt. Diese Blendenöffnung wird durch ein Magnetfeld auf die Eingangsblende der Streukammer abgebildet. Durch die magnetische Ablenkung werden nicht benötigte Massen aus dem Strahl abgetrennt. Durch zwei Blenden wird schließlich der Strahldurchmesser auf dem Target auf 0.5 mm bei 0.5° Winkeldivergenz begrenzt. Die Energieunschärfe am Target ist < 25 eV, die Stromdichte auf dem Target liegt bei $10 \mu\text{A}/\text{cm}^2$ bei 5 keV Ionenenergie.

Die Streukammer ist ein UHV-System, das mit einer Turbomolekularpumpe (480 l/s), Ionengetterpumpen (1000 l/s) und einer Titansublimationspumpe (20000 l/s für Wasserstoff) evakuiert wird. Nach 36-stündigem Ausheizen des Vakuumgefäßes bei 150°C wurde ein Druck von 5×10^{-11} Torr in der Streukammer erreicht, der bei Betrieb der Gaszelle des Neutralteilchenanalysators auf Werte um 2×10^{-9} Torr anstieg. Der Neutralteilchenanalysator wurde von außen angeflanscht; er wurde ebenfalls mit einer Turbomolekularpumpe (480 l/s) gepumpt. Der Raumwinkel, der vom Neutralteilchenanalysator erfaßt wird, beträgt 7.6×10^{-6} sr. Die zur Strahlführung in der Streukammer dienenden Blenden sowie der Targetmanipulator sind am Deckel des Vakuumgefäßes montiert. Zur Untersuchung der Rückstreuung an polykristallinem Gold stand ein Deckel mit einem in der Targetkammer schwenkbaren Kugelspektrometer ($\frac{\Delta E}{E} = \frac{1}{140}$) zur Verfügung. Es wurde zur Bestimmung der Oberflächensauberkeit durch Rückstreuung von 2 keV Ne-Ionen (Ion surface scattering = ISS) (Taglauer und Heiland 1976) benutzt.

Für die späteren Untersuchungen an einem Gold-Einkristall wurde ein inzwischen gebauter Deckel mit einem Manipulator (Firma Varian), der es gestattete, das Target um seine Oberflächennormale um 100° zu drehen (Azimuthdrehung) (Abb. 3.6), benutzt. Außerdem wurde an diesem Deckel ein kombiniertes LEED-Auger-System (retarding field analyzer) der Firma Physical Electronics Industries angebracht. Damit konnte die kristallographische

Struktur der Oberfläche sowie die Oberflächensauberkeit untersucht werden.

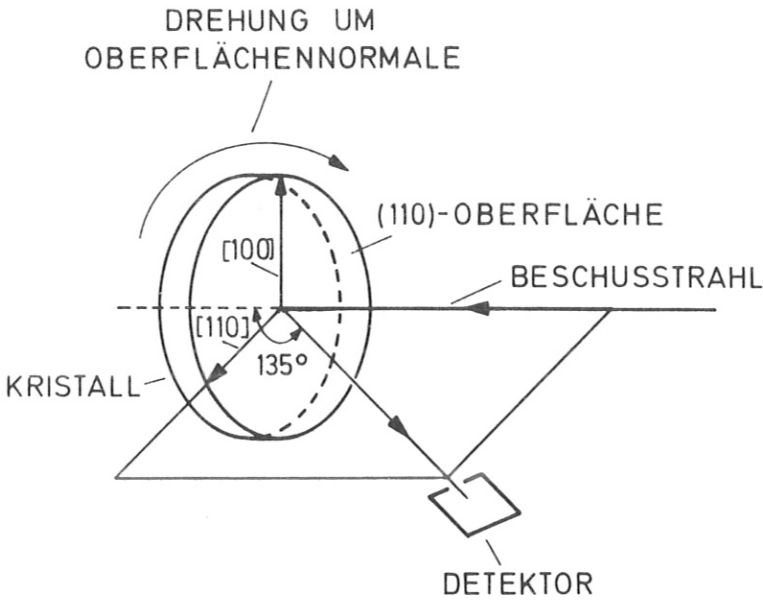


Abb. 3.6

Schematische Darstellung der beim Gold-Einkristall ausgeführten Azimutdrehung

3.2.1 Gewinnung und Verarbeitung der Meßdaten

Abb. 3.7 zeigt ein Blockschaltbild der Meßelektronik.

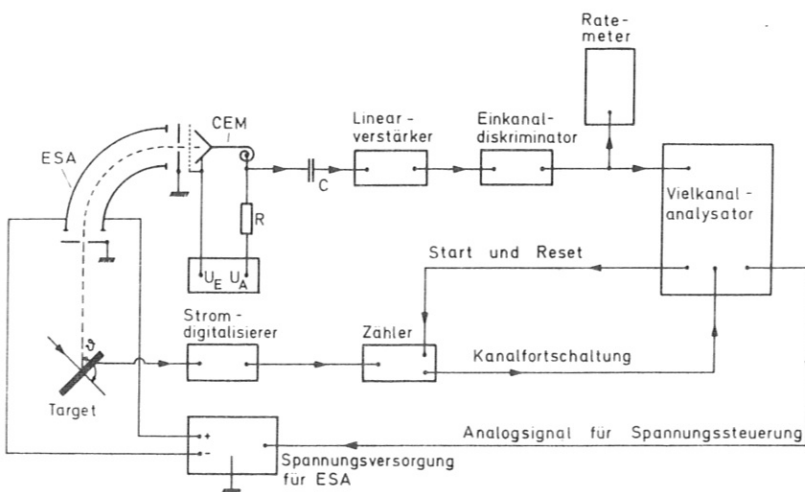


Abb. 3.7

Blockschaltbild der Meßelektronik (ESA = Elektrostatischer Energieanalysator)

Die Spannung an Ein- und Ausgang des CEMs, U_E und U_A , kann unabhängig voneinander eingestellt werden. Für positive Ionen wurde $U_E = -3$ kV und $U_A = 0$ kV gewählt, für negative $U_E = +2$ kV und $U_A = +5$ kV. Die am CEM-Ausgang anfallenden Pulse werden über einen Hochspannungskondensator C einem Linearverstärker und so verstärkt einem Vielkanalanalysator zugeführt. Der digitalisierte Primärstrom auf das Target steuert über einen Zähler die Kanalfortschaltung des Vielkanalanalysators, nachdem der Zähler eine vorher festgelegte, auf das Target gefallene Ladung festgestellt hat. Ein der Kanalnummer k proportionales Analogsignal des Vielkanalanalysators steuert die Spannungsversorgung für den elektrostatischen Energieanalysator. k ist proportional zur Energie der durchgelassenen Teilchen.

Das so gewonnene Energiespektrum muß noch wegen der Spektrometerrauflösung $\frac{\Delta E}{E} = \text{const.}$ auf konstante Breite des Energieintervalls normiert werden. Ferner muß noch die CEM-Nachweiswahrscheinlichkeit sowie die Ionisationswahrscheinlichkeit des Neutralteilchenanalysators eingerechnet werden. Dies geschieht für jeden Kanal k mit Hilfe folgender Formel:

$$N_k = \frac{\hat{N}_k}{A \cdot k \cdot C \cdot K} \cdot \frac{1}{\delta_k} \cdot \frac{1}{\eta_k} \quad (3.7)$$

wobei \hat{N}_k die gemessene Zahl von Teilchen im Kanal k und N_k die korrigierte Zahl von Teilchen ist. $A = \frac{\Delta k}{k}$ ist die Spektrometerrauflösung, C die Zahl der Primärteilchen pro Kanal und K die Zahl der Kanäle pro Spektrum. δ_k ist die CEM-Nachweiswahrscheinlichkeit und η_k die Ionisationswahrscheinlichkeit des Neutralteilchenanalysators. Bei der Umrechnung der Spektren von einer Funktion der Kanalnummer in eine Funktion der Energie der rückgestreuten Teilchen wird, ausgehend von der Primärenergie, der elastische Energieverlust bei der Streuung an Oberflächenatomen berücksichtigt. Inelastische Energieverluste können gegenüber den elastischen in dem hier untersuchten Energiebereich vernachlässigt werden.

3.3 Die Targets

3.3.1 Polykristallines Gold

Das polykristalline Goldtarget bestand aus einer gewalzten Scheibe mit 15 mm Durchmesser. Die mittlere Oberflächenrauigkeit nach mechanischem Polieren war $0.1 \mu\text{m}$. Zur Reinigung wurde das Target in situ durch Elektronenbeschuß von der Rückseite auf 950°C geheizt. Da der auf der Oberfläche adsorbierte Kohlenstoff bei 950°C noch nicht desorbiert, wurde anschließend in situ frisches Gold (99.999 %) auf die Oberfläche aufgedampft, indem ein Golddraht in einer Wolframspirale erhitzt wurde. Der Grad der Oberflächenverunreinigung läßt sich aus den ISS-Spektren vor und nach der Reinigungsprozedur bestimmen (Abb. 3.8) (Taglauer und Heiland 1976).

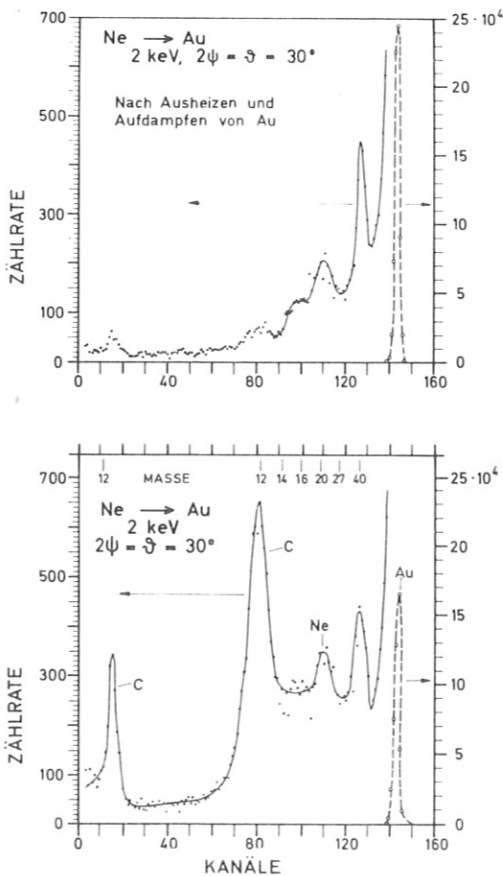


Abb. 3.8

ISS-Spektren des polykristallinen Goldtargets vor und nach dem Aufdampfen von frischem Gold

Nimmt man für eine pessimistische Abschätzung der Oberflächenbedeckung mit der Hauptverunreinigung Kohlenstoff an, daß die Atomradien von Gold und Kohlenstoff gleich sind, sowie daß Ne an Kohlenstoff und Gold mit gleicher Wahrscheinlichkeit neutralisiert werden (in Wirklichkeit ist die Neutralisation an C viel kleiner), so erhält man durch Berücksichtigung der Abschätzung des Substrats⁺⁾ eine Bedeckung des Goldes mit 0.03 Monolagen Kohlenstoff nach dem Aufdampfen.

Der Peak im ISS-Spektrum bei Masse 40 läßt sich nicht eindeutig interpretieren. Die Tatsache, daß er in beiden Spektren gleich hoch ist, spricht sowohl dagegen, daß es sich um eine Verunreinigung im Volumen handelt, als auch dagegen, daß es eine beim Aufdampfen aufgebrauchte Verunreinigung ist.

Durch Röntgenbeugung (Laue-Methode) zeigte sich, daß das Gold-Target aus Kristalliten bestand, deren Größe jedoch klein gegenüber dem Strahldurchmesser war. Auch herrschte eine geringe zweizählige Vorzugsorientierung der Oberfläche vor ((110)-Orientierung). Die Experimente zeigten jedoch keinen Hinweis auf einkristalline Effekte.

+) Sei ψ der Einfallswinkel des Analysierstrahls, P_A und P_S die Atomradien der Adsorbatatome resp. der Substratome, so werden von jedem Adsorbatatom $2P_A^2/P_S^2 |\cot \psi|$, $\psi \ll \pi$, Substratome abgeschattet.



3.3.2 Einkristallines Gold

Zur Untersuchung der Richtungsabhängigkeit der Neutralisation bei der Rückstreuung wurde ein parallel zu einer (110)-Fläche geschnittener Gold-Einkristall verwendet. Er wurde durch Funken-erosion auf die (110)-Fläche abgetragen und anschließend elektrolytisch poliert.

Auch auf dem Gold-Einkristall zeigte sich nach dem Einbau in die Streukammer durch Auger-Spektroskopie ein erheblicher Kohlenstoffbelag der Oberfläche (Abb. 3.9 a).

