

Fakultät für Physik der Technischen Universität München
Teilinstitut E 12

Ein Rasterionenmikroskop für hochenergetische Ionen

Oliver Schmelmer

Vollständiger Abdruck der von der
Fakultät für Physik der Technischen Universität München
zur Erlangung des akademischen Grades eines
Doktors der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)
genehmigten Dissertation.

Vorsitzender: Univ.-Prof. Dr. M. Kleber

Prüfer der Dissertation:

1. Univ.-Prof. Dr. H.-J. Körner

2. Univ.-Prof. Dr. F. Wagner

Die Dissertation wurde am 28.05.2001 bei der
Technischen Universität München eingereicht und durch
die Fakultät für Physik am 16.07.2001 angenommen.

Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurden wesentliche Teile des Rasterionenmikroskops SNAKE (Supraleitendes Nanoskop für **A**ngewandte **K**ernphysikalische **E**xperimente) konzipiert, entwickelt und aufgebaut. SNAKE dient zur Fokussierung von hochenergetischen Ionenstrahlen auf einen Strahldurchmesser von 100 nm. Die Projektilenergien liegen sowohl für Protonen mit bis zu 30 MeV als auch für schwere Ionen mit $A \cdot E/q^2 \leq 150$ MeV um rund eine Größenordnung über den Energien, die mit herkömmlichen Rasterionenmikroskopen möglich sind. Durch die große Reichweite und der reduzierten lateralen Aufstreuung hochenergetischer Ionen können gegenüber niederenergetischeren Strahlen laterale Auflösungen unter 1 μm bis etwa 100 μm Probentiefe aufrecht erhalten werden.

Eine neu konzipierte Hauptkomponente von SNAKE sind Mikroschlitze, die die Beschneidung des Phasenraumes der hochenergetischen Ionenstrahlen ermöglichen. Um die Beeinträchtigung der Strahlqualität durch Ionen, die mit dem Schlitzmaterial in Wechselwirkung treten, zu minimieren, werden gekrümmte Schlitzoberflächen aus Siliziumwafer eingesetzt. Diese Anordnung bewirkt, daß Ionen, die durch das Schlitzmaterial transmittiert wurden, aufgrund der erlittenen Energieverluste und der Kleinwinkelstreuung aus der Akzeptanz der Ionenoptik fallen.

Zusätzlich wurde für SNAKE ein Experimentierplatz mit Probenkammer und Detektoren aufgebaut. Insbesondere wurde ein Magnetspektrograph für die hochauflösende Ionentransmissionsmikroskopie (STIM, **S**canning **T**ransmission **I**on **M**icroscopy) installiert. Er ermöglicht eine relative Energieauflösung von $3.8 \cdot 10^{-5}$. Dadurch können mit schweren Ionen Dickenschwankungen dünner Kohlenstoffolien im Monolagenbereich mit guter lateraler Auflösung vermessen werden.

Für den sensitiven Nachweis mittelschwerer bis schwerer Elemente mit SNAKE wurde das Potential der teilcheninduzierten Röntgenfluoreszenzanalyse (PIXE, **P**article **I**nduced **X**-ray **E**mission) mit hochenergetischen Ionen untersucht. Dazu wurden die zur Analytik nötigen Produktionsquerschnitte diskreter und kontinuierlicher Röntgenemission für Elemente schwerer als Mangan ($Z > 25$) mit 16 MeV Protonen und 70 MeV Kohlenstoffionen bestimmt. Im Falle der Protonen reproduzieren die ECPSSR-Theorie (**E**nergy loss, **C**oulomb deflection, **P**erturbed **S**tationary **S**tate, **R**elativistic effects)

und die semi-empirische Beschreibung der Produktionsquerschnitte die experimentellen Daten zufriedenstellend. Für 70 MeV Kohlenstoffionen hingegen überschätzen die theoretisch bestimmten Querschnitte die gemessenen Werte um bis zu einer Größenordnung. Gegenüber Protonen mit Energien von 1-3 MeV, wie sie in konventionellen Rasterionemikroskopen verwendet werden, weisen hochenergetische Protonen und schwere Ionen deutlich höhere Röntgenproduktionsquerschnitte auf. Dadurch ist für PIXE Messungen bei gleicher Statistik eine geringere Strahlendosis nötig. Das geringere Bremsvermögen hochenergetischer Protonen führt im Vergleich zu 3 MeV Protonen zu einer deutlichen Reduktion der Probenschädigung. Abschätzungen der Nachweisgrenze zeigen, daß mit dem aufgebauten Experiment mittelschwere bis schwere Elemente in leichten Proben im 1-10 ppm Bereich nachgewiesen werden können. Diese Sensitivität ist mit Werten vergleichbar, die mit 1-3 MeV Protonen erreicht werden können.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
1.1	Prinzip	1
1.2	Techniken und Anwendungen	2
1.3	Vergleich verschiedener Anlagen	4
1.4	Ziel der Arbeit	6
2	Rasterionenmikroskopie mit hochenergetischen Ionen	7
2.1	Erweiterte Analysiertiefe	7
2.2	Reduzierte laterale Aufstreuung	8
3	Funktionsprinzip und Aufbau des Rasterionenmikroskops SNAKE	11
3.1	Anforderungen an das Rasterionenmikroskop	11
3.2	Aufbau von SNAKE	14
3.3	Mikroschlitze	16
3.3.1	Anforderungen und Realisation	17
3.3.2	Test der Schlitze	21
3.4	Experimentierplatz	26
3.4.1	Ablenkeinheiten	26
3.4.2	Probenkammer	28
3.4.3	Detektoren und Datenaufnahme	29
3.5	Erzielte laterale Auflösungen	33
4	Hochauflösende Ionentransmissionsmikroskopie	35
4.1	Prinzip	35
4.2	Geplante Anwendungen	36
4.3	Dickenauflösungen	38
4.4	Experimenteller Aufbau	40
4.4.1	Strahlführung	40
4.4.2	Fokalebenendetektor	42
4.5	Erste Messungen mit dem 0°-Spektrographen	43
4.5.1	Energieeichung	43

4.5.2	Energieauflösung	44
5	Teilcheninduzierte Röntgenfluoreszenzanalyse	47
5.1	Prinzip	48
5.2	Röntgenproduktionsquerschnitte	51
5.2.1	Experimenteller Aufbau	52
5.2.2	Experimentelle Querschnitte und Vergleich mit theoretischen Vorhersagen	54
5.3	Vor- und Nachteile hochenergetischer Ionen	61
5.3.1	Röntgenproduktionsquerschnitte	62
5.3.2	Energieabhängigkeit der Querschnitte	62
5.3.3	Schädigung der Probe	64
5.3.4	Laterale Aufstreuung	65
5.3.5	Analysiertiefe für schwere Elemente	65
5.3.6	Kontinuierlicher Untergrund und Nachweisgrenzen	67
5.3.7	Folgerungen für die Anwendung	76
5.4	Quantitative Analysen	77
5.4.1	Goldmedaille	77
5.4.2	Brennstoffzellenmembran	79
6	Ausblick	83
7	Danksagung	85
A	Anhang	97
A.1	Bezeichnung der Röntgenlinien	97
A.2	Röntgenproduktionsquerschnitte	98
A.2.1	Querschnitte für 16 MeV Protonen	98
A.2.2	Querschnitte für 70 MeV Kohlenstoff	99

1. Einleitung

Zur mikroskopischen Untersuchung von Proben stehen eine Reihe unterschiedlicher Techniken zur Verfügung. Eine Untergruppe dieser sogenannten Mikroskopiertechniken bildet die Rastermikroskopie. Rastermikroskope benötigen fokussierte Sonden (Photonen, geladene Teilchen, Neutronen), mit denen einzelne Bildpunkte der Probe aufgenommen werden. Durch das Zusammensetzen der einzelnen Bildpunkte erhält man anschließend ein Bild der untersuchten Probe. Ein Vertreter dieser Gruppe ist das Rasterionenmikroskop, das fokussierte Ionenstrahlen als Sonde verwendet.

Ein wesentlicher Vorteil von Ionen gegenüber anderen Sonden besteht darin, daß – unter Verwendung geeigneter Analysemethoden – dreidimensionale Elementverteilungen innerhalb der Probe bestimmt werden können. Durch die Kombination verschiedener Analysetechniken können während einer Messung nahezu alle in der Probe vorkommenden Elementarten bis zu einer Probentiefe von einigen 100 μm gleichzeitig bestimmt werden. Ein weiterer Vorteil ist die einfache Probenpräparation, da auch dicke Proben und verborgene Schichten analysierbar sind. Abhängig von der eingesetzten Analysemethode können Nachweisgrenzen einzelner Elemente im Bereich von 1 ppm und sogar darunter erreicht werden.

Als Einführung in die Möglichkeiten der Rasterionenmikroskopie sollen im folgenden das Prinzip eines Rasterionenmikroskops genauer erläutert und die häufigsten Analysetechniken mit einigen Anwendungsbeispielen vorgestellt werden.

1.1 Prinzip

Ein Rasterionenmikroskop ist eine Anlage, in der fokussierte, hochenergetische Ionenstrahlen zur Materialanalyse oder für Materialmodifikationen mit guter lateraler Auflösung benutzt werden. Der allgemeine Aufbau eines Rasterionenmikroskops ist in Abbildung 1.1 schematisch dargestellt. Zur Erzeugung eines möglichst gut fokussierten Ionenstrahls wird beim Rasterionenmikroskop ein Objekt durch eine – zur lichteptischen Abbildung analogen – ionenoptischen Abbildung in den Fokus (Bild) der Anlage verkleinert. Die Größe des Objekts wird dabei durch sogenannte Objektschlitze definiert. Als Quelle werden Ionen eingesetzt, die zuvor mit einem Teilchenbeschleuniger beschleunigt wurden. Im Gegensatz zur Lichteptik, in der Übergänge von Medien ver-

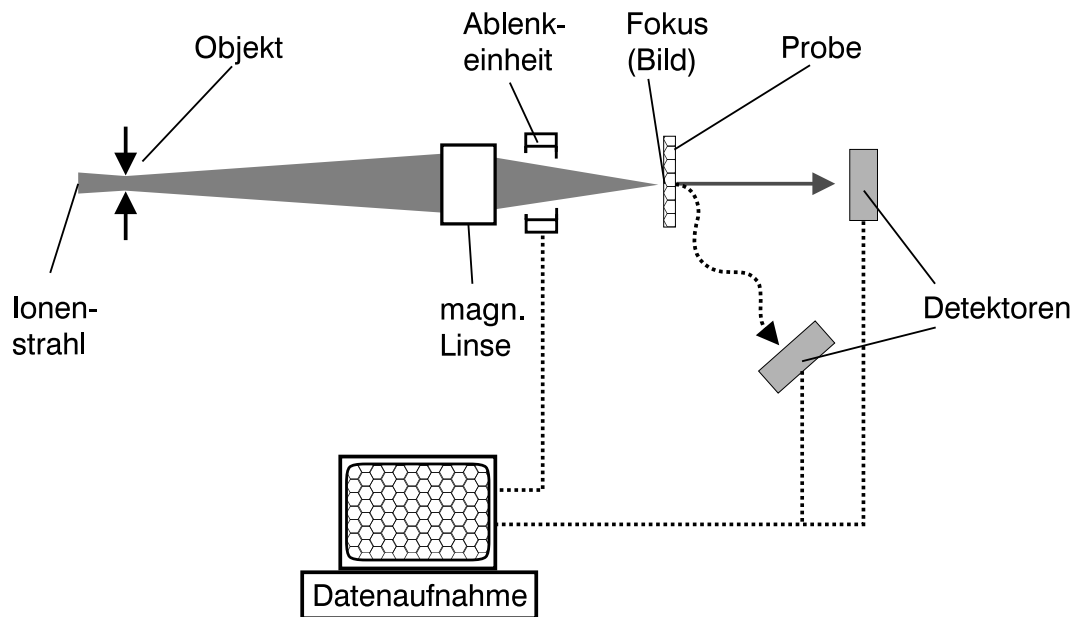


Abbildung 1.1: *Prinzipieller Aufbau eines Rasterionenmikroskops.*

schiedener Brechungsindizes benutzt werden, um Lichtstrahlen zu fokussieren, werden in der Ionenoptik elektrische bzw. magnetische Felder eingesetzt, um die geladenen Teilchen abzubilden. Dadurch können Ionenstrahlen auf Strahldurchmesser von nur wenigen Mikrometern oder auch darunter fokussiert werden. Die laterale Auflösung des Mikroskops ist in erster Näherung durch den Strahldurchmesser im Fokus bestimmt. Mit einer elektrischen oder magnetischen Ablenkeinheit kann der fokussierte Ionenstrahl zeilenweise über die in der Fokalebene stehende Probe geführt werden (scannen).

Die einfallenden Ionen induzieren in der zu untersuchenden Probe verschiedene physikalische Reaktionen. Durch geeignete, um die Probe angeordnete Detektoren können im Falle der Elementanalyse die Reaktionsprodukte, transmittierte oder gestreute Ionen detektiert und so Rückschlüsse auf die in der Probe befindlichen Elementsorten gezogen werden. Aus der Kenntnis der Position des Ionenstrahls gewinnt man so ein zweidimensionales Bild der Elementzusammensetzung der Probe. Unter Nutzung des Energieverlustes der Ionen in der Probe sind mit einigen Analysetechniken auch dreidimensionale Aufnahmen möglich.

1.2 Techniken und Anwendungen

Existierende Rasterionenmikroskope verwenden eine Vielzahl unterschiedlicher Analysemethoden, die an Proben aus einem weiten Wissenschafts- und Forschungsbereich

ihre Anwendung finden [1].

Eine mit am häufigsten eingesetzte Technik ist die teilcheninduzierte Röntgenfluoreszenzanalyse (PIXE, **P**article **I**nduced **X**-ray **E**mission) [2]. Zur Identifikation mittelschwerer bis schwerer Elemente ($Z > 10$) nutzt man hier die Innerschalenionisation der Probenatome durch den einfallenden Ionenstrahl und die dadurch induzierte Röntgenemission aus. Anwendung findet diese Methode in einer Vielzahl naturwissenschaftlich angesiedelter Forschungsbereiche, z.B. in der Materialforschung oder Medizin [3]. Ebenso wird diese Technik auch in weit davon entfernten Gebieten wie etwa der Archäometrie eingesetzt. So wurden beispielsweise Lötstellen an spanischen Schmuckgegenständen aus dem fünften und sechsten Jahrhundert vor Christus mittels der PIXE-Methode untersucht [4]. Aus deren quantitativer Zusammensetzung (Gold, Silber und Kupfer) konnte auf eine Löttechnik geschlossen werden, die zur damaligen Zeit nur von den Etruskern beherrscht wurde. Daraus konnte man in der Archäologie folgern, daß zwischen diesen Völkern Verbindungen, z.B. in Form von Handelsbeziehungen, bestanden haben müssen.

Informationen über die Dicken- bzw. Dichtestruktur einer Probe erhält man durch die Ionenstrahltransmissionsmikroskopie (STIM, **S**canning **T**ransmission **I**on **M**icroscopy) [5]. Hier wird der unterschiedliche Energieverlust transmittierter Ionen ausgenutzt, die verschieden dicke bzw. dichte Probenbereiche durchquert haben. Oft wird diese Methode in Kombination mit anderen Techniken verwendet. So wird beispielsweise in medizinischen Anwendungen die STIM-Technik mit der PIXE-Methode verbunden, um bestimmte Elemente innerhalb einer Zelle zu lokalisieren. Dabei wird durch die STIM-Messung die Dichtestruktur der Zelle abgebildet und mittels der Röntgenfluoreszenzanalyse bestimmte Elemente lokalisiert. So kann etwa die Funktion von Kalzium und Eisen in Gehirnzellen von Ratten bei Epilepsie studiert [3] oder die Einlagerung von toxischen Elementen (Blei, Cadmium) untersucht werden [6].

Zum Nachweis mittelschwerer und schwerer Ionen steht an Rasterionenmikroskopen neben PIXE auch die Rutherford-Rückstreuung (RBS, **R**utherford **B**ack **S**cattering) zur Verfügung [7]. Durch die Energieverlustspektroskopie leichter Ionen, die an schweren Probenatomen rückgestreut wurden, kann nicht nur die Zusammensetzung der Probe sondern auch deren Tiefenprofil gemessen werden. RBS wird beispielsweise häufig in der Halbleiterphysik verwendet, um die Zusammensetzung dünner Schichten zu analysieren oder Verunreinigungen in diesen Proben nachzuweisen [8].

Im Gegensatz zu RBS nutzt man bei der ERD (**E**lastic **R**ecoil **D**etection) die Rutherfordstreuung schwerer Projektile an leichten Probenatomen aus [9]. Durch den Energieübertrag des Projektils auf das Probenatom wird dieses aus der Probe herausgestoßen und kann in einem Detektor nachgewiesen werden. Mittels dieser Technik

können leichte Elemente, etwa in Proben aus der Materialforschung, dreidimensional analysiert werden. So kann beispielsweise durch ERD-Messungen der Einfluß von Wasserstoff auf die Funktionsweise von Solarzellen aus Silizium untersucht werden [10].

Eine spezielle Anwendungsform der elastischen Streuung ist die Proton-Proton-Streuung [11]. Durch koinzidenten Nachweis von Projektil (Proton) und Ejektil (Proton) kann die Wasserstoffverteilung innerhalb der Probe dreidimensional lokalisiert werden.

Eine weitere wichtige Anwendung eines Rasterionenmikroskops ist die Materialmodifikation. So werden Rasterionenmikroskope etwa zur Ionenstrahl-Lithographie eingesetzt. Mit ihnen ist es beispielsweise möglich Masken für die Röntgenstrahl-Lithographie herzustellen, die ca. $160\ \mu\text{m}$ dick sind und Strukturen unterhalb $250\ \text{nm}$ aufweisen müssen [12]. Außerdem werden Rasterionenmikroskope auch zur Herstellung von Bauteilen mit einer Größe von einigen Mikrometern eingesetzt. So können Zahnräder (Durchmesser ca. $10\ \mu\text{m}$) für Miniaturmotoren hergestellt werden, die dann mobile Sensoren in schwerzugängliche Bereiche transportieren [13].

1.3 Vergleich verschiedener Anlagen

Bisher existierende Ionenmikroskope verwenden meist Protonenstrahlen mit Energien von etwa $3\ \text{MeV}$ oder leichte Ionen mit Energien kleiner $20\ \text{MeV}$. Die Strahldurchmesser in den Foki dieser Anlagen liegen im Bereich von einigen μm und darunter. Die Strahlströme, die bei solchen Strahldurchmessern erreicht werden, hängen von der Strahlbrillanz ab und betragen meist $100\ \text{pA}$. Dies ist der typische Strom, der für analytische Anwendungen nötig ist. Tabelle 1.1 zeigt eine Auswahl existierender Rasterionenmikroskope, die den neuesten Stand der Technik repräsentieren. Aufgeführt sind jeweils die typischen Ionenstrahlarten und -energien, die Strahldurchmesser und die Strahlströme, die bei diesen Durchmessern erreicht werden können. Schließlich sind die horizontalen und vertikalen Verkleinerungsfaktoren der Anlagen angegeben.

Eine Ausnahme bildet die Anlage an der Gesellschaft für Schwerionenforschung (GSI) in Darmstadt. Hier können Ionen mit Energien von bis zu $11.4\ \text{MeV}\cdot A$ (A : Massenzahl) auf einen Strahldurchmesser von etwa $500\ \text{nm}$ fokussiert werden. Allerdings ist der Strahlstrom dieser Anlage für solch kleine Strahldurchmesser durch die Strahlbrillanz begrenzt und daher für Elementaranalysen nicht geeignet. Deshalb werden an diesem Ionenmikroskop meist Experimente zur Materialmodifikation mit einzelnen Ionen durchgeführt [19].

Im Gegensatz zu bisher existierenden Anlagen unterscheidet sich das im Rahmen der vorliegenden Arbeit aufgebaute Rasterionenmikroskop SNAKE (Supraleitendes

Anlage	typ. Ionen und Energien	Strahl- durchmesser	Strahl- strom	hor. und vert. Verkleinerung	Ref.
CSIRO Australien	3 MeV p 18 MeV C	1 μm	100 pA	67, 67	[14]
JAERI Japan	3 MeV p 4 MeV He	400 nm	77 pA	12, 60	[15]
LIPSION Leipzig	3.5 MeV p 6 MeV He	340 nm	10 pA	82, 82	[16]
NUS Singapur	2 MeV p 4 MeV He	100 nm	1 pA	108, 36	[17, 18]
GSI Darmstadt	60 MeV C 80 MeV Ar	500 nm	<1 pA	31, 12	[19, 20]
SNAKE München	20 MeV p 90 MeV S	100 nm	100 pA	200, 200	[21]

Tabelle 1.1: Daten ausgewählter existierender Rasterionenmikroskope und projizierte Daten des im Rahmen der vorliegenden Arbeit aufgebauten Rasterionenmikroskopes SNAKE.

Nanoskop für Angewandte Kernphysikalische Experimente) deutlich. So werden bei SNAKE Protonen mit Energien von bis zu 30 MeV und Schwerionen mit einem Masse-Energieprodukt $A \cdot E/q^2$ von 150 MeV als Strahl verwendet. Die zur Verfügung stehenden Projektilenergien liegen somit nahezu um eine Größenordnung über denen, die bei konventionellen Anlagen möglich sind. Im Unterschied zur Anlage an der GSI soll bei einem projizierten Strahldurchmesser von 100 nm ein Strahlstrom von 100 ppA (ppA = particle pA) erreicht werden. Mit diesem Strahlstrom sind bei SNAKE auch analytische Anwendungen mit hochenergetischen Ionen möglich. Die projizierten Daten von SNAKE sind in Tabelle 1.1 zusammengefaßt.

Die Verwendung von hohen Ionenenergien birgt eine Reihe von Vorteilen in der Elementanalytik und Materialmodifikation. Insbesondere erhält man dadurch

- eine geringere Schädigung der Probe,
- eine erweiterte Analysiertiefe und
- eine reduzierte laterale Aufstreuung der Projektile in der Probe.

Diese generellen Merkmale werden in den folgenden Kapiteln genauer diskutiert.

Zu den geplanten Anwendungen von SNAKE gehören mikroskopische Untersuchungen von Proben, die Gegenstand aktueller Forschung sind. So soll mittels der Protonen-

Proton-Streuung die dreidimensionale Wasserstoffverteilung innerhalb von Diamantproben bestimmt werden, um so den Einfluß von Wasserstoff auf die Funktion von Diamant als Halbleiter zu klären [22]. Ein spezieller Anwendungsschwerpunkt wird die Bestrahlung lebender biologischer Zellen sein. Durch die Bestrahlung der Zellen mit einzelnen Ionen können Reparaturmechanismen oder Korrelationen zwischen getroffenen und gesunden Zellen untersucht werden [23]. Darüber hinaus kann SNAKE auch zum Studium der Wechselwirkung von hochenergetischen Ionen mit Materie eingesetzt werden. Mittels eines fokussierten Ionenstrahls können so beispielsweise Beiträge zur Energieverluststreuung in dünnen Kohlenstofffolien analysiert werden (vgl. auch Abschnitt 4.2).

1.4 Ziel der Arbeit

In der vorliegenden Arbeit soll zunächst genauer diskutiert werden, in welchem Maße sich aus der Verwendung hochenergetischer Ionen vergrößerte Reichweiten und verbesserte laterale Auflösungen in der Ionenstrahlanalytik und in der Materialmodifikation ergeben (Kapitel 2). Im weiteren wird erläutert, wie hochenergetische Ionen auf einen Strahldurchmesser von nur 100 nm bei einem Strahlstrom von 100 ppA fokussiert werden können, welche Anforderungen aus diesem Ziel für die Komponenten der Anlage folgen und wie diese Anforderungen im Rahmen der vorliegenden Arbeit umgesetzt wurden (Kapitel 3). Weiter wird in Kapitel 4 demonstriert, wie am Rasterionenmikroskop SNAKE hochauflösende Transmissionsmessungen mittels eines Magnetspektrographen durchführbar sind. Dabei wird auch eine Anwendungsmöglichkeit aus dem Bereich der Wechselwirkung zwischen Ionen und Materie vorgestellt. Kapitel 5 hat zum Ziel das Potential der teilcheninduzierte Röntgenfluoreszenzanalyse mit hochenergetischen Protonen und schweren Ionen aufzuzeigen. Insbesondere sollen dabei Vergleiche mit niederenergetischeren Protonen konventioneller Anlagen durchgeführt werden.

2. Rasterionenmikroskopie mit hochenergetischen Ionen

Wie bereits in Abschnitt 1.3 erwähnt, ergeben sich für die Analytik und Materialmodifikation durch die hohen Projektilenergien bei SNAKE – im Vergleich zu herkömmlichen Anlagen – eine Reihe von Vorteilen. Im folgenden soll dazu die erweiterte Analysiertiefe und die reduzierte laterale Aufstreuung der Projektile in der Probe genauer diskutiert werden.

2.1 Erweiterte Analysiertiefe

Eine entscheidende Größe der Ionenstrahltechniken ist die Reichweite R der Projektile in der Probe. Über die Reichweite der Ionen wird in der Analytik die maximale Analysiertiefe festgelegt. Auch Materialmodifikationen können maximal nur bis zur Reichweite der Projektile erfolgen.

Die Reichweite hängt im allgemeinen von der Projektilenergie E_P und dem Bremsvermögen $S = \Delta E / \Delta x$ ab und berechnet sich zu:

$$R = \int_{E_P}^0 S(E)^{-1} dE \quad (2.1)$$

Abbildung 2.1 zeigt als Beispiel die Reichweite R von Protonen (p), Kohlenstoff- (C) und Schwefelionen (S) in Silizium in Abhängigkeit der Energie E nach [24]. Der Energiebereich liegt zwischen 1 MeV und 100 MeV und deckt somit die Projektilenergien von herkömmlichen Rasterionenmikroskopen und SNAKE ab.

Wie man erkennen kann, liegen aufgrund der hohen Energien die Reichweiten der Ionen bei SNAKE deutlich über denen für niederenergetische Ionen. So beträgt beispielsweise die Reichweite von 20 MeV Protonen in Silizium 2.3 mm, während die Reichweite von 3 MeV Protonen nur bei 91 μm liegt. Als Folge der großen Reichweiten können mit SNAKE deutlich dickere Proben analysiert oder modifiziert werden als mit niederenergetischen Ionen (vgl. auch Abschnitt 5.3.5).

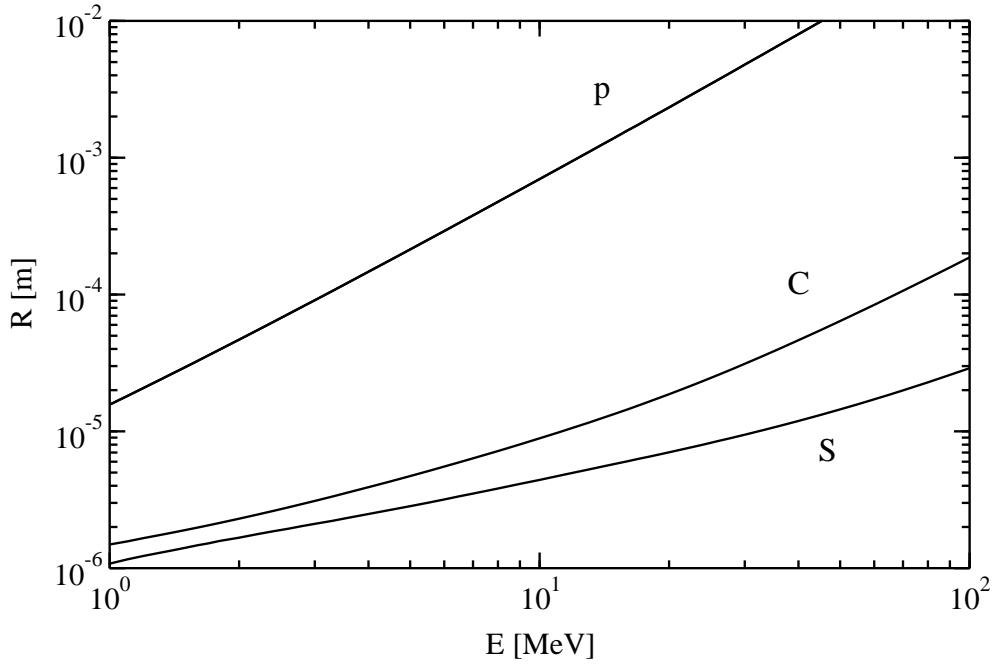


Abbildung 2.1: Reichweite von Protonen (*p*), Kohlenstoff- (*C*) und Schwefelionen (*S*) in Silizium in Abhängigkeit der Energie *E* nach [24].

2.2 Reduzierte laterale Aufstreuung

Die limitierende Größe der lateralen Auflösung einer Ionenstrahltechnik an einem Rasterionenmikroskop ist – neben dem Strahldurchmesser im Fokus – die Kleinwinkelsteu-
 erung der Projektile in der Probe [25]. Für die daraus resultierende volle Halbwertsbreite $\Delta\rho$ des lateralen Strahlprofils nach Durchgang eines Ionenstrahls durch eine Probe der Dicke d erhält man nach [26]:

$$\Delta\rho = \frac{d}{\Gamma} \Delta\alpha \quad \text{mit} \quad \Gamma = (1 + 2m)^{1/2m} \quad (2.2)$$

Die Konstanten m und C (in Gleichung (2.3)) werden festgelegt durch die Form des Potentials, das die Wechselwirkung zwischen Projektil und Targetatom bestimmt. $\Delta\alpha$ bezeichnet den vollen Halbwertswinkel der Winkelverteilung des Strahls nach der Dicke d . Er berechnet sich nach [25] zu

$$\Delta\alpha = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{4Z_P Z_T e^2}{E_P a} C \cdot (\pi a^2 N d)^{1/2m}. \quad (2.3)$$

Hierin bezeichnen Z_P und Z_T die Kernladungszahl des Projektils und des Targets (= Probe), N steht für die atomare Dichte des Targets. a beschreibt den Abschirmradius, der sich aus dem Bohrschen Radius a_B ($= 5.29 \cdot 10^{-9}\text{cm}$) errechnet [25]:

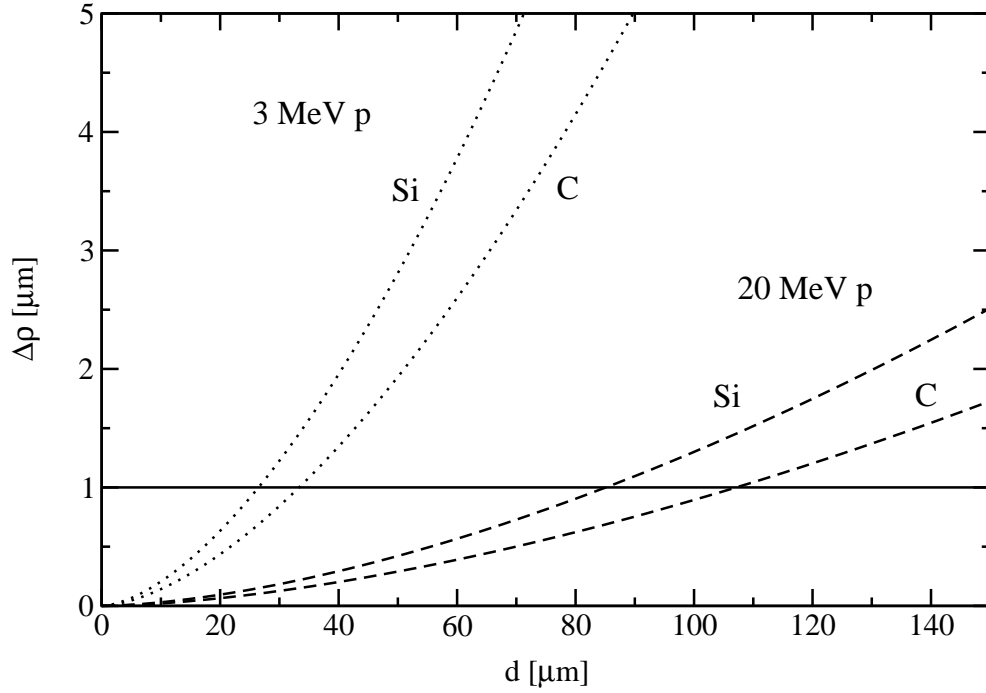


Abbildung 2.2: Volle laterale Halbwertsbreite $\Delta\rho$ eines 3 und 20 MeV Protonenstrahls in Kohlenstoff und Silizium in Abhängigkeit der Probendicke d nach Gleichung (2.2). Der durchgezogene horizontale Graph kennzeichnet die Halbwertsbreite $\Delta\rho = 1\mu\text{m}$.

$$a = \frac{0.885 a_B}{\left(Z_P^{2/3} + Z_T^{2/3}\right)^{1/2}} \quad (2.4)$$

Abbildung 2.2 zeigt die volle Halbwertsbreite $\Delta\rho$ eines 3 und 20 MeV Protonenstrahls in Kohlenstoff und Silizium in Abhängigkeit der Probendicke d nach Gleichung (2.2). Für die Konstanten wurden die in [25] angegebenen Werte $m = 0.8$ bzw. $C = 0.5$ eingesetzt. Die durchgezogene horizontale Linie kennzeichnet die Halbwertsbreite $\Delta\rho = 1\mu\text{m}$. Da die Kleinwinkelstreuung umgekehrt proportional zur Projektilenergie skaliert, kann durch Verwendung hochenergetischer Ionen eine verbesserte laterale Auflösung auch in größeren Tiefen erreicht werden. So beträgt zum Beispiel die laterale Aufstreuung eines Protonenstrahls mit einer Energie von 3 MeV bei einer Siliziumdicke von $26\mu\text{m}$ bereits $1\mu\text{m}$. Bei 20 MeV Protonen ist der Strahl erst bei einer Siliziumdicke von $86\mu\text{m}$ um $1\mu\text{m}$ lateral aufgestreut.

3. Funktionsprinzip und Aufbau des Rasterionenmikroskops SNAKE

Das Konzept, das SNAKE zugrunde liegt, geht auf Überlegungen von G. Hinderer und G. Dollinger zurück [21]. Im Rahmen einer Arbeitsgruppe, der vier Doktoranden bzw. Diplomanden angehören, wurde dieses Konzept umgesetzt und die einzelnen Komponenten der Anlage entwickelt. G. Datzmann übernahm dabei den Bau der supraleitenden Linse, die als zweite Abbildungsstufe dient [27]. A. Hauptner beschäftigte sich in seiner Diplomarbeit mit der Installation eines Magnetspektrographen für hochauflösende Energieverlustmessungen [28]. Die Diplomarbeit und anschließende Doktorarbeit von P. Reichart hat die Konzeption eines Detektorsystems zum Nachweis von Wasserstoff zum Thema [22]. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden neue, sogenannte Mikroschlitze entwickelt. Außerdem wurde ein Experimentierplatz samt Detektoren für verschiedene analytische Anwendungen aufgebaut.

Zu Beginn dieses Kapitels wird erläutert, welche Anforderungen sich für die Komponenten von SNAKE ergeben, wenn hochenergetische Ionen auf einen Strahldurchmesser von 100 nm fokussiert werden und wie diese Anforderungen technisch realisiert wurden. Nach dem der Aufbau des Rasterionenmikroskops SNAKE skizziert wurde, wird auf die Komponenten eingegangen, die für das Ionenmikroskop entwickelt wurden.

3.1 Anforderungen an das Rasterionenmikroskop

Aufgrund der hohen Ionenenergie und des projizierten Strahldurchmessers von 100 nm bei einem Strahlstrom von 100 ppA ergeben sich eine Reihe von Anforderungen an die Anlage, welche bei deren Konstruktion und Aufbau berücksichtigt werden mußten. Diese Anforderungen sind im einzelnen:

- eine große Strahlbrillanz B ,
- eine hohe Energieschärfe $\Delta E/E$ des Ionenstrahls,
- ein hoher Verkleinerungsfaktor,
- eine große Brechkraft der magnetischen Linsen,

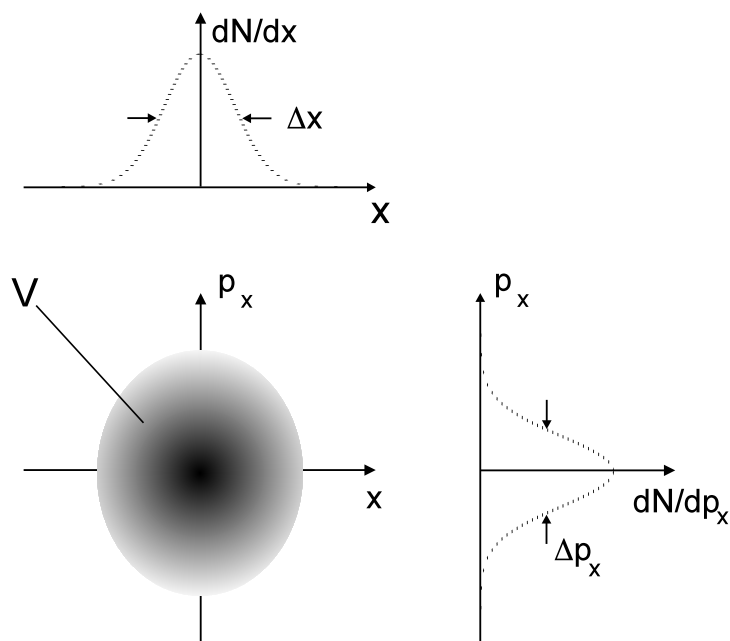


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung des transversalen, eindimensionalen Phasenraums und Projektion der Impuls- und Ortsverteilung des Ionenstrahls. V bezeichnet das vom Ionenstrahl besetzte Phasenraumvolumen.

- minimale Abbildungsfehler und
- minimale mechanische Vibrationen.

Zur Erklärung der Strahlbrillanz B soll zuerst die transversale Emittanz ε eines Ionenstrahls eingeführt werden. Die transversale Emittanz ist ein Maß für das vom Ionenstrahl besetzte Volumen V des Phasenraums, der (in einer Dimension) durch den Transversalimpuls p_x und den Ort x aufgespannt wird (siehe Abbildung 3.1).

Da der transversale Impuls p_x durch die Strahldivergenz α und dem longitudinalen Impuls p_z der Ionen ausgedrückt werden kann ($\tan \alpha = p_x/p_z$) und außerdem $p_z \propto \sqrt{E}$ ist (E : Strahlenergie), kann die transversale Emittanz in Kleinwinkelnäherung ($\tan \alpha \approx \alpha$) durch

$$\varepsilon_x = \Delta x \cdot \Delta \alpha \cdot \sqrt{E} \quad (3.1)$$

definiert werden [29]. Hierin bezeichnen Δx und $\Delta \alpha$ die Breite der Orts- und Winkelverteilung des Ionenstrahls.

Die Brillanz B eines Ionenstrahls gibt das Verhältnis von Strahlstrom I zu transversaler Emittanz $\varepsilon_x \cdot \varepsilon_y$ an [30]:

$$B = \frac{I}{\varepsilon_x \cdot \varepsilon_y} \quad (3.2)$$

Ein brillianter Strahl zeichnet sich demnach durch eine kleine laterale Ausdehnung und kleinem Transversalimpuls bzw. kleiner Strahldivergenz bei großem Strahlstrom aus. Um einen Strahldurchmesser von 100 nm bei einem Strahlstrom von 100 ppA zu erreichen, ist im Fokus von SNAKE eine Brillianz von $1.3 \cdot 10^{-6} \text{ A}/(\text{mm}^2 \text{ mrad}^2 \text{ MeV})$ nötig [31]. Da sich im allgemeinen die Brillianz bei der Transmission des Ionenstrahls von der Quelle zum Fokus verschlechtert, sollte die Brillianz der eingesetzten Ionenquelle besser sein als der benötigte Wert im Fokus von SNAKE. Die momentan verwendete Protonenquelle (Duoplasmatron) [32] weist eine Brillianz von $1.6 \cdot 10^{-6} \text{ A}/(\text{mm}^2 \text{ mrad}^2 \text{ MeV})$ auf [31] und sollte für erste Anwendungen ihren Zweck erfüllen.

Um chromatische Aberrationen der ionenoptischen Abbildung zu minimieren, muß der Ionenstrahl eine hohe Energieschärfe aufweisen. Damit bei maximaler Akzeptanz der zweiten Abbildungsstufe die Verbreiterung des Strahlflecks im Fokus in beiden transversalen Richtungen durch chromatische Fehler unter 100 nm liegt, muß die relative Energieabweichung $\Delta E/E$ des Strahls kleiner $1.2 \cdot 10^{-5}$ sein [21]. Diese Energieschärfe des Ionenstrahls am Rasterionenmikroskop SNAKE wird durch die laterale Ausdehnung des Ionenstrahls in den Foki vor und hinter dem Magneten sowie durch die Stabilität des Magnetfeldes des 90° -Analysemagneten bestimmt. Eine ausreichende Stabilisierung des Magnetfeldes ($\Delta B/B < 10^{-5}$) wird durch eine vorhandene, auf dem NMR-Prinzip basierende Regelung gewährleistet. Um die erforderliche Energieschärfe $\Delta E/E$ zu erreichen, darf der Strahl in den Foki vor und hinter dem 90° -Magneten nicht breiter als $60 \mu\text{m}$ sein [21]. Technisch wird dies durch Objekt- und Bildschlitze am Analysemagneten erreicht (siehe Abbildung 3.2). Da die am Beschleuniger vorhandenen Schlitze nicht mit der nötigen Genauigkeit eingestellt werden können, wurden neue, sogenannte Mikroschlitze, entwickelt [33]. Diese Schlitze und deren Eigenschaften werden in Abschnitt 3.3 genauer dargestellt.

Mit dem Verkleinerungsfaktor und dem gewünschten Strahldurchmesser im Fokus (Bild) ist in einer ionenoptischen Abbildung auch die Objektgröße, d.h. die Öffnung der Objektschlitze vorgegeben. Würde man bei SNAKE Verkleinerungsfaktoren herkömmlicher Rasterionenmikroskope einsetzen (typischerweise 60-80, siehe Tabelle 1.1), dürften die Objektschlitze nur $6-8 \mu\text{m}$ geöffnet werden, um einen Strahldurchmesser von 100 nm im Fokus zu erreichen. Wie in Abschnitt 3.3 gezeigt wird, kommt es bei diesen geringen Aperturen im allgemeinen zu einer Verschlechterung der Strahlqualität durch Ionen, welche durch das Schlitzmateriale transmittiert werden. Damit größere Schlitza-perturen möglich sind, mußte für SNAKE ein größerer Verkleinerungsmaßstab gewählt werden. Dieser wird durch eine zweistufige Abbildung realisiert. Dabei nutzt man aus,

daß sich die Verkleinerungsfaktoren der ersten Abbildungsstufe (8.5 in x- bzw. 1.5 in y-Richtung) mit den Faktoren der zweiten Abbildungsstufe (23.5 in x- bzw. 133 in y-Richtung) multiplizieren und insgesamt in beiden Richtungen jeweils 200 ergeben. Der durch die zweistufige Abbildung entstandene Zwischenfokus wird genutzt, um gestreute Ionen oder einen möglichen Halo des Ionenstrahls durch Schlitze aus dem weiteren Strahlverlauf auszublenden.

Da bei SNAKE neben Protonen mit Energien, die etwa eine Größenordnung über Werten konventioneller Anlagen liegen, auch hochenergetische schwere Ionen fokussiert werden sollen, muß die zweite Abbildungsstufe, die den Hauptanteil der Verkleinerung übernimmt, einen magnetischen Feldgradienten dB/dr von bis zu 1 T/cm und damit eine große Brechkraft aufweisen. Nachdem die in konventionellen Anlagen eingesetzten Magnete ($dB/dr \approx 0.3$ T/cm, [34]) diese Brechkraft nicht aufbringen können, wurde ein neues Konzept für eine magnetische Linse erarbeitet [21]. Bau und Test dieses supraleitenden Magneten sind Gegenstand einer weiteren Doktorarbeit [35]. Deshalb wird auf weitere Eigenschaften dieser Komponente nicht näher eingegangen. Da sich der Magnet während den Messungen zu vorliegender Arbeit noch in der Entwicklung befand, konnte bei den durchgeführten Experimenten nur begrenzt ein fokussierter Ionenstrahl mit einem Strahldurchmesser im Mikrometerbereich eingesetzt werden. Bei reduzierter Ausleuchtung der supraleitenden Linse konnten bislang 90 MeV Schwefelionen auf einen Strahlfleck von 700 nm fokussiert werden [27] (vgl. Abschnitt 3.5).

3.2 Aufbau von SNAKE

Im Rahmen dieser Arbeit wurde das Rasterionenmikroskop SNAKE am 0°-Strahlrohr des Beschleunigerlabors der beiden Münchener Universitäten aufgebaut. Eine schematische Darstellung der Anlage ist in Abbildung 3.2 wiedergegeben. Die Beschleunigung der Ionen erfolgt durch einen 15 MV Tandem Beschleuniger [32]. Dabei werden einfach negativ geladene Ionen zum positiv geladenen Hochspannungsterminal mit der Spannung U beschleunigt. Um die positive Spannung des Terminals ein weiteres mal zur Beschleunigung der Ionen auszunutzen, werden die negativ geladenen Ionen dort in einer Kohlenstoffolie oder einer Gasstrecke umgeladen und ein weiteres mal beschleunigt. Nach Durchfliegen des Beschleunigers besitzen Ionen mit der Ladung $q \cdot e$ die kinetische Energie

$$E = (1 + q) e U. \quad (3.3)$$

Nach der Umladungsstrecke erhält man im allgemeinen eine Ladungsverteilung der Ionen und damit unterschiedliche Energien. Ein 90°-Magnet hinter dem Beschleuniger

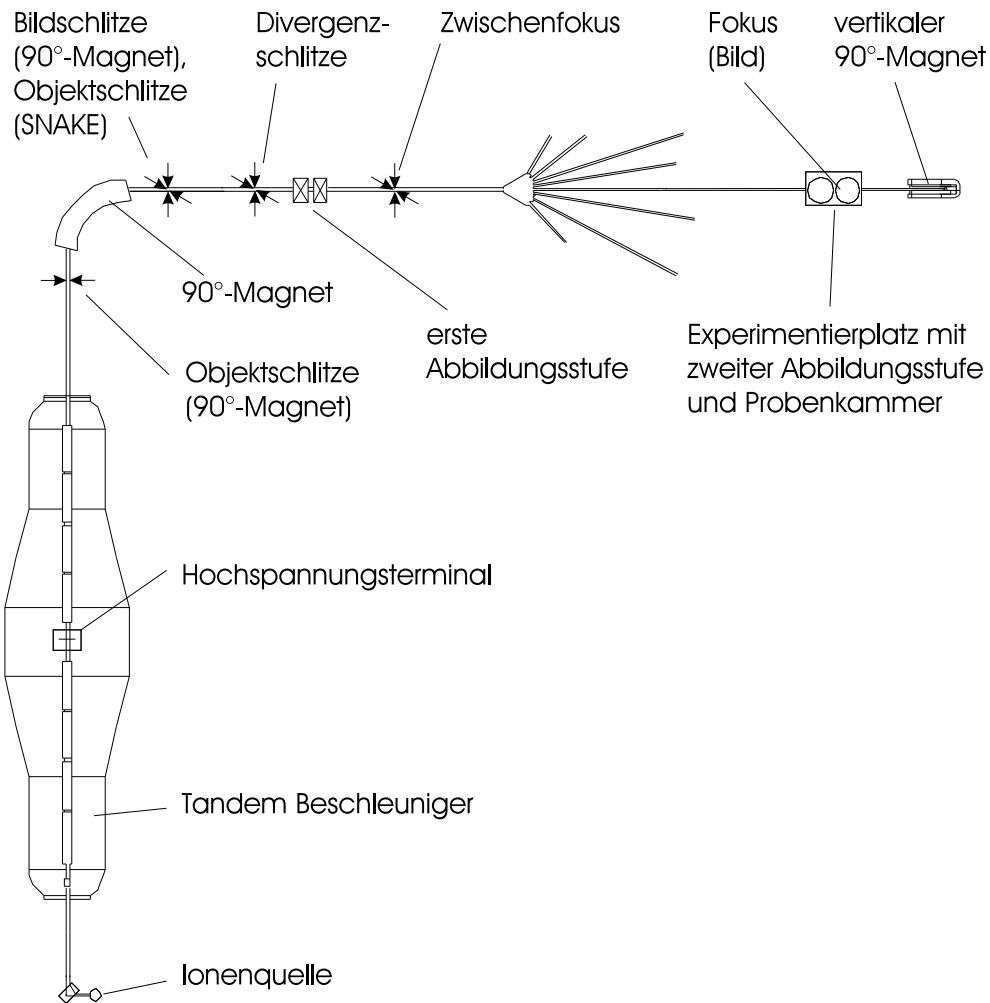


Abbildung 3.2: Schematische Darstellung der Komponenten des Rasterionenmikroskops SNAKE am Münchener Tandem Beschleuniger.

ermöglicht eine Analyse der Ionen nach Impuls und Ladung, p/q . Schlitze vor und nach dem Analysiermagneten legen die Bahn der Ionen durch das Magnetfeld und damit die Energie der transmittierten Ionen fest. Der Magnet erlaubt es, Ionen mit einem Masse-Energieprodukt $A \cdot E/q^2$ von bis zu 336 MeV zu analysieren [36].

Die eigentliche ionenoptische Abbildung des Rasterionenmikroskops SNAKE beginnt hinter dem 90°-Magneten. Das Objekt der Abbildung fällt mit dem Bild des 90°-Magneten zusammen und wird über eine zweistufige Abbildung in den Fokus von SNAKE verkleinert. Die Objektgröße der Abbildung wird durch die Apertur der Objektschlitze von SNAKE definiert. Die Verkleinerung der gesamten Abbildung in beiden transversalen Richtungen liegt bei 200. Um im Fokus (Bild) des Ionenmikroskops einen Strahldurchmesser von 100 nm zu erreichen, muß – ohne Berücksichtigung von

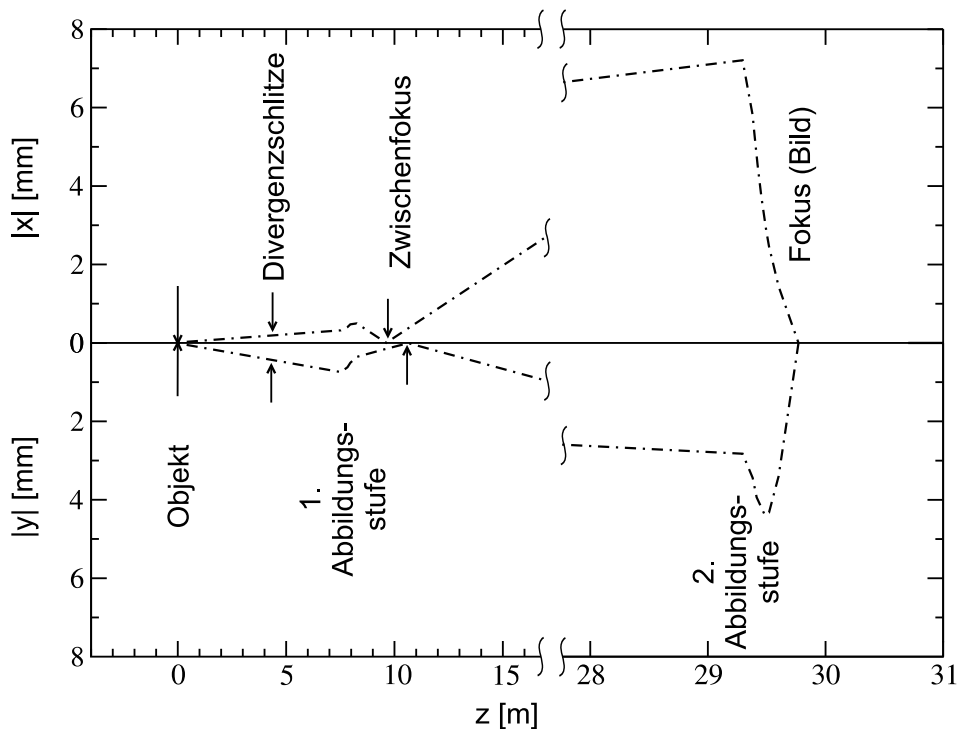


Abbildung 3.3: Mittels TRANSPORT [37] berechnete Einhüllende des Ionenstrahls in x - und y -Richtung. Die eingezeichneten Pfeile markieren die Positionen der eingesetzten Mikroschlitz (vgl. Abschnitt 3.3).

Abbildungsfehlern – die Apertur der Objektschlitz $20 \mu\text{m}$ betragen. Durch Schlitz vor der ersten Abbildungsstufe wird die Divergenz des Ionenstrahls in x -Richtung auf ± 0.05 mrad und in y -Richtung auf ± 0.1 mrad beschnitten. Um die zweite Abbildungsstufe optimal auszuleuchten, erfolgt die Beschneidung des Strahls asymmetrisch. Abbildung 3.3 zeigt die mit dem Programm TRANSPORT [37] berechneten Einhüllenden des Ionenstrahls in horizontaler (x) und vertikaler (y) Richtung. Die z -Richtung bezeichnet die Flugrichtung der Ionen. Der Abstand von Objekt zu Bild beträgt knapp 30 m. Eine genauere Beschreibung der Ionenoptik wird in [35] gegeben.

3.3 Mikroschlitz

Neben der supraleitenden Linse sind Schlitz eine der wichtigsten Komponenten des Rasterionenmikroskops SNAKE. Durch sie wird einerseits die Objektgröße der ionenoptischen Abbildung festgelegt. Andererseits werden sie verwendet, um im Zwischenfokus gestreute Ionen oder einen möglichen Halo des Ionenstrahls aus dem weiteren Strahlverlauf auszublenden.

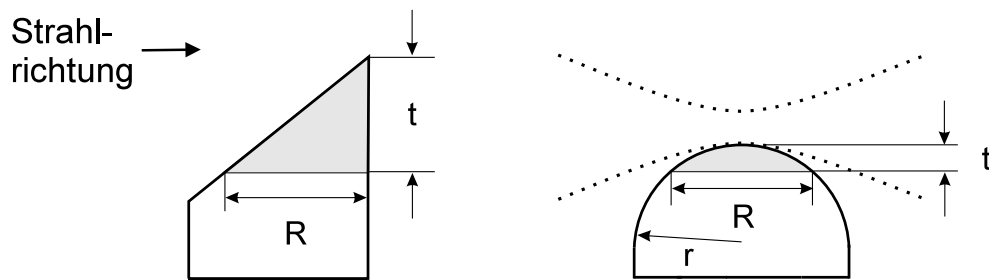


Abbildung 3.4: Schnitt durch zwei typische Schlitzformen. Die Größe der transparenten Zone (grau) hängt von der Reichweite R der Ionen im Schlitzmaterial und der Schlitzform ab. Bei der zylindrischen Schlitzform ist zusätzlich die Strahleinhüllende eingezeichnet.

3.3.1 Anforderungen und Realisation

Soll der Strahldurchmesser im Fokus von SNAKE 100 nm betragen, dürfen bei einem Verkleinerungsfaktor von 200 die Objektschlitz in erster Näherung nur $20\ \mu\text{m}$ geöffnet sein. Da herkömmliche, am Beschleuniger vorhandene Schlitz jedoch nur auf 0.1 mm genau positioniert werden können, mußten neue Schlitz entwickelt werden, deren Apertur in Mikrometerschritten einstellbar ist [33]. Diese sogenannten Mikroschlitz müssen weiteren Anforderungen genügen:

- Minimierung der transparenten Zone,
- Minimierung von mechanischen Vibrationen und
- Kompensation thermischer Ausdehnungen.

Neben Ionen, die die Schlitzapertur ohne Wechselwirkung passieren, gibt es Projektile, die die Randbereiche des Schlitzmaterials durchdringen können. Diese Ionen erleiden sowohl Energieverlust als auch Kleinwinkelstreuung. Dadurch kommt es zu einer Verbreiterung der Energie- und Winkelverteilung des Ionenstrahls. Werden diese Projektile nicht aus dem weiteren Verlauf der Strahlführung ausgeblendet, erhält man einen Halo um den eigentlichen Ionenstrahl und somit eine Verschlechterung der lateralen Auflösung des Rasterionenmikroskops.

Bei der Entwicklung der neuen Schlitz wurde das Ziel verfolgt, die Schlitz so zu konstruieren, daß Ionen, die mit dem Schlitzmaterial wechselwirken, eine große Kleinwinkelstreuung und einen großen Energieverlust erleiden und so aus der Akzeptanz der Ionenoptik herausfallen. Zudem sollte der Anteil der Ionen, die mit dem Schlitzmaterial wechselwirken, minimal sein.

Schlitzbereiche, die die Ionen durchdringen, werden als transparente Zonen bezeichnet [38, 39]. Sie hängen stark von der geometrischen Form der Schlitze und der Reichweite R der Ionen im Schlitzmaterial ab. Abbildung 3.4 zeigt dazu Schnitte durch zwei typische Schlitzformen. Die transparente Zone ist grau eingezeichnet. Da insbesondere leichte, hochenergetische Ionen eine große Reichweite in Materie haben (z.B. 1.3 mm für 20 MeV Protonen in Germanium [24]), spielt die transparente Zone für solche Strahlarten eine entscheidende Rolle.

Da der Energieverlust und die Kleinwinkelstreuung proportional zur Kernladung des Schlitzmaterials sind, muß ein schweres Element als Schlitzmaterial verwendet werden [38], um den geforderten großen Energieverlust und die große Kleinwinkelstreuung der Ionen zu erreichen. Zugleich muß dieses Material auch eine nahezu atomar glatte Oberfläche aufweisen [38]. Vielfach wird Wolfram oder Tantal verwendet. Da diese Metalle jedoch auch nach mechanischer Behandlung (polieren, honen) eine hohe Oberflächenrauigkeit aufweisen (Mittenrauhwert $\approx 0.8\text{-}0.2 \mu\text{m}$, [40]), sind sie als Schlitzoberflächen wenig geeignet. Aus diesem Grunde werden für die neuentwickelten Mikroschlitze Silizium- bzw. Germaniumwafer (60-100 μm Dicke) eingesetzt, die eine nahezu atomar glatte Oberfläche besitzen.

Damit der Anteil der Ionen, die durch das Schlitzmaterial transmittiert werden, gering ist, muß die Dicke t der transparenten Zone klein sein. Abbildung 3.4 verdeutlicht dies qualitativ an zwei Schlitzformen. Während im ersten Fall (links) viele Ionen die Dicke transparente Zone durchdringen können, ist der Anteil in der dünnen Zone (rechts) geringer. Untersuchungen zu verschiedenen Schlitzformen [38] zeigen, daß eine zylindrische Schlitzgeometrie die optimalste Form ist, da sie zu einer minimalen transparenten Zone führt und gleichzeitig die Strahldivergenz nicht beschneidet (siehe Abbildung 3.4 rechts).

Bei vorgegebener Reichweite R der Ionen in Materie und Biegeradius r ergibt sich bei dieser Schlitzform die Dicke t der transparenten Zone zu

$$t = r - \sqrt{r^2 - R^2/4}. \quad (3.4)$$

Da die Strahldivergenz durch die Schlitzform nicht beschränkt werden darf, sind keine beliebig dünnen transparenten Zonen bzw. beliebig großen Biegeradien möglich.

Unter Berücksichtigung der Strahldivergenz sowie der Versetzung zweier gegenüberliegender Schlitzhälften (vgl. Abbildung 3.6), wurde für die zylindrische Schlitzgeometrie bei SNAKE ein Biegeradius von 50 mm gewählt. Mit den in [24] tabellierten Reichweiten erhält man in dieser Geometrie für 20 MeV Protonen in Silizium eine transparente Zone der Dicke $t = 13 \mu\text{m}$. Für Germanium beträgt sie $4 \mu\text{m}$. Technisch wird diese Schlitzform realisiert, indem der Wafer in einen Rahmen eingespannt und

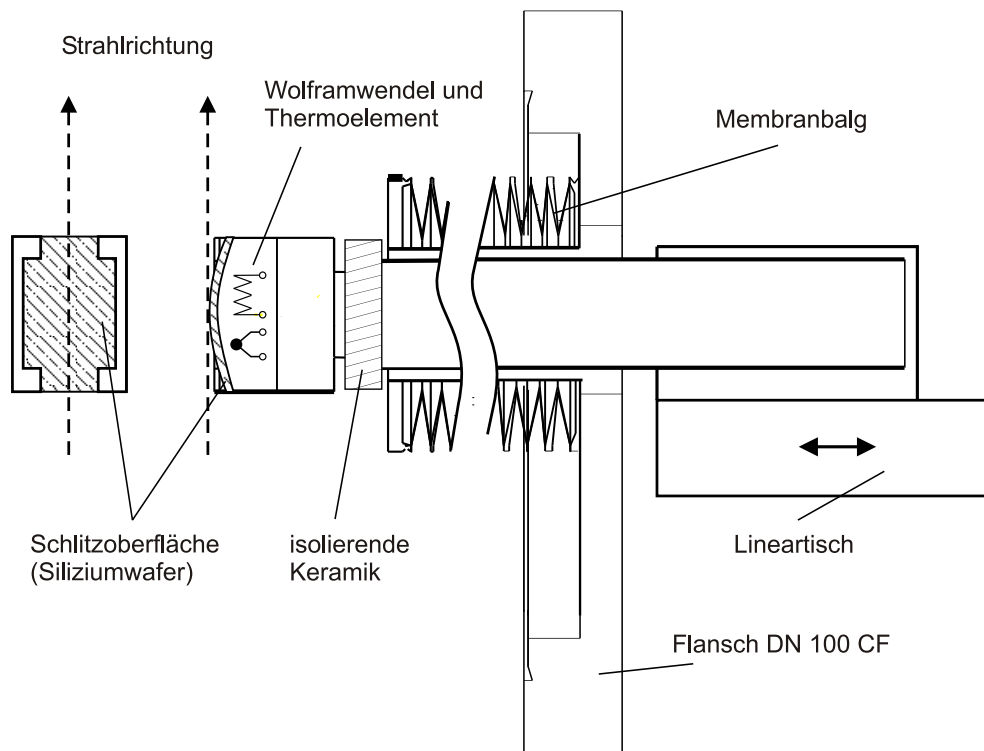


Abbildung 3.5: Schnitt durch eine Mikroschlitzhälfte. Technische Einzelheiten werden im Text erklärt.

mit einem zylindrischen Stempel durchgebogen wird (vgl. Abbildung 3.5).