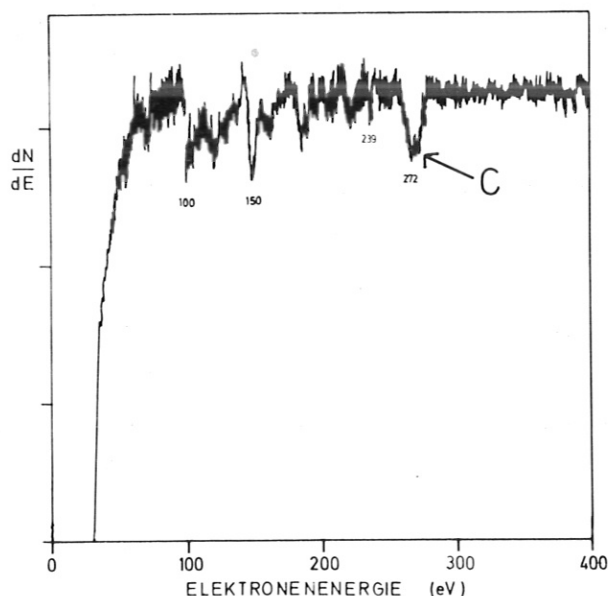


Abb. 3.9 a

Auger-Spektrum des ein-
kristallinen Goldtargets
vor der Reinigung

Zur Reinigung wurde der Kristall unter verschiedenen Winkeln zwischen 17° und 23° zur Oberfläche mit 3 keV Ne_{20}^+ beschossen und anschließend bei 250°C ausgeheizt. Nach dieser Prozedur sind im Auger-Spektrum keine Verunreinigungen mehr zu erkennen (Abb. 3.9 b). Nimmt man an, daß der Bedeckung mit Absorbat-schichten bei gleichem Elektronenstrom die Peakhöhe des Auger-Signals proportional ist, so erhält man aus der Schwankungs-breite des Auger-Spektrums nach der Reinigung eine obere Grenze von 0.2 Monolagen Kohlenstoff auf dem Gold-Kristall. Dabei geht ein, daß der Kohlenstoffpeak vor der Reinigung etwa 2 Atomlagen entspricht (Staib 1977).

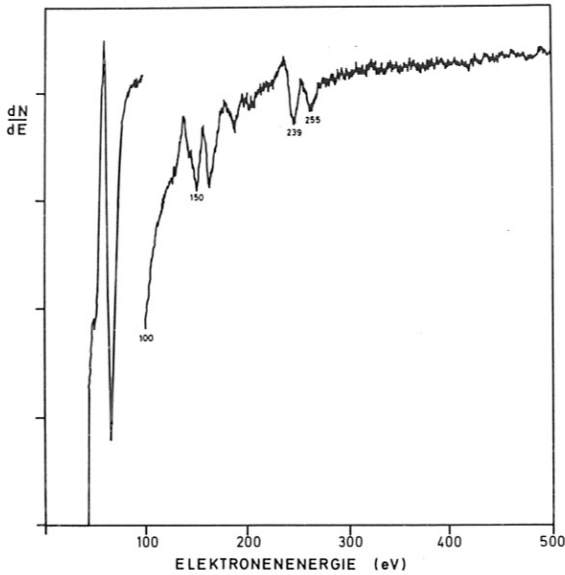


Abb. 3.9 b

Auger-Spektrum des ein-
kristallinen Goldtargets
nach der Reinigung in situ

Wiederholte Kontrollen während des Experiments zeigten, daß sich in dem Vakuum von 2×10^{-11} Torr keine neue Adsorbatschicht ausbilden konnte.

Die Überprüfung der kristallographischen Struktur der Kristalloberfläche durch Elektronenbeugung (LEED) ergab eine rekonstruierte (110)-Fläche mit einer 2×1 Überstruktur (Abb. 3.10) in Übereinstimmung mit anderen Untersuchungen (Wolf 1972, Fedak und Gjostein 1967).



Abb. 3.10 LEED-Aufnahme des einkristallinen Goldtargets:
(110)-Fläche mit 2×1 -Überstruktur

4. MESSERGEBNISSE

4.1 Rückstreuung an polykristallinem Gold

Das polykristalline Goldtarget wurde senkrecht zur Oberfläche mit Wasserstoff- und Deuteriumionen zwischen 1 und 5 keV pro Nukleon beschossen. Die rückgestreuten Teilchen wurden jeweils unter dem festen Streuwinkel $\vartheta = 135^\circ$ (siehe Abb. 3.5) analysiert. Einen typischen Satz von Rückstreuspektren der drei Ladungszustände zeigt Abb. 4.1. Diese Energiespektren sind bereits bezüglich der Nachweiswahrscheinlichkeit δ , der Ionisationswahrscheinlichkeit η und der Spektrometerauflösung $\Delta E = E \times \text{const.}$ korrigiert, wie es in Kap. 3.2.1 beschrieben ist.

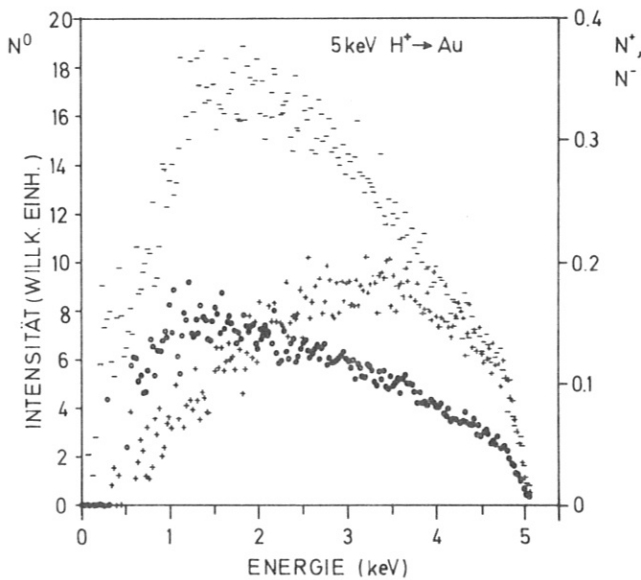


Abb. 4.1

Energiespektren der rückgestreuten Teilchen (Ionen und Neutrals) beim Beschuss von polykristallinem Gold mit Wasserstoff (+ = H⁺, - = H⁻, o = H⁰)

In dem hier betrachteten Energiebereich bis 5 keV ist die Zahl der als negatives Ion rückgestreuten Teilchen stets größer als die Zahl der positiven rückgestreuten Ionen. Das Energiespektrum der negativen Teilchen zeigt einen raschen Anstieg mit steigender Energie, bis bei 1.8 keV ein Maximum erreicht wird. Demgegenüber steigt die Anzahl der rückgestreuten positiven Ionen viel langsamer an und erreicht erst bei 3.7 keV ein breites Maximum. Die rückgestreuten neutralen Wasserstoffatome zeigen bereits bei 1 keV das Maximum ihrer Intensität.

Bei Energien unterhalb 300 eV sind die statistischen Schwankungen bereits sehr groß. Deshalb ist es dort - insbesondere für die Neutralteilchen - nicht sinnvoll, Rückstreuintensitäten anzugeben, obwohl die Eichkurve des Neutralteilchenanalyzers bis zu 150 eV herunter bestimmt wurde. Die Streuung der Meßwerte liegt unterhalb 300 eV bei $\pm 100\%$ des Mittelwerts, während sie bei 3 keV nur noch $\pm 5\%$ beträgt und mit steigender Energie immer geringer wird.

Die Rückstreuenspektren der drei Ladungszustände zeigen, daß bei Fragestellungen, bei denen die Gesamtzahl der rückgestreuten Teilchen eine Rolle spielt, der neutrale Anteil auf jeden Fall mit gemessen werden muß, da er bei Energien unter 5 keV über 90% ausmacht. Da sich die Spektren schon in der Form (Lage und Ausprägung des Maximums) wesentlich unterscheiden, kann man aus den rückgestreuten Ionen nicht auf die Gesamtrückstreuung schließen.

Für die in Abb. 4.1 dargestellten Spektren zeigt Abb. 4.2 die zugehörigen Ladungsverhältnisse $N^+/N_{\text{tot.}}$ und $N^-/N_{\text{tot.}}$.

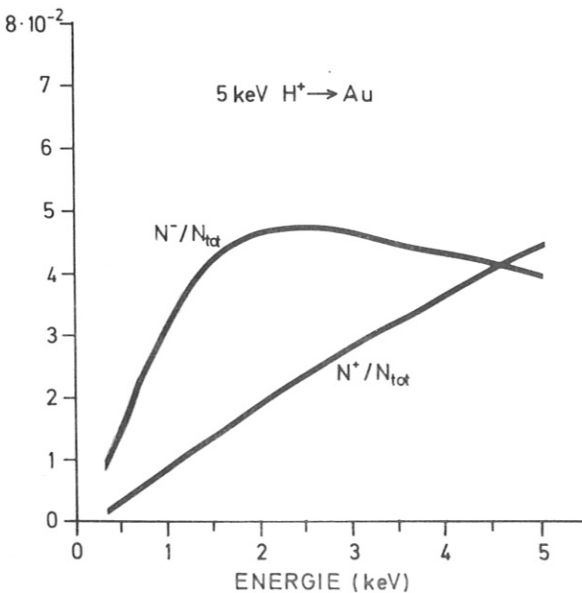


Abb. 4.2

Ladungsverhältnisse $N^+/N_{\text{tot.}}$ und $N^-/N_{\text{tot.}}$ der rückgestreuten Teilchen beim Beschuß von polykristallinem Gold mit 5 keV H^+

Hier wie auch bei anderen Primärenergien (Abb. 4.3 und 4.4) steigt das Ladungsverhältnis N^+/N_{tot} linear mit der Rückstreuenergie an. Demgegenüber zeigt der Anteil der rückgestreuten negativen Teilchen einen Maximalwert von 4.5 % bei 2.2 keV Rückstreuenergie. Die Lage dieses Maximums ist von der Primärenergie unabhängig.

Es wurde auch untersucht, ob die Art des Primärteilchens, Atom oder Molekül einen Einfluß auf den Ladungszustand bei Rückstreuung hat.

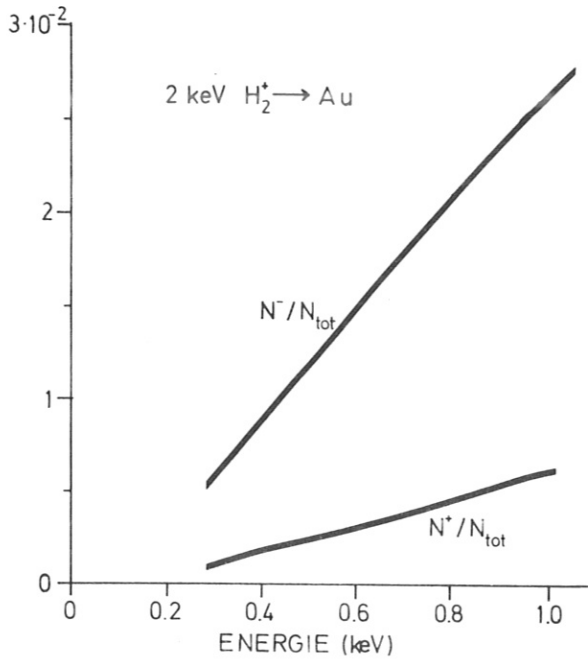


Abb. 4.3

Ladungsverhältnisse N^+/N_{tot} und N^-/N_{tot} der rückgestreuten Teilchen beim Beschuß von polykristallinem Gold mit 2 keV H_2^+ (entspricht 1 keV H^+)

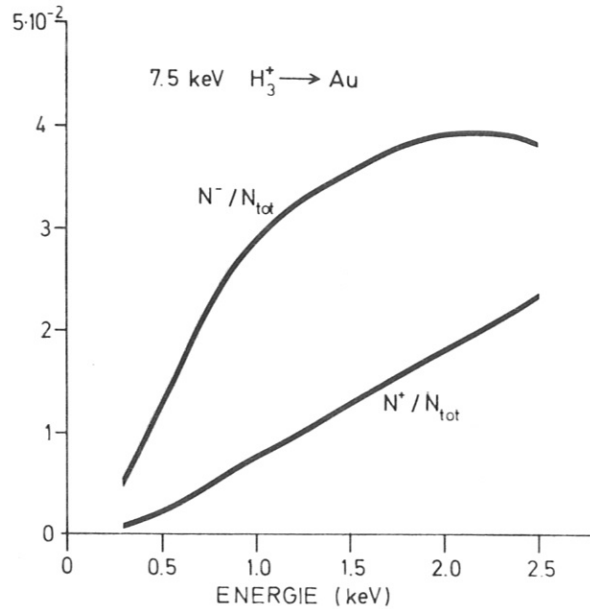


Abb. 4.4

Ladungsverhältnisse N^+/N_{tot} und N^-/N_{tot} der rückgestreuten Teilchen beim Beschuß von polykristallinem Gold mit 7.5 keV H_3^+ (entspricht 2.5 keV H^+)

Abb. 4.3, 4.4 und 4.5 zeigen, daß im Rahmen der Meßgenauigkeit die Ladungsverhältnisse nur von der Energie der rückgestreuten Teilchen abhängen, jedoch nicht von der Primärenergie und der Art - Atomion oder Molekülion - der Primärteilchen.