Die Apertur der Schlitzes wird durch einen Lineartisch (Berger Lineartisch 5101.1) eingestellt, der von einem Schrittmotor angetrieben wird. Dadurch kann jede Schlitzhälfte auf $1\ \mu\text{m}$ genau positioniert werden. Der Lineartisch befindet sich außerhalb des Vakuums und ist über einen Membranbalg und einem Stab mit dem eigentlichen Schlitz verbunden (siehe Abbildung 3.5). Im Gegensatz zu konventionellen Schlitzes können beide Mikroschlitzhälften unabhängig voneinander bewegt werden. Damit ist es möglich, die Schlitzes symmetrisch an der Strahlachse auszurichten, auch wenn diese nicht mit der Strahlrohrachse übereinstimmt. Die maximale Öffnung eines Schlitzpaares beträgt 80 mm. Dadurch können die Schlitzes fast vollständig aus dem Strahlrohr gefahren werden. In dieser Position beeinträchtigen sie andere Experimente nicht und sind zugleich vor dem Ionenstrahl geschützt. Ein Schnitt durch eine Schlitzhälfte ist in Abbildung 3.5 dargestellt.

Um störende Vibrationen des Strahlrohrs – vor allem hervorgerufen durch dort angeschlossene Vakuumpumpen – zu unterdrücken, sind die Schlitzes durch einen weichen Membranbalg vom Strahlrohr mechanisch entkoppelt. Der Lineartisch und damit auch der eigentliche Schlitz ist über eine separate Aufnahme mit dem Boden des Beschleunigerrohrs verbunden.

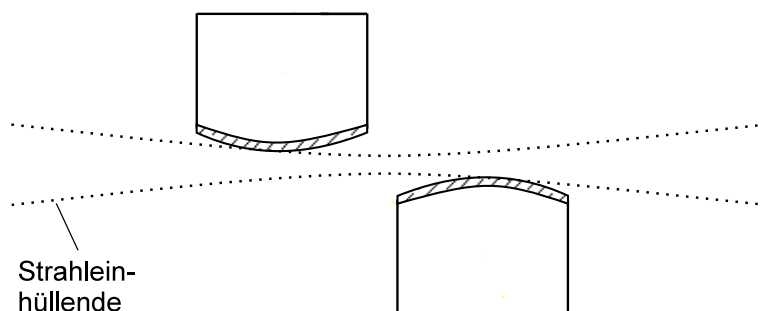


Abbildung 3.6: Um die Zerstörung der Wafer bei geschlossenen Schlitzen zu vermeiden, sind beide Schlitzhälften zueinander versetzt.

nigergebäudes verbunden und hat so keinen weiteren mechanischen Kontakt mit dem Strahlrohr.

Die zwei Hälften eines Schlitzes sind in Strahlrichtung um ca. 30 mm zueinander versetzt. Dadurch können sich beide Schlitzhälften im geschlossenen Zustand überlappen, ohne daß die Schlitzoberflächen aufeinander stoßen und damit zerstört werden. Abbildung 3.6 verdeutlicht diese Geometrie.

Wird das Schlitzmaterial von dem Ionenstrahl getroffen, kommt es zu einer Erwärmung des Schlitzes. Dabei können im regulären Betrieb Temperaturen von einigen 100°C entstehen. Infolge der thermischen Expansion des Schlitzmaterials verringert sich dann die eingestellte Schlitzapertur. Besteht beispielsweise die Schlitzgeometrie mit einer Länge von ca. 10 cm hauptsächlich aus Stahl, kommt es bei einer Temperaturänderung von nur 10°C zu einer Expansion von 5 μm [41]. Da diese Änderung im Bereich typischer Schlitzaperturen ist ($\approx 20 \mu\text{m}$), ändert sich der transmittierte Strahlstrom deutlich und erschwert ein Arbeiten unter konstanten Bedingungen.

Um die Apertur konstant zu halten, muß die Schlitztemperatur auf konstanten Wert gehalten werden. Während andere Arbeitsgruppen versuchen ihre Schlitze zu kühlen [19], wurde im Rahmen dieser Arbeit ein anderes Konzept entwickelt. Hier werden die Mikroschlitze durch eine Wolframwendel innerhalb der Waferaufnahme geheizt (siehe Abbildung 3.5). Zusammen mit einem Thermoelement und einer Temperatursteuerung (Eurotherm 2416) wird die Temperatur der Schlitze konstant gehalten ($\Delta T \leq 0.1 \text{ K}$). Die Solltemperatur des Schlitzes muß dabei über dem Wert liegen, der durch den Strahlstrom allein erreicht wird. Temperaturänderungen als Folge von Strahlstromänderungen werden dann durch Variation der Heizleistung kompensiert. Dadurch ist es möglich, die Effekte der thermischen Ausdehnung zu minimieren. Der Wafer und die Waferaufnahme sind durch eine Keramikplatte elektrisch und thermisch von der übrigen Schlitzmechanik isoliert. Durch die elektrische Isolation kann der Strom, der

auf den Schlitz fällt, über einen elektrischen Anschluß gemessen werden. Die thermische Isolation reduziert die Erwärmung der übrigen Schlitzmechanik und somit auch deren thermische Ausdehnung. Es ist auch möglich, die thermische Ausdehnung über die Temperaturregelung zur Aperturänderung im Mikrometerbereich und darunter aktiv anzuwenden.

Die Schrittmotor- und Temperaturregelung sind in das Steuernetzwerk des Beschleunigers eingebunden.

3.3.2 Test der Schlitz

In Testmessungen wurde überprüft, ob die Mikroschlitz die gewünschten Eigenschaften besitzen und so den Anforderungen des Rasterionenmikroskops SNAKE genügen. Dazu wurden vertikale Schlitz vor dem Q3D Magnetspektrographen [42] des Beschleunigerlabors eingebaut. Als Strahl wurden 20 MeV Protonen verwendet. Die Energien der transmittierten Protonen wurden am Q3D analysiert. Als Detektor in der Fokalebene des Q3D Magnetspektrographen diente eine ortsempfindliche Ionisationskammer [43]. Die relative Energieauflösung $\Delta E/E$ des gesamten Systems betrug $4 \cdot 10^{-4}$. Da der Detektor zusätzlich eine vertikale Vieldrahtebene besitzt, war es auch möglich innerhalb ± 2.5 mrad die vertikale Winkelverteilung der transmittierten Protonen zu messen. Während des gesamten Tests wurde die Temperatur der Schlitz auf $(100.0 \pm 0.1)^\circ\text{C}$ gehalten. Diese Temperatur lag oberhalb der Temperatur, die durch den Protonenstrahl entstand. Als Schlitzoberflächen wurden Germaniumwafer verwendet.

Für den Betrieb der Mikroschlitz ist die genaue Kenntnis der Schlitzposition und Apertur nötig. Die Justage der Schlitz kann über ein am Beschleuniger vorhandenes optisches System erfolgen. Da hierzu jedoch ganze Strahlrohrbereiche belüftet werden müssen, ist diese Methode nur zu Wartungszeiten außerhalb des regulären Beschleunigerbetriebs möglich. Andererseits gibt es die Möglichkeit, die Schlitzjustage über den Ionenstrahl selbst durchzuführen. Zur symmetrischen Justage der Schlitz zur Strahlachse wird eine Schlitzhälfte vom Rand des Strahlrohrs zur Mitte der Strahlachse gefahren. Wenn die Schlitzhälfte den Rand des symmetrisch angenommenen Strahlprofils beschneidet, sinkt die Zählrate der transmittierten Projektile. Die Schlitz sind symmetrisch zum Strahl ausgerichtet, wenn beide Schlitzhälften die Strahlintensität zu gleichen Teilen reduzieren.

Um die Position der Schlitz zu bestimmen, bei denen sie geschlossen sind, werden beide Schlitzhälften symmetrisch zur Strahlachse hin zugefahren. Abbildung 3.7 zeigt für zwei verschiedene Messungen wie dabei die Zählrate der transmittierten Projektile monoton abnimmt. Extrapoliert man den Verlauf der Daten hin zur Zählrate Null, erhält man die Position der Schlitz, in der sie geschlossen sind. Diese Nullposition kann

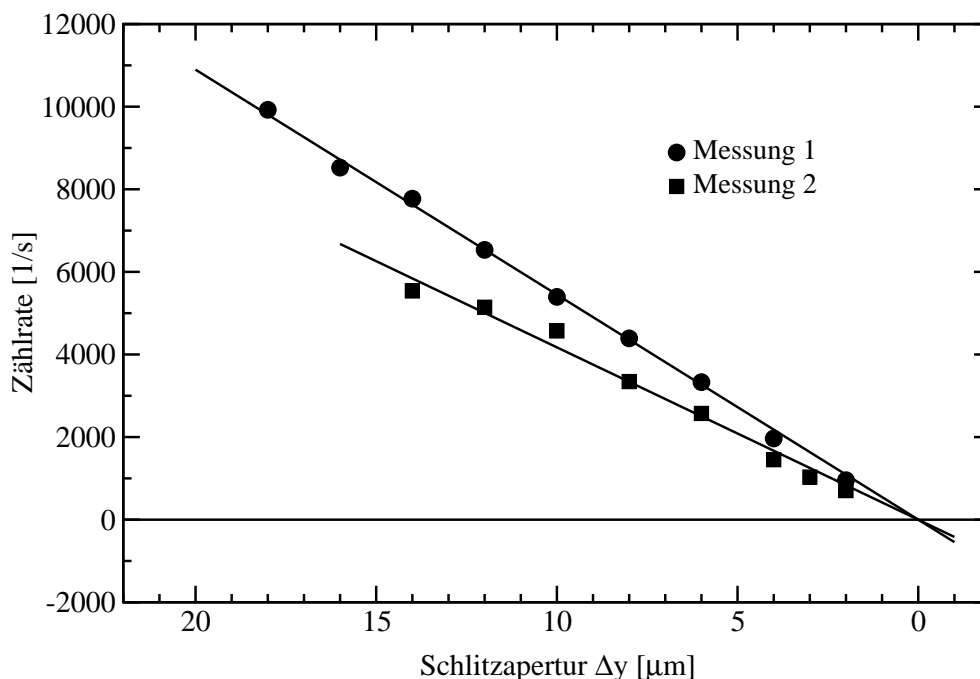


Abbildung 3.7: Bestimmung der Schlitzapertur über den transmittierten Ionenstrahl. Die beiden Geraden sind Anpassungen an die Meßwerte.

auf $1 \mu\text{m}$ genau bestimmt werden. Auf die Apertur der Schlitze kann durch Abzählen der Schritte des Schrittmotors geschlossen werden ($1 \text{ Schritt} = 1 \mu\text{m}$). Durch Vergleich der Daten aus der optischen Justage kann außerdem festgestellt werden, inwieweit die tatsächliche Strahlage mit der Sollachse übereinstimmt.

Nach der Kalibrierung der Schlitzapertur wurde die Energieverteilung der transmittierten Projektile gemessen. Um Spektren mit verschiedenen Aperturen zu vergleichen, wurden die Energieverteilungen auf den gleichen Spektrumsinhalt skaliert. Abbildung 3.8 zeigt die Energieverteilung der transmittierten Protonen mit vollkommen geöffnetem Mikroschlitz (gestrichelte Linie) und die Verteilung des nur $12 \mu\text{m}$ geöffneten Mikroschlitzes (durchgezogene Linie). Der akzeptierte vertikale Winkelbereich betrug $\pm 2.5 \text{ mrad}$. Beide Verteilungen zeigen ein Maximum (peak) bei 20 MeV , das der Strahlenergie der Protonen entspricht. Außerdem ist jeweils ein niederenergetischer Ausläufer (tail) hin zu kleineren Energien zu beobachten. Dieser entsteht durch die bei der Strahlpräparation verwendeten konventionellen Schlitze am 90° -Magneten. Da für SNAKE ein energetisch scharfer Ionenstrahl nötig ist, muß der niederenergetische Anteil der Energieverteilung bei kleinen Schlitzaperturen möglichst klein sein. Um den Einfluß der Mikroschlitzes auf die Strahlqualität zu testen, wurde das integrale Verhältnis von niederenergetischem Ausläufer ($E < 19.98 \text{ MeV}$) zum Maximum ($E > 19.98 \text{ MeV}$) um

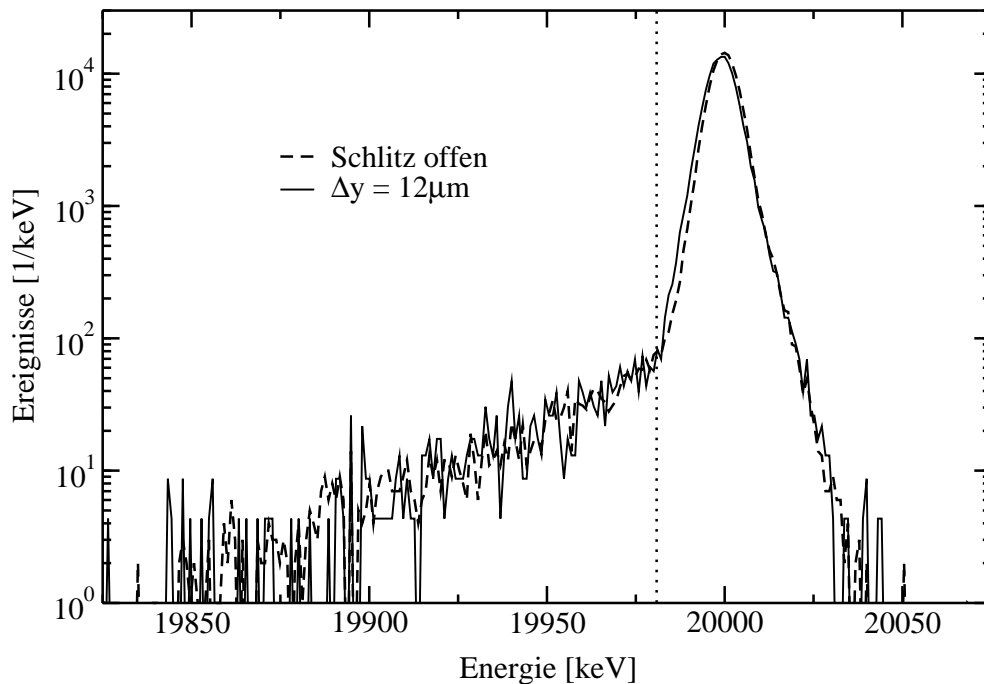


Abbildung 3.8: Energieverteilung des Strahls hinter den Mikroschlitz. Gestrichelter Graph: vollkommen geöffneter Mikroschlitz. Durchgezogener Graph: Schlitzapertur $12 \mu\text{m}$. Die vertikale gepunktete Linie bezeichnet die Grenze zwischen niederenergetischen Ausläufern ($E < 19.98 \text{ MeV}$) und dem Maximum der Verteilung ($E > 19.98 \text{ MeV}$).

20 MeV gebildet (tail/peak). Die vertikale gepunktete Linie in Abbildung 3.8 gibt die Grenze zwischen den beiden Bereichen der Verteilung an. Mit vollkommen geöffneten Mikroschlitz beträgt dieses Verhältnis $(1.37 \pm 0.05)\%$. Bei einer Schlitzapertur von $12 \mu\text{m}$ beträgt es $(1.41 \pm 0.05)\%$. Der zusätzliche Anteil der Protonen mit geringerer Energie liegt daher unter 0.1% .

Da die Projektile, die mit dem Schlitzmaterial wechselwirken, auch Kleinwinkelstreuung erfahren, wurde die Winkelverteilung des Strahls hinter den Mikroschlitz betrachtet. Abbildung 3.9 zeigt dazu die Energieverteilung der transmittierten Projektile bei einer Schlitzapertur von nur $4 \mu\text{m}$ für fünf Winkelintervalle. Bei dieser Apertur beträgt das Verhältnis tail/peak $(2.26 \pm 0.06)\%$ über den gesamten abgedeckten Winkelbereich. Man erkennt ein stark asymmetrisches Verhalten, das durch die Versetzung der Schlitzhälften erklärbar ist (vgl. Abbildung 3.6). Die zweite Schlitzhälfte schattet die Projektile ab, die Kleinwinkelstreuung an der ersten Schlitzhälfte erfahren. Dadurch werden – neben Teilchen, die ohne Wechselwirkung den Schlitz passieren – Projektile detektiert, die hauptsächlich Kleinwinkelstreuung an der zweiten Schlitzhälfte erleiden. Außerdem kann beobachtet werden, daß für Winkel außerhalb der Strahlachse der

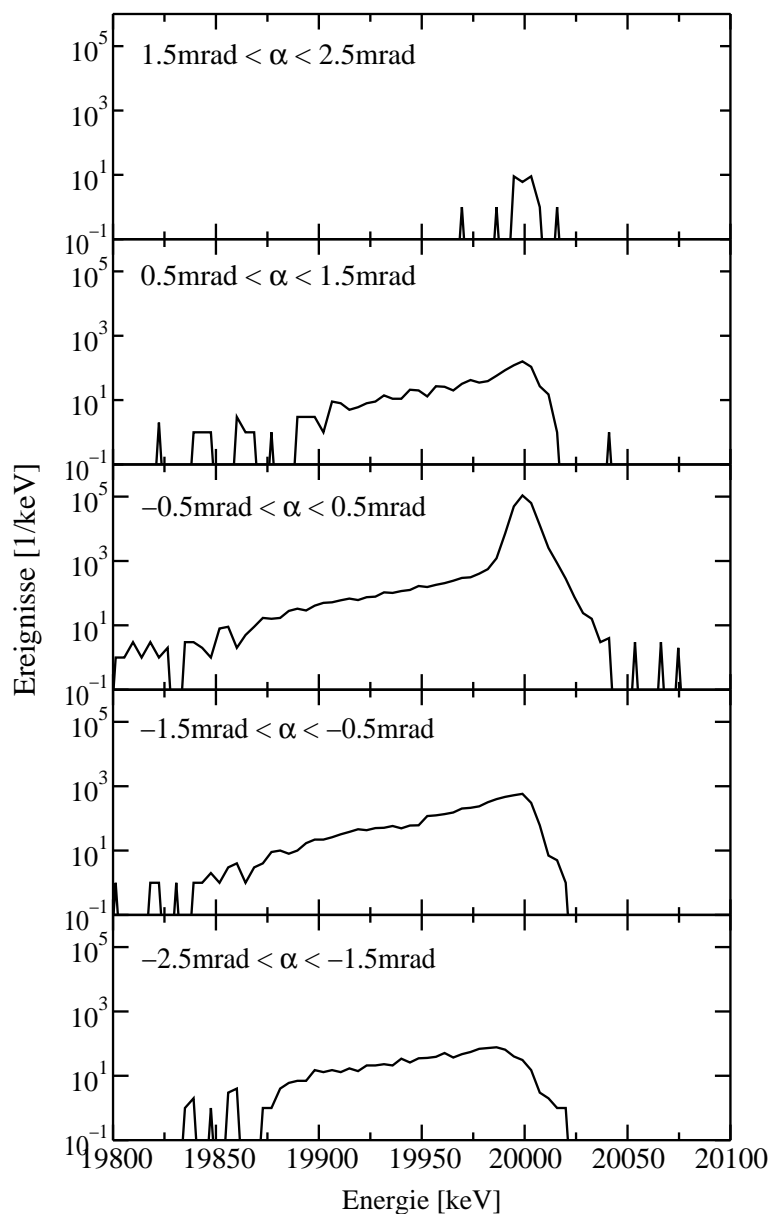


Abbildung 3.9: Energieverteilung des Strahls hinter den Mikroschlitzen bei einer Apertur von $4 \mu\text{m}$ für fünf verschiedene Winkelintervalle.

niederenergetische Anteil größer ist und das Maximum bei 20 MeV weniger stark ausgeprägt ist als für Winkel innerhalb ± 0.5 mrad. In Abbildung 3.10 ist das Verhältnis tail/peak in Abhängigkeit der Schlitzapertur für fünf Winkelintervalle dargestellt. Für fast alle Winkel steigt mit Verkleinerung der Schlitzapertur das Verhältnis tail/peak. Nur für Projektile innerhalb ± 0.5 mrad bleibt das Verhältnis annähernd konstant. Das tail/peak Verhältnis zeigt, daß Projektile, die Energieverlust erlitten haben, gleichzeitig von der Strahlachse weg gestreut werden. Im allgemeinen reduzieren diese Teilchen

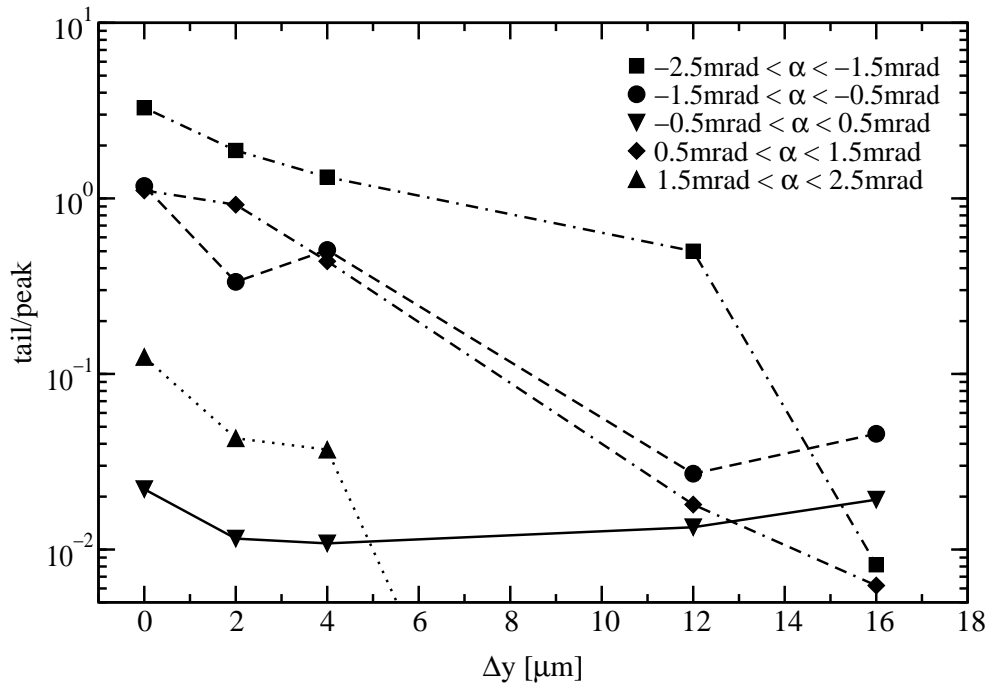


Abbildung 3.10: Verhältnis des integralen Spektrumsinhalts von niederenergetischem Ausläufer zum Maximum der Energieverteilung (*tail/peak*) in Abhängigkeit der Schlitzapertur Δy für verschiedene Winkelintervalle.

die Strahlqualität erheblich. Da jedoch die Divergenzschlitze die Winkelakzeptanz des Rasterionenmikroskops auf ± 0.1 mrad bzw. ± 0.05 mrad beschneiden, werden diese Projektile größtenteils aus der weiteren Strahlführung ausgeblendet. So liegt beispielsweise bei einer Schlitzapertur von $10 \mu\text{m}$ das Verhältnis *tail/peak* innerhalb ± 0.5 mrad deutlich unter 1%.

Bei den durchgeführten Tests der Mikroschlitzze zeigte sich, daß durch Kernreaktionen mit 20 MeV Protonen (z.B. ${}^{73}_{32}\text{Ge}(p,n){}^{73}_{33}\text{As}$, $\sigma = 390$ mbarn [44]) hauptsächlich langlebige Arsenisotope in den Germaniumwafern der Schlitzbacken entstehen (z.B. $T_{1/2}({}^{73}_{33}\text{As}) = 80$ d). Die beim Zerfall der langlebigen Isotope entstehende Gammastrahlung schränkt den Umgang und die Wartung der Schlitzze stark ein. Aus diesem Grunde wurde entschieden, die Germaniumwafer durch Siliziumwafer zu ersetzen, obwohl die Verwendung von Germanium als Schlitzmaterial eine höhere Effektivität für die Streuung der Protonen aus der Strahlachse besitzt und die transparente Zone kleiner ist. Durch Kernreaktionen mit 20 MeV Protonen entstehen entweder stabile Aluminiumkerne, ${}^{28}_{14}\text{Si}(p,2p){}^{27}_{13}\text{Al}$, $\sigma \approx 50$ mbarn [45], oder kurzlebige Isotope (z.B. ${}^{28}_{14}\text{Si}(p,pn){}^{27}_{14}\text{Si}$, $\sigma \approx 45$ mbarn [45], $T_{1/2}({}^{27}_{14}\text{Si}) = 4.2$ s). Dadurch klingt die Aktivierung der Schlitzze nach der Bestrahlung innerhalb weniger Minuten ab.

Die vorgestellten Mikroschlitzze werden an verschiedenen Stellen des Strahlverlaufs

eingesetzt. Sie definieren das Objekt der ionenoptischen Abbildung des Rasterionenmikroskops SNAKE und dienen als Divergenzschlitze vor der ersten Abbildungsstufe. Außerdem werden sie als Streublenden im Zwischenfokus eingesetzt. Die Positionen der Schlitze im Strahlverlauf hinter dem 90° -Magneten sind in Abbildung 3.2 durch Pfeile markiert.

3.4 Experimentierplatz

Am Ende der fast 30 m langen ionenoptischen Abbildung am 0° -Strahlrohr befindet sich der eigentliche Experimentierplatz mit zweiter Abbildungsstufe, der Probenkammer und den darin eingebauten Detektoren (vgl. Abbildung 3.2).

Bei der Realisierung des Experimentierplatzes mußte beachtet werden, daß Vibrationen von Pumpen, Strahlrohren oder Vibrationen des Laborbodens die laterale Auflösung von SNAKE nicht beeinträchtigen. Daher befindet sich die supraleitende zweite Abbildungsstufe mit Kryostaten sowie die Probenkammer mit Einbauten auf einem schwingungsgedämpften Tisch (Integrated Dynamics Engineering). Der Tisch gestattet eine passive Dämpfung der Vibrationen des Laborbodens (Eigenfrequenz des Tisches 1.2 Hz horizontal, 1.8 Hz vertikal). Bisherige Messungen haben gezeigt, daß mit dieser Anordnung die laterale Auflösung von bis zu 700 nm nicht durch mechanische Vibrationen limitiert ist. Sollte sich zukünftig herausstellen, daß diese Dämpfung nicht ausreicht, kann eine Schwingungsdämpfung über Druckluftmembranen erfolgen. Um die Übertragung von Vibrationen der Strahlrohre auf den Experimentierplatz zu unterbinden, ist der Kryostat und die Probenkammer über Wellbälge mit dem Strahlrohrsystem verbunden. Abbildung 3.11 zeigt die Seitenansicht des Experimentierplatzes. Kryostat und Probenkammer sind von einer Plattform umgeben (nicht eingezeichnet), die eine bequeme Arbeitsposition am Experimentierplatz erlaubt.

3.4.1 Ablenkeinheiten

Um den Ionenstrahl über die im Fokus befindliche Probe zu scannen, wurden magnetische und elektrische Ablenkeinheiten installiert. Da der Arbeitsabstand (Abstand zwischen Linsenende und Fokus) nur 110 mm beträgt, wurden die Ablenkeinheiten vor die zweite Abbildungsstufe gestellt. Die magnetische Ablenkung erfolgt durch zwei 130 mm lange Dipolmagnete (Technisches Büro Fischer). Mit 20 MeV Protonen kann damit ein maximaler Bereich von $9 \text{ mm} \times 1.5 \text{ mm}$ abgescannt werden. Die unterschiedlichen Scanbereiche ergeben sich durch die verschiedenen Verkleinerungsfaktoren der zweiten Abbildungsstufe in x- und y-Richtung. Eine Änderung des Stromes durch die Ablenkspule von 1 mA bewirkt in x-Richtung eine Positionsänderung des 20 MeV Pro-

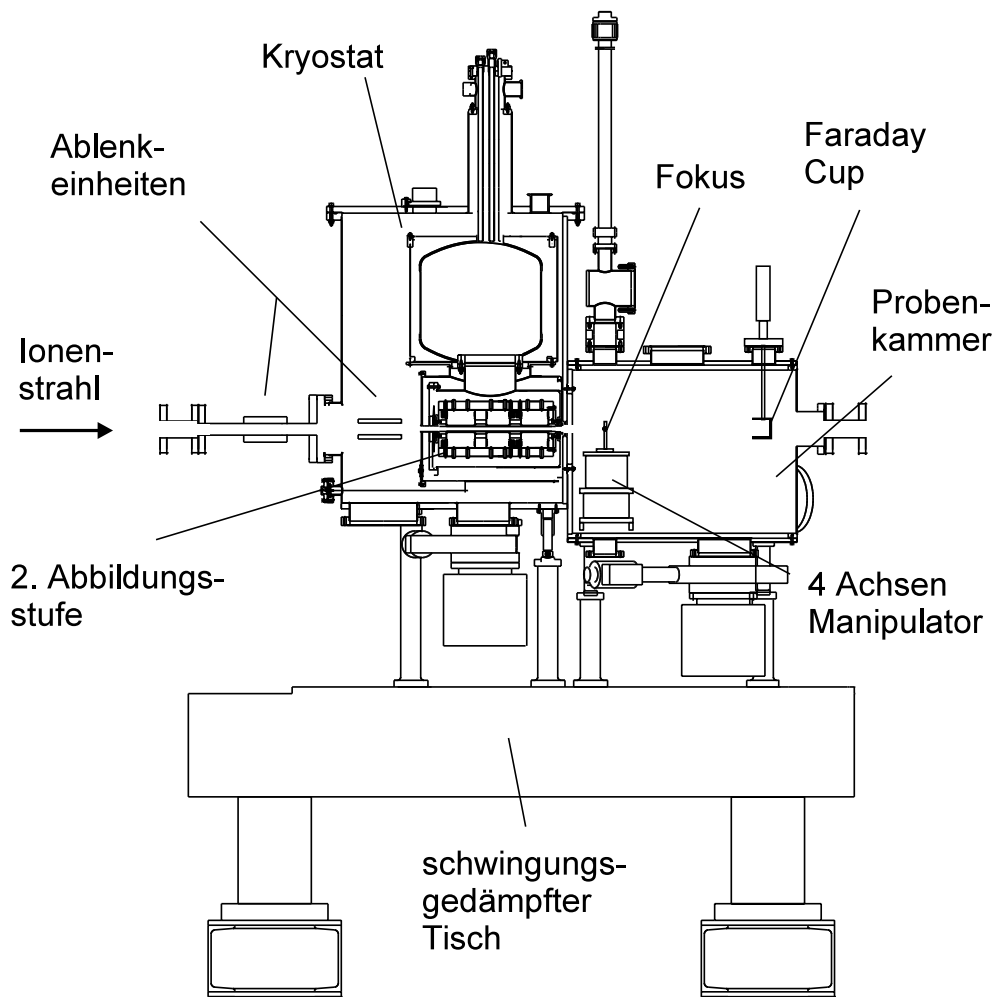


Abbildung 3.11: Seitenansicht des Experimentierplatzes.

tonenstrahls um etwa 700 nm und in y-Richtung um etwa 100 nm. Da elektronisches Rauschen Fluktuationen in der Ablenkung verursacht, ist die magnetische Ablenkung auf diese minimalen Schrittweiten limitiert. Um den Ionenstrahl in kleineren Schritten über die Probe zu führen, wird eine elektrische Ablenkeinheit verwendet. Hierbei erfolgt die Ablenkung jeweils durch zwei parallele, 65 mm lange Platten, die ebenfalls vor der supraleitenden Linse montiert wurden. Mit Hilfe zweier bipolarer Hochspannungsnetzgeräte (± 2.5 und ± 5 kV) können 20 MeV Protonen über einen Bereich von $700 \mu\text{m} \times 200 \mu\text{m}$ abgelenkt werden. Wird die Spannung um ein Volt verändert, bewirkt dies eine Schrittweite von 70 bzw. 10 nm. Die Netzgeräte der magnetischen und elektrischen Ablenkung erlauben das Abfahren einer Zeile oder Spalte innerhalb 2 ms. Die Ansteuerung der Netzgeräte erfolgt über eine digital-analog-Karte in einem PC. Innerhalb der 2 ms können bis zu 100 Bildpunkte angefahren werden. Über eine elektronische

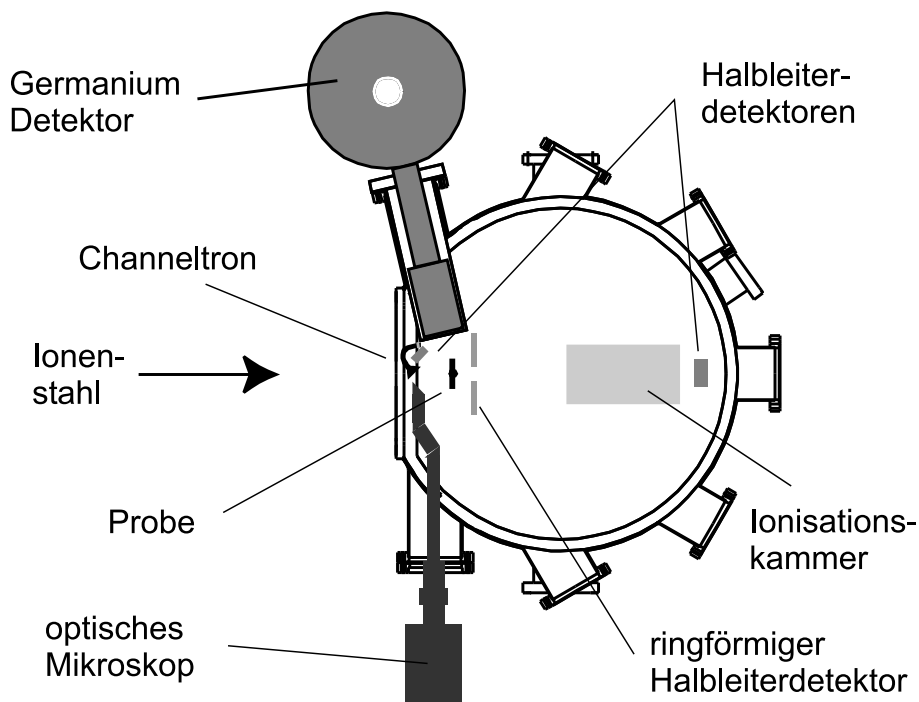


Abbildung 3.12: Aufsicht auf die Probenkammer mit eingebauten Detektoren.

Schnittstelle wird die aktuelle Strahlposition an die Datenaufnahme übergeben.

3.4.2 Probenkammer

Nach dem Kryostat befindet sich in Strahlrichtung die Probenkammer. Sie weist einen Durchmesser von 700 mm und eine Höhe von 600 mm auf und bietet so genügend Raum für den Einbau verschiedener Detektoren. Abbildung 3.12 zeigt die Aufsicht auf die Probenkammer. Mit einer magnetisch gelagerten Turbomolekularpumpe (Seiko Seiki STP, 400 ℓ/s N_2) und einer ölfreien Vorpumpe kann in der Probenkammer ein Vakuum von einigen 10^{-7} mbar erreicht werden. Durch Verwendung einer magnetisch gelagerten Pumpe sollen Vibrationen, die die laterale Auflösung von SNAKE limitieren können, minimiert werden. Die ölfreie Vorpumpe befindet sich auf dem Boden des Labors und hat nur über einen Wellschlauch Verbindung zu der an die Probenkammer geflanschten Turbopumpe. Sollte sich herausstellen, daß die von der Turbopumpe ausgehenden Vibrationen dennoch die Auflösung des Rasterionenmikroskops stören, kann eine Ionengetterpumpe (Varian Starcell Plus, 180 ℓ/s N_2) eingesetzt werden. Pumpen dieser Bauart weisen minimale elektromagnetische Felder außerhalb des Pumpenkörpers auf und werden auch in Elektronenmikroskopen eingesetzt.

Im Fokus von SNAKE steht ein ultrahochvakuumtauglicher, vierachsiger Manipu-

lator (Arun Microelectronics LTD). Der Verstellweg beträgt in horizontaler Richtung und Strahlrichtung jeweils ± 25 mm. In vertikaler Richtung ist ein Verstellweg von ± 50 mm möglich. Die minimale Schrittweite beträgt jeweils $1 \mu\text{m}$. Um die vertikale Achse ist eine Drehbewegung um $\pm\pi$ in 0.1 mrad Schritten möglich. Die Steuerung des Manipulators ist in das Steuernetzwerk des Beschleunigers eingebunden. Auf dem Manipulator befindet sich die Aufnahme für einen Rahmen, auf den die zu untersuchenden Proben montiert werden. Der Probentransfer erfolgt mittels einer Lineardurchführung über eine Schleuse. Somit ist ein Probenwechsel ohne Belüftung der Kammer möglich. Zur Strahlpräparation kann über eine Lineardurchführung ein Faraday-Cup in den Strahlengang gefahren werden.

Zur Kontrolle und Justage der Probe steht ein optisches long-distance Mikroskop mit einer Auflösung von $4 \mu\text{m}$ zur Verfügung (Thalheim Spezial Optik). Der im Vakuum befindliche Teil der Optik hat einen Arbeitsabstand von 60 mm und ermöglicht einen Blick in Strahlrichtung auf die Probe. Durch den großen Arbeitsabstand ist es möglich, die Probe auf dem Manipulator zu verfahren, ohne dabei Teile des Mikroskops zu zerstören. An die in Atmosphäre befindliche Optik ist eine CCD Kamera angeschlossen. Das maximale Gesichtsfeld beträgt $600 \mu\text{m} \times 600 \mu\text{m}$.

Im Anschluß an die Probenkammer befindet sich ein vertikaler 90° -Magnet, der als 0° -Spektrograph für transmittierte Ionen dient. Eine Darstellung des experimentellen Aufbaus sowie dessen Anwendung wird in Kapitel 4 gegeben.

3.4.3 Detektoren und Datenaufnahme

In der Probenkammer sind verschiedene Detektoren eingebaut (siehe Abbildung 3.12), die simultan betrieben werden können. Neben ihrer Verwendung in der Analytik werden einige Detektoren auch zur Strahlcharakterisierung eingesetzt. Ohne auf die einzelnen Anwendungen ausführlich einzugehen, soll hier nur ein Überblick über die einzelnen Detektoren erfolgen.

Zum Nachweis von sekundären Elektronen in der Oberflächenanalytik wird in Rückwärtsrichtung ein Channeltron eingesetzt.

Ein Germaniumdetektor unter einem Streuwinkel von 113° deckt einen Raumwinkel $\Delta\Omega$ von ca. 0.5 sr ab und dient zum Nachweis von in der Probe erzeugten Röntgen- und Gammaquanten. Über deren Energie werden Informationen über die Elementzusammensetzung der Probe gewonnen. Diese Techniken werden PIXE (**P**article **I**nduced **X**-ray **E**mission) bzw. PIGE (**P**article **I**nduced **G**amma **E**mission) genannt. Eine weiterführende Beschreibung der PIXE Methode wird in Kapitel 5 gegeben.

Direkt hinter der Probe befindet sich ein ringförmiger Halbleiterdetektor ($\Delta\Omega \approx 2.3$ sr). Durch die Unterteilung der Detektorfläche in Ringe und Sektoren ist ein koin-

zidenter Nachweis von Protonen bei der Proton-Proton-Streuung zur dreidimensionalen Wasserstoffanalytik möglich [22].

In Rückwärtsrichtung befindet sich neben dem Channeltron auch ein Halbleiterdetektor (Silizium), der einen Raumwinkel von etwa 32 msr abdeckt. Mit ihm werden rückgestreute Ionen analysiert. Aus deren Energie kann auf die Elemente und deren Verteilung in der Probe geschlossen werden (RBS, **R**utherford **B**ack **S**cattering) [7].

In Transmissionsrichtung wird ebenfalls ein Halbleiterdetektor eingesetzt, mit dem die Energie der Ionen bestimmt werden kann. Aus dem Energieverlust der transmittierten Projektile in der Probe kann eine Aussage über die Dicke bzw. Dichte gemacht werden. Diese Methode wird als STIM (**S**canning **T**ransmission **I**on **M**icroscopy) bezeichnet. Für hochauflösende Dickenmessungen wird bei SNAKE ein Magnetspektrograph eingesetzt (vgl. Kapitel 4).

Wegen der großen Reichweite von hochenergetischen Protonen in Materie (2.3 mm Silizium für 20 MeV Protonen [24]), müssen für diese Projektile die 1 mm dicken Halbleiterdetektoren in Rückwärts- und Transmissionsrichtung durch einen Stapel aus je drei Halbleiterzählern ersetzt werden. Dadurch wird sichergestellt, daß die Projektile im Detektormaterial gestoppt werden und damit die dort deponierte Energie der Projektilenergie entspricht.

Zur Verarbeitung der mit den Detektoren gewonnen Daten steht das am Beschleunigerlabor vorhandene Datenaufnahmesystem zur Verfügung [46]. Die Verwendung zweier PowerPCs (CES RIO2-8062) sowie eines CAMAC Bussystemes erlaubt die Verarbeitung einer Datenrate von 2-3 kHz. Die Erzeugung von Histogrammen erfolgt durch das Softwarepaket Marabou [47]. Mit einer zukünftigen Erweiterung des Systems durch einen VME Bus sollten dann Datenraten von ca. 10 kHz möglich sein.

3.4.3.1 Ionisationskammer für Transmissionsmessungen

Eine besondere Anforderung an einen Detektor ergibt sich bei Transmissionsmessungen mit einem Strahldurchmesser im Fokus von nur wenigen Mikrometern und Strahldivergenzen kleiner ± 1 mrad in beiden transversalen Richtungen. Steht ein Transmissionsdetektor in 10-20 cm Entfernung hinter dem Fokus, betragen die lateralen Dimensionen des auftreffenden Ionenstrahls dort nur einige 100 μm . Bei Halbleiterdetektoren führt der damit verbundene hohe Energieeintrag auf kleiner Fläche zu einer raschen Zerstörung des Detektors an der entsprechenden Stelle. Hersteller von Halbleiterdetektoren [48, 49] geben eine maximale Dosis von 10^9 - 10^{10} Alphateilchen (5 MeV) pro cm^2 an. Für einen Strahlfleck auf dem Detektor von $100 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$ reduziert sich diese Dosis auf 10^5 - 10^6 Teilchen. Da für Messungen mit geringem statistischen Fehler ca. 10^5 Teilchen detektiert werden müssen, ist solch ein Detektor bereits nach etwa 10

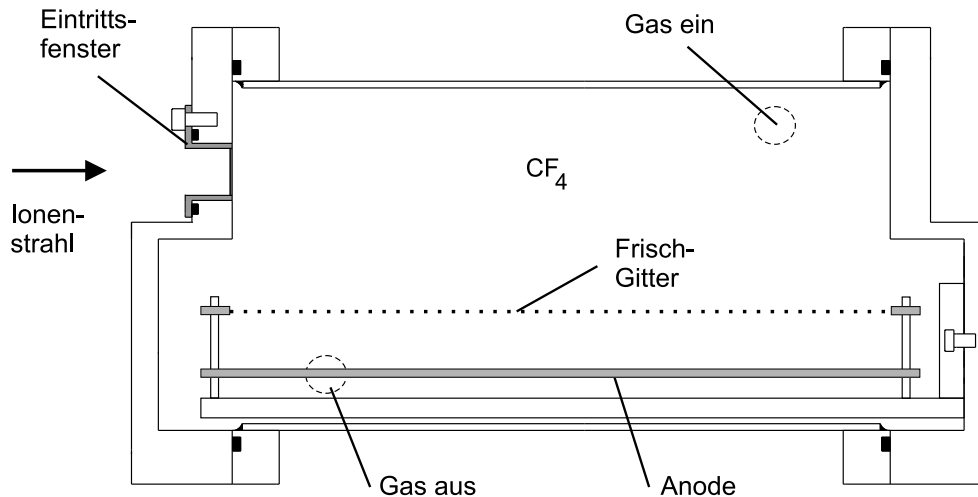


Abbildung 3.13: Schnitt durch die Ionisationskammer.

Messungen lokal zerstört. Eine Vergrößerung des Strahldurchmessers auf dem Detektor durch die Erweiterung des Abstands zwischen Fokus und Detektor ist durch die Größe der Probenkammer limitiert.

Da die hohe lokale Energiedichte bei allen Festkörperdetektoren zu Problemen führt, wurde eine Hochdruck-Ionisationskammer entwickelt, mit der auch die leichten Ionen trotz ihrer großen Reichweite nachgewiesen werden können. Abbildung 3.13 zeigt einen Schnitt durch den 200 mm langen Detektor. Durch die Verwendung eines Frisch-Gitters kann die Ortsabhängigkeit des Ionisationsprozesses eliminiert werden [50]. Das Detektorgehäuse stellt die Kathode dar. Als Detektorgas wird Tetrafluormethan (CF_4) verwendet. Ein Gasdurchfluß sorgt für einen ausreichenden Austausch der Gasmoleküle. Eine Regelung ermöglicht einen konstanten Gasdruck im Detektor. Über eine Linardurchführung kann die Ionisationskammer in und aus den Strahl gefahren werden. Das Eintrittsfenster weist einen Durchmesser von 15 mm auf. Da das Eintrittsfenster keine aktive Detektorfunktion erfüllt, beeinträchtigt die hohe Energiedichte in dem Fenstermaterial die Funktion der Ionisationskammer nicht. Allenfalls kann es zu einer Zerstörung eines dünnen Fensters kommen, wenn die eingebrachte Wärme nicht mehr über das Fenster selbst oder das Detektorgas abgeführt werden kann. Da aber die Zählraten bei Transmissionsmessungen klein sind (< 10 kHz), ist dies nicht zu erwarten.

Um beim Nachweis schwerer Ionen den Energieverlust und die Energieverluststreuung im Eintrittsfenster gering zu halten, wird eine $0.9 \mu\text{m}$ dicke, aluminisierte Mylarfolie verwendet. Bei einem Gasdruck von 350 mbar, einer Anodenspannung von 1.3 kV und einer Spannung von 330 V am Frischgitter kann mit 70 MeV Kohlenstoffionen eine relative Energieauflösung (FWHM) von 0.4% erreicht werden. Die Zählrate betrug

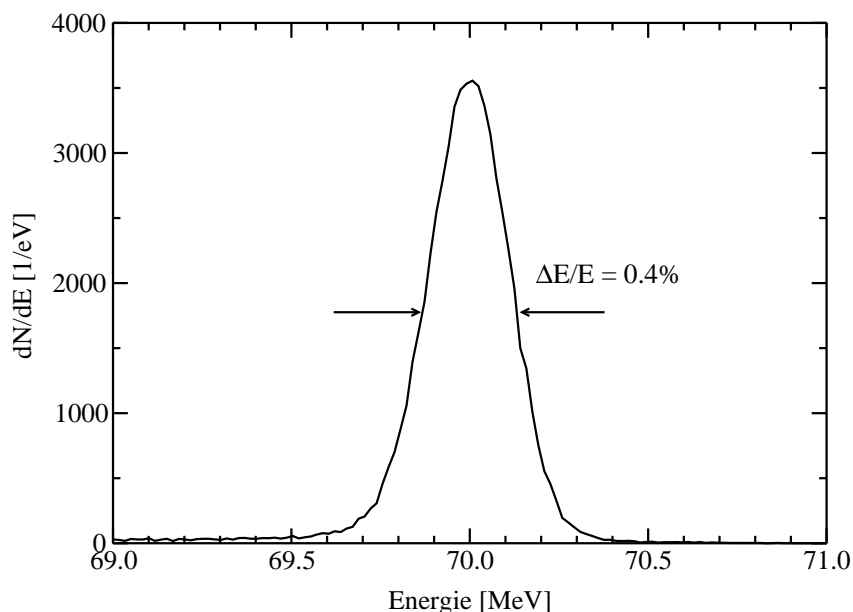


Abbildung 3.14: Ein mit der Ionisationskammer gemessenes Energiespektrum von 70 MeV Kohlenstoffionen. Die relative Energieauflösung beträgt 0.4%.

dabei etwa 700 Hz. Abbildung 3.14 zeigt das Energiespektrum der 70 MeV Kohlenstoffionen, das mit der Ionisationskammer aufgenommen wurde. Die erreichte Auflösung liegt etwa eine halbe Größenordnung unter der Auflösung, die mit Halbleiterdetektoren möglich ist.

Wegen ihrer großen Reichweite in Materie stellt die Detektion von hochenergetischen Protonen einen Sonderfall dar. Um beispielsweise 20 MeV Protonen in dem 200 mm langen Detektor zu stoppen, muß ein Gasdruck von 6 bar CF_4 eingestellt werden [24]. Eine Reduzierung des Gasdruckes durch Verlängerung des Detektors ist aus geometrischen Gründen nicht möglich. Einerseits erfordert der hohe Gasdruck ein entsprechend dickes Eintrittsfenster. Andererseits sollte das Fenster dünn sein, damit die Energieverluststreuung der Ionen in dem Fenstermaterial gering und damit die Energieauflösung des Detektors groß ist. Eine Verkleinerung des Fensterdurchmessers erlaubt zwar ein dünneres Eintrittsfenster, erschwert jedoch auch die Justage des Detektors zur Strahlachse. Unter Berücksichtigung von Sicherheitsaspekten liefert eine Optimierung des Problems eine Fensterdicke von knapp einem Millimeter (bei einem Fensterdurchmesser von 15 mm), um einen Druck von 3.5 bar zu widerstehen. Um den Energieverlust und die Energieverluststreuung der Protonen im Fenster zu minimieren, wurde ein leichtes Element (Aluminium) verwendet. Mit dieser Anordnung ist es möglich 20 MeV Protonen im Detektor zu stoppen. Die Protonen verlieren dabei im Eintrittsfenster etwa ein Drittel ihrer Energie.

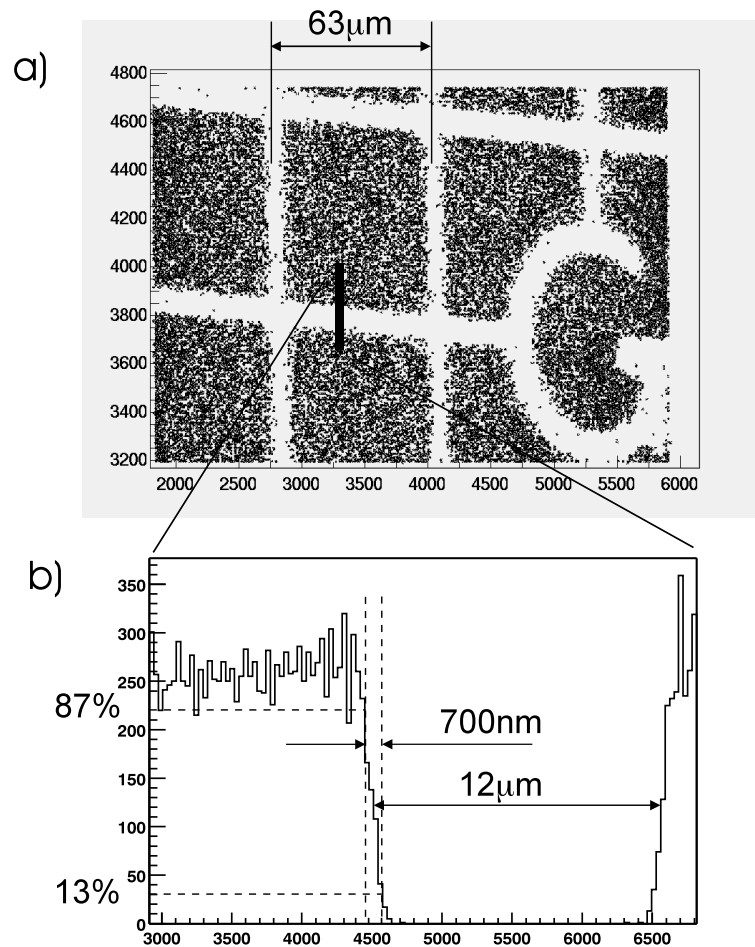


Abbildung 3.15: a) *Transmissionsaufnahme eines Goldgitters (Gitterabstand $63 \mu\text{m}$, Stegbreite $12 \mu\text{m}$) mit 90 MeV Schwefelionen. b) *Projektion eines Schnittes über einen Gittersteg. Die erzielte laterale Gesamtauflösung beträgt 700 nm .**

Testmessungen mit 16 MeV Protonen liefern bei einem Gasdruck von 2.3 bar CF_4 , einer Anodenspannung von 3 kV und einer Spannung am Frischgitter von 650 V eine relative Energieauflösung von 2.7% (FWHM). Hauptbeitrag zu dieser Energieauflösung liefert die Energieverluststreuung der Protonen in dem Eintrittsfenster ($\approx 170 \text{ keV}$). Die erreichte Energieauflösung liegt hier im Bereich der Auflösung, die auch mit einem Stapel aus drei Halbleiterdetektoren erreicht wurde.

3.5 Erzielte laterale Auflösungen

Mit dem in diesem Kapitel vorgestellten Aufbau wurde die laterale Auflösung des gesamten Systems in ersten Messungen getestet [27]. Um Aussagen über die Funktion der supraleitenden Linse zu erleichtern wurde nur einstufig abgebildet. Zur Bestim-

mung der Gesamtauflösung des Systems bei voller Akzeptanz der supraleitenden Linse (Ausleuchtung 14 mm) wurde im Fokus von SNAKE ein CsJ-Kristall montiert, dessen Fluoreszenz bei Ionenbeschuß mit dem optischen Mikroskop beobachtet werden konnte. Mit einem fokussierten Schwefelstrahl ($E = 90$ MeV) wurde ein minimaler Strahldurchmesser von ca. $10 \mu\text{m}$ erreicht.

Die Bestimmung der Gesamtauflösung bei reduzierter Akzeptanz der Linse (Ausleuchtung 0.3 mm) erfolgte mittels eines Goldgitters (Gitterabstand $63 \mu\text{m}$, Stegbreite $12 \mu\text{m}$) im Fokus von SNAKE, das mit dem fokussierten Schwefelstrahl abgescannt wurde. Die durch die Gitteröffnungen transmittierten Ionen werden in einem hinter dem Gitter befindlichen Halbleiterdetektor nachgewiesen. Ionen, die die Gitterstäbe treffen, werden im Gold vollständig gestoppt. Abbildung 3.15a) zeigt das negative Bild des Gitters, das man bei dieser Anordnung erhält. Zur Bestimmung der lateralen Auflösung wurde ein Schnitt dieses Bildes über einen Gittersteg auf eine Achse projiziert (Abbildung 3.15b). Die laterale Auflösung ergibt sich aus der Flankenbreite der in Abbildung 3.15b) dargestellten Verteilung. Sie entsteht in erster Näherung durch die Faltung der Breite des Ionenstrahls mit der Kantenform des Gitterstegs. Wird ein rechtwinkliger Gittersteg angenommen, entspricht die Halbwertsbreite eines gaußförmigen Strahlprofils einer Flankenbreite zwischen 13% und 87% des Maximalwerts der Verteilung. Bei den durchgeführten Messungen erhält man eine Flankenbreite und damit eine laterale Auflösung von 700 nm.

Die Auflösung des Systems ist – insbesondere bei voller Akzeptanz der supraleitenden Linse – limitiert durch mechanische Probleme der Aufnahme der Polschuhe für Feldgradienten größer als 0.35 T/cm [27]. Eine modifizierte Aufnahme soll dieses Problem zukünftig beheben und bessere Auflösungen bei voller Akzeptanz der Linse ermöglichen.

4. Hochauflösende Iontentransmissionsmikroskopie

Neben der Elementanalytik können mittels Ionenstrahlen auch Dicken- bzw. Dichtemessungen über den Energieverlust transmittierter Ionen durch eine Probe durchgeführt werden. In Kombination mit einem fokussierten Ionenstrahl wird diese Technik Rastertonentransmissionsmikroskopie oder kurz STIM (**S**canning **T**ransmission **I**on **M**icroscopy) genannt [5]. Im folgenden wird das Prinzip dieser Methode erläutert. Daraufhin wird auf geplante STIM-Messungen an SNAKE eingegangen. Schließlich werden der experimentelle Aufbau und erste Testmessungen vorgestellt.

4.1 Prinzip

Bei der Iontentransmissionsmikroskopie wird der Energieverlust transmittierter Ionen in der zu untersuchenden Probe ausgenutzt. Abbildung 4.1 zeigt dazu ein prinzipielles Energiespektrum eines Ionenstrahls nach Durchgang durch zwei verschieden dicke Bereiche einer Probe, d_0 und d_1 . Aufgrund der verschiedenen Dicken verlieren die Ionen unterschiedlich an Energie. Der Energieunterschied ΔE der transmittierten Ionen wird neben dem Dickenunterschied, $\Delta d = d_0 - d_1$, auch durch das Bremsvermögen S der Probe bestimmt, dessen Werte z.B. in [24, 51] tabelliert sind. Für geringe Dickenunterschiede, in denen sich die Energie der Projektile nur geringfügig ändert ($< 10\%$), ergibt sich die Energieänderung zu (vgl. Abbildung 4.1)

$$\Delta E = E(d_1) - E(d_0) = S \cdot \Delta d. \quad (4.1)$$

Das Bremsvermögen S hängt neben der Projektilsorte und Projektilenergie auch von der Probenart ab. Daher erleiden Ionen in Proben mit unterschiedlich dichten Bereichen bzw. inhomogen verteilten Elementen ebenfalls verschiedene Energieverluste.

Wird die Probe mit einem fokussierten Ionenstrahl abgescannt, erhält man für unterschiedlich dicke bzw. dichte Probenstellen verschiedene Energien transmittierter Ionen. Aus dem Vergleich dieser Projektilenergien kann dann ein zweidimensionales Bild der Dicken- bzw. Dichteunterschiede der untersuchten Probe rekonstruiert werden.

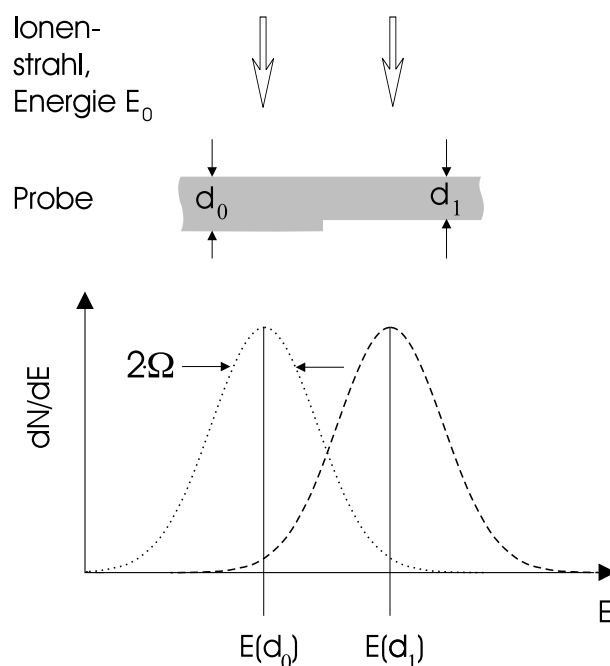


Abbildung 4.1: Prinzipielles Energiespektrum eines Ionenstrahls bei STIM-Experimenten.

4.2 Geplante Anwendungen

Mit der in Abschnitt 4.1 vorgestellten Methode können – oft in Verbindung mit weiteren Ionenstrahltechniken – zweidimensionale Bilder verschiedenster Proben aus einem weiten Bereich der Forschung aufgenommen werden [1]. So werden beispielsweise in der Biologie zum Studium der Funktion von einzelnen Zellen strukturelle und elementenspezifische Informationen mittels STIM und der teilcheninduzierten Röntgenfluoreszenzanalyse gewonnen [52].

Andererseits können mit dieser Technik auch grundsätzliche Fragen zur Wechselwirkung hochenergetischer Ionen mit Materie untersucht werden. Eine zentrale Rolle spielt neben dem Energieverlust der Projektile die Energieverluststreuung, die bei verschiedenen Ionenstrahltechniken eine limitierende Größe der Tiefenauflösung ist (vgl. z.B. [53]). Sie äußert sich in der Breite der Energieverteilung nach Durchgang eines Ionenstrahls durch Materie und hat einen statistischen Prozeß als Ursache. Durch die endliche Anzahl von Stößen zwischen Ionen und Probenatomen mit unterschiedlichen Energieüberträgen erleiden die Projektile verschiedene Energieverluste. Man mißt daher eine Energieverteilung der transmittierten Ionen hinter der Probe (siehe Abbildung 4.1). Die Standardabweichung einer solchen Verteilung um den mittleren Energieverlust wird als Energieverluststreuung Ω bezeichnet. Unter der Annahme statistisch unabhängiger Stöße erhält man nach Bohr [54]

$$\Omega_{\text{Bohr}}^2 = \frac{Z_P^2 \cdot Z_T \cdot e^4 \cdot n \cdot d}{4\pi\epsilon_0^2}. \quad (4.2)$$

Dabei bezeichnet $Z_{P,T}$ die Kernladung des Projektils bzw. des Targetatoms, n die atomare Dichte und d die Dicke der Probe. Ist die Energieverluststreuung Ω sehr viel größer als der maximale Energieübertrag des Projektils auf ein Probenelektron pro Stoß, erhält man eine gaußförmige Energieverteilung. Bei sehr dünnen Proben (einige $\mu\text{g}/\text{cm}^2$) ist diese Voraussetzung nicht mehr erfüllt und man mißt eine asymmetrische Energieverteilung, die im allgemeinen durch eine Vavilov-Verteilung beschrieben wird [55].