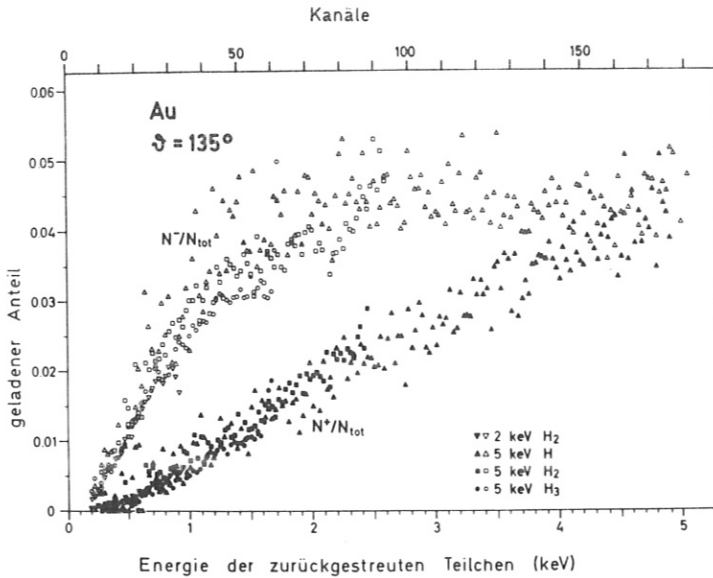


Abb. 4.5

Die Ladungsverhältnisse N^+/N_{tot} und N^-/N_{tot} der rückgestreuten Teilchen beim Beschuß von polykristallinem Gold mit H^+ , H_2^+ und H_3^+

Offensichtlich zerfällt das Molekül beim Auftreffen auf die Oberfläche in seine Atome, die fortan unkorreliert weiterlaufen. Der Energieverlust der Teilchen durch den Zerfall (Dissoziationsenergie) beträgt nur wenige eV und kann vernachlässigt werden. Ein "Moleküleffekt", wie er von Verbeek et al. (Verbeek et al. 1976) an Ta und ThO_2 , jedoch ebenfalls nicht an Au, gefunden wurde, konnte auch hier nicht beobachtet werden.

Neben der Umladung von Wasserstoffionen wurde auch die Umladung von Deuteriumionen bei der Rückstreuung untersucht. Abb. 4.6 zeigt einen typischen Satz von Rückstreuenspektren der drei Ladungszustände für den Beschuß mit Deuteronen. Die Spektren unterscheiden sich qualitativ nur wenig von den Spektren für Wasserstoff. Nur das Maximum in der Rückstreuintensität der neutralen Atome ist stärker ausgeprägt als beim Wasserstoff.

Abb. 4.7 und 4.8 zeigen Ladungsverhältnisse für Deuterium beim Beschuß von Gold mit unterschiedlichen Primärenergien.

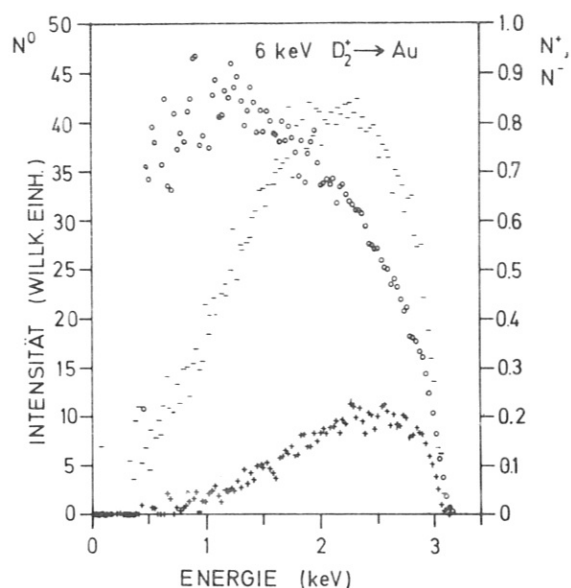


Abb. 4.6

Energiespektren der rückgestreuten Teilchen (Ionen und Neutrale) beim Beschuß von polykristallinem Gold mit Deuterium (+ = D^+ , - = D^- , o = D^0)

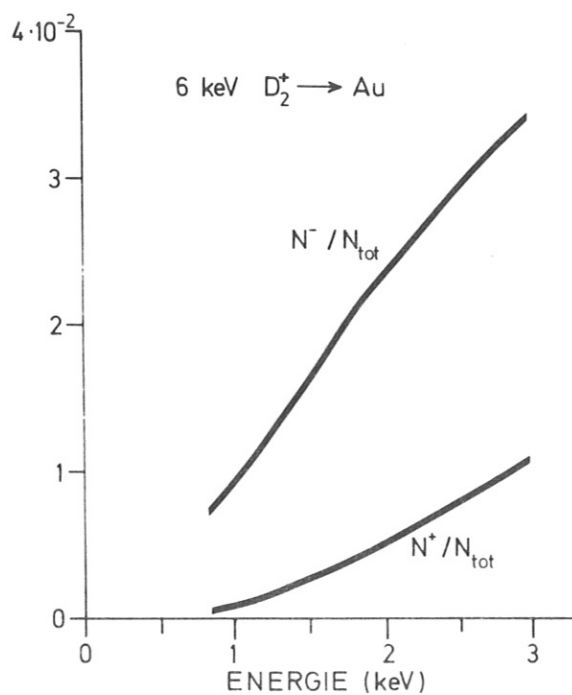


Abb. 4.7

Ladungsverhältnisse N^+/N_{tot} und N^-/N_{tot} der rückgestreuten Teilchen beim Beschuß von polykristallinem Gold mit 6 keV D_2^+ (entspricht 3 keV D^+)

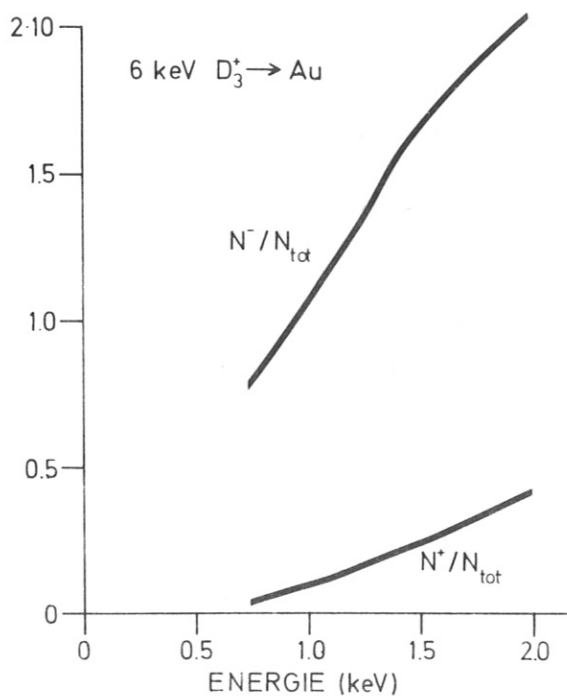


Abb. 4.8

Ladungsverhältnisse N^+/N_{tot} und N^-/N_{tot} der rückgestreuten Teilchen beim Beschuß von polykristallinem Gold mit 6 keV D_3^+ (entspricht 2 keV D^+)

Trägt man die Ladungsverhältnisse sowohl für H als auch für D als Funktion der Energie pro Nukleon, also bei gleicher Geschwindigkeit, auf (Abb. 4.9), so sind die Ladungsverhältnisse gleich.

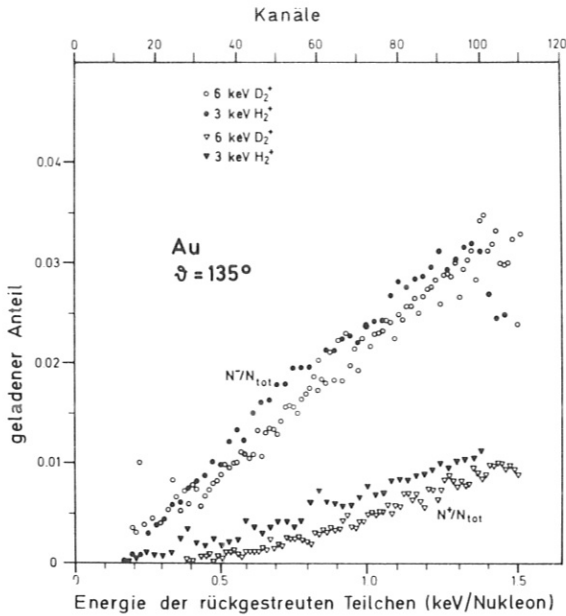


Abb. 4.9

Die Ladungsverhältnisse N^+/N_{tot} und N^-/N_{tot} beim Beschuß von polykristallinem Gold mit H_2^+ und D_2^+ bei gleicher Energie pro Nukleon

Zusätzlich zur Bestimmung der Ladungsverhältnisse unter dem festen Streuwinkel $\vartheta = 135^\circ$ wurde für verschiedene Streuwinkel ϑ ($20^\circ \leq \vartheta \leq 140^\circ$) bei spiegelbildlicher Beschuß- und Beobachtungsrichtung das Verhältnis N^-/N^+ für den Fall $5 \text{ keV } D_3^+ \rightarrow \text{Au}$ bestimmt (Abb. 4.10). Diese Messung wurde mit dem in Kap. 3.2 beschriebenen, schwenkbaren Kugelspektrometer durchgeführt.

$$D_3^+ \rightarrow \text{Au}, 5 \text{ keV}, 2\psi = \vartheta$$

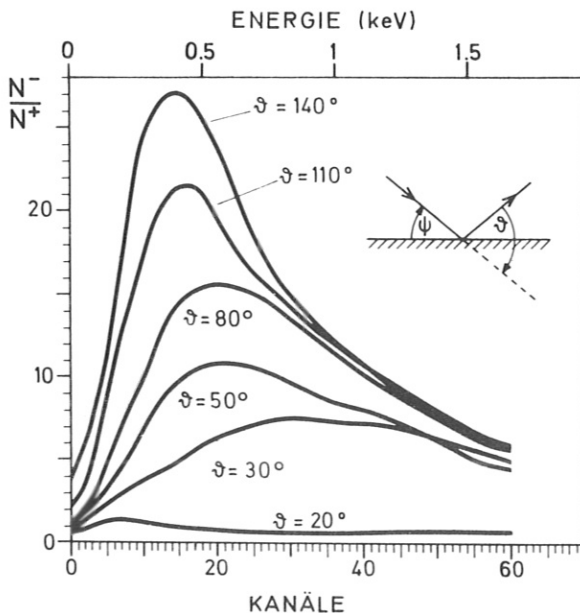


Abb. 4.10

N^-/N^+ beim Beschuß von polykristallinem Gold mit $5 \text{ keV } D_3^+$ für verschiedene Streuwinkel ϑ

Es zeigt sich eine starke Abhängigkeit des Verhältnisses N^-/N^+ vom Streuwinkel ϑ . Für kleines ϑ , d. h. flachen Einschub und Beobachtung unter einem flachen Winkel zur Oberfläche ist der Anteil der negativen rückgestreuten Ionen im gesamten Energiebereich etwa gleich groß wie der Anteil der positiven Teilchen. Für größer werdendes ϑ nimmt N^- absolut mehr zu als N^+ .

4.2 Rückstreuung an einkristallinem Gold

Die Theorien zur Neutralisation eines Ions an einer Metalloberfläche postulieren eine von der Elektronendichte abhängende Neutralisationswahrscheinlichkeit. Bei einem Einkristall korreliert die elektronische Struktur der Oberfläche mit der Kristallstruktur. Deshalb sollte man richtungsabhängige Effekte bei der Neutralisation an einem Einkristall erwarten. Es wurde ein Goldeinkristall mit einer (110)-Oberfläche als Target verwendet. Die Beschuss- und Beobachtungsgeometrie war die gleiche wie beim polykristallinen Fall, d. h. der Einschub erfolgte senkrecht zur Oberfläche und beobachtet wurde unter $\vartheta = 135^\circ$. Der Kristall konnte um eine Achse, die senkrecht auf seiner Oberfläche stand, gedreht werden. Dadurch wandert die durch Beschuss- und Beobachtungsrichtung definierte "Streuenebene" durch den Kristall (Abb. 4.11).