Zusätzliche Beiträge zur Energieverluststreuung erhält man, wenn die Bindung der Elektronen am Targetkern (Ω_{Atom}) [56], die räumliche Verteilung der Elektronen im Target bzw. Molekül ($\Omega_{\text{Mol.}}$) [57] sowie Umladungsprozesse des Projektils ($\Omega_{\text{Lad.}}$) [58] berücksichtigt werden. Die gesamte Energieverluststreuung $\Omega_{\text{tot.}}$ ergibt sich aus der quadratischen Addition aller Beiträge:

$$\Omega_{\text{tot.}}^2 = \Omega_{\text{Bohr}}^2 + \Omega_{\text{Atom}}^2 + \Omega_{\text{Mol.}}^2 + \Omega_{\text{Lad.}}^2. \quad (4.3)$$

Um die theoretischen Beschreibungen der Energieverluststreuung zu überprüfen, wurden in früheren Experimenten Messungen mit 60 MeV Ni Ionen und dünnen Kohlenstoffolien ($1\text{-}28 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) durchgeführt [59, 60]. Die dort gemessenen Energieverlustbreiten können von der Theorie nur ungenügend beschrieben werden. So liegen die Messungen einerseits deutlich unterhalb der theoretisch berechneten totalen Energieverluststreuung $\Omega_{\text{tot.}}$. Andererseits werden die experimentellen Daten durch die einfache Beschreibung der Energieverluststreuung nach Bohr (Gleichung (4.2)) für Foliendicken größer $8 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ unterschätzt. Lediglich für dünne Kohlenstoffolien beschreibt Gleichung (4.2) die experimentellen Daten ausreichend.

Da jedoch diese Experimente an amorphen Kohlenstoffolien mit einem makroskopischen Strahlfleck (Durchmesser 1-2 mm) durchgeführt wurden, muß davon ausgegangen werden, daß die gemessenen Energieverlustbreiten bei dünnen Folien nur obere Grenzen der rein physikalisch verursachten Breiten darstellen und nur bedingt mit der Theorie verglichen werden können. Die verwendeten Folien weisen statistisch verteilte Dichtefluktuationen im Nanometerbereich sowie durch den Herstellungsprozeß bedingte Dickenschwankungen mit lateralen Ausdehnungen von einigen Mikrometern auf. Geht man davon aus, daß die minimalen Dickenänderungen etwa ein bis zwei Atomlagen betragen, ergeben sich für dünne Kohlenstoffolien ($d \approx 1 \mu\text{g}/\text{cm}^2 \simeq 12$ Atomlagen) Dickenunterschiede von ca. 10%. Da dadurch die Ionen innerhalb des makroskopischen Strahlflecks verschieden dicke bzw. dichte Folienbereiche durchqueren, verlieren sie unterschiedlich viel Energie. Dies führt bei Messungen an dünnen Folien

zu einem zusätzlichen Beitrag der Energieverlustbreite, der bei theoretischen Beschreibungen nicht berücksichtigt wird.

Steht mit dem Rasterionenmikroskop SNAKE zukünftig ein Ionenstrahl mit einem Strahldurchmesser von etwa 100 nm zur Verfügung, können die durch den Herstellungsprozeß entstandenen Inhomogenitäten bei ausreichender Dickenauflösung auch lateral aufgelöst werden. Durch die Verwendung dünner kristalliner Folien können andererseits statistisch verteilte Dichtefluktuationen minimiert werden.

Um zukünftig Experimente zur Untersuchung der rein physikalisch bedingten Beiträge der Energieverluststreuung durchzuführen, ist neben einem fokussierten Ionenstrahl und kristallinen Proben auch ein experimenteller Aufbau notwendig, der die Auflösung von Dickeunterschieden im Bereich einer Monolage erlaubt. Im folgenden wird erläutert, wie dies bei SNAKE möglich ist.

4.3 Dickenaufösungen

Ein meßbarer Dickenunterschied Δd zweier verschieden dicker Stellen einer Probe wird bestimmt durch die Breite $2 \cdot \Omega$ der Verteilungen und dem energetischen Abstand $\Delta E = \Delta E(d_0) - \Delta E(d_1)$ beider Schwerpunkte der Energieverteilungen (vgl. Abbildung 4.1). Ω beinhaltet hier sowohl die Energieverluststreuung der Ionen in der Probe, als auch die energetische Breite des Ionenstrahls und die Auflösung des Detektors. Unter Annahme von gaußförmigen Verteilungen berechnet sich diese aus der quadratischen Summe jener Beiträge. Da der Fehler der Schwerpunktsbestimmung proportional zu $1/\sqrt{N}$ (N : Anzahl der gemessenen Ereignisse) ist, definiert man für die relative Dickenauflösung

$$\frac{\Delta d}{d} = \frac{2}{\sqrt{N}} \cdot \frac{\Omega}{\Delta E}. \quad (4.4)$$

Für eine gute Dickenauflösung muß somit die Breite Ω der Verteilungen klein und die Anzahl der gemessenen Ionen sowie das Bremsvermögen der Probe groß sein.

Abbildung 4.2 zeigt eine Abschätzung der absoluten Dickenauflösung Δd in Abhängigkeit der Kohlenstoffdicke d nach Gleichung (4.4) für 20 MeV Protonen, 70 MeV Kohlenstoff- und 90 MeV Schwefelionen ($N = 10^4$ Ereignisse). Für die Breite der Verteilung wurde angenommen, daß die Energieverluststreuung der Ionen in der Probe groß gegenüber der Detektorauflösung und der energetischen Breite des Strahls ist. Da die Bohr'sche Theorie der Energieverluststreuung die experimentellen Daten für eine erste Abschätzung ausreichend beschreibt, wird für die Breite Ω der Energieverteilung Gleichung (4.2) verwendet. Zur Bestimmung des Energieverlustes wurde das tabellierte Bremsvermögen aus [24] eingesetzt. Die oberen Grenzen der Berechnungen

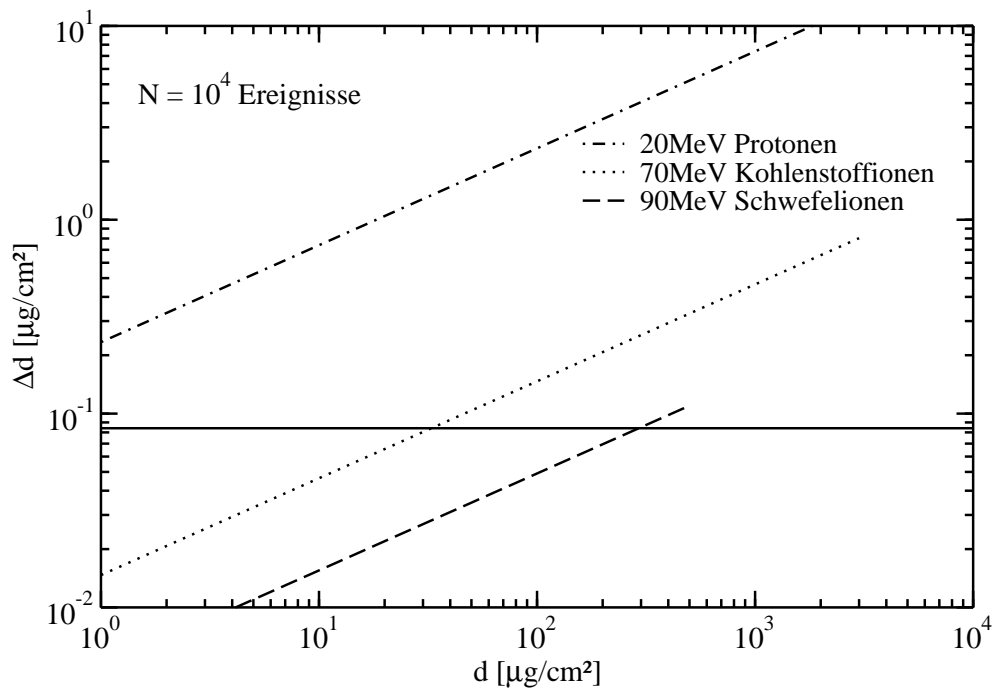


Abbildung 4.2: Absolute Dickenauffösung Δd für 20 MeV Protonen, 70 MeV Kohlenstoff- und 90 MeV Schwefelionen in Abhängigkeit der Kohlenstoffdicke d nach Gleichung (4.4) ($N = 10^4$ Ereignisse). Durchgezogener Graph: Dicke einer Monolage Kohlenstoff (Graphit).

wurden durch die Probendicke festgelegt, in der die Ionen 10% ihrer Energie verloren haben. Für 20 MeV Protonen beträgt diese Grenze $80 \text{ mg}/\text{cm}^2$ und liegt außerhalb des dargestellten Bereiches. Zusätzlich ist in Abbildung 4.2 die Dicke einer Monolage Kohlenstoff (Graphit) eingezeichnet (durchgezogener Graph). Wie man in Abbildung 4.2 erkennt, können – im Gegensatz zu 20 MeV Protonen – Dickenunterschiede im Bereich von einer Monolage in dünnen Proben mit schweren Ionen aufgelöst werden. Der physikalische Grund liegt in den großen Streuquerschnitten schwerer Ionen und in deren kleinen Energieüberträgen pro Stoß auf ein Probenelektron. Damit ist wegen der größeren Stoßstatistik für schwere Ionen die Energieverluststreuung relativ zum Energieverlust geringer. Die maximale Probendicke, bei der Dickenunterschiede Δd im Bereich einer Monolage aufgelöst werden können, beträgt bei Verwendung von 70 MeV Kohlenstoffionen etwa $30 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ($\approx 140 \text{ nm}$). Werden 90 MeV Schwefelionen verwendet, sollten für Kohlenstoffproben kleiner $300 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ($\approx 1.4 \mu\text{m}$) Dickenschwankungen in der Größenordnung einer Monolage nachgewiesen werden können.

Für Experimente mit solchen Dickenauffösungen ergeben sich hohe Anforderungen an das Meßsystem. Ausschlaggebend für die erforderliche Energieauflösung des Systems ist das Verhältnis des Energieverlusts der Ionen in einer Monolage zur primären

Energie des Ionenstrahls. Verwendet man zur Abschätzung für 90 MeV Schwefelionen die in [24] tabellierten Bremsvermögen, so muß die relative Energieauflösung des Meßsystems im Bereich von 10^{-5} liegen. Konventionelle Detektoren, wie etwa die in Abschnitt 3.4.3 beschriebenen Halbleiterdetektoren oder Ionisationskammern, besitzen eine relative Energieauflösung von 10^{-2} - 10^{-3} und können für diese Anwendungen nicht verwendet werden. Relative Energieauflösungen im Bereich von 10^{-5} sind für hohe Ionenenergien praktisch nur mit Magnetspektrographen erreichbar.

Für die Messung von Dickenschwankungen im Bereich von Monolagen reicht jedoch eine gute Energieauflösung nicht aus. Um den Abstand der Schwerpunkte zweier Energieverteilungen mit hoher Genauigkeit zu bestimmen, muß zusätzlich die Stabilität des Spektrographen mindestens über einen Zeitraum zwischen zwei Vergleichsmessungen an zwei verschiedenen Stellen einer Probe gewährleistet sein (einige Minuten bis Stunden). Die Stabilität des Magnetspektrographen muß daher besser sein als die relative Energieauflösung der Anlage.

Um Messung von Dickenschwankungen im Bereich von Monolagen zu ermöglichen, wurde für SNAKE ein Magnetspektrograph aufgebaut.

4.4 Experimenteller Aufbau

Der Aufbau des 0° -Spektrographen für hochauflösende Transmissionsmessungen war Gegenstand einer Diplomarbeit [28]. An dieser Stelle sollen daher nur die wichtigsten Kennzeichen und Ergebnisse wiedergegeben werden. Technische Einzelheiten sind [28] zu entnehmen.

4.4.1 Strahlführung

Wie in Abbildung 3.2 eingezeichnet, befindet sich der 0° -Spektrograph in Transmissionsrichtung im Anschluß an die Probenkammer. Er besteht im wesentlichen aus drei Elementen. Die wichtigste Komponente ist der vertikale 90° -Dipolmagnet VTM (= VerTikaler Magnet), auf dessen energiedispersiven Wirkung die Funktion des Spektrographen basiert. Durch die Lage des Magneten sind neben STIM-Messungen auch Bestrahlungen von biologischen Zellen in horizontal angeordneten Petrischalen möglich [61]. Zwischen Probenkammer und VTM wurden zusätzlich zwei Quadrupolmagnete, Q_1 und Q_2 , (Singletts) installiert. Durch sie kann die Fokalebene des Spektrographen in Strahlrichtung verschoben werden. In der Fokalebene befindet sich ein ortsempfindlicher Detektor. Aus dem Auftreffort des Strahls kann die Energie der transmittierten Ionen bestimmt werden. Zwischen VTM und Fokalebene befindet sich zusätzlich ein Dipolmagnet (Steerer), mit dem der Strahl in x-Richtung abgelenkt werden kann.

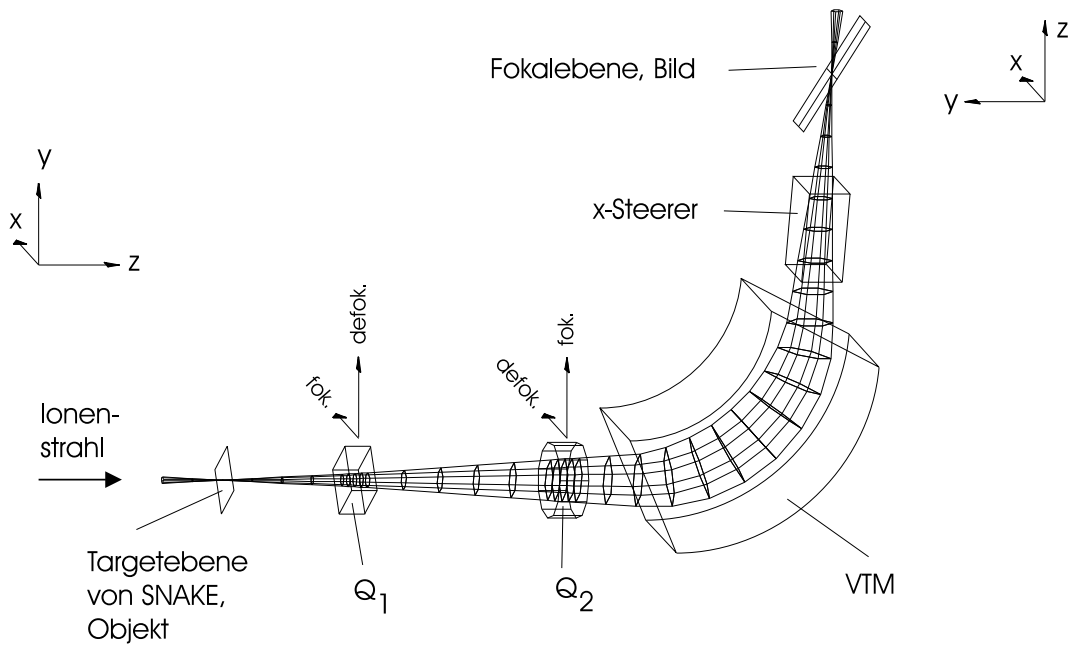


Abbildung 4.3: Übersicht über den 0° -Spektrographen. Neben den Quadrupolmagneten (Q_1 , Q_2) und dem vertikalen 90° -Dipolmagneten (VTM) ist auch die Strahleinhüllende dargestellt. Zur besseren Übersicht wurde die transversale Strahlkomponente um einen Faktor 50 hoch skaliert.

Abbildung 4.3 zeigt eine Übersicht des Spektrographen. Neben den einzelnen ionenoptischen Elementen sind auch die Koordinatenachsen eingezeichnet, auf die sich die weiteren Beschreibungen beziehen. Zusätzlich ist die Einhüllende des Ionenstrahls eingezeichnet. Sie wurde mit dem Programm TRANSPORT [37] berechnet. Zur besseren Übersicht sind die transversalen Strahlausdehnungen um den Faktor 50 hoch skaliert.

Die Fokalebene schließt mit der Strahlachse (z-Richtung) einen Winkel von 28.3° ein. Aus TRANSPORT-Rechnungen erhält man eine Energiedispersion entlang der Fokalebene des Spektrographen von

$$\frac{1}{E} \frac{dE}{ds} = -2.08 \cdot 10^{-4} \frac{1}{\text{mm}}. \quad (4.5)$$

Das Minuszeichen beschreibt die negative y-Auslenkung bei einer positiven Energieabweichung. Wird die gesamte Länge der Fokalebene genutzt (≈ 80 mm), beträgt die Energieakzeptanz rund 1.7%. Die Abbildungsmaßstäbe M_x und M_y betragen 1.07 bzw. 0.75.

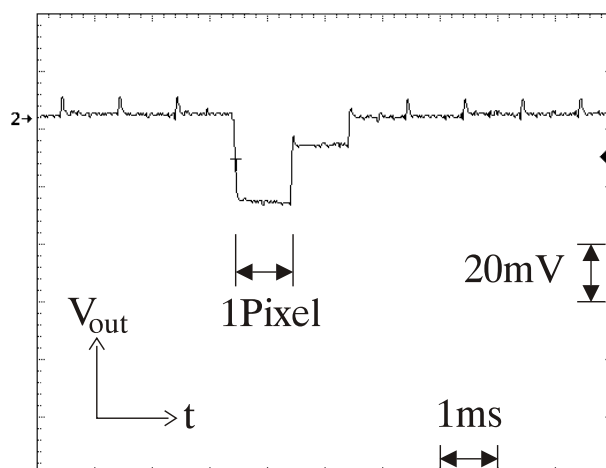


Abbildung 4.4: Ausgangssignal des Zeilensensors für 20 MeV Protonen (Integrationszeit 2 ms). Innerhalb einer Integrationszeit treffen vier Protonen zwei Pixel (Zählrate ca. 1 kHz).

4.4.2 Fokalebenendetektor

Als ortsempfindlicher Fokalebenendetektor wird ein optischer Zeilensensor (CCD, **C**harge **C**oupled **D**evice) eingesetzt. Der verwendete Sensor (Sony ILX 5111) besteht aus 2048 Pixel mit je einer Fläche von $14\ \mu\text{m} \times 200\ \mu\text{m}$. Die durch die Pixellänge von $14\ \mu\text{m}$ gegebene Ortsauflösung entspricht einer relativen Energieauflösung von $3 \cdot 10^{-6}$ und ist für die geplanten Messungen ausreichend. Aufgrund der aktiven Länge des Detektors von 28.6 mm erhält man eine Energieakzeptanz von nur 0.6%.

Die Montage des Fokalebenendetektors erfolgt über eine Aufnahme in einem Kreuzstück des Strahlrohres, das mit der Position der Fokalebene des Spektrographen zusammenfällt.

Durch die serielle Auslese des Sensors ist es möglich, mehrere Teilchen innerhalb eines Integrationszeitraumes (2–20 ms) zu detektieren. Abbildung 4.4 zeigt dazu das Oszilloskopbild des Signals von 20 MeV Protonen, das durch die integrierte Elektronik auf dem Sensor ausgegeben wird. Bei dieser Messung haben zwei Pixel innerhalb einer Integrationszeit von 2 ms angesprochen. 14.5 mV entsprechen der gemittelten Signalthöhe für ein Proton. Demnach wurde in der dargestellten Messung das Pixel mit der höheren Amplitude von drei Protonen und das andere Pixel von einem Proton getroffen.

Wegen des größeren Bremsvermögens schwerer Ionen und des damit verbundenen größeren Energieeintrags werden durch diese Projektile größere Signalthöhen im De-

tektor erzeugt. Messungen mit 90 MeV Schwefelionen zeigen, daß das Signal eines Schwefelions über einer Länge von 20 Pixel in Sättigung geht. Da alle analysierten Daten einen steilen Anstieg des Signals innerhalb des ersten ansprechenden Pixels zeigen, wurde eine auf Software basierende Korrektur der Signale eingesetzt. Hierbei wird nur die Position des ersten Pixels aufgezeichnet und alle folgenden Signale innerhalb eines Auslesezyklusses verworfen. Die Registrierung mehrerer Ionen innerhalb einer Integrationszeit ist daher bei schweren Ionen nicht mehr möglich.

4.5 Erste Messungen mit dem 0° -Spektrographen

In ersten Messungen mit 20 MeV Protonen und 90 MeV Schwefelionen sollte die Energieauflösung des 0° -Spektrographen bestimmt werden. Dazu wurde mit konventionellen Quadrupolmagneten und den Mikroschlitzen (vgl. Abschnitt 3.3) der Ionenstrahl im Fokus von SNAKE auf einen Strahldurchmesser von einigen Mikrometern fokussiert. Mit der Beschneidung des Strahls durch die Schlitze konnte ein Strahlstrom von einigen kHz eingestellt werden.

Bevor eine Energieeichung des 0° -Spektrographen durchgeführt werden kann, muß mittels der Quadrupolmagnete Q_1 und Q_2 der Ionenstrahl entlang der Fokalebene fokussiert werden. Dies geschieht indem jeweils verschiedene Orte in der Fokalebene mit dem Strahl durch Variation des VTM-Feldes angefahren werden. Dabei wird durch Einstellen der Ströme von Q_1 und Q_2 versucht, an jedem dieser Orte einen möglichst kleinen Strahlfleck zu erreichen.

4.5.1 Energieeichung

Für quantitative Messungen mit dem 0° -Spektrographen muß der Zusammenhang zwischen Ionenenergie und Auftreffort in der Fokalebene hergestellt, also eine Energieeichung durchgeführt werden. Hierzu wird bei konstanter Projektilenergie E_0 der Strahlort ρ für verschiedene Magnetfelder B ermittelt. Durch die verschiedenen Felder werden somit unterschiedliche Projektilenergien E simuliert, denen dann die gemessenen Strahlorte zugeordnet werden können. Im nichtrelativistischen Fall gilt nach [62]

$$\frac{E}{E_0} \stackrel{B=\text{const.}}{=} \left(\frac{\rho}{\rho_0} \right)^2 \stackrel{E=\text{const.}}{=} \left(\frac{B_0}{B} \right)^2 = \left(\frac{I_0}{I} \right)^2. \quad (4.6)$$

Zum Zeitpunkt des Experiments war noch keine Messung des VTM-Feldes möglich. Deshalb wurde für eine erste grobe Energieeichung der Spulenstrom I herangezogen. Da das erforderliche Magnetfeld für 20 MeV Protonen bzw. 90 MeV Schwefelionen nur einem Drittel bzw. der Hälfte des maximalen Magnetfelds des VTM entspricht, kann

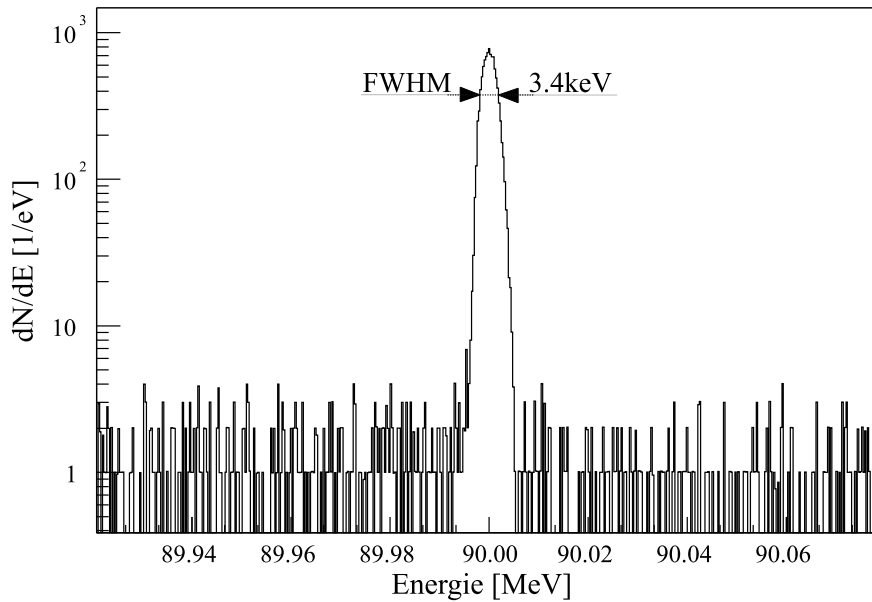


Abbildung 4.5: Energiespektrum des 90 MeV Schwefelstrahls. Die relative Energieauflösung (FWHM) beträgt $3.8 \cdot 10^{-5}$. Dies entspricht einer absoluten Energieauflösung von 3.4 keV.

in Gleichung (4.6) ein linearer Zusammenhang zwischen dem Spulenstrom I des VTM und dem Magnetfeld B angenommen werden. Um Hystereseeffekte bei verschiedenen Feldeinstellungen zu vermeiden, wurde der Spulenstrom immer nur in eine Richtung verändert. Eine zukünftige Feldmessung und -regelung soll die Kalibrierung der Magnetfelder und somit die Energieeichung erleichtern.

4.5.2 Energieauflösung

Nach erfolgter Energieeichung wurde die totale Energieauflösung des gesamten Systems mit 20 MeV Protonen und 90 MeV Schwefelionen (Ladungszustand 8+) bestimmt. Die Auflösung setzt sich aus der Energieschärfe des Ionenstrahls sowie der Energieauflösung des Spektrographen zusammen. Um Abbildungsfehler der Spektrographen zu minimieren, wurde die Strahldivergenz in beiden transversalen Richtungen auf ± 1 mrad eingeschränkt. Die Strahlfleckgröße in der Targetebene von SNAKE lag für 20 MeV Protonen bei $15 \mu\text{m}$ und für 90 MeV Schwefelionen unter diesem Wert. Die Energieauflösung wurde aus dem Energiespektrum des Strahls ohne Probe bestimmt.

Bei Verwendung von 20 MeV Protonen konnte eine relative Energieauflösung (FWHM) von $1.3 \cdot 10^{-4}$ erreicht werden. Wie sich in weiteren Messungen herausstellte, bildete die Energiebreite des Protonenstrahls den Hauptbeitrag zu dieser Energieauflösung.

Um die Energieschärfe des Ionenstrahls zu verbessern, wurde bei der Messung mit 90 MeV Schwefelionen sowohl vor als auch hinter dem 90° -Analysemagneten des Tandem Beschleunigers der Strahl durch Mikroschlitze beschnitten. Die dabei erreichte relative Energieauflösung betrug $3.8 \cdot 10^{-5}$ und ist in Abbildung 4.5 dargestellt. Mit der Verbesserung der Energieschärfe durch die Mikroschlitze am 90° -Analysemagneten sollte die relative Energieauflösung des 0° -Spektrographen auch für 20 MeV Protonen bei einigen 10^{-5} liegen.

Bei Verfügbarkeit eines fokussierten Ionenstrahls unter $1 \mu\text{m}$ ist es mittels dieser Energieauflösung möglich durch schwere Ionen Dickenfluktuationen im Bereich einer Monolage Kohlenstoff aufzulösen und so Energieverlustbreiten präzise zu vermessen. Eine zukünftige Magnetfeldregelung sollte auch für die dazu nötige Langzeitstabilität des Spektrographen sorgen.

5. Teilcheninduzierte Röntgenfluoreszenzanalyse

Die teilcheninduzierte Röntgenfluoreszenzanalyse ist eine verbreitete Methode zur zerstörungsfreien, quantitativen Analyse mittelschwerer und schwerer Elemente und wird erfolgreich bei Fragen aus verschiedensten Forschungsgebieten eingesetzt [63, 64]. Verbindet man die teilcheninduzierte Röntgenfluoreszenzanalyse, auch kurz PIXE (**P**article **I**nduced **X**-**R**ay **E**mission) genannt, mit dem Prinzip eines Rasterionenmikroskops, können zweidimensionale Bilder der Elementverteilung einer Probe aufgenommen werden (bildgebende Mikro-PIXE).

Zur Röntgenfluoreszenzanalyse kann grundsätzlich jede Art von ionisierender Strahlung (z.B. Elektronen, Protonen oder Röntgenstrahlung) verwendet werden. Aufgrund der geringen Reichweite von Elektronen ($4\ \mu\text{m}$ bei 20 keV Elektronen in Silizium, [65]) können nur oberflächennahe Bereiche analysiert werden. Wegen der großen Aufstreuung des Elektronenstrahls in der Probe sind außerdem nur laterale Auflösungen von einigen Mikrometern möglich [66]. Da der Bremsstrahlungsuntergrund bei Elektronenstrahlen einige Größenordnungen über dem von Protonenstrahlen liegt [67], sind Nachweisgrenzen von nur etwa 0.1% erreichbar [68]. Im Gegensatz dazu sind Protonen wegen ihrer großen Reichweite und ihrer geringeren lateralen Aufstreuung in der Probe besser geeignet (vgl. Kapitel 2). Durch den geringen kontinuierlichen Untergrund können mit ihnen Nachweisgrenzen eines Elements in einer Matrix im ppm-Bereich und darunter erreicht werden [69]. Eine Konkurrenz zu Protonen stellen zunehmend Röntgenstrahlen dar. Da es möglich ist Röntgenstrahlung durch Zonenplatten oder refraktive Röntgenlinsen zu fokussieren [70, 71], können mit ihnen auch zweidimensionale Bilder der Elementverteilung einer Probe mit einer lateralen Auflösung von einigen μm aufgenommen werden [72]. Die erreichbaren Nachweisgrenzen hierfür liegen im ppm-Bereich und darunter [73].

Im folgenden wird auf das Prinzip der teilcheninduzierten Röntgenfluoreszenzanalyse mittels Protonen bzw. Ionen eingegangen. Anschließend werden die experimentell bestimmten und zur quantitativen Analyse benötigten Röntgenproduktionsquerschnitte diskutiert. Abschließend wird untersucht, welche Vor- und Nachteile sich für die Röntgenfluoreszenzanalyse ergeben, wenn statt der üblichen 1-3 MeV Protonen höher-

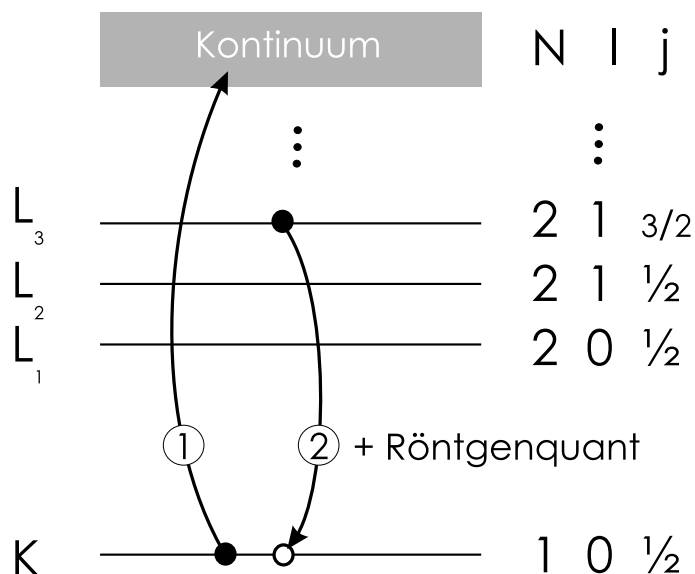


Abbildung 5.1: Prinzip der teilcheninduzierten Röntgenfluoreszenzanalyse. 1) Anregung eines Innerschalenelektrons in das Kontinuum durch ein einfallendes Projektil. 2) Auffüllen des Loches durch ein Elektron aus einer höheren Schale unter Emission eines Röntgenquants.

energetische Ionen verwendet werden.

5.1 Prinzip

Das Prinzip der teilcheninduzierten Röntgenfluoreszenzanalyse beruht auf der Ionisation der Probenatome durch einfallende Projektile. Dabei wird ein Elektron des Probenatoms aus einer inneren Schale, zum Beispiel der K- oder L-Schale, in das Kontinuum beziehungsweise in eine höhere, freie Schale angehoben. Das dadurch entstandene Loch in der entsprechenden Schale kann durch ein Elektron aus einer höheren Schale, unter Emission eines Röntgenquants, aufgefüllt werden. Abbildung 5.1 zeigt den Prozeß am Termschema. Die Energie der dabei emittierten Röntgenstrahlung wird bestimmt durch die Bindungsenergie der Elektronen in den einzelnen Schalen und ist damit charakteristisch für das Probenatom. Somit kann aus der Energie der Röntgenquanten auf die in der Probe befindlichen Elemente geschlossen werden. Im Röntgenspektrum einer PIXE-Messung markieren sich die verschiedenen Elemente durch diskrete Röntgenlinien. Diese Linien werden entsprechend ihrem Übergang bezeichnet. Beispielsweise wird eine Röntgenlinie, die beim Auffüllen eines Lochs in der K-Schale durch ein Elektron aus der L₃-Schale entsteht, als K_{α₁}-Linie bezeichnet. Eine Tabelle im Anhang A.1 gibt einen Überblick über die Zuordnung der Röntgenlinien zu den entsprechenden Übergängen. Tabellen mit den Energien der Röntgenlinien einzelner Elemente findet man zum Bei-

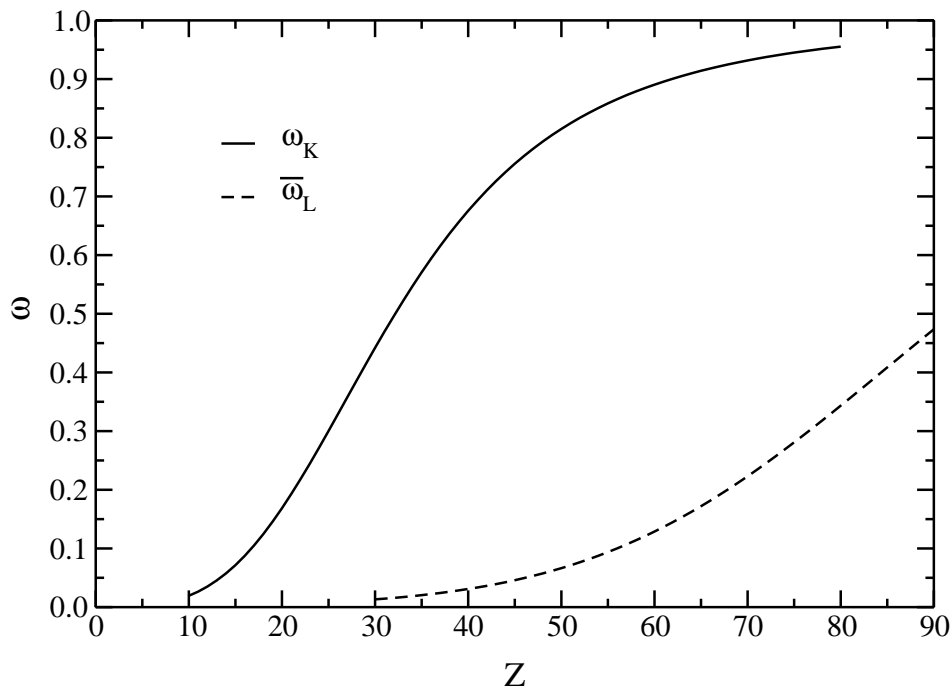


Abbildung 5.2: Fluoreszenzausbeuten ω in Abhängigkeit der Kernladungszahl Z nach [75, 76].

spiel in [74]. Da verschiedene Übergänge möglich sind, mißt man mehrere Linien eines Elements. Somit ist eine redundante qualitative und quantitative Analyse möglich.

Der Konkurrenzprozess zur Röntgenemission ist die Emission eines Auger-Elektrons. Dabei wird beim Auffüllen eines Lochs in einer inneren Schale die freiwerdende Energie auf ein weiteres Elektron übertragen. Bei der Ionisation der K-Schale überwiegt dieser Prozess bei leichten Elementen. Beispielsweise werden bei Elementen leichter Kalzium ($Z = 20$) die Löcher in der K-Schale zu über 80% durch den Auger-Prozess aufgefüllt. Bei schwereren Elementen überwiegt dieser Prozess auch bei Ionisationen der L- und M-Schale. Bei der Ionisation der K-Schale schwerer Elemente kommt es hauptsächlich zur Röntgenemission. Dadurch eignen sich besonders mittlere bis schwere Elemente zum Nachweis über die teilcheninduzierte Röntgenfluoreszenzanalyse. Als Maß für das Verhältnis der Zahl der emittierten Röntgenquanten zur Zahl der erzeugten Löcher dient die Fluoreszenzausbeute ω (Abbildung 5.2).

Neben der Identifikation der in der Probe befindlichen Elemente kann auch deren Konzentration bestimmt werden. Unter Vernachlässigung der Absorption der Röntgenstrahlung in der Probe sowie das Abbremsen des Projektils in der Probe erhält man für die Anzahl der Probenatome n_i der Sorte i pro Fläche

$$n_i = \frac{N_i}{\epsilon N_P \sigma_i} \frac{4\pi}{\Delta\Omega}. \quad (5.1)$$

N_i bezeichnet dabei die Anzahl der gemessenen Röntgenquanten, $\epsilon(E_x)$ die Effizienz des Detektors und N_P die Anzahl der eingefallenen Projektile. σ_i beschreibt den Produktionsquerschnitt für Röntgenstrahlung des Elements i und $\Delta\Omega$ gibt den Raumwinkel des Detektors an. Zu beachten ist, daß die Detektoreffizienz ϵ von der Röntgenenergie E_x abhängt. Da der Produktionsquerschnitt für Röntgenstrahlung σ_i von der Projektilenergie E_P abhängt, muß bei dicken Proben das Abbremsen der Ionen berücksichtigt werden. Ist E_{exit} die Projektilenergie beim Verlassen der Probe und S das Bremsvermögen der Probe, erhält für die Anzahl der Probenatome n_i der Sorte i pro Volumeneinheit

$$n_i = \frac{N_i}{\epsilon N_P} \left(\int_{E_P}^{E_{\text{exit}}} \frac{\sigma_i(E)}{S(E)} dE \right)^{-1} \frac{4\pi}{\Delta\Omega}. \quad (5.2)$$

Werden die Projektile in der Probe gestoppt, ist $E_{\text{exit}} = 0$ zu setzen.

Bei dicken Proben ist die Absorption der Röntgenquanten in der Probe zu berücksichtigen. Ist I_0 die Intensität der ursprünglich erzeugten Quanten am Ort x_0 und μ der Massenabsorptionskoeffizient der Probe, so ist $I(x)$ die Intensität der Quanten nach einer Wegstrecke x

$$I(x) = I_0 e^{-\mu x}. \quad (5.3)$$

Durch Integration über die totale Probendicke bzw. Projektilreichweite x_{tot} und Normierung erhält man als Absorptionsfaktor [2]

$$\eta = \frac{1 - e^{-\mu x_{\text{tot}}}}{\mu x_{\text{tot}}}. \quad (5.4)$$

Hierbei wurde vereinfachend angenommen, daß sich die Konzentration und der Produktionsquerschnitt nicht mit der Probendicke ändert. Wird nur die Absorption der Röntgenquanten in der Probe berücksichtigt, erweitert sich Beziehung (5.1) zu

$$n_i = \frac{N_i}{\epsilon N_P \sigma_i \eta} \frac{4\pi}{\Delta\Omega}. \quad (5.5)$$

Besteht die zu untersuchende Probe aus mehreren Elementen, muß bereits vor der Konzentrationsbestimmung deren Zusammensetzung bekannt sein, um den Massenabsorptionskoeffizienten μ und das Bremsvermögen S der Probe exakt anzugeben. Da diese Zusammensetzung jedoch zu diesem Zeitpunkt noch nicht ermittelt wurde, wird meist ein iteratives Verfahren zur Konzentrationsbestimmung eingesetzt, bei dem Startwerte

der einzelnen Konzentrationen angegeben werden müssen. Zur Konzentrationsbestimmung solcher Proben werden häufig Computer-Programme [77, 78] eingesetzt, die auch das Abbremsen von 1-3 MeV Protonen in der Probe berücksichtigen.

Bei der teilcheninduzierten Röntgenfluoreszenzanalyse kann im allgemeinen keine Aussage über die Tiefe der nachgewiesenen Elemente gemacht werden. Besteht die Probe aus einer Folge mehrerer Schichten verschiedener Elemente, gibt es jedoch eine Möglichkeit, Tiefeninformationen zu erhalten. Können von einem Element sowohl K- als auch L-Linien gemessen werden, kann durch die unterschiedlichen Absorptionsquerschnitte der verschiedenen Röntgenenergien auf die Tiefe der Elemente geschlossen werden. Da hierzu eingangs ebenfalls die Konzentrationen der Elemente benötigt werden, um die Absorption richtig wiederzugeben, muß auch hier iterativ vorgegangen werden.

Während viele Labors Protonen mit Energien von einigen MeV verwenden, z.B. [79], gibt es wenig Arbeitsgruppen, die mit höherenergetischen Protonen oder schweren Ionen arbeiten [80]. Im Vergleich zu den üblichen Protonenenergien (1–3 MeV) birgt die Verwendung von hochenergetischen Ionen am Rasterionenmikroskop SNAKE einige Vorteile, die in Abschnitt 5.3 genauer diskutiert werden. Im folgenden werden zunächst die experimentell bestimmten und zur quantitativen Analyse nötigen Röntgenproduktionsquerschnitte mit einem 16 MeV Protonen- und 70 MeV Kohlenstoffstrahl vorgestellt und mit der Theorie verglichen.

5.2 Röntgenproduktionsquerschnitte

Wie aus Beziehung (5.1) ersichtlich, ist zur quantitativen Analyse von Proben mittels teilcheninduzierten Röntgenfluoreszenzanalyse die Kenntnis der Wirkungsquerschnitte für die Röntgenproduktion nötig. Während es für Protonen und Heliumionen mit Energien von nur einigen MeV eine Fülle von experimentellen und theoretischen Daten gibt, z.B. [81, 82], sind kaum Wirkungsquerschnitte für Protonen mit einigen 10 MeV und für schwere Ionen erhältlich [83]. Aus diesem Grunde wurden für verschiedene Elemente K- und L-Produktionsquerschnitte mit 16 MeV Protonen und 70 MeV Kohlenstoffionen gemessen. Die Energie der Protonen wurde so gewählt, daß in der gleichen Meßzeit auch Experimente zum koinzidenten Wasserstoffnachweis [22] durchgeführt werden konnten. Zudem ist die ausgewählte Protonenenergie für hohe Produktionsquerschnitte ausreichend, da die Querschnitte für höhere Energien nur noch schwach ansteigen (vgl. Abbildung 5.8).

Die experimentell bestimmten Querschnitte werden mit theoretischen Vorhersagen und den wenigen in der Literatur erwähnten Experimenten verglichen.

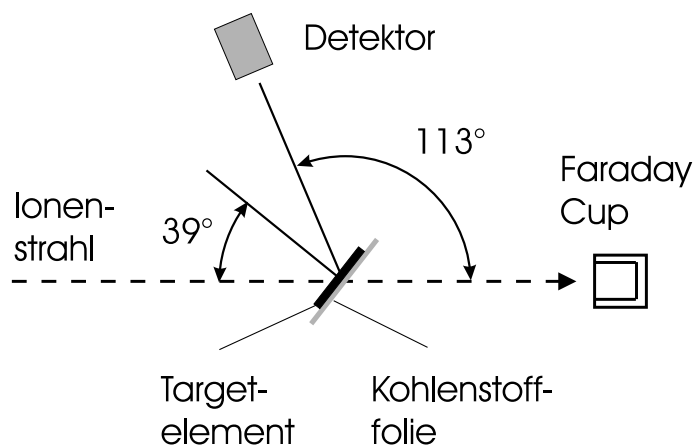


Abbildung 5.3: Meßgeometrie zur Bestimmung der Röntgenproduktionsquerschnitte für die teilcheninduzierte Röntgenfluoreszenzanalyse.

5.2.1 Experimenteller Aufbau

Die Messungen zur teilcheninduzierten Röntgenfluoreszenzanalyse werden in der in Abschnitt 3.4 vorgestellten Probenkammer des Rasterionenmikroskops SNAKE durchgeführt.

Für alle Messungen werden die verwendeten Ionenstrahlen mittels einer konventionellen Quadrupollinse auf einen Strahlfleck von ca. 1 mm am Probenort fokussiert. Die transmittierten Ionen werden in einem ca. 2 m hinter der Probe befindlichen Faraday-Cup mit angelegter Gegenspannung gestoppt. Über einen angeschlossenen Ladungsintegrator (Brookhaven Instruments Corporation 1000c) kann die gesamte Anzahl der einfallenden Projektile N_P innerhalb einer Messung bestimmt werden. Die Kohlenstoffprojektile treffen im Ladungszustand $q = 5+$ auf die Probe. Bei der Messung mit 70 MeV Kohlenstoffionen wird bei der Bestimmung von N_P berücksichtigt, daß der mittlere Ladungszustand \bar{q} der Kohlenstoffionen hinter den Proben 5.98 beträgt [84]. Die Strahlströme lagen bei den Messungen zur Bestimmung der Produktionsquerschnitte für beide Projektilearten bei ca. 80 ppA.

Der Winkel zwischen der Probennormalen und der Strahlrichtung beträgt 39° . Der zum Nachweis der Röntgenquanten eingesetzte Detektor steht unter einem Streuwinkel von 113° . Abbildung 5.3 verdeutlicht die Meßgeometrie.

5.2.1.1 Detektor

Der Nachweis der Röntgenquanten erfolgt über einen coaxialen, hochreinen und mit Stickstoff gekühlten Germaniumdetektor (Ortec GMX 25190), der einen Raumwinkel von ca. 0.5 sr abdeckt. Der Meßbereich dieses Detektors reicht von 5 keV bis zu

10 MeV und erlaubt so auch die Detektion von prompten Gammaquanten, die ebenfalls zur Analytik verwendet werden können [85]. Die absolute Energieauflösung beträgt 600 eV. Dies entspricht einer relativen Energieauflösung von 10% bei einer Röntgenenergie von 6 keV (\approx Fe K_α -Linie) bzw. 0.9% bei einer Röntgenenergie von 68 keV (\approx Au K_α -Linie). Der Detektor befindet sich an der Probenkammer in einem auf den Fokus gerichteten Rohr in Atmosphäre (siehe auch Abbildung 3.12). Als Fenster zwischen dem Atmosphärendruck außerhalb und dem Vakuum innerhalb der Kammer dient ein 1 mm starkes Berylliumblech. Durch diese Anordnung ist es möglich, den Detektor einfach von der Probenkammer zu entfernen, ohne die Probenkammer zu belüften. Dies ist besonders dann wichtig, wenn zur Fokussierung des Ionenstrahls mit einem hohen Strahlstrom – einigen 100 nA – auf eine im Fokus befindliche Blende geschossen wird und dadurch der Germaniumdetektor Strahlenschäden durch erzeugte Neutronen erleiden kann.

Auch während der Messung kann der Detektor von an der Probe rückgestreuten Protonen getroffen und dadurch ebenfalls einen Strahlenschaden erleiden. Im Falle von Protonen ist die Energie der an schweren Elementen rückgestreuten Projektile nahezu gleich der ursprünglichen Strahlenergie. Um die rückgestreuten Ionen aus dem Detektor zu halten, muß weiteres Material vor den Detektor montiert werden. Da dieses Material einerseits die Ionen stoppen muß, aber andererseits die Transmission der zu detektierenden niederenergetischen Röntgenquanten nur minimal absorbieren soll, wurde Beryllium mit einer Dicke von 1.2 mm gewählt. Zusammen mit dem am Detektor befindlichen Eintrittsfenster aus Beryllium (600 μm) und dem Kammerfenster erhält man eine totale Dicke von 2.8 mm. Dies reicht aus, um rückgestreute Protonen mit einer Energie von 20 MeV außerhalb des Detektors zu stoppen [24]. Durch diese Maßnahme ist die Detektion niederenergetischer Röntgenquanten eingeschränkt. Röntgenquanten an der unteren Grenze des Meßbereichs des Detektors (5 keV) werden durch das Beryllium nur noch zu 10% transmittiert [86]. Aus diesem Grund erübrigt sich in dieser Versuchsgeometrie der Einsatz eines Detektors für geringere Röntgenenergien.

Aus der unteren Detektionsgrenze von 5 keV folgt, daß über K-Linien Elemente schwerer als Chrom ($Z = 24$) bzw. über L-Linien Elemente schwerer als Lanthan ($Z = 57$) nachgewiesen werden können.

5.2.1.2 Energieeichung und Effizienzbestimmung

Die Energieeichung der Röntgenspektren erhält man aus den Energien E_x bekannter Röntgen- und Gammalinien aus einer ^{241}Am -Quelle (α -Emitter). Abbildung 5.4 zeigt das Röntgen- und Gammaspektrum der verwendeten Quelle. Die stärksten atomaren und nuklearen Linien des Tochterkerns Neptunium sind bezeichnet.

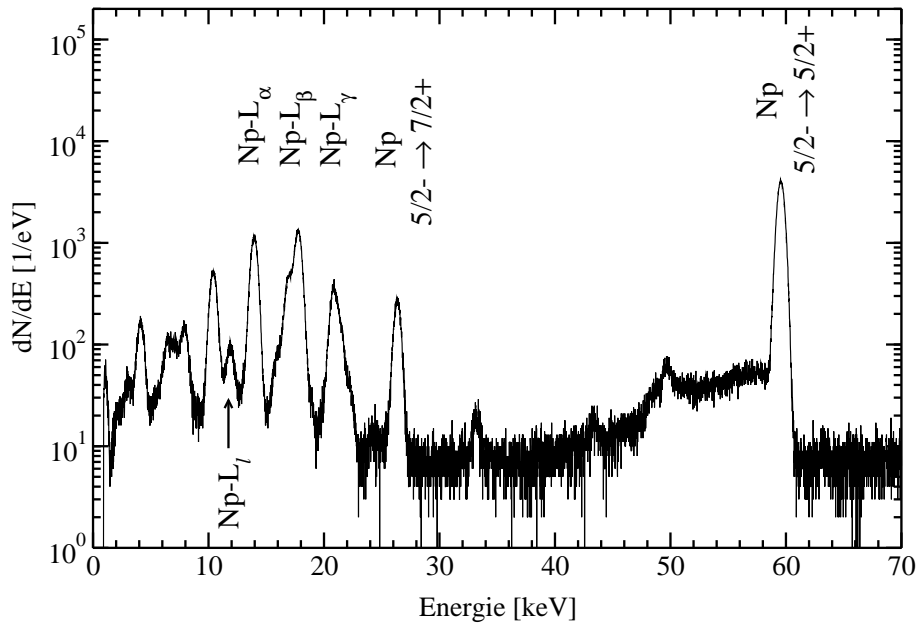


Abbildung 5.4: Röntgen- und Gammaspektrum der zur Energieeichung und Effizienzbestimmung verwendeten ^{241}Am -Quelle.

Aus der Intensität der emittierten Röntgen- und Gammaquanten der ^{241}Am -Quelle wurde auch das Produkt aus Raumwinkelanteil und Detektionseffizienz $\tilde{\epsilon}$ im Bereich von 12 bis 60 keV bestimmt. Dazu wurde die Funktion

$$\tilde{\epsilon}(E_x) = \frac{E_x}{a_1 + a_2 E_x + a_3 \sqrt{E_x}} \quad (5.6)$$

(a_1 - a_3 : Ausgleichsparameter) an die experimentell ermittelten Daten angepaßt und anschließend auf einen Energiebereich von 5 bis 90 keV extrapoliert. Diese experimentell ermittelte, energieabhängige Funktion beinhaltet sowohl die Detektoreffizienz als auch die Absorption durch das Berylliumblech vor dem Detektor und kann mit einer Genauigkeit besser 10% angegeben werden.

5.2.2 Experimentelle Querschnitte und Vergleich mit theoretischen Vorhersagen

Mit dem in Abschnitt 5.3 beschriebenen Versuchsaufbau wurden mit 16 MeV Protonen und 70 MeV Kohlenstoffionen K- und L-Produktionsquerschnitte σ_K, σ_L für verschiedene Elemente von Eisen ($Z = 26$) bis hin zu Gold ($Z = 79$) gemessen [87].

Die Proben (Targets) zur Bestimmung der Röntgenproduktionsquerschnitte wurden im Targetlabor des Lehrstuhls E 12 hergestellt. Sie bestehen aus dünnen Kohlenstoff-

folien, auf denen die jeweiligen Elemente aufgedampft wurden. Die Schichtdicke wurde mittels eines Schwingquarzes bestimmt und kann mit einer Genauigkeit besser 10% angegeben werden. Die so gewonnenen Folien wurden mit der bedampften Seite entgegen der Strahlrichtung auf den Probenhalter des Manipulators montiert (siehe Abbildung 5.3). Der Energieverlust der Projektile in den Folien ist kleiner 0.5% und die Absorption der erzeugten Röntgenstrahlung in den Folien ist kleiner 1.6%. Beide Effekte können deshalb vernachlässigt werden.

Die Wirkungsquerschnitte wurden gemäß der Beziehung

$$\sigma_{K,L} = \frac{N_{K,L} A \cos(39^\circ)}{N_A \rho \Delta x N_P \tilde{\epsilon}(E)} \quad (5.7)$$

bestimmt. Hierin bezeichnen $N_{K,L}$ die Anzahl der Ereignisse einer K- bzw. L-Röntgenlinie, A die atomare Masse des Elements und N_A die Avogadro-Konstante. $\rho \Delta x$ steht für die Probendicke (in g/cm^2) und N_P für die Anzahl der eingefallenen Projektile. $\tilde{\epsilon}(E)$ beschreibt das Produkt aus Detektionseffizienz und Raumwinkelanteil. Der Faktor $\cos(39^\circ)$ berücksichtigt die Vergrößerung der Probendicke, da die Probennormale mit der Strahlachse einen Winkel von 39° einschließt.

Da der energetische Abstand einiger Linien, z.B. $\Delta E(\text{Au-L}_{\beta_1}, \text{Au-L}_{\beta_4}) = 200 \text{ eV}$ geringer ist als das Auflösungsvermögen des Detektors, können in den Röntgenspektren meist nur Gruppen dieser Linien (L_α , L_β , etc.) identifiziert werden. Zur besseren Übersicht und zum Vergleich mit der Theorie werden diese zu den totalen K- und L-Röntgenquerschnitten

$$\sigma_K = \sigma_{K_\alpha} + \sigma_{K_\beta} \quad (5.8)$$

und

$$\sigma_L = \sigma_{L_\alpha} + \sigma_{L_\beta} + \sigma_{L_\gamma} + \sigma_{L_i} \quad (5.9)$$

zusammengefaßt.

Nach [88] sollte die Emission von Röntgenquanten aus bestimmten Übergängen anisotrop erfolgen. Im folgenden soll untersucht werden, wie groß diese anisotrope Röntgenemission in den durchgeführten Messungen ist. Wird ein Loch in einer Elektronenschale mit Gesamtdrehimpuls $j > 1/2$ erzeugt, kommt es zu einer Ausrichtung (Alignment) des Atoms und damit zu einer anisotropen Winkelverteilung der entsprechenden Röntgenquanten [88]. In den durchgeführten Messungen betrifft dies L-Röntgenlinien, die aus Übergängen zwischen dem L_3 -Niveau und einem höheren Niveau stammen. Die Winkelverteilung der emittierten Strahlung

$$W(\theta) = \frac{W_\gamma}{4\pi} \left(1 + \alpha \cdot A_2 \cdot P_2(\cos(\theta)) \right) \quad (5.10)$$

ergibt sich aus der über den gesamten Raumwinkel 4π emittierten Strahlung W_γ , einem statistischen Faktor α , der von dem Gesamtdrehimpuls j der beteiligten Niveaus abhängt [89] und einem von der Projektilgeschwindigkeit und dem Targetelement abhängenden Alignment-Faktor A_2 [90]. $P_2(\cos(\theta))$ bezeichnet das Legendre-Polynom 2-ten Grades. θ ($= 113^\circ$) gibt den Winkel zwischen der Strahlachse und dem Detektor an.

Um eine obere Abschätzung der Anisotropie zu erreichen, soll jeweils der größtmögliche Wert für α und A_2 verwendet werden. Den maximalen statistischen Faktor erhält man für den Übergang L_3 - M_4 (L_{α_2} -Linie) mit $\alpha = -0.4$ [89]. Der maximale Alignment-Faktor ergibt sich, wenn als Targetelement Gold verwendet wird. Aus den in [90] aufgeführten Werten erhält man für 16 MeV Protonen $A_2 = 0.056$. Da es keine Daten für Kohlenstoff gibt, wird auf die tabellierten Werte für Protonen mit gleicher Geschwindigkeit zurückgegriffen. Man erhält hierfür $A_2 = 0.059$ [90]. Mit $P_2(\cos(113^\circ)) = -0.27$ ergibt sich aus Beziehung (5.10)

$$W(113^\circ) = \frac{W_\gamma}{4\pi} (1 + 6.0 \cdot 10^{-3}) \quad \text{für 16 MeV Protonen}$$

und

$$W(113^\circ) = \frac{W_\gamma}{4\pi} (1 + 6.3 \cdot 10^{-3}) \quad \text{für 70 MeV Kohlenstoff.}$$

Dies bedeutet, daß die Anisotropie der Röntgenemission in Detektorrichtung kleiner gleich 0.6% ist und somit in den durchgeführten Messungen vernachlässigbar ist.

5.2.2.1 Messungen mit 16 MeV Protonen

Abbildung 5.5 zeigt die gemessenen Wirkungsquerschnitte σ_K und σ_L für 16 MeV Protonen (gefüllte Symbole). Weiter sind experimentelle Querschnitte (offene Symbole) aus der Literatur [91, 92] eingezeichnet. Bei Elementen, für die in der Literatur kein Wert für 16 MeV Protonen vorhanden ist, wurde der Querschnitt für 15 bzw. 17 MeV Protonen verwendet. Da die Querschnitte in diesem Energiebereich nur schwach von der Projektilenergie abhängen (vgl. Abbildung 5.8), können diese Daten in erster Näherung mit den Querschnitten für 16 MeV Protonen verglichen werden. Zudem ist der Verlauf der Querschnitte σ_K und σ_L nach einer semi-empirischen Beschreibung [2] für 16 MeV und 3 MeV Protonen eingezeichnet (durchgezogener und gepunkteter Graph). Die Querschnitte für 3 MeV Protonen werden zur Diskussion in Abschnitt 5.3.1 benötigt. Zusätzlich sind in Abbildung 5.5 auch die Ergebnisse der ECPSSR-Theorie [93, 94] wiedergegeben (gestrichelter Graph). ECPSSR steht für **E**nergy **l**oss,

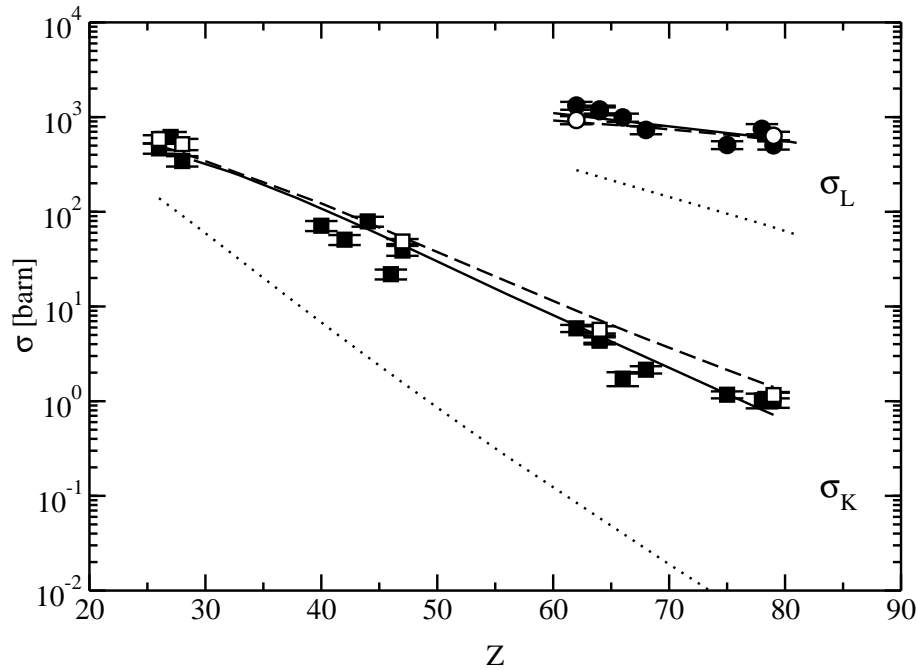


Abbildung 5.5: Röntgenproduktionsquerschnitte σ_K und σ_L für verschiedene Targetelemente. Als Projektile wurden 16 MeV Protonen verwendet. Gefüllte Symbole: gemessene Querschnitte, offene Symbole: experimentelle Daten aus [91, 92]. Durchgezogener Graph: semi-empirische Beschreibung nach [2], gestrichelter Graph: ECPSSR-Theorie [93, 94]. Gepunkteter Graph: σ_K und σ_L für 3 MeV Protonen [2].