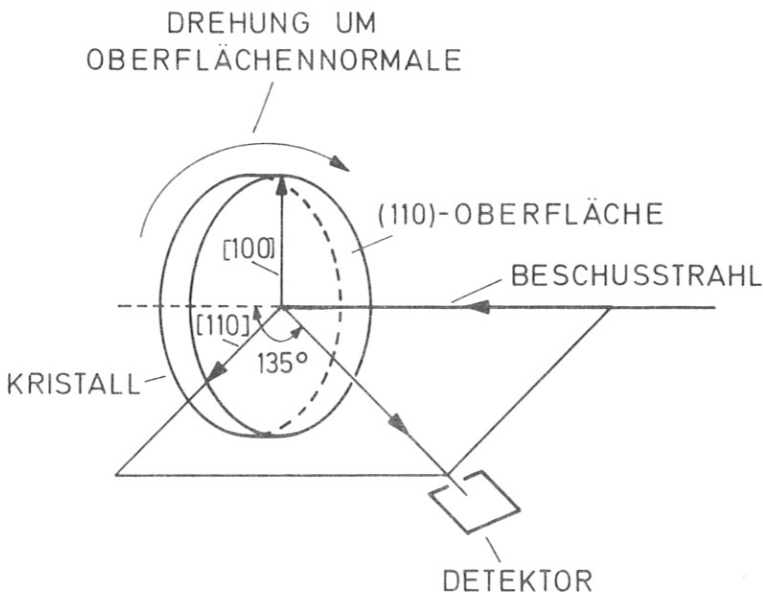


Abb. 4.11

Schematische Darstellung der beim Gold-Einkristall ausgeführten Azimuthdrehung

Diese Azimuttdrehung umfaßte einen Winkel von 100° . Der Drehwinkel wird im folgenden mit φ bezeichnet. $\varphi = 0^\circ$ bedeutet, daß die Streuebene mit einer (100)-Ebene zusammenfällt. Die Azimuttdrehung um 100° reicht wegen der zweizähligen Symmetrie der (110)-Oberfläche aus, um sämtliche topologisch unterscheidbaren Orientierungen bei vorgegebener Einschuß- und Beobachtungsrichtung zu erfassen.

Einen Satz typischer Rückstreuspektren für den Beschuß des Gold-einkristalls mit (110)-Oberfläche mit 10 keV H_2^+ zeigt Abb. 4.12.

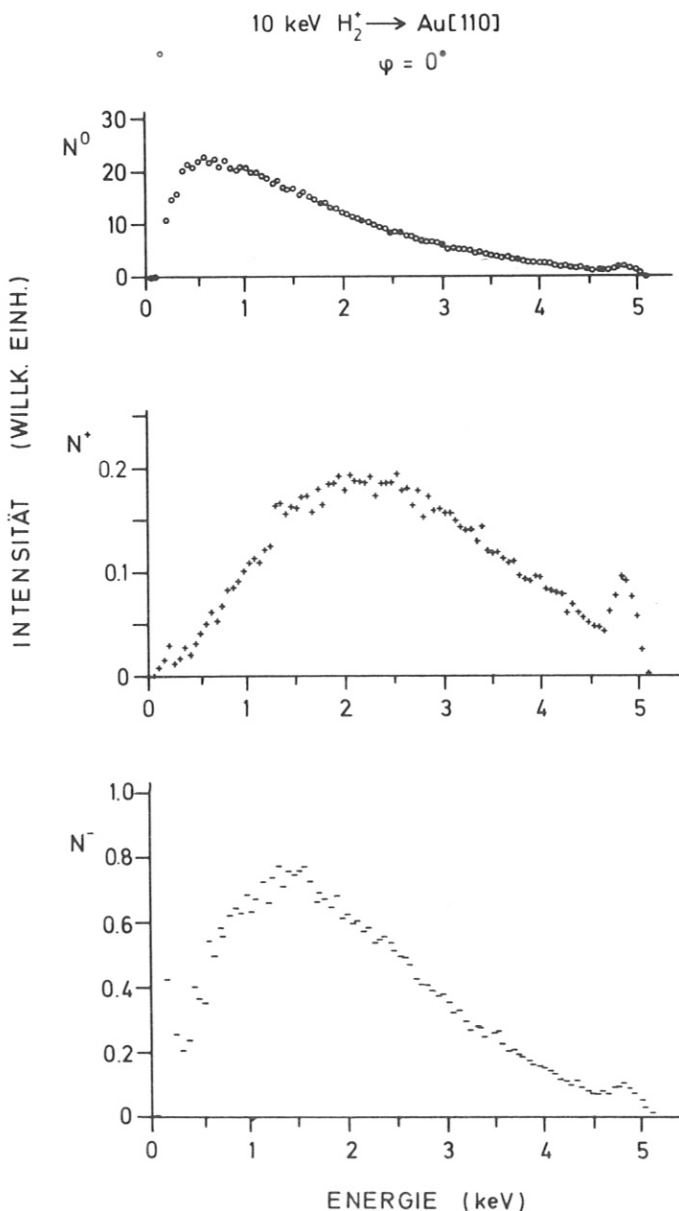


Abb. 4.12

Energiespektren der rückgestreuten Teilchen (Ionen und Neutrale) beim Beschuß eines Gold-Einkristalls mit (110)-Oberfläche ($\varphi = 0^\circ$)

Die Rückstreuenspektren zeigen einen Oberflächenpeak, der den direkt an der "Oberflächenschicht" gestreuten Teilchen entspricht. Bei Energien unterhalb des Oberflächenpeaks ist das Verhalten qualitativ ähnlich wie beim Beschuß von polykristal-
linem Material. Die Intensität unterhalb des Oberflächenpeaks stammt hauptsächlich von Teilchen, die infolge mehrfacher Stöße mit Targetatomen einen Teil ihrer Energie eingebüßt haben.

Die große Rückstreuintensität unterhalb des Oberflächenpeaks zeigt, daß die Orientierung des Kristalls nicht ideal war, da sonst wegen des Gitterführungseffekts die Teilchen tief in den Kristall eingedrungen wären und nicht mehr rückgestreut würden. Die Abweichung der Oberflächennormalen von Beschußrichtung und Drehachse betrug 2° . Eine genauere Ausrichtung war jedoch nicht notwendig, wie noch bei der Interpretation der Ergebnisse in Kap. 5 gezeigt wird. Außerdem konnte mit dem vorhandenen Manipulator die Orientierung nicht besser eingestellt werden. Die Höhe des Oberflächenpeaks hängt von der Azimutheinstellung ab. Der Peak ist besonders gut ausgeprägt für Beobachtungsrichtungen, die dichtgepackten Richtungen im Kristall entsprechen.

Die zugehörigen Ladungsverhältnisse zeigen knapp unterhalb der Primärenergie einen starken Anstieg (Abb. 4.13).

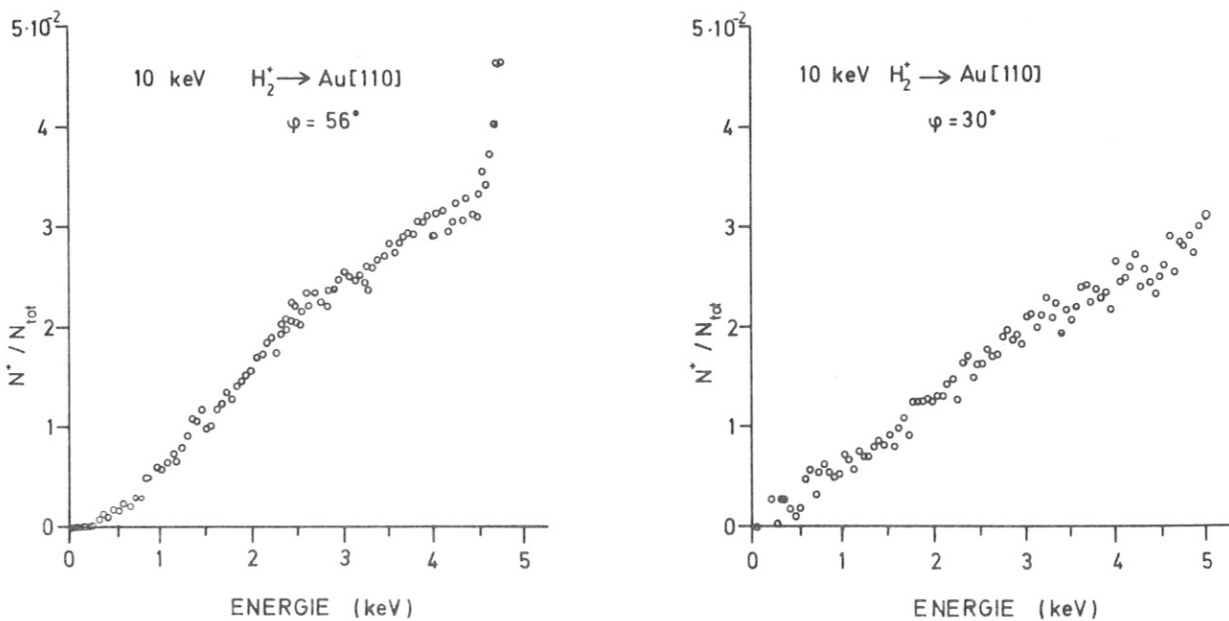


Abb. 4.13

Das Ladungsverhältnis N^+ / N_{tot} der rückgestreuten Teilchen beim Beschuß eines Gold-Einkristalls mit (110)-Oberfläche mit Wasserstoff für zwei unterschiedliche Azimutheinstellungen φ

Die Höhe dieses Anstiegs ist abhängig vom Azimutwinkel φ und ist besonders ausgeprägt, wenn die Streuebene mit dichtgepackten Ebenen zusammenfällt, insbesondere, wenn sie mit der (100)-, (111)- und (221)-Ebene zusammenfällt. (Vgl. Abb. 5.9 bis 5.11)

Die Ladungsverhältnisse $N^-/N_{\text{tot.}}$ unterscheiden sich beim Beschuß von einkristallinem Gold praktisch nicht von den an polykristallinem Gold bestimmten. Sie zeigen ein Maximum bei ≈ 2.3 keV.

4.3 Fehlerbetrachtung

Die Genauigkeit der Meßergebnisse wird sowohl durch systematische Fehler, die durch die experimentelle Anordnung vorgegeben sind, als auch durch Fragen der Statistik, sowie durch eine gewisse Ungenauigkeit bei der Auswertung der Meßergebnisse bestimmt. Als wesentliche Fehlerquellen, denen gegenüber alle anderen Fehler vernachlässigt werden können, ist die Reproduzierbarkeit der Druckmessung in der Gaszelle, sowie bei der Berechnung der Ladungsverhältnisse $N^+/N_{\text{tot.}}$ und $N^-/N_{\text{tot.}}$ der Energieverlust der in der Gaszelle ionisierten Teilchen anzusehen. Die Reproduzierbarkeit der Druckmessung wurde experimentell überprüft. Die Abweichungen von dem eingestellten Druck betragen bis zu ± 10 %. Dadurch kann sich auch die Neutralisationswahrscheinlichkeit um 10 % ändern. Das wirkt sich beim Ladungsverhältnis durch eine Ungenauigkeit von ebenfalls bis zu 10 % aus.

Die in der Gaszelle ionisierten, ursprünglich neutralen Teilchen erfahren einen Energieverlust, der mindestens so groß wie ihre Ionisierungsenergie ist. Dieser Energieverlust kann aus der Lage des Abfalls der Spektren bei den positiven Teilchen und den neutral rückgestreuten Teilchen bestimmt werden. Bei der Berechnung der Ladungsverhältnisse durch Division der Kanalinhalt zweier Spektren muß die Spektrumsverschiebung infolge dieses Energieverlustes der Neutralteilchen in der Gaszelle rückgängig gemacht werden, da sonst ein steiler Anstieg

des Ladungsverhältnisses an der Oberfläche vorgetäuscht würde. Diese Korrektur muß auf Bruchteile eines Kanals genau ausgeführt werden. Der beim einkristallinen Goldtarget beobachtete Anstieg des Ladungsverhältnisses ist jedoch eindeutig nicht auf eine derartige Ungenauigkeit der Auswertung zurückzuführen, sondern ist ein realer physikalischer Effekt. Außerdem tritt beim Durchgang der Teilchen durch die Gaszelle eine Energieverbreiterung auf. Um diesen systematischen Fehler zu korrigieren, müßte die gemessene Energieverteilung entfaltet werden. Die Energieverbreiterung ist jedoch nicht gut bekannt; deshalb wurde diese Prozedur nicht ausgeführt und der so entstandene Fehler vernachlässigt. Dieser Fehler ist jedoch ebenfalls klein gegenüber der Ungenauigkeit der Reproduzierbarkeit der Druckmessung.

5. INTERPRETATION

Die verschiedenen Theorien zur Neutralisation eines Ions an einem Metalltarget haben entweder Tunnel- und Rekombinationsprozesse an der Oberfläche (Hagstrum 1954, Yavlinskii et al. 1966, Trubnikov und Yavlinskii 1967, Kitagawa und Ohtsuki 1976, Brandt und Sizmann 1971) als Modellvorstellung zum Inhalt, oder die Ausbildung des Ladungszustands wird als dynamischer Prozeß im Volumen verstanden, der durch den Austritt an die Oberfläche eingefroren wird (siehe Kap. 2). In Kap. 2 sind die grundlegenden physikalischen Gesichtspunkte behandelt worden. Deshalb sollen hier nur die Ergebnisse der oben erwähnten theoretischen Ansätze betrachtet werden.

Trubnikov und Yavlinskii (Trubnikov und Yavlinskii 1967) und Kitagawa und Ohtsuki (Kitagawa und Ohtsuki 1976) diskutieren den Einfang eines Elektrons aus dem Elektronendichteausläufer des Leitungsbandes an der Oberfläche. In beiden Arbeiten werden unrealistische Wellenfunktionen mit Diskontinuitäten in der zweiten Ableitung für die Leitungsbandelektronen benutzt. Für den Anteil der positiven Ionen an der Gesamtzahl der gestreuten Teilchen erhalten Trubnikov und Yavlinskii

$$\frac{N^+}{N_{\text{tot.}}} = e^{-\frac{A}{v}}, \quad (5.1)$$

mit $A = \frac{1}{2} \gamma v_F \sqrt{E_F/\rho}$, wobei γ ein freier Parameter ist. v_F , E_F und ρ sind wie in Kap. 2 definiert, v ist die Teilchengeschwindigkeit. Einen ähnlichen Ausdruck erhalten Kitagawa und Ohtsuki.

Yavlinskii et al. (Yavlinskii et al. 1966) betrachten einen Rekombinationsprozeß und erhalten

$$\frac{N^+}{N_{\text{tot.}}} = e^{-\frac{1}{v} \int_0^{\infty} n(x) \chi \, dx}, \quad (5.2)$$

wobei $n(x)$ die Elektronendichte im Abstand x von der Oberfläche ist und χ ist der Rekombinationskoeffizient: $\chi = \frac{8}{\pi} \left(\frac{3}{\pi}\right)^{1/3} \frac{e^2}{\hbar} n^{-2/3}$.

Brandt und Sizmann (Brandt und Sizmann 1971) nehmen an, daß zwischen einem Proton und einem Elektron im Volumen des Metalls eine "Korrelation bezüglich Geschwindigkeit und Richtung" bestehen kann; an der Oberfläche führt diese Korrelation dann zum Einfang des Elektrons. Nach Brandt und Sizmann ist der Anteil der positiven Ionen an der Gesamtzahl der rückgestreuten Teilchen durch

$$1 - \frac{1}{1+0.7 \frac{E_p(\text{keV})}{25}} \leq \frac{N^+}{N_{\text{tot.}}} \leq 1 - \frac{1}{1+ \frac{E_p(\text{keV})}{25}} \quad (5.3)$$

gegeben, wobei E_p die Austrittsenergie des Protons aus dem Festkörper ist.

Kleber und Zwiigel (Kleber und Zwiigel 1977) haben auf der Grundlage des in Kap. 2 besprochenen hydrodynamischen Modells das Ladungsverhältnis $\frac{N^+}{N_{\text{tot.}}}$ für die Umladung von Wasserstoffionen an Gold berechnet. Sie kommen zu dem Ergebnis

$$\frac{N^+}{N_{\text{tot.}}} = \left(\frac{1}{2} - \frac{1-\alpha^2}{4\alpha} \ln \frac{1+\alpha}{1-\alpha} \right)^2, \quad (5.4)$$

$$\text{mit } \alpha = mv/2\hbar k_F .$$

Während die Theorien von Brandt und Sizmann, Kitagawa und Ohtsuki im Fall der Umladung von Protonen für Energien zwischen 10 keV und 100 keV gelten, also den in dieser Arbeit betrachteten Energiebereich nur am Rand berühren, betrachten die anderen erwähnten Arbeiten einen Energiebereich, der Teilchengeschwindigkeiten unterhalb der Fermigeschwindigkeit v_F entspricht. Für Wasserstoff ist das der Energiebereich unter 20 keV.

Alle theoretischen Arbeiten, die Tunnelprozesse betrachten, ergeben eine exponentielle Abhängigkeit von der Austrittsgeschwindigkeit:

$$\frac{N^+}{N_{\text{tot.}}} = e^{-\frac{A}{v}}, \quad (5.5)$$

wobei die Konstante A im Exponenten nur mit großer Ungenauigkeit bestimmt werden kann.

Der von Trubnikov und Yavlinskii explizit angegebene Ausdruck für die Neutralisierungswahrscheinlichkeit ergibt für $v < v_F$ einen Wert von $\frac{N^+}{N_{tot.}} > 1$, kann also allenfalls qualitativ ein mögliches Modell beschreiben. Die anderen theoretischen Arbeiten befassen sich mit Energien, die höher als die hier betrachteten sind und sollen deshalb auch nicht mit dem Experiment verglichen werden. Nur die Rechnung von Kleber und Zwiigel führt zu einem fast linearen Anstieg des Ladungsverhältnisses $\frac{N^+}{N_{tot.}}$, das mit den hier gemessenen Werten für polykristallines Gold gut übereinstimmt. In Abb. 5.1 wird das experimentelle Ladungsverhältnis $\frac{N^+}{N_{tot.}}$ mit der Rechnung von Kleber und Zwiigel verglichen.

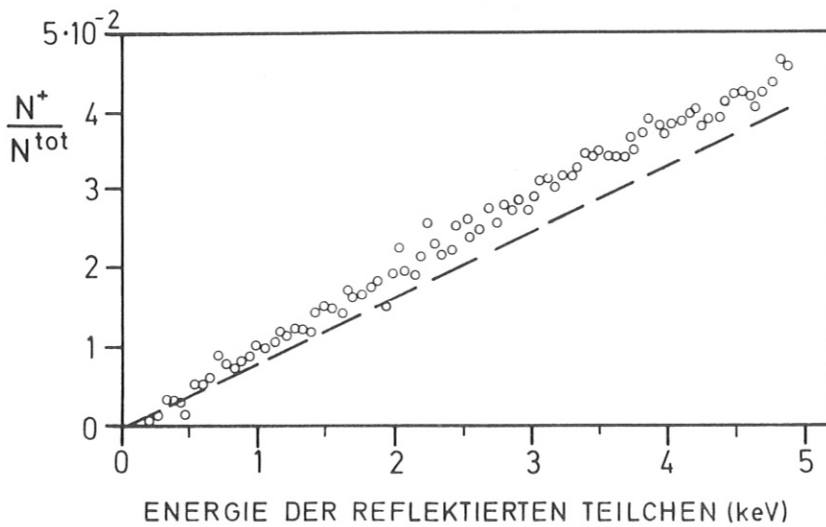


Abb. 5.1

Das von Kleber und Zwiigel berechnete Ladungsverhältnis (----) bei der Rückstreuung von H an Au verglichen mit experimentellen Werten (oooo)

Eine Reihe von Meßergebnissen für verschiedene Projektil-Target-Kombinationen (Behrisch et al. 1975, Meischner und Verbeek 1974, Buck et al. 1973) zeigen einen nahezu linearen Zusammenhang zwischen Austrittsenergie und Ladungsverhältnis $N^+/N_{tot.}$ für Energien unterhalb von 10 keV. In allen Fällen ist das Ladungsverhältnis $N^+/N_{tot.}$ eine glatte Kurve ohne Diskontinuitäten in der ersten Ableitung. Im Rahmen der Spektrometerauflösung

läßt sich in diesen Messungen kein Hinweis auf eine unterschiedliche Neutralisationswahrscheinlichkeit für Teilchen, die nur an Oberflächenatomen reflektiert werden und für Teilchen, die aus dem Volumen des Targets rückgestreut werden, feststellen. Das ist im Einklang mit der Vorstellung, daß das Ion erst beim Verlassen des Festkörpers an der Oberfläche neutralisiert wird, der Neutralisationsprozeß also für alle Teilchen gleich ist, unabhängig davon, wie sie in den Festkörper eingedrungen sind. Neuere Messungen von v. der Weg et al. (v. der Weg et al. 1976) und Buck et al. (Buck et al. 1975), die den Ladungszustand von rückgestreutem Neon und Argon zum Untersuchungsziel hatten, zeigten jedoch einen deutlichen Unterschied für an der Oberfläche und aus dem Volumen gestreute Teilchen. Der Anteil der Neutralen an den aus dem Inneren reflektierten Teilchen ist um ca. 10 % höher als bei den an der Oberfläche gestreuten Teilchen.

5.1 Rückstreuung an polykristallinem Gold

Die in den Abb. 4.2 bis 4.5 und 4.7 bis 4.9 dargestellten Ladungsverhältnisse zeigen ein Verhalten, das qualitativ durch die oben angeführten Modellvorstellungen erklärt werden kann, wenn die freien Parameter und Konstanten in den Formeln 5.1 und 5.2 entsprechend gewählt werden. Das Ergebnis von Kleber und Zwiagl in 5.4 kommt ohne freie Parameter aus und zeigt die beste Übereinstimmung mit dem Experiment (vgl. Abb. 5.1).

Der gleichmäßige, stetige Anstieg des gemessenen Ladungsverhältnisses $\frac{N^+}{N_{tot}}$ zeigt, daß - in Übereinstimmung mit den älteren Messungen anderer Autoren - die Neutralisation in einer Region an der Oberfläche stattfinden muß, deren Länge kurz ist im Verhältnis zu einer Strecke, in der das Teilchen einen meßbaren Energieverlust erleidet. Im Rahmen der Meßgenauigkeit ist keine unterschiedliche Neutralisationswahrscheinlichkeit für Teilchen, die aus dem Innern des Festkörpers kommen und Teilchen, die an Oberflächenatomen gestreut werden, festzustellen.

Vergleicht man den Ladungszustand von rückgestreutem Wasserstoff mit dem von Deuterium, so zeigt sich, daß bei gleicher elektronischer Struktur der Teilchen der Ladungszustand eine Funktion der Geschwindigkeit des das Metall verlassenden Teilchens ist (Abb. 5.2). Das wird auch von den oben besprochenen Theorien vorausgesagt.

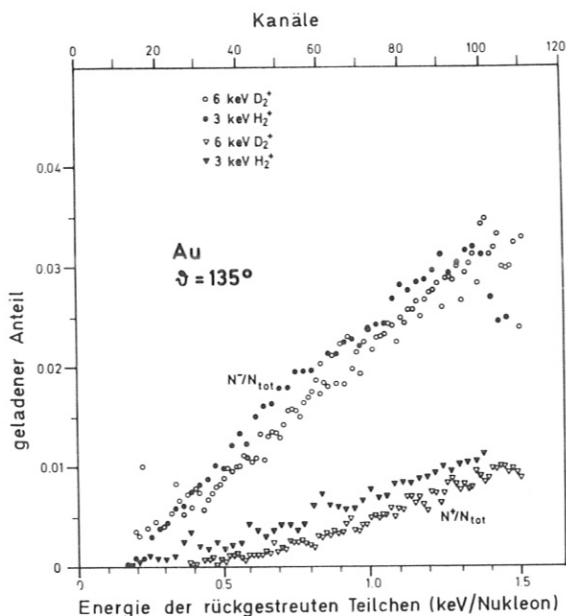


Abb. 5.2

Die Ladungsverhältnisse $N^+/N_{tot.}$ und $N^-/N_{tot.}$ beim Beschuß von polykristallinem Gold mit H und D bei gleicher Energie pro Nukleon, d.h. bei gleicher Geschwindigkeit

5.2 Rückstreuung an einem Gold-Einkristall

Wenn man annimmt, daß die Neutralisation an der Oberfläche des Targets stattfindet, sollte man einen Einfluß der Elektronendichte an der Oberfläche auf das Ladungsverhältnis $N^+/N_{tot.}$ erwarten. Bei Rückstreuung an einem Einkristall sollte ein derartiger Einfluß auch experimentell beobachtbar sein, da die Elektronendichte mit der kristallographischen Orientierung korreliert ist. Die in dieser Arbeit beschriebenen Experimente zeigen zum ersten Mal für den Beschuß einer Einkristalloberfläche mit Wasserstoff eine Abhängigkeit der Ladungszustände der rückgestreuten Teilchen von der Kristallorientierung.