Coulomb deflection, **Perturbed Stationary State**, **Relativistic effects**. Diese Theorie beschreibt die direkte Ionisation des Targetatoms durch ein einfallendes Projektil und basiert auf der Born'schen Näherung, in der das Projektil als kleine Störung des Targetatoms betrachtet wird. In der ECPSSR-Theorie wird zusätzlich die Energieänderung sowie die Ablenkung des Projektils im Coulombfeld des Targetatoms berücksichtigt. Die Ionisationsquerschnitte σ_K^I und $\sigma_{L_i}^I$ ($i = 1, 2, 3$) aus der ECPSSR-Theorie wurden mittels eines Programms von K. Sera berechnet [95]. Mit den entsprechenden Fluoreszenzausbeuten ω_i und Coster-Kronig-Ausbeuten f_{jk} aus [96] können dann die Röntgenproduktionsquerschnitte

$$\sigma_K = \omega_K \sigma_K^I \quad (5.11)$$

und

$$\sigma_L = \omega_1 \sigma_{L_1}^I + \omega_2 (\sigma_{L_2}^I + \sigma_{L_1}^I f_{12}) + \omega_3 (\sigma_{L_1}^I (f_{13} + f_{12} f_{23}) + \sigma_{L_2}^I f_{23} + \sigma_{L_3}^I). \quad (5.12)$$

berechnet werden [97]. Coster-Kronig-Ausbeuten berücksichtigen Übergänge der Elek-

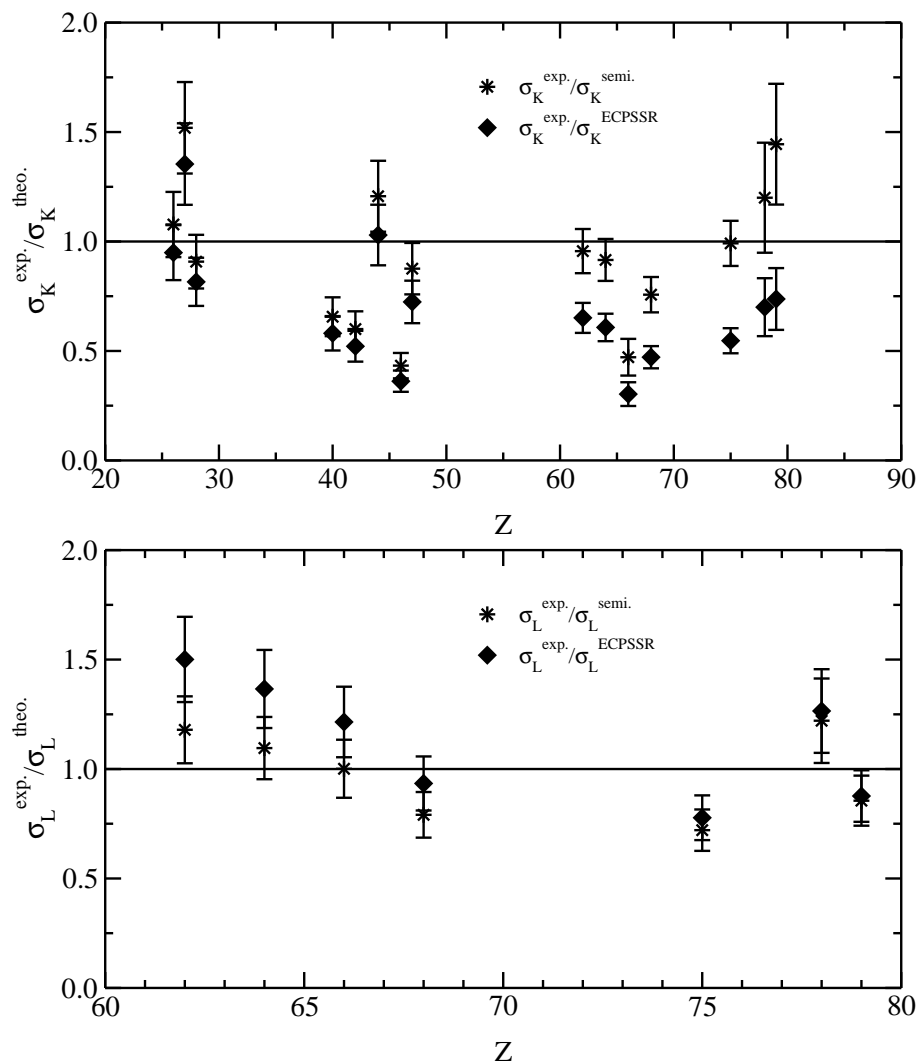


Abbildung 5.6: Verhältnis der experimentell bestimmten Querschnitte zu den berechneten Werten $\sigma^{\text{exp.}}/\sigma^{\text{theo.}}$ für die K- und L-Röntgenproduktion.

tronen innerhalb der L-Schale [96]. Alle in Abbildung 5.5 gezeigten Daten für 16 MeV Protonen sind im Anhang A.2.1 aufgelistet. Die Fehlerangabe bei der ECPSR-Theorie und der semi-empirischen Beschreibung (5-9%) resultieren aus den Fehlern der verwendeten experimentellen Fluoreszenz- und Coster-Kronig-Ausbeuten. Um Abbildung 5.5 übersichtlich zu halten, sind die Fehlerbalken der Berechnungen dort nicht eingezeichnet. Die Fehler der experimentellen Querschnitte liegen zwischen 8 und 18%.

Wie man in Abbildung 5.5 erkennt, folgen beide Berechnungen dem Verlauf der experimentell ermittelten Querschnitte. Für σ_K überschätzen jedoch beide Vorhersagen die gemessenen Wirkungsquerschnitte geringfügig. Sowohl für σ_K als auch für σ_L

liegt die semi-empirische Beschreibung näher an den experimentellen Daten. Innerhalb ihres Fehlers stimmen die experimentellen Daten aus [91, 92] mit den durchgeführten Messungen überein.

Abbildung 5.6 zeigt das Verhältnis der experimentellen Querschnitte zu den berechneten Werten $\sigma^{\text{exp.}}/\sigma^{\text{theor.}}$ für die K- und L-Röntgenproduktion. Sowohl für den semi-empirischen Fall als auch für die ECPSSR-Theorie liegen alle Verhältnisse $\sigma_K^{\text{exp.}}/\sigma_K^{\text{theor.}}$ im Bereich von 0.5 und 1.5. Vergleicht man die Verhältnisse von experimentellen Daten zu theoretischen Beschreibungen von Protonen mit nur einigen MeV [82], so sind auch dort Unterschiede von Experiment zur Theorie um bis zu 100% festzustellen. Einen Hauptbeitrag zu diesen Abweichungen liefern nach [82] die nur sehr ungenau bekannten Fluoreszenz- und Coster-Kronig-Ausbeuten, die zur Berechnung der Produktionsquerschnitte nötig sind. Deren Fehler scheinen größer zu sein als die angegebenen Fehler ($< 10\%$). Andererseits ist bekannt, daß die theoretischen Beschreibungen Ionisationsquerschnitte einiger Unterschalen nur sehr unzulänglich wiedergeben [98]. Solange keine besser bekannten Fluoreszenz- und Coster-Kronig-Ausbeuten sowie verbesserte theoretische Beschreibungen der Querschnitte bekannt sind, sollte in der teilcheninduzierten Röntgenfluoreszenzausbeute mit hochenergetischen Protonen auf experimentell bestimmte Röntgenproduktionsquerschnitte zurückgegriffen werden.

5.2.2.2 Messungen mit 70 MeV Kohlenstoffionen

Neben 16 MeV Protonen wurden auch Messungen der Röntgenproduktionsquerschnitte mit 70 MeV Kohlenstoffionen durchgeführt.

Abbildung 5.7 zeigt die gemessenen Produktionsquerschnitte für verschiedene Targetelemente (Symbole). Die Fehler der Querschnitte liegen zwischen 8 und 18%. Vergleichbare Experimente werden in der Literatur nicht erwähnt. Zusätzlich ist in Abbildung 5.7 auch der skalierte Verlauf der Querschnitte der semi-empirischen Beschreibung (durchgezogener Graph) und der ECPSSR-Theorie (gestrichelter Graph) für 70 MeV Kohlenstoffionen wiedergegeben. Diese Beschreibungen gelten streng nur für Protonen. Da jedoch die Produktionsquerschnitte von der Projektilgeschwindigkeit abhängen, wurden als erste Näherung die Querschnitte von 5.9 MeV Protonen verwendet, da sie die gleiche Geschwindigkeit wie die Kohlenstoffionen haben. Da weiter der Ionisationsquerschnitt von der Projektilladung abhängt [99], wurden die so berechneten Querschnitte für Protonen mit dem Quadrat des mittleren Ladungszustands der Kohlenstoffionen in Materie ($\bar{q} = 5.98$, [84]) multipliziert. Sowohl die experimentellen Ergebnisse als auch die berechneten Werte für 70 MeV Kohlenstoffionen sind in einer Tabelle im Anhang A.2.2 aufgelistet.

Wie man in Abbildung 5.7 sieht, geben die Berechnungen den Verlauf der Quer-

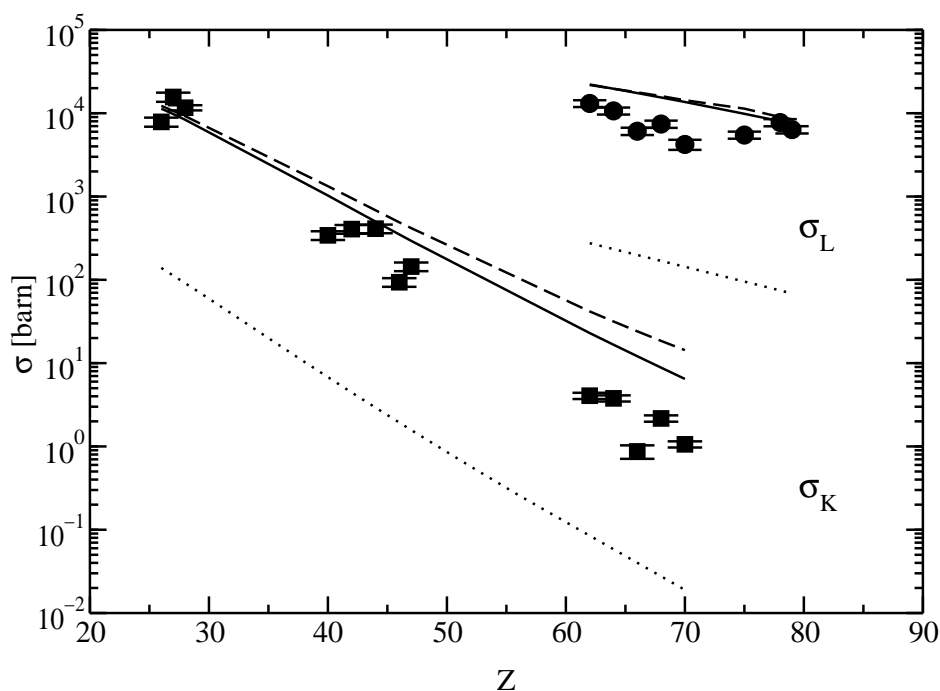


Abbildung 5.7: Röntgenproduktionsquerschnitte σ_K und σ_L für verschiedene Targetelemente. Als Projektile wurden 70 MeV Kohlenstoffionen verwendet. Symbole: experimentelle Querschnitte. Durchgezogener Graph: skalierte semi-empirische Beschreibung nach [2], gestrichelter Graph: skalierte ECPSSR-Theorie [93, 94]. Gepunkteter Graph: σ_K und σ_L für 3 MeV Protonen [2].

schnitte nur sehr bedingt wieder. Nur für leichte Elemente ($Z \approx 26$) stimmen für die K-Röntgenproduktion beide Beschreibungen mit den experimentellen Ergebnissen leidlich überein. Für schwerere Elemente überschätzen beide Berechnungen die experimentellen Daten um bis zu einem Faktor 30. Auch die berechneten Querschnitte für die L-Röntgenproduktion liegen systematisch über dem Experiment und sind maximal dreieinhalb mal größer als die gemessenen.

Die große Diskrepanz zwischen Experiment und den Berechnungen liegt möglicherweise daran, daß in der verwendeten Theorie das Projektil als kleine Störung im System des Targetatoms behandelt wird (erste Born'sche Näherung). Diese Annahme ist für hochenergetische Protonen gerechtfertigt. Schwere, hochenergetische Ionen, wie z.B. 70 MeV Kohlenstoffionen, können aber nicht als kleine Störung betrachtet werden. Daher liefert die ECPSSR-Theorie eine unzureichende Abschätzung.

Außerdem muß bei schweren Ionen ein weiterer Ionisationsmechanismus einbezogen werden, der in der ECPSSR-Theorie nicht berücksichtigt wird. Während mit hochenergetischen Protonen Targetelektronen nur ins Kontinuum angehoben werden können (direkte Ionisation), kann das Targetatom auch durch Elektroneneinfang ei-

nes schweren Projektils ionisiert werden (electron capture). Nach [99] erfolgt dieser zusätzliche Prozeß, wenn die Geschwindigkeit der Targetelektronen in der n -ten Schale $v_{T,n}$ größer oder gleich der Projektilgeschwindigkeit v_P ist und die Kernladung des Projektils kleiner oder gleich der Kernladung des Targetatoms ist. Verwendet man $v_{T,n} = 2.19 \cdot 10^6 \text{m/s} \cdot Z_{\text{eff},n}/n$ mit der effektiven Ladung $Z_{\text{eff},1} = Z_T - 0.3$ bzw. $Z_{\text{eff},2} = Z_T - 4.15$ [100], erhält man z.B. für Nickel $v_{T,1} = 5.6 \cdot 10^7 \text{m/s}$. Dies ist bereits größer als die Geschwindigkeit der 70 MeV Kohlenstoffionen ($v_P = 3.29 \cdot 10^7 \text{m/s}$). Da $v_{T,n}$ proportional zur Kernladung ist, muß die Ionisation durch Elektroneneinfang auch bei allen schweren Targetelementen betrachtet werden. In erster Näherung kann der Querschnitt des Elektroneneinfangs nach [101, 102] abgeschätzt werden. Multipliziert man diesen Wert mit der Fluoreszenzausbeute, erhält man den Röntgenproduktionsquerschnitt durch Elektroneneinfang $\sigma_{\text{K,L}}^{\text{EC}}$. Die K-Elektronen von Nickel beispielsweise werden hauptsächlich in die K-Schale des Kohlenstoffions eingefangen. Man erhält hierfür $\sigma_{\text{K}}^{\text{EC}} = 1.2$ barn. Dies ist etwa 11% des experimentell bestimmten totalen Querschnitts $\sigma_{\text{K}}^{\text{exp}}$. Der Einfang der Gold L-Elektronen erfolgt nach [102] ebenfalls hauptsächlich in die K-Schale des Kohlenstoffprojektils. Der Querschnitt hierfür ist etwa $0.26 \cdot \sigma_{\text{L}}^{\text{exp}}$. Da die Beiträge durch Elektroneneinfang im vorliegenden Fall nicht mehr vernachlässigbar klein sind, muß in zukünftigen theoretischen Beschreibungen der Röntgenproduktion durch schwere Ionen dieser Ionisationsprozeß berücksichtigt werden.

Aufgrund der großen Diskrepanz zwischen Theorie und Experiment sollte zur quantitativen Analyse mit schweren Ionen nur auf experimentell bestimmte Wirkungsquerschnitte zurückgegriffen werden.

5.3 Vor- und Nachteile hochenergetischer Ionen

Nachdem in Abschnitt 5.2.2 die Röntgenfluoreszenzquerschnitte mit 16 MeV Protonen und 70 MeV Kohlenstoffionen vorgestellt wurden, sollen nun die Vor- und Nachteile untersucht werden, die sich bei Verwendung hochenergetischer Ionen zur teilcheninduzierten Röntgenfluoreszenzanalyse ergeben. Die Diskussion basiert auf durchgeführte Messungen sowie ergänzenden Abschätzungen. Ein direkter experimenteller Vergleich mit 1–3 MeV Protonen ist schwierig. Zum einen können am Tandem Beschleuniger Protonen mit dieser geringen Energie nicht erzeugt werden. Zum anderen verwenden Anlagen an denen diese Energien zur Verfügung stehen unterschiedliche experimentelle Umgebungen (Detektoren, Raumwinkel, Streuwinkel, etc.), womit sich ein direkter Vergleich gemessener Spektren ausschließt.

5.3.1 Röntgenproduktionsquerschnitte

Ein wesentlicher Vorteil bei der Verwendung hochenergetischer Ionen sind die großen Produktionsquerschnitte σ_K und σ_L für Röntgenstrahlung. Als Vergleich zu den gemessenen Querschnitten mit 16 MeV Protonen und 70 MeV Kohlenstoffionen sind in Abbildung 5.5 und 5.7 jeweils die Produktionsquerschnitte für 3 MeV Protonen eingezeichnet. Wie man erkennt, liegen die mit hochenergetischen Ionen gemessenen Querschnitte deutlich über den Werten für 3 MeV Protonen. Bei 16 MeV Protonen liegt σ_L um bis zu einer Größenordnung über den Werten für 3 MeV Protonen. σ_K liegt für schwere Elemente sogar zwischen zwei bis drei Größenordnungen darüber. Vergleicht man die Röntgenproduktionsquerschnitte von 70 MeV Kohlenstoff mit denen von 3 MeV Protonen (Abbildung 5.7), so stellt man fest, daß auch diese um bis zu zwei Größenordnungen über den der niederenergetischen Protonen liegen.

Da durch die großen Produktionsquerschnitte geringere Strahlströme in der Analytik nötig sind, kommt es zu einer geringeren Schädigung der Probe durch den Strahl. Eine genauere Diskussion der Schädigung wird in Abschnitt 5.3.3 geführt.

Da die K-Produktionsquerschnitte schwerer Elemente für 3 MeV Protonen nur im Millibarn Bereich liegen, sind die resultierenden Röntgenausbeuten zu gering, um bei diesen Projektilenergien solche schweren Elemente über ihre K-Linien zu analysieren. Nur durch die Verwendung hochenergetischer Ionen erlauben die großen Querschnitte, schwere Elemente auch über K-Linien nachzuweisen. Die Einbeziehung der K-Linien schwerer Elemente ist bei der Analyse besonders dann von Vorteil, wenn die L-Linien dieser Elemente durch Linien anderer Elemente überlappt werden oder nicht aufgelöst werden können.

5.3.2 Energieabhängigkeit der Querschnitte

Auch hinsichtlich der Energieabhängigkeit der Querschnitte bieten hochenergetische Protonen bei der quantitativen Analyse einen weiteren Vorteil. Abbildung 5.8 zeigt dazu die Produktionsquerschnitte für Eisen und Gold in Abhängigkeit der Protonenenergie nach [2]. Durch die relativ schwache Änderung der Querschnitte bei hohen Protonenenergien und dem reduzierten Bremsvermögen dieser Projektile, spielt das Abbremsen hochenergetischer Protonen bei größeren Probendicken eine untergeordnete Rolle. So verlieren 16 MeV Protonen in 60 μm Silizium, ein in der Halbleiterphysik häufig verwendetes Element, nur 2.2% ihrer Energie [24], was sich in einer Änderung des Produktionsquerschnitts z.B. für Gold L-Linien von nur 3.8% auswirkt. Hingegen verlieren 3 MeV Protonen innerhalb 60 μm ca. 50% ihrer Energie. Dies hat eine Reduzierung des Produktionsquerschnitts der Gold L-Linie um 82% zur Folge.

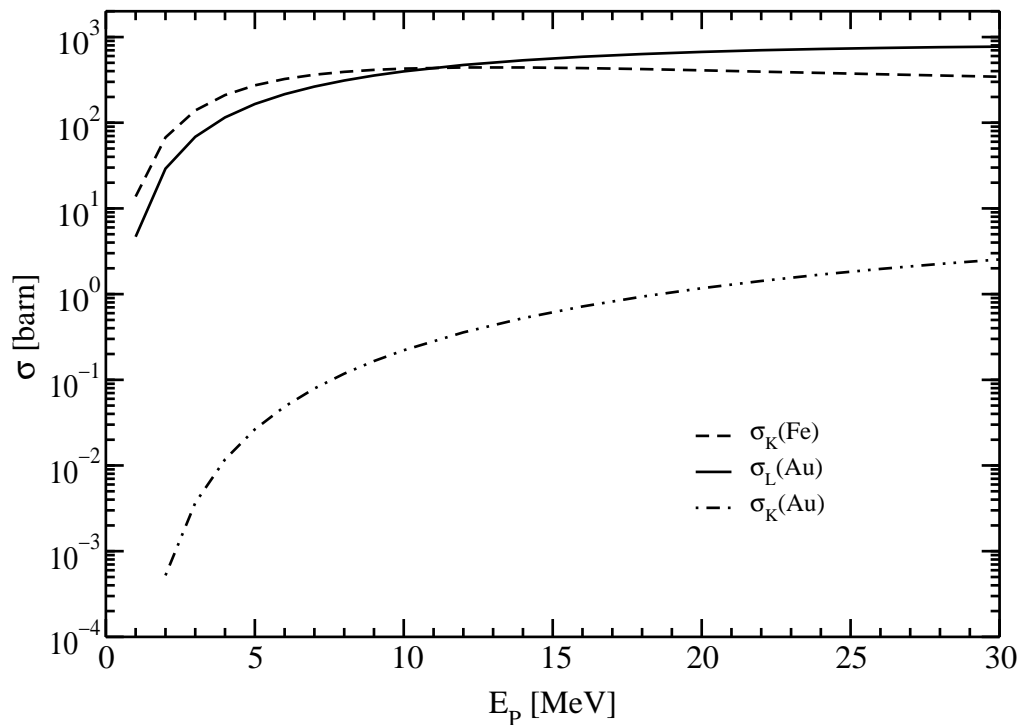


Abbildung 5.8: Röntgenproduktionsquerschnitte σ für Eisen und Gold in Abhängigkeit der Protonenenergie E_P nach [2].

Im Gegensatz zu 16 MeV Protonen kann die Energieabhängigkeit der Produktionsquerschnitte bei 70 MeV Kohlenstoffionen nicht vernachlässigt werden. Da die Querschnitte von der Projektilgeschwindigkeit abhängen, kann zur Diskussion der Energieabhängigkeit von 70 MeV Kohlenstoff auf den Verlauf der Querschnitte für Protonen mit der gleichen Geschwindigkeit (entsprechend 5.9 MeV) zurückgegriffen werden. Wie in Abbildung 5.8 erkennbar, ändern sich die Querschnitte bei 5.9 MeV bereits stark mit der Projektilenergie. Da 70 MeV Kohlenstoffionen in 60 μm Silizium 42% ihrer Energie verlieren [24], ändert sich der Produktionsquerschnitt der Gold L-Linie bereits um 63%. Somit muß bei einer quantitativen Analyse die Änderung der Produktionsquerschnitte nach Gleichung (5.2) vorrangig bei schwereren Ionen oder niederenergetischen Protonen berücksichtigt werden.

Zusätzlich muß beim Abbremsen schwerer Ionen auch berücksichtigt werden, daß sich der Ladungszustand der Projektile ändert [103]. Da der Ionisationsquerschnitt auch vom Ladungszustand abhängt [99], verändert sich beim Abbremsen der Projektile in der Probe auch die Röntgenproduktion. Dies muß bei der quantitativen Analyse ebenfalls beachtet werden.

5.3.3 Schädigung der Probe

Durch den Beschuß mit Ionen kommt es neben der Emission von Röntgenstrahlung auch zur Schädigung der Probe. Hierbei ist primär zwischen zwei Schädigungsformen zu unterscheiden. Unter der elektronischen Schädigung versteht man das Aufbrechen von Bindungen zwischen Probenatomen. Unter der nuklearen Schädigung wird die Versetzung einzelner Probenatome verstanden. Im folgenden soll die Schädigung durch 3 MeV Protonen mit der Schädigung durch 16 MeV verglichen werden.

Allgemein kann die Schädigung D einer Probe durch den Ionenstrahl als Verhältnis von dem für die Schädigung verantwortlichen Wirkungsquerschnitt $\sigma_{\text{Schäd.}}$ zu dem Produktionsquerschnitt für Röntgenstrahlung σ_x definiert werden [104]:

$$D = \frac{\sigma_{\text{Schäd.}}}{\sigma_x} \cdot \frac{4\pi}{\Delta\Omega \epsilon} \quad (5.13)$$

$\Delta\Omega$ bezeichnet darin den Raumwinkel, der durch den Detektor abgedeckt wird und ϵ die Detektoreffizienz. Weiter kann in erster Näherung angenommen werden, daß der Schädigungsquerschnitt proportional zum Bremsvermögen S ist. Dabei wird die elektronische Schädigung durch das elektronische Bremsvermögen S_e und die nukleare Schädigung durch das nukleare Bremsvermögen S_n beschrieben. Somit erhält man für das Verhältnis der Schädigung von 16 MeV zu 3 MeV Protonen

$$\frac{D_{e,n}(16 \text{ MeV p})}{D_{e,n}(3 \text{ MeV p})} = \frac{S_{e,n}(16 \text{ MeV p})}{S_{e,n}(3 \text{ MeV p})} \cdot \frac{\sigma_x(3 \text{ MeV p})}{\sigma_x(16 \text{ MeV p})}. \quad (5.14)$$

Für eine Abschätzung dieser Verhältnisse wird als typische Probe aus der Halbleiterphysik Silizium betrachtet, in der Gold über die L-Linie nachgewiesen werden soll. Aus den Bremsvermögen aus [24] und den Produktionsquerschnitten aus [2] bzw. gemessenen Werten erhält man $D_e(16 \text{ MeV p}) = 3.9\% \cdot D_e(3 \text{ MeV p})$ und $D_n(16 \text{ MeV p}) = 3.0\% \cdot D_n(3 \text{ MeV p})$. Dies bedeutet, daß die Schädigung der Probe bei Verwendung von hochenergetischen Protonen in diesem Fall etwa 25-fach geringer ist als bei 3 MeV Protonen. Der Grund für die reduzierte Schädigung liegt in dem geringen Bremsvermögen und den großen Röntgenproduktionsquerschnitten hochenergetischer Protonen. Wegen des größeren Bremsvermögens fällt die Reduzierung der Strahlschädigung bei Verwendung von 70 MeV Kohlenstoffionen geringer aus. Man erhält $D_e(70 \text{ MeV C}) = 23\% \cdot D_e(3 \text{ MeV p})$ und $D_n(70 \text{ MeV C}) = 22\% \cdot D_n(3 \text{ MeV p})$.

Unabhängig vom Schädigungsquerschnitt ist wegen den großen Röntgenproduktionsquerschnitten hochenergetischer Ionen eine geringe Strahldosis nötig, um die gleiche Nachweisstatistik wie z.B. mit 3 MeV Protonen zu erreichen. Dies ist insbesondere für Mikro-PIXE von Vorteil. Hier kann eine geringere Strahldosis auf eine kleine Fläche appliziert und somit eine geringere Schädigung der Probe erzielt werden als bei nieder-

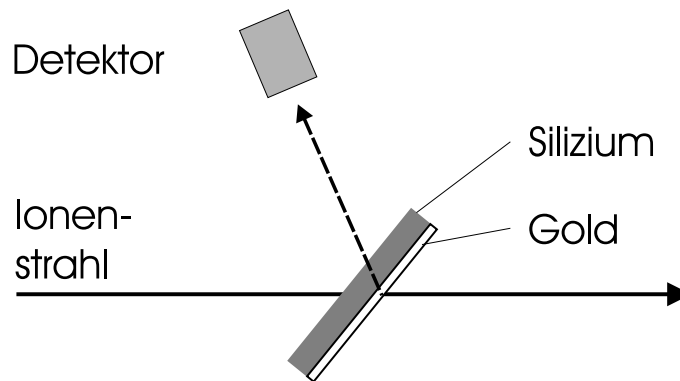


Abbildung 5.9: Anordnung zur Bestimmung der Analysiertiefe schwerer Elemente.

energetischen Protonen, die höhere Dosen erfordern und somit eine größere Schädigung verursachen.

5.3.4 Laterale Aufstreuung

Hinsichtlich Mikro-PIXE limitiert die Kleinwinkelstreuung des Projektilstrahls in der Probe die laterale Auflösung der Messung [25]. Wie bereits in Abschnitt 2.2 erläutert, skaliert die Kleinwinkelstreuung umgekehrt proportional zur Projektilenergie. Damit wird bei Verwendung hochenergetischer Protonen eine bessere laterale Auflösung auch in größeren Tiefen erreicht als bei niederenergetischeren Projektilen.

So beträgt zum Beispiel für einen 3 MeV Protonenstrahl bei einer Siliziumdicke von 25 μm die laterale Aufstreuung bereits 1 μm . Bei 16 MeV Protonen ist der Strahl erst bei einer Siliziumdicke von 74 μm um 1 μm lateral aufgestreut.

5.3.5 Analysiertiefe für schwere Elemente

Wie bereits in Abschnitt 5.3.1 erläutert, ist es mit hochenergetischen Protonen möglich, schwere Elemente auch über K-Röntgenlinien nachzuweisen. Da diese Röntgenquanten höherenergetisch sind als die der L-Linien, ist deren Absorption in der Probe geringer. So liegt zum Beispiel die Halbwertsdicke $x_{1/2} = \ln(2)/\mu$ für 70 keV Röntgenquanten (Gold K-Linien) in Silizium bei 1 cm [86]. Die Halbwertsdicke für 12 keV Röntgenquanten (Gold L-Linien) beträgt hingegen nur 144 μm [86]. Zusammen mit der größeren Reichweite von hochenergetischen Protonen in Materie (16 MeV Protonen in Silizium: 1.6 mm; 3 MeV Protonen in Silizium: 91 μm , [24]) ist es daher möglich, schwere Elemente, wie etwa Goldeinschlüsse, auch in größeren Probentiefen zerstörungsfrei nachzuweisen.

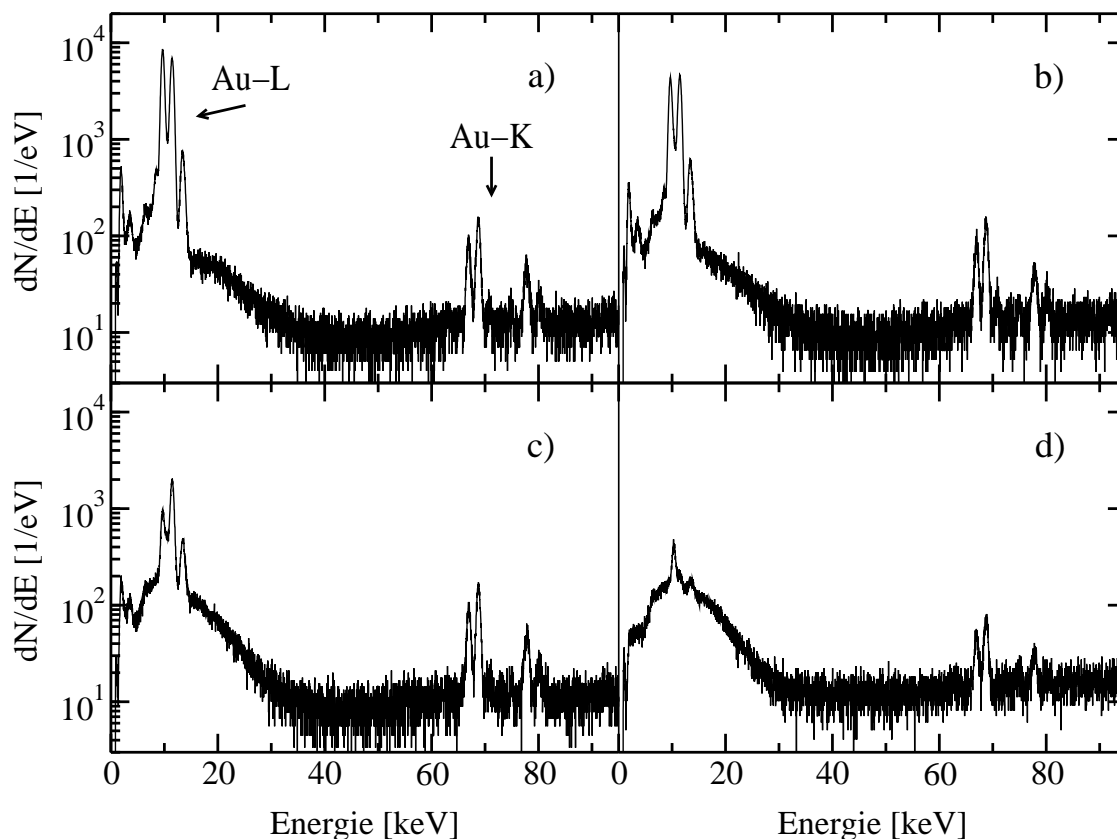


Abbildung 5.10: Nachweis von Gold: a) 22 μm Gold vor 60 μm Silizium, b) 22 μm Gold unter 60 μm Silizium, c) unter 238 μm Silizium und d) unter 588 μm Silizium.