10 keV $H_2^+ \rightarrow Au [110]$

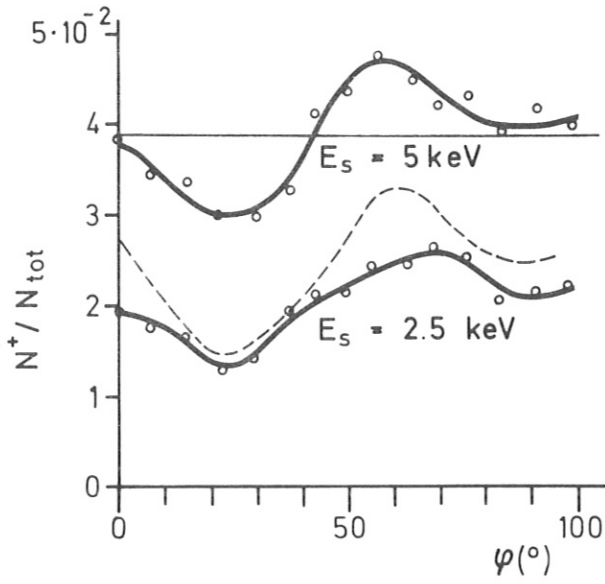


Abb. 5.3

10 keV $H_1^+ \rightarrow Au [110]$

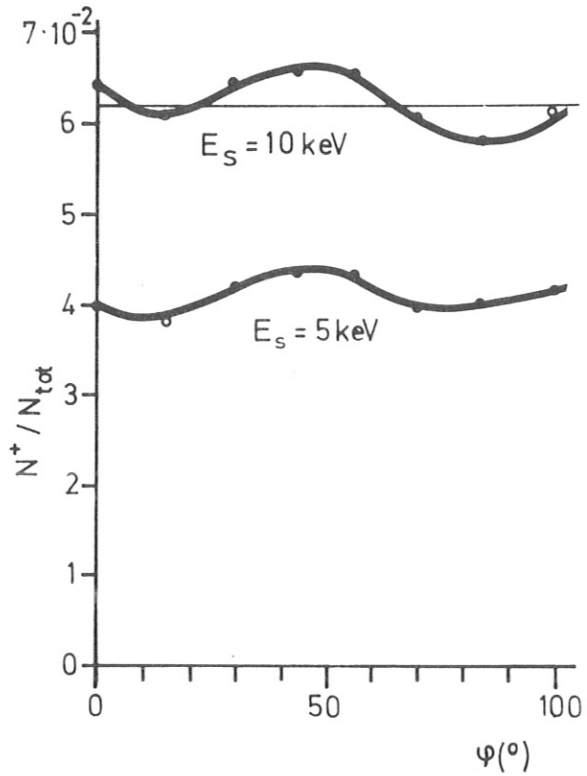


Abb. 5.4

5 keV $H_2^+ \rightarrow Au [110]$

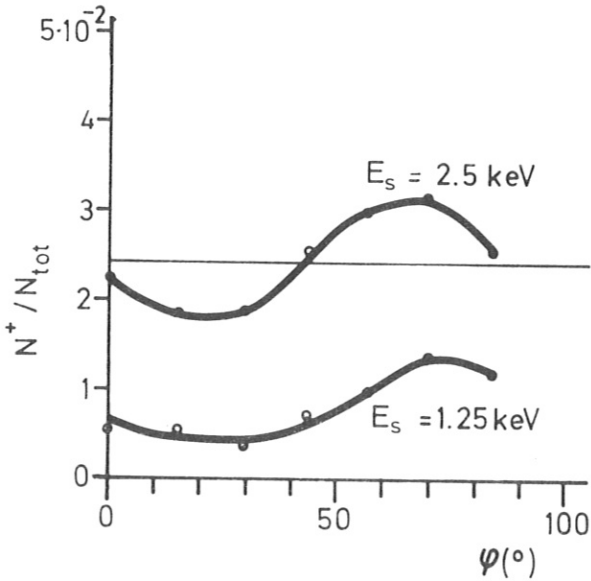


Abb. 5.5

2 keV $H_2^+ \rightarrow Au [110]$

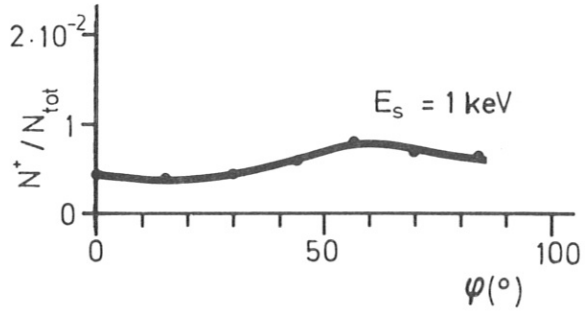


Abb. 5.6

Abb. 5.3 bis 5.6

Das Ladungsverhältnis N^+/N_{tot} als Funktion des Azimuthwinkels φ für verschiedene Primärenergien, bestimmt jeweils bei zwei Sekundärenergien E_s (außer 5.6). Die ausgezogenen Geraden stellen den im Text näher erklärten Mittelwert dar.

Abb. 5.3 bis 5.6 zeigen die Abhängigkeit des Ladungsverhältnisses $N^+/N_{\text{tot.}}$ vom Azimutwinkel φ , um den das Target gedreht wurde. Für alle Primärenergien zeigt sich die gleiche Abhängigkeit vom Azimutwinkel. Das über sämtliche Kristallorientierungen arithmetisch gemittelte Ladungsverhältnis ist innerhalb der Meßgenauigkeit gleich dem an polykristallinem Material ermittelten Wert.

Für Teilchenenergien wesentlich unter der Primärenergie, d. h. also für Teilchen, die einen erheblichen Weg im Kristall zurückgelegt haben, stimmt die φ -Abhängigkeit des Ladungsverhältnisses $N^+/N_{\text{tot.}}$ jedoch nicht mit dem an der Oberfläche bestimmten Werten überein, wie aus den Abb. 5.3 bis 5.5 hervorgeht. Die Lage der Maxima und Minima ist gegenüber den an der Oberfläche bestimmten Ladungsverhältnissen verschoben. Dies deutet auf unterschiedliche Neutralisationswahrscheinlichkeit für an Oberflächenatomen gestreute Teilchen und Teilchen, die einen gewissen Weg im Volumen des Kristalls zurückgelegt haben, hin.

5.2.1 Neutralisierung im Volumen

Das Ladungsverhältnis $N^+/N_{\text{tot.}}$ als Funktion der Austrittsenergie der rückgestreuten Teilchen zeigt - abhängig von der Austrittsrichtung ($\hat{=}$ Azimutwinkel φ) einen deutlichen, steilen Anstieg knapp unterhalb der Primärenergie (Abb. 4.13).

Im folgenden sollen die Bezeichnungen der Abb. 5.7 gelten. A sei der Wert des Ladungsverhältnisses $N^+/N_{\text{tot.}}$ für an der Oberfläche gestreute Teilchen, B sei ein Wert des Ladungsverhältnisses für Teilchen, die im Volumen einen gewissen Weg zurückgelegt haben und dadurch Energie verloren haben. Die mit "random" bezeichnete Kurve sei das Ladungsverhältnis $N^+/N_{\text{tot.}}$ bei der Rückstreuung an polykristallinem Material. Dann ist C jeweils ein Maß für die Zunahme der Gesamtneutralisationswahrscheinlichkeit durch Neutralisation im Volumen. $C_{\text{max.}} = A - B_{\text{max.}}$

ist die Höhe des "Oberflächenpeaks" im Ladungsverhältnis.

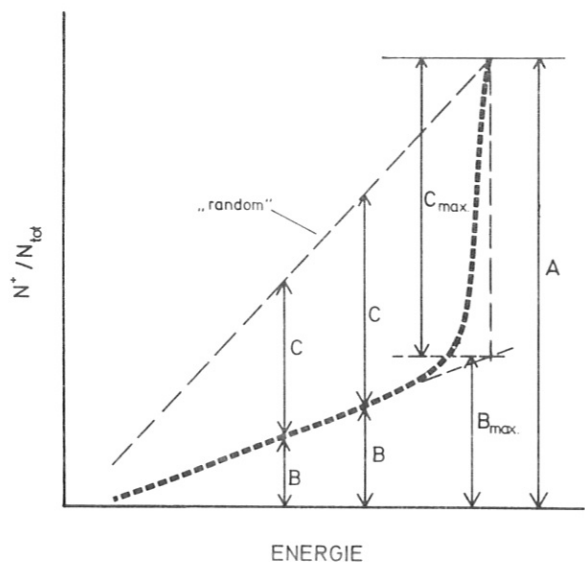


Abb. 5.7

Definition des Begriffs "Oberflächenpeak" beim Ladungsverhältnis N^+/N_{tot} .

Der über alle Azimuthwinkel φ gemittelte Wert des Ladungsverhältnisses N^+/N_{tot} bei der Energie des "Oberflächenpeaks" stimmt jedoch mit dem an polykristallinem Gold bei der gleichen Energie bestimmten Wert überein (vgl. Abb. 5.3 bis 5.6). Dieser Befund kann so gedeutet werden, daß für bestimmte Austrittsrichtungen der Anteil der neutralen rückgestreuten Teilchen aus dem Volumen gegenüber dem polykristallinen Target erhöht ist.

In Abb. 5.9 ist C als Funktion des Azimuthwinkels φ für den Beschuß mit 10 keV H_2^+ aufgetragen.

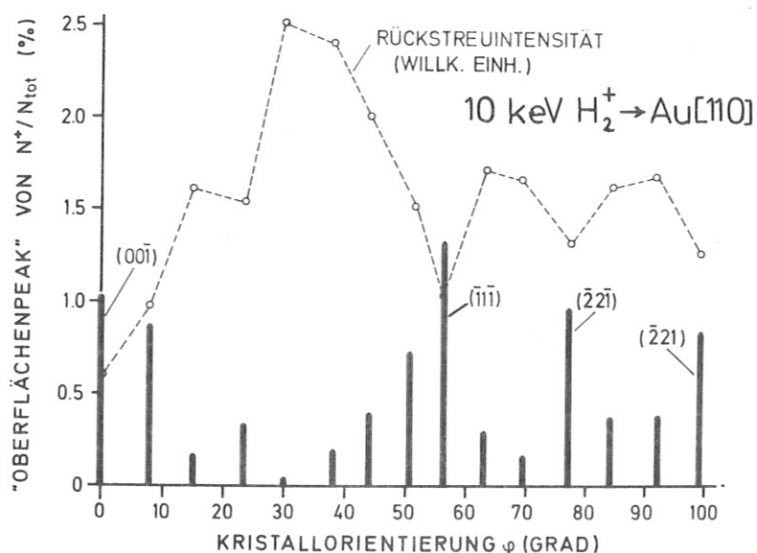


Abb. 5.8

Die Höhe des "Oberflächenpeaks" von N^+/N_{tot} als Funktion des Azimuthwinkels φ

Zusätzlich ist die Intensität im Minimum der Rückstreuenspektren unterhalb des Oberflächenpeaks eingezeichnet.

Es zeigt sich, daß für Kristallorientierungen, bei denen die durch Primärstrahl und Beobachtungsrichtung definierte "Streuebene" (siehe Abb. 4.11) mit einer dichtgepackten Kristallebene zusammenfällt, der Anteil der rückgestreuten Neutralteilchen merklich höher ist als in einer anderen Orientierung ("random"). Die Minima der Rückstreuintensität in Abb. 5.8, die durch "Blocking" hervorgerufen werden, zeigen, daß die Zuordnung von großen Werten von C mit niedrig indizierten, dichtgepackten Kristallebenen eindeutig ist. Diese dichtgepackten Ebenen haben einen besonders großen Abstand zueinander. Besonders hohe Werte von C , das heißt eine besonders hohe Neutralisation im Volumen des Kristalls erhält man, wenn die Streuebene mit der $(00\bar{1})$ -, $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$ -, der $(\bar{2}\bar{2}\bar{1})$ - und der $(\bar{2}21)$ -Ebene zusammenfällt. Die (110) -Ebene ist in Abb. 5.9 nicht zu erkennen. Das liegt daran, daß die Oberflächennormale des Einkristalls um 2° von der Richtung des Primärstrahls abwich und bei der Azimutdrehung auf einem Kegelmantel um den Primärstrahl lief. Eine genauere Justierung des Kristalls hätte jedoch keine Vorteile gebracht, da dann die Primärionen bereits beim Einschub exakt in Gitterkanäle eindringen würden und dort geführt würden. Das würde zu einer stark erniedrigten Rückstreuintensität und damit zu wesentlich schlechterer Statistik führen.

Der in Abb. 5.8 dargestellte Sachverhalt gilt ebenso für andere Primärenergien, wie Abb. 5.9 bis 5.11 zeigen. Der Unterschied der Neutralisationswahrscheinlichkeit für Teilchen, die an Oberflächenatomen gestreut wurden und für Teilchen, die aus dem Inneren reflektiert werden, beträgt hier typisch 1.5 %, maximal (bei 10 keV) 4 %.

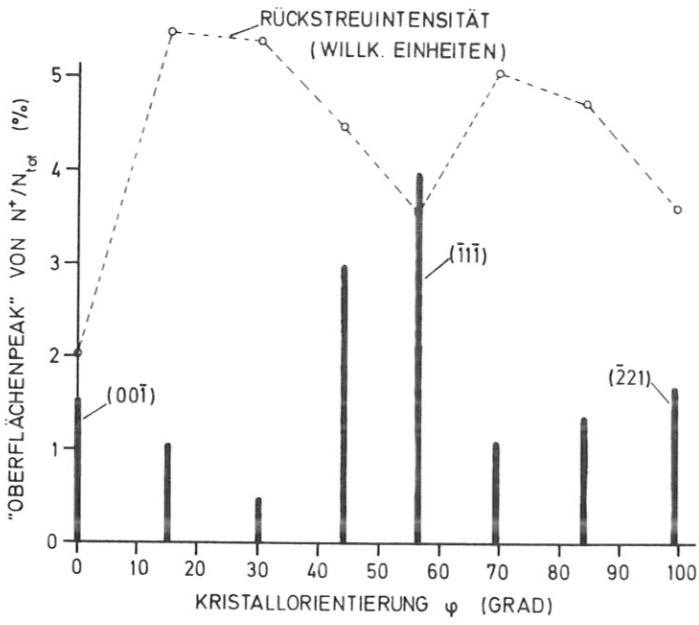


Abb. 5.9
 10 keV $H_1^+ \rightarrow Au [110]$

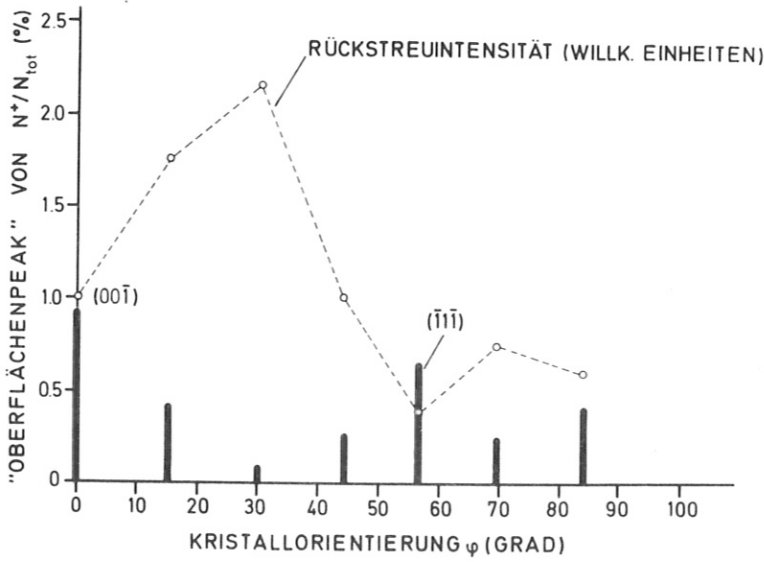


Abb. 5.10
 5 keV $H_2^+ \rightarrow Au [110]$

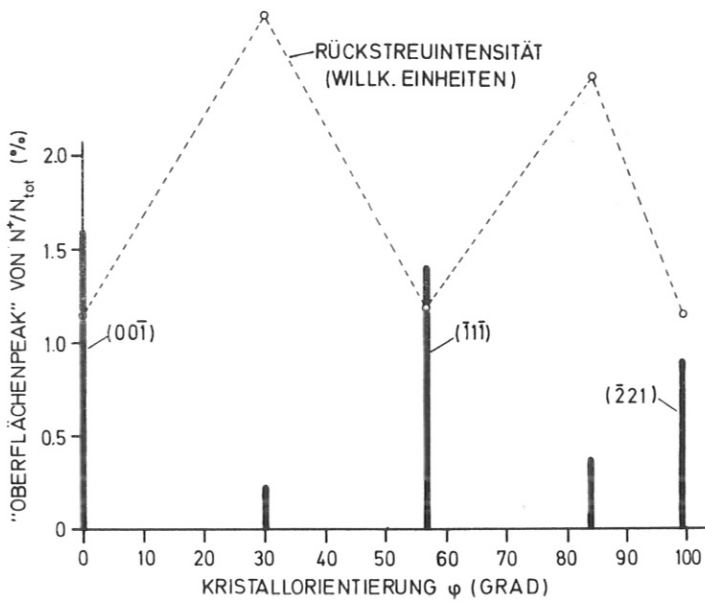


Abb. 5.11
5 keV $H_1^+ \rightarrow Au [110]$

Abb. 5.9 - 5.11

Der Oberflächenpeak von N^+/N_{tot} als Funktion des Azimutwinkels φ für verschiedene Primärenergien

Die Beobachtung eines Volumeneffekts steht im Gegensatz zu den Überlegungen von Brandt (Brandt 1975). Auf der Grundlage der in Kap. 2 diskutierten Überlegungen kommt Brandt zu dem Ergebnis, daß bindende Wasserstoffzustände in Metallen wegen der Abschirmung durch die Leitungselektronen nicht existieren können. Das gilt jedoch nur für eine isotrope Elektronendichteverteilung im Metall, also für amorphes bzw. polykristallines Material. Im Einkristall treten infolge der kristallographischen Struktur ausgezeichnete Richtungen auf, die auch zu einer Anisotropie der Elektronendichteverteilung im Kristall führen.

Kutcher und Middleman (Kutcher und Middleman 1975) haben gezeigt, daß ein Proton in einem Kanal eines Kristalls ein Elektron binden kann, wobei die Bindungsenergie eine Funktion der Abschirmlänge ist. Diese ist im Kanal vom übrigen Festkörper verschieden.

Die in dieser Arbeit gezeigte erhöhte Neutralisation im Volumen ist für Teilchen beobachtbar, die im Kristall zwischen dichtgepackten Ebenen laufen. Auch dort ist, vergleichbar zu den Gitterkanälen, die Elektronendichte erniedrigt, so daß die von Kutcher und Middleman vorgebrachten Argumente auch hier gültig sind.

Der in dieser Arbeit beobachtete Effekt einer Volumenneutralisation für Teilchen, die in einer zu dichtgepackten Ebenen parallelen Streuebene reflektiert werden, stützt die Existenz neutraler Wasserstoffatome zwischen dichtgepackten Ebenen.

Die Neutralisation im Volumen ist ein dynamisches Problem. Da die Bindungsenergie des Elektrons infolge elektronischer Abschirmung wesentlich niedriger ist als im freien Fall, kann das Elektron infolge von Stößen mit Gitteratomen leicht abgegeben werden. Andererseits kann das freie Proton auch ein Metall-elektron an sich binden und als neutrales Wasserstoffatom weiterlaufen. Es wird sich deshalb ein dynamisches Gleichgewicht einstellen, das dazu führt, daß im zeitlichen Mittel n Elektronen an das Proton gebunden sind, wobei $0 < n < 1$ gilt.

Die Erhöhung des Anteils der Neutralteilchen an der Gesamtzahl der rückgestreuten beträgt für Teilchen aus dem Innern je nach Azimuthdrehung des Kristalls typisch 1.5 %. Die Neutralisation an der Oberfläche macht jedoch über 95 % der Gesamtneutralisation aus. Deshalb kann der hier erstmals beobachtete Volumeneffekt nur als geringfügige Korrektur der Neutralisation an der Oberfläche angesehen werden.

5.3 Negative rückgestreute Ionen

Die Bildung von negativen Ionen bei der Rückstreuung von Wasserstoff an Metallen ist ein Effekt, der bisher noch kaum betrachtet wurde. Lediglich Untersuchungen von Verbeek et al. (Verbeek et al. 1975) und von Eckstein und Matschke (Eckstein und Matschke 1976) gehen auf die Bildung von negativen Ionen ein. Eckstein und Matschke diskutieren die Möglichkeit von Ein- und Zweistufenprozessen zur Bildung negativer Ionen und kamen zu dem Schluß, daß der Wert von 4.5 % für $N^-/N_{\text{tot.}}$ im Maximum für einen Zweistufenprozeß sehr hoch erscheint. $N^-/N_{\text{tot.}}$ variiert schwächer mit dem Azimutwinkel φ des Kristalls als $N^+/N_{\text{tot.}}$ und stimmt im Mittel - ebenso wie $N^+/N_{\text{tot.}}$ - mit dem an polykristallinem Material gemessenen Wert überein, wie die Abb. 5.12 bis 5.15 zeigen. Die Modulation von $N^-/N_{\text{tot.}}$ mit φ ist komplementär zur Änderung von $N^+/N_{\text{tot.}}$. Für Azimutwinkel, bei denen $N^+/N_{\text{tot.}}$ klein ist, d. h. wo der Neutralanteil hoch ist, ist auch $N^-/N_{\text{tot.}}$ erhöht. Dieses Verhalten kann man erklären, wenn auch für die Bildung negativer Ionen ein Mechanismus angenommen wird, bei dem - wie bei der Bildung neutraler Atome - durch eine erhöhte Elektronendichte an der Oberfläche eine erhöhte Wahrscheinlichkeit für Elektroneneinfang besteht.

Es besteht auch eine gewisse Wahrscheinlichkeit dafür, daß ein negatives Ion in der Nähe der Oberfläche durch Tunneleffekt ein Elektron an das Metall abgibt, wie es von Janev (Janev 1976) diskutiert wurde.

Die in Abb. 4.10 dargestellte Abhängigkeit des Ladungsverhältnisses N^-/N^+ vom Streuwinkel erhärtet diese These, da der Anteil der negativen Ionen N^- mit kleiner werdendem Streuwinkel - d. h. wenn sich das Teilchen längere Zeit nahe der Oberfläche aufhält - auch absolut abnimmt. Dieser Effekt wäre bei sehr kleinen Teilchenenergien von Bedeutung und könnte den Anstieg von $N^-/N_{\text{tot.}}$ mit der Energie erklären.

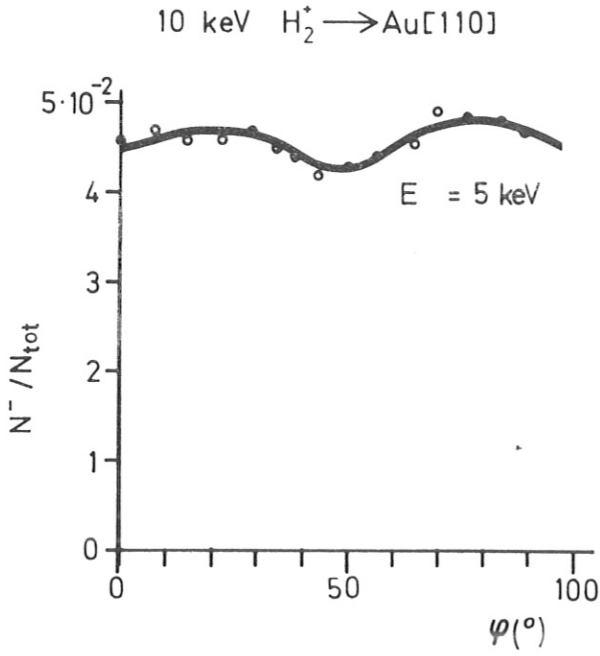


Abb. 5.12

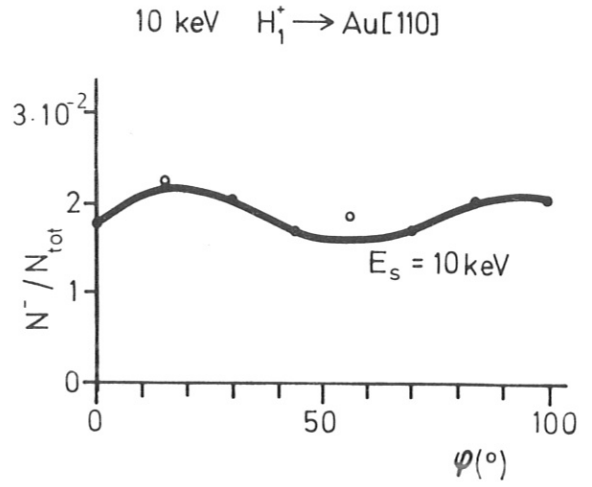


Abb. 5.13

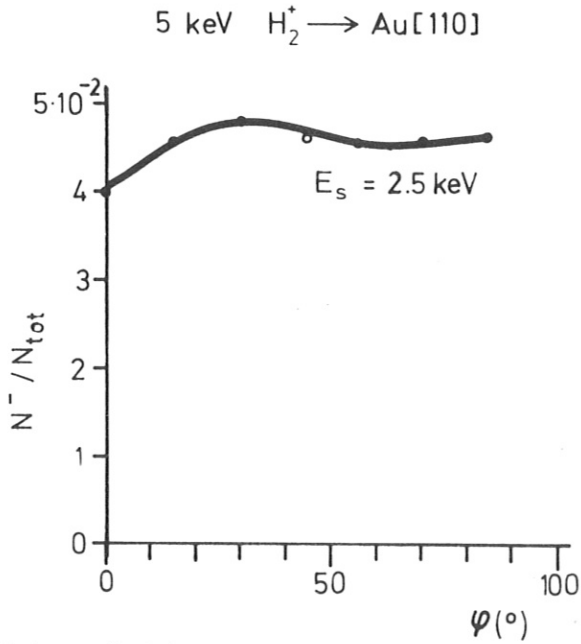


Abb. 5.14

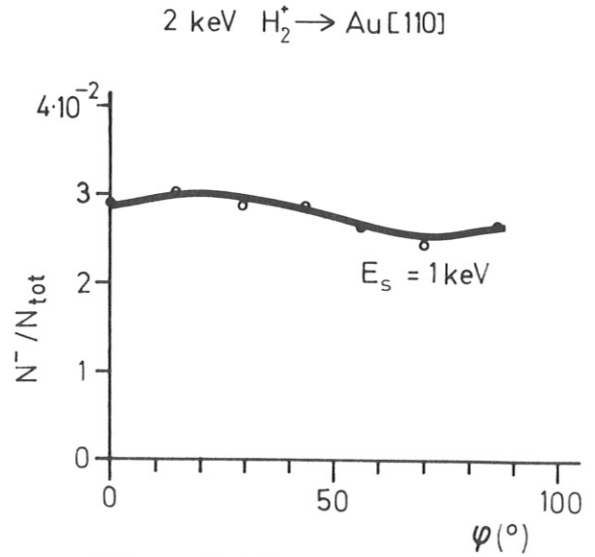


Abb. 5.15

Abb. 5.12 bis 5.15

Das Ladungsverhältnis N^-/N_{tot} als Funktion des Azimutwinkels φ für verschiedene Primärenergien, bestimmt jeweils bei der maximalen Sekundärenergie

6. ZUSAMMENFASSENDE DISKUSSION

Der Ladungszustand von Wasserstoff nach der Rückstreuung an einem Metalltarget wurde für Gold als Target untersucht. Dazu wurde die Energieabhängigkeit der Ladungsverhältnisse $N^+/N_{\text{tot.}}$ und $N^-/N_{\text{tot.}}$ für Rückstreuenergien von 300 eV bis 10 keV bestimmt. Der Meßbereich war nach unten durch die Nachweismethode für neutrale Wasserstoffatome begrenzt. Die zu kleinen Energien sehr stark abfallende Ionisierungswahrscheinlichkeit in der Gaszelle ließ unter 300 eV Angaben zum Ladungszustand nicht sinnvoll erscheinen, da der statistische Fehler dort bereits 100 % des Meßwerts beträgt.

Bei Messungen an einem polykristallinen Goldtarget wurde ein nahezu linearer Anstieg des Ladungsverhältnisses $N^+/N_{\text{tot.}}$ mit der Energie beobachtet. Ein Vergleich von H_1^+ , H_2^+ und H_3^+ , sowie von H_2^+ und D_2^+ als Beschüßionen führt zu dem Ergebnis, daß beim polykristallinen Gold der Ladungszustand der rückgestreuten Atome nur von ihrer Geschwindigkeit abhängt. Es wurde kein Hinweis auf einen Volumeneffekt gefunden, d. h. der Ladungszustand von Teilchen, die - bei gleicher Geschwindigkeit - einen erheblichen Weg im Festkörper zurückgelegt haben, unterscheidet sich im Rahmen der Meßgenauigkeit nicht vom Ladungszustand der Teilchen, die an den obersten Atomlagen reflektiert wurden. Dieser Befund ist konsistent mit Überlegungen von Brandt (Brandt 1975), denen zufolge ein Wasserstoffatom im Innern eines Metalls als Proton existiert und erst beim Verlassen des Targets an der Oberfläche neutralisiert werden kann.

Wenn diese Vorstellung richtig ist, sollte die Form der Elektronendichteverteilung an der Oberfläche einen Einfluß auf den Ladungszustand der rückgestreuten Teilchen haben. Da die elektronische Struktur der Oberfläche mit der kristallographischen Struktur eines Festkörpers korreliert ist, wurde auch ein Gold-Einkristall als Target benutzt. In der Tat konnte auch eine Modulation des Ladungsverhältnisses $N^+/N_{\text{tot.}}$ der an der Oberfläche gestreuten Teilchen mit der kristallographischen Orientierung gefunden werden. Der über alle Orientierungen gemittelte

Wert des Ladungsverhältnisses N^+/N_{tot} , stimmt mit dem an polykristallinem Material ermittelten Wert gut überein.

Zusätzlich wurde eindeutige experimentelle Evidenz für einen Volumeneffekt bei der Neutralisation gefunden: Für bestimmte Austrittsrichtungen aus dem Kristall ergab sich eine um bis zu 4 % erhöhte Neutralisation für Teilchen aus dem Inneren gegenüber dem an polykristallinem Material bei gleicher Energie festgestellten Wert. Diese erhöhte Neutralisation tritt dann auf, wenn die durch Primärstrahl und Beobachtungsrichtung definierte Streuebene parallel zu dichtgepackten Kristallebenen liegt. Dann laufen die rückgestreuten Teilchen, ehe sie den Festkörper verlassen, zwischen Ebenen, die einen großen Abstand zueinander haben.

Die beobachtete Volumenneutralisierung an einem Gold-Einkristall wird verständlich, wenn die gegenüber amorphen Material niedrigere Elektronendichte zwischen dichtgepackten Ebenen berücksichtigt wird. Dort ist dann auch die elektronische Abschirmung des Protons herabgesetzt, woraus eine erhöhte Wahrscheinlichkeit für den Einfang eines Elektrons durch das Proton resultiert.

Dieser orientierungsabhängige Volumeneffekt bei der Neutralisierung von Ionen bei Rückstreuung an einem Metallkristall ist hier zum ersten Mal gefunden und beschrieben worden.

Für die Bildung von negativen Ionen konnte im Rahmen der Meßgenauigkeit kein Volumeneffekt beobachtet werden. Das ist auch verständlich, da der Anteil der negativen Ionen an der Gesamtzahl der rückgestreuten Teilchen nur bis zu 4.5 % beträgt, während der Anteil der Neutralteilchen über 90 % ist. Ein mit der Volumenneutralisation vergleichbarer Effekt bei der Bildung negativer Ionen würde nur 0.25 % der Gesamtrückstreuintensität ausmachen und liegt damit deutlich unterhalb der Meßgenauigkeit. Das Ladungsverhältnis N^-/N_{tot} ist praktisch unabhängig davon, ob die Rückstreuung an polykristallinem Material oder an einem Einkristall stattfand.

7. LITERATURVERZEICHNIS

S.K. Allison, Rev. Mod. Phys. 30, 1137 (1958)

APS-Report: Report to the American Physical Society by the study group on physics problems relating to energy technologies, Rev. Mod. Phys. 47, S1 (1975)

R. Bardet, L. Dupas, Report CEA-Fontenay-aux-Roses, EUR-CEA-FC-622 (1972)

C.F. Barnett, J.A. Ray, ORNL-report, ORNL-4545, 134 (1969)

C.F. Barnett, J.A. Ray, Nuclear Fusion 12, 65 (1972)

H. Bartels, Ann. d. Physik 6, 957 (1930)

R. Behrisch, W. Eckstein, P. Meischner, B.M.U. Scherzer, H. Verbeek, Atomic Collisions in Solids, 315 (1975)
Plenum Press, New York

K.H. Berkner, I. Bornstein, R.V. Pyle, J.W. Stearns, Phys. Rev. A 6, 278 (1972)

W. Bernstein, A.J. Cole, R.L. Wax, Nucl. Instr. Meth. 90, 325 (1970)

H.D. Betz, Rev. Mod. Phys. 44, 465 (1972)

J.D.E. Beynon, Proc. Phys. Soc. 89, 59 (1966)

J.D.E. Beynon, R.B. Cairns, Proc. Phys. Soc. 86, 1343 (1965)

R.W. Bickes, Jr., R.B. Bernstein, Rev. Sci. Instr. 41, 759 (1970)

W. Brandt, Atomic Collisions in Solids, 261 (1975)
Plenum Press, New York

W. Brandt, R. Sizmann, Phys. Lett. 37A, 115 (1971)

T.M. Buck, Y.-S. Chen, G.H. Wheatley, W.F. van der Weg, Surface Science 47, 244 (1975)

- T.M. Buck, L.C. Feldman, G.H. Wheatley, Atomic Collisions in Solids, 331 (1975) Plenum Press, New York
- D.H. Crandall, J.A. Ray, C. Cisneros
Rev. Sci. Instr. 46, 562 (1975)
- W. Eckstein, H. Verbeek, Vacuum 23, 159 (1973)
- W. Eckstein, F.E.P. Matschke, Phys. Rev. B 14, 3231 (1976)
- Equipe TFR, Nuclear Fusion 16, 279 (1970)
- H.P. Eubank, T.D. Wilkerson, Rev. Sci. Instr. 34, 12 (1963)
- D.G. Fedak, N.A. Gjostein, Surface Science 8, 77 (1967)
- W.L. Fite, R.T. Brackmann, Phys. Rev. 112, 1141 (1958)
- H.H. Fleischmann, R.G. Tuckfield, Jr., Nuclear Fusion 8, 81 (1968)
- H.H. Fleischmann, R.A. Young, Phys. Letters 29A, 287 (1969)
- Yu.V. Gott, V.G. Telkovskij, Sov. Phys. Techn. Phys. 6, 774 (1962)
- H.D. Hagstrum, Phys. Rev. 96, 336 (1954)
- E.E. Huber, Jr., Appl. Phys. Letters 8, 169 (1966)
- W.R. Hunter, D.W. Angel, R. Tousey, Appl. Optics 4, 891 (1965)
- R.K. Janev, Surface Science 45, 609 (1974)
- M. Kitagawa, Y.H. Ohtsuki, Phys. Rev. B 13, 4682 (1976)
- M. Kleber, Zwiengel, private Mitteilung (1977)
- K.H. Krebs, Fortschr. d. Physik 16, 419 (1968)
- A.F. Kuckes, Bull. Am. Phys. Soc. 15, 1413 (1970)
- G.J. Kutcher, M.H. Middleman, Phys. Rev. A 11, 125 (1975)

- J. Lindhard, V. Nielsen, M. Scharff, Kgl. Dan. Vid. Selsk. Mat. Fys. Medd. 36/10 (1968)
- P. Matschke, W. Eckstein, H. Verbeek, Verh. DPG (IV) 10, 47 (1975)
- P. Meischner, H. Verbeek, J. Nucl. Mat. 53, 276 (1974)
- N.F. Mott, Proc. Cambridge Phil. Soc. 32, 281 (1936)
- J.E. Osher, IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-22, 1626 (1975)
- E.K. Parks, C.E. Young, S. Wexler, Rev. Sci. Instr. 42, 1404 (1971)
- J.A. Phillips, Phys. Rev. 97, 494 (1955)
- H. Rausch von Traubenberg, J. Hahn, Ztschr. f. Phys. 9, 356 (1922)
- F.J. Rogers, H.C. Graboske, Jr., D.J. Harwood, Phys. Rev. A 1, 1577 (1970)
- S.S. Shekhter, J. Exptl. Theor. Phys. (USSR) 7, 750 (1937)
- P. Staib, private Mitteilung (1977)
- E. Taglauer, W. Heiland, Appl. Phys. 9, 261 (1976)
- B.A. Trubnikov, Yu.N. Yavlinskii, Sov. Phys. JETP 25, 1089 (1967)
- A. van Veen, J.M. Fluit, Nucl. Instr. Meth. 132, 573 (1976)
- H. Verbeek, W. Eckstein, S. Datz, J. of Appl. Phys. 47, 1785 (1976)
- W.F. van der Weg, T.M. Buck, G.M. Wheatley, Nucl. Instr. Meth. 132, 571 (1976)

R. Weiss, Rev. Sci. Instr. 32, 397 (1961)

D. Wolf, Dissertation Universität München (1972)

A.P. Wynter, J.B. Hasted, J. of Physics E 7, 627 (1974)

Yu.N. Yavlinskii, B.A. Trubnikov, V.F. Elesin,
Bull. Acad. Sci. USSR, Phys. Ser. 30, 1996 (1966)

Herrn Prof. Dr. D. Menzel danke ich für sein förderndes Interesse an dieser Arbeit.

Mein besonderer Dank gilt den Herren Dr. W. Eckstein und Dr. H. Verbeek für wertvolle Diskussionen, sowie vor allem für ihre Hilfe bei der Vorbereitung und Durchführung der Experimente. Herr R. Hippele und Herr S. Schrapel waren mit ihrem technischen Können wesentlich am Zustandekommen der Arbeit beteiligt. Herrn Dr. D. Wolf danke ich für seine Hilfe bei der Präparation des Einkristalls.

Darüber hinaus gilt mein Dank allen Mitarbeitern des Projekts Plasma-Wand-Wechselwirkung, insbesondere Herrn Dr. H. Vernickel, für Diskussionen und Anregungen.