Um dies experimentell zu überprüfen, wurde hinter Siliziumwafern mit unterschiedlicher Dicke eine 22 μm dicke Goldfolie montiert (siehe Abbildung 5.9). Durch Variation der Siliziumdicke von 60 bis 588 μm ist es möglich, die Tiefe zu bestimmen, in der Gold mit 16 MeV Protonen noch nachgewiesen werden kann. Aufgrund der Meßgeometrie vergrößert sich die effektive Siliziumdicke für die einfallenden Protonen um den Faktor $1/\cos(39^\circ) \approx 1.29$ und für die Röntgenquanten um den Faktor $1/\cos(28^\circ) \approx 1.13$.

Abbildung 5.10 zeigt die aufgenommenen Röntgenspektren für die Fälle a) Gold vor 60 μm Silizium, Gold hinter b) 60 μm Silizium, c) 238 μm Silizium und d) 588 μm Silizium. Alle Spektren sind auf die gleiche Strahldosis normiert und können daher direkt miteinander verglichen werden. Im Spektrum a) sind die Gold L-Linien (≈ 12 keV) sowie die Gold K-Linien (≈ 70 -80 keV) erkennbar. Befindet sich vor dem Gold 60 μm Silizium (Abbildung 5.10b), wird die Intensität der L-Linien durch die Absorption in Silizium deutlich reduziert. Hingegen werden die höherenergetischen K-Linien kaum geschwächt. Bei einer Dicke von 238 μm Silizium (Abbildung 5.10c) ist bereits eine starke Absorption der L-Linien beobachtbar, während die K-Röntgenquanten nahezu unge-

schwächt das Silizium durchdringen. Die Messung einer solchen Probe ist mit 3 MeV Protonen oder 70 MeV Kohlenstoffionen nicht möglich, da deren Reichweite bereits geringer ist als die Siliziumdicke [24]. Bei einer Siliziumdicke von $588 \mu\text{m}$ (Abbildung 5.10d) werden alle L-Röntgenlinien durch die Probe absorbiert. Die Röntgenlinie bei etwa 10 keV stammt aus einem Bauteil in der Probenkammer, das bei einer früheren Meßzeit aktiviert wurde. Bei dieser Siliziumdicke ist auch die Intensität der K-Linien zurückgegangen. Dies beruht aber nur zu einem geringen Anteil auf der Absorption der Quanten im Silizium ($< 4.5\%$). Hauptgrund hierfür ist die Abhängigkeit der Röntgenproduktion von der Projektilenergie (vgl. Abbildung 5.8). Die Protonen verlieren im Silizium bereits eine Energie von rund 5 MeV. Damit ist bei dieser Dicke der Querschnitt für die K-Röntgenproduktion einen Faktor 2.5 kleiner als der Querschnitt für 16 MeV Protonen.

Durch dieses Beispiel konnte gezeigt werden, daß bei Verwendung hochenergetischer Protonen schwere Elemente, wie zum Beispiel Gold, in Tiefen nachgewiesen werden können, die mit 3 MeV Protonen oder 70 MeV Kohlenstoffionen nicht zugänglich sind.

5.3.6 Kontinuierlicher Untergrund und Nachweisgrenzen

Neben diskreten Röntgenlinien zeigen Röntgenspektren zusätzlich einen kontinuierlichen Untergrund, der zu kleinen Energien hin ansteigt (vgl. z.B. Abbildung 5.11). Im folgenden sollen die einzelnen Beiträge dieses kontinuierlichen Untergrunds genauer diskutiert und mit theoretischen Beschreibungen verglichen werden. Schließlich sollen daraus mögliche Nachweisgrenzen der teilcheninduzierten Röntgenfluoreszenzanalyse mittels hochenergetischer Ionen abgeleitet werden.

Der kontinuierliche Untergrund in den Röntgenspektren setzt sich aus einem Bremsstrahlungsuntergrund und einem Comptonuntergrund zusammen. Der Bremsstrahlungsuntergrund wird durch vier unterschiedliche Prozesse beschrieben [105]:

- Bremsstrahlung durch sekundäre Elektronen,
- Bremsstrahlung durch quasifreie Elektronen,
- atomarer Bremsstrahlung und
- nuklearer Bremsstrahlung.

5.3.6.1 Bremsstrahlung durch sekundäre Elektronen

Bei diesem Beitrag ionisiert das einfallende Projektil Probenatome. Die dadurch entstehenden sekundären Elektronen werden im Coulombfeld der Probenatome gestreut und

emittieren dabei kontinuierliche Röntgenstrahlung. Für $m_e \ll M_P$ ist die hochenergetische Grenze dieses Untergrundes in erster Näherung durch die maximale kinetische Energie

$$T_m = 4 \frac{m_e}{M_P} E_P \quad (5.15)$$

gegeben, die ein Projektil der Energie E_P auf ein Elektron übertragen kann (m_e : Masse des Elektrons, M_P : Projektilmasse). In der theoretischen Beschreibung dieses Prozesses, z.B. [106], wird sowohl die Erzeugung als auch das Abbremsen der Elektronen behandelt.

5.3.6.2 Bremsstrahlung quasifreier Elektronen

Zur nichtrelativistischen Beschreibung der Bremsstrahlung quasifreier Elektronen wird zunächst das Projektil in seinem Ruhesystem betrachtet. Elektronen, deren Geschwindigkeit gering gegenüber der Projektilgeschwindigkeit v_P ist, bewegen sich dann im Ruhesystem des Projektils mit der maximalen Energie

$$T_r = \frac{1}{2} m_e v_P^2 = \frac{m_e}{M_P} E_P. \quad (5.16)$$

Werden diese quasifreien Elektronen im Coulombfeld des Projektils gestreut, emittieren sie kontinuierliche Röntgenstrahlung bis zur maximalen Energie T_r . Da dieser Prozeß im Ruhesystem des Projektils geschieht, muß die Energie E_x der emittierten Röntgenquanten dopplerkorrigiert werden:

$$E_x^D = \frac{\sqrt{1 - \beta^2}}{1 - \beta \cos(\theta_L)} E_x \quad (5.17)$$

Hierin bezeichnen $\beta = v_P/c$ und θ_L den Winkel, unter dem die Röntgenquanten im Laborsystem beobachtet werden.

5.3.6.3 atomare und nukleare Bremsstrahlung

Atomare Bremsstrahlung entsteht, wenn gebundene Targetelektronen durch Streuung am Coulombfeld des Projektils Röntgenstrahlung emittieren [107]. Die nukleare Bremsstrahlung beruht auf der Coulombabstoßung von Target- und Projektilkern [107].

Die Emission der Bremsstrahlung erfolgt anisotrop [108]. Für Protonen mit einigen MeV hat die Winkelverteilung der emittierten Röntgenquanten bei einem Winkel von 90° zur Strahlachse ihr Maximum. Für höhere Energien verschiebt sich dieses Maximum hin zu kleineren Winkeln (Vorwärtsrichtung) [108]. Um den Untergrundbeitrag

durch diese Bremsstrahlungseffekte gering zu halten, sollte der Röntgendetektor unter einem Winkel größer 90° zur Strahlachse montiert werden (Rückwärtsrichtung). In der aufgebauten Anlage wurde daher der geometrisch größtmögliche Winkel von 113° gewählt.

5.3.6.4 Comptonuntergrund

Neben der Bremsstrahlung liefert auch der Comptonprozeß einen Beitrag zum kontinuierlichen Untergrund. Dieser entsteht durch Gammaquanten, die an quasifreien Elektronen im Detektor oder anderen Komponenten gestreut werden. Gammaquanten entstehen durch Coulombanregung oder wenn die Projektilenergie E_P die Coulombschwelle

$$E_c = \frac{Z_P Z_T}{A_P^{1/3} + A_T^{1/3}} 0.855 \text{ MeV} \quad (5.18)$$

(A_P, A_T : Massenzahl des Projektils und Targets) des Targetelements überschreitet und Kernreaktionen möglich werden.

Da mit 1–3 MeV Protonen nur Kernreaktionen bei äußerst leichten Elementen stattfinden, ist der resultierende Comptonuntergrund im Röntgenspektrum gering. Die Energie von 70 MeV Kohlenstoffionen und 16 MeV Protonen reicht hingegen aus, um die Coulombschwelle aller stabilen Elemente zu überwinden. Dadurch spielt der aus den Kernreaktionen entstehende Comptonuntergrund keine zu vernachlässigende Rolle.

Zur Diskussion der einzelnen Beiträge des kontinuierlichen Untergrunds zeigt Abbildung 5.11 das mit 16 MeV Protonen erzeugte Röntgenspektrum einer Goldfolie ($100 \mu\text{g}/\text{cm}^2$). Zusätzlich zum Untergrund sind rechts neben den Gold L-Linien auch pile-up Signale zu sehen, die durch gleichzeitige Detektion zweier Gold L-Quanten entstehen. Weiter sind in dem Spektrum absolut berechnete Beiträge des Bremsstrahlunguntergrunds eingezeichnet: Bremsstrahlung durch sekundäre Elektronen nach [106] (gestrichelter Graph), Bremsstrahlung durch quasifreie Elektronen nach [108] (gestrichpunkteter Graph) und atomare Bremsstrahlung nach [107] (gepunkteter Graph). Für die Berechnung des Untergrundes wurden neben den zitierten Wirkungsquerschnitten das experimentell bestimmte Produkt aus Detektionseffizienz und Raumwinkel, die Anzahl der eingefallenen Projektile und die Probendicke verwendet. In Abbildung 5.11 sind außerdem die Grenzenergien T_r^D und T_m der Bremsstrahlung durch quasifreie und sekundäre Elektronen eingezeichnet. Der Beitrag des Comptonuntergrunds (gestrichelt-zweifachgepunkteter Graph) kann in dem betrachteten Energiebereich der Spektren als konstant betrachtet werden [109] und wurde an das Spektrum angepaßt. Bei allen Beiträgen wurde die Detektoreffizienz berücksichtigt. Die Summe aller Un-

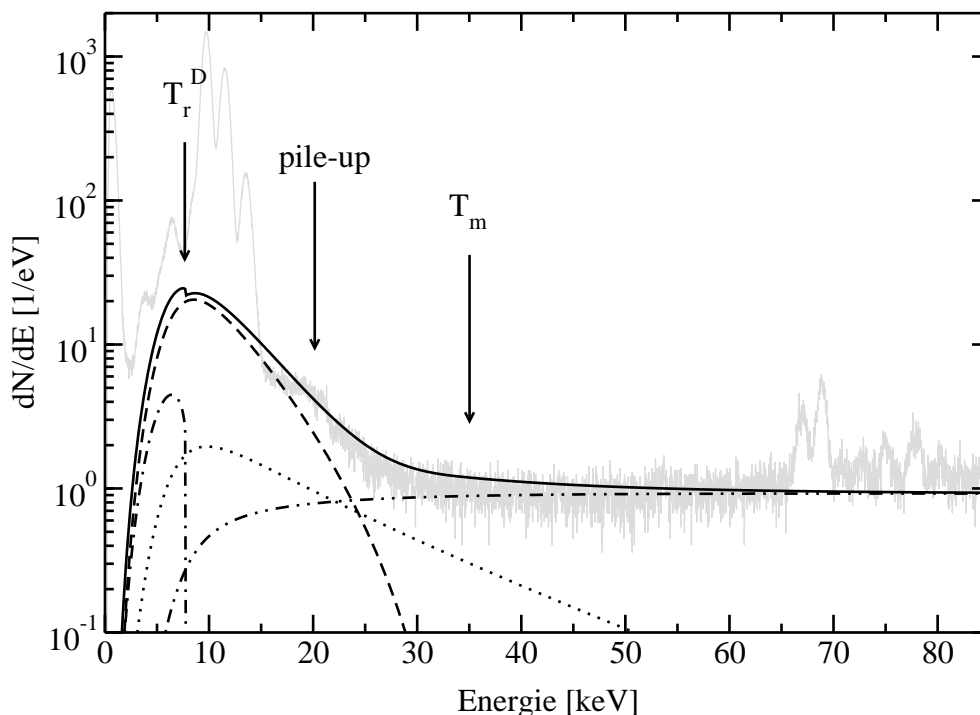


Abbildung 5.11: Beiträge zum kontinuierlichen Untergrund des Röntgenspektrums einer $100 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ dicken Goldfolie durch 16 MeV Protonen: Bremsstrahlung durch sekundäre Elektronen (gestrichelter Graph), Bremsstrahlung durch quasifreie Elektronen (gestrichelpunkteter Graph), atomare Bremsstrahlung (gepunkteter Graph) und Comptonuntergrund (gestricheltzweifachgepunkteter Graph). Der durchgezogene Graph stellt die Summe der einzelnen Beiträge dar. T_r^D und T_m sind die Grenzenenergien der Bremsstrahlung durch quasifreie und sekundäre Elektronen.

tergrundsbeiträge zeigt der durchgezogene Graph.

Der nukleare Beitrag der Bremsstrahlung nach [69] liegt unter 0.1 Ereignisse/eV. Möglicherweise wird dieser Beitrag jedoch durch die Theorie unterschätzt. Da die Berechnungen in erster Linie für $1\text{--}3 \text{ MeV}$ Protonen angestellt wurden, ist nur das Coulombpotential des Targetkerns berücksichtigt. Bei hochenergetischen Protonen müsste in zukünftigen Beschreibungen der nuklearen Bremsstrahlung auch das Kernpotential des Targets einbezogen werden. Dies sollte zu einem größeren Beitrag der nuklearen Bremsstrahlung führen.

Wie man in Abbildung 5.11 erkennen kann, reproduzieren die Berechnungen das gemessene Spektrum trotz der unvollständigen Beschreibung gut und liegen nur geringfügig über der Messung. Für Röntgenenergien kleiner 30 keV wird der Untergrund größtenteils durch die Bremsstrahlung sekundärer Elektronen bestimmt. Oberhalb 30 keV bestimmen Compton-gestreuete Gammaquanten das Spektrum. Die Gam-

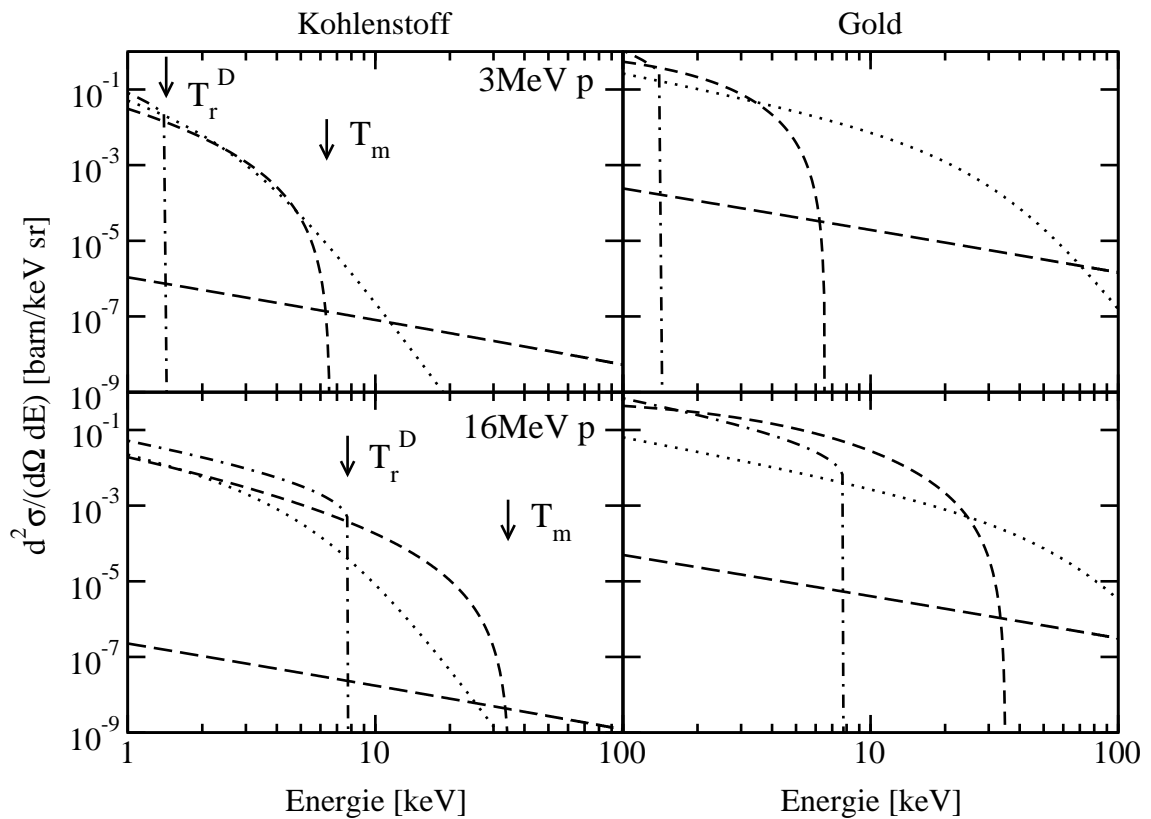


Abbildung 5.12: Einzelne Beiträge des Untergrunds durch Bremsstrahlung für 3 (oben) und 16 MeV Protonen (unten) in Kohlenstoff und Gold: Bremsstrahlung durch quasifreie Elektronen (gestrichpunkteter Graph), Bremsstrahlung durch sekundäre Elektronen (gestrichelter Graph), atomare Bremsstrahlung (gepunkteter Graph) und nukleare Bremsstrahlung (lang gestrichelter Graph). T_r^D und T_m sind die Grenzenenergien der Bremsstrahlung durch quasifreie und sekundäre Elektronen.

maquanten entstehen einerseits in der Probe und andererseits in Bauteilen, die sich im Strahl befinden (z.B. Faraday-Cup, Schlitze, etc.). Während die Entstehung der Gammastrahlung in der Probe nicht ausgeschaltet werden kann, gibt es Möglichkeiten, die Gammastrahlung aus den Bauteilen zu unterdrücken. So muß darauf geachtet werden, daß sich nur zur Messung unbedingt notwendige Bauteile im Strahl befinden. In den durchgeführten Experimenten wurde bei der Messung der einfallenden Ionendosis auf den Einsatz eines in der Probenkammer befindlichen Faraday-Cups verzichtet und statt dessen ein Faraday-Cup verwendet, der sich ca. 2 m hinter der Probenkammer befindet. Durch den größeren Abstand des Cups vom Detektor kann so dessen Untergrundsbeitrag verringert werden. Vergleichsmessungen ohne Goldfolie zeigen jedoch, daß dennoch rund 50% des Untergrunds aus dem Faraday-Cup stammen. Zieht man diesen Anteil vom Untergrund in Abbildung 5.11 ab, erhält man für den differentiellen

Querschnitt des Comptonuntergrunds durch die Goldfolie etwa $4 \cdot 10^{-4}$ barn/(keV·sr).

Der Comptonuntergrund kann grundsätzlich verringert werden, indem ein Detektor mit geringerem aktiven Volumen eingesetzt wird. Damit stehen weniger Elektronen zur Verfügung, an denen die Gammaquanten streuen können. Um jedoch die gleichen Nachweisgrenzen zu erreichen (vgl. Abschnitt 5.3.6.5), muß dabei sichergestellt werden, daß der gleiche Raumwinkel abgedeckt und die gleiche Nachweiseffizienz niederenergetischer Photonen gewährleistet wird. Außerdem kann auch der Abstand zwischen Faraday-Cup und Detektor weiter vergrößert und somit eine Reduzierung des Comptonuntergrundes erreicht werden. Alternativ kann auf den Einsatz eines Faraday-Cups auch vollständig verzichtet werden. Die zur quantitativen Analyse nötige Strahldosis kann auch über rückgestreute Ionen in einem weiteren Detektor bestimmt werden. Damit tragen nur die in der Probe erzeugten Gammaquanten zum Comptonuntergrund bei.

Zum Vergleich des reinen Bremsstrahlungsuntergrundes bei verschiedenen Protonenenergien zeigt Abbildung 5.12 die differentiellen Wirkungsquerschnitte der verschiedenen Beiträge für 3 und 16 MeV Protonen in einer Kohlenstoff- und in einer Goldprobe ($\theta = 113^\circ$). Wie man erkennen kann, liegen wegen der höheren Projektilenergie der 16 MeV Protonen die Grenzenergien T_r^D und T_m bei größeren Werten. Damit dominiert die Bremsstrahlung durch quasifreie und sekundäre Elektronen den kontinuierlichen Untergrund auch bei größeren Röntgenenergien. Hier liegt der Bremsstrahlungsuntergrund um bis zu drei Größenordnungen über dem Wert für 3 MeV Protonen. Unabhängig von der Projektilenergie ist bei schweren Probenelementen der Bremsstrahlungsuntergrund größer als bei leichten Probenelementen.

Abbildung 5.13 zeigt das Röntgenspektrum der Goldfolie, das mit 70 MeV Kohlenstoffionen gemessen wurde. Wie auch in Abbildung 5.11 sind hier rechts neben den Gold L-Linien pile-up Signale zu sehen. Weiter sind in dem Spektrum die berechneten Beiträge der Bremsstrahlung durch sekundäre und quasifreie Elektronen sowie die atomare und nukleare Bremsstrahlung eingezeichnet. Zusätzlich sind die Grenzenergien T_r^D und T_m markiert. Der Beitrag des Comptonuntergrunds wurde an das Spektrum angepaßt. Der durchgezogene Graph stellt die Summe aller Beiträge dar.

Wie man in Abbildung 5.13 erkennen kann, überschätzt die Theorie der atomaren Bremsstrahlung das gemessene Spektrum um fast eine Größenordnung. Möglicherweise versagt hier die in der Theorie angenommene Näherung, daß das Projektil eine kleine Störung im Probenatom darstellt. Wie bei der diskreten Röntgenproduktion liegt damit auch hier die Theorie deutlich über dem Experiment.

Neben den oben eingeführten Bremsstrahlungsbeiträgen sollten nach [69] bei schweren Ionen zusätzliche Beiträge durch strahlenden Elektroneneinfang und Röntgenquanten aus quasimolekularen Orbitalen auftreten. Nach [110] sollte durch den strahlen-

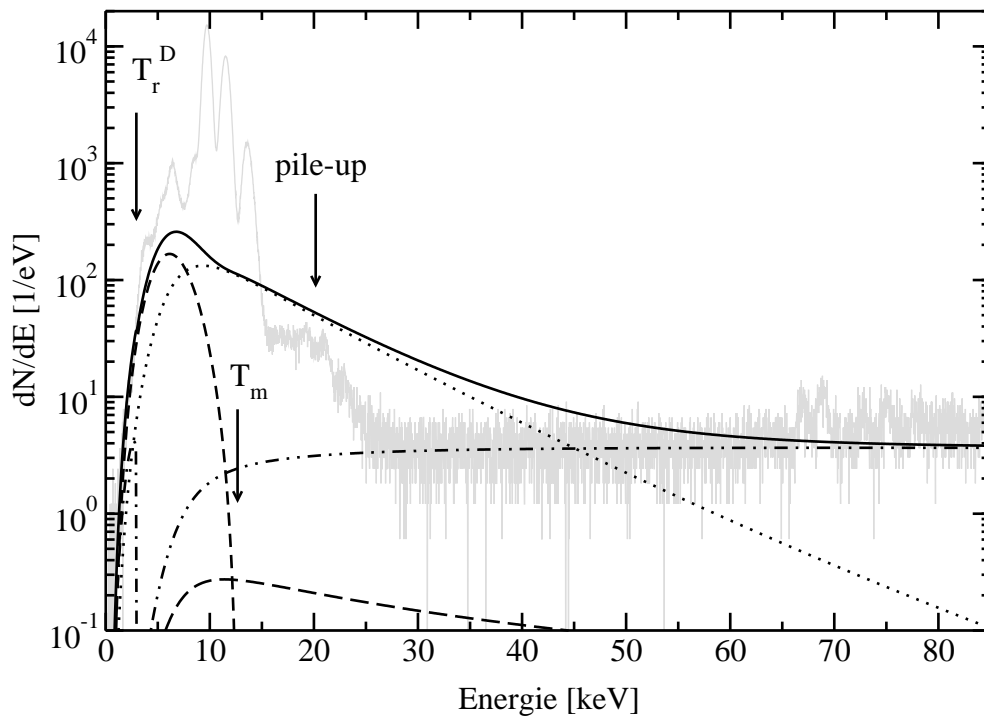


Abbildung 5.13: Beiträge zum kontinuierlichen Untergrund des Röntgenspektrums einer $100 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ dicken Goldfolie durch 70 MeV Kohlenstoffionen: Bremsstrahlung durch sekundäre Elektronen (gestrichelter Graph), Bremsstrahlung durch quasifreie Elektronen (gestrichelt-punkteter Graph), atomare Bremsstrahlung (gepunkteter Graph), nukleare Bremsstrahlung (lang gestrichelter Graph) und Comptonuntergrund (gestrichelt-zweifachgepunkteter Graph). Der durchgezogene Graph stellt die Summe der einzelnen Beiträge dar. T_r^D und T_m sind die Grenzenergien der Bremsstrahlung durch quasifreie und sekundäre Elektronen.

den Elektroneneinfang eine weitere diskrete Röntgenlinie bei einer Energie von etwa $(m_e/M_p) \cdot E_p + U$ entstehen. U bezeichnet die Bindungsenergie des Projektilniveaus, in der das Elektron eingefangen wird. Nimmt man an, daß die Elektronen in die K-Schale des Kohlenstoffions eingefangen werden, sollte die Linie im vorliegenden Fall bei etwa 3.6 keV liegen. Da dies aber unterhalb des meßbaren Energiebereichs ist, muß dieser Untergrundsbeitrag bei der aufgebauten Anlage nicht berücksichtigt werden. Bei der Röntgenstrahlung durch quasimolekulare Orbitale werden die Energieniveaus betrachtet, die entstehen, wenn sich die Orbitale zweier Atome bzw. Ionen, z.B. Projektil und Probenatom, überlappen [111]. Durch Übergänge innerhalb dieser Niveaus können Röntgenquanten emittiert werden. Allerdings gibt es in der Literatur keine Rechnungen oder Messungen, die mit den durchgeführten Experimenten verglichen werden könnten.

Wie man in Abbildung 5.13 weiter erkennen kann, wird das Spektrum ab ca. 25 keV durch den Comptonuntergrund dominiert. Zieht man den Anteil des Untergrunds ab,

der vom Faraday-Cup stammt ($\approx 70\%$), erhält man für den Beitrag des Comptonuntergrunds aus der Goldfolie für 70 MeV Kohlenstoffionen einen differentiellen Wirkungsquerschnitt von etwa $3 \cdot 10^{-3} \text{ barn}/(\text{keV} \cdot \text{sr})$. Dieser Wert liegt knapp eine Größenordnung über dem Betrag für 16 MeV Protonen. Da mit 70 MeV Kohlenstoffionen mehr Reaktionskanäle für Kernreaktionen zur Verfügung stehen, steigt der Comptonuntergrund.

5.3.6.5 Nachweisgrenzen

Durch die gute Beschreibung des Untergrundes für Protonen ist es möglich den Untergrund auch für andere Proben als für die gemessene Goldprobe anzugeben. Dadurch kann eine erste Abschätzung möglicher Nachweisgrenzen für verschiedene Elemente in unterschiedlichen Proben mit 16 MeV Protonen erfolgen.

Üblicherweise wird die Nachweisgrenze eines Elements mittels teilcheninduzierter Röntgenfluoreszenzanalyse durch die Beziehung

$$N_x \geq 3\sqrt{N_U} \quad (5.19)$$

festgelegt [2]. Dabei bedeuten N_x die Anzahl der Ereignisse unter der diskreten Röntgenlinie des nachzuweisenden Elements und N_U die Anzahl der Untergrundereignisse unterhalb dieser Röntgenlinie in einem Intervall, das der vollen Halbwertsbreite der Röntgenlinie entspricht. Aus der Mindestanzahl der zu detektierenden Röntgenquanten N_x eines bestimmten Elements kann über Beziehung (5.1) auf die minimale atomare Belegung geschlossen werden, die noch nachgewiesen werden kann. Für die Nachweisgrenze eines Elements i in einer Matrix m erhält man nach [69]:

$$\frac{n_i}{n_m} = \frac{3}{\sqrt{N_0} n_m \tilde{\epsilon} \sigma} \sqrt{\frac{\sigma_U}{\sigma}} \quad (5.20)$$

Hierin bezeichnen n_i und n_m die atomare Flächenbelegung des Elements i bzw. der Matrix m , N_0 gibt die Anzahl der eingefallenen Ionen an und $\tilde{\epsilon}$ ist die totale Detektionseffizienz einschließlich Raumwinkelanteil. σ und $\sigma_U = (d\sigma_U/dE) \cdot \Delta E$ sind die Wirkungsquerschnitte der diskreten Röntgenproduktion und des kontinuierlichen Untergrunds. ΔE bezeichnet die Energieauflösung des Detektors.

Abbildung 5.14 zeigt für 16 MeV Protonen Nachweisgrenzen verschiedener Elemente in einer Kohlenstoff- (Kreise), Silizium- (Quadrate) und Goldprobe (Dreiecke) für 16 MeV Protonen. Hierfür wurden die experimentellen Werte für ΔE , $\tilde{\epsilon}$, und σ verwendet. σ_U setzt sich aus der theoretischen Beschreibung des Bremsstrahlungsuntergrunds und dem experimentell bestimmten Beitrag des Comptonuntergrunds zusammen. Für N_0 wurden $6 \cdot 10^{11}$ Protonen (10 nC) eingesetzt und für n_m wurden $10^{20} \text{ at}/\text{cm}^2$ (ca.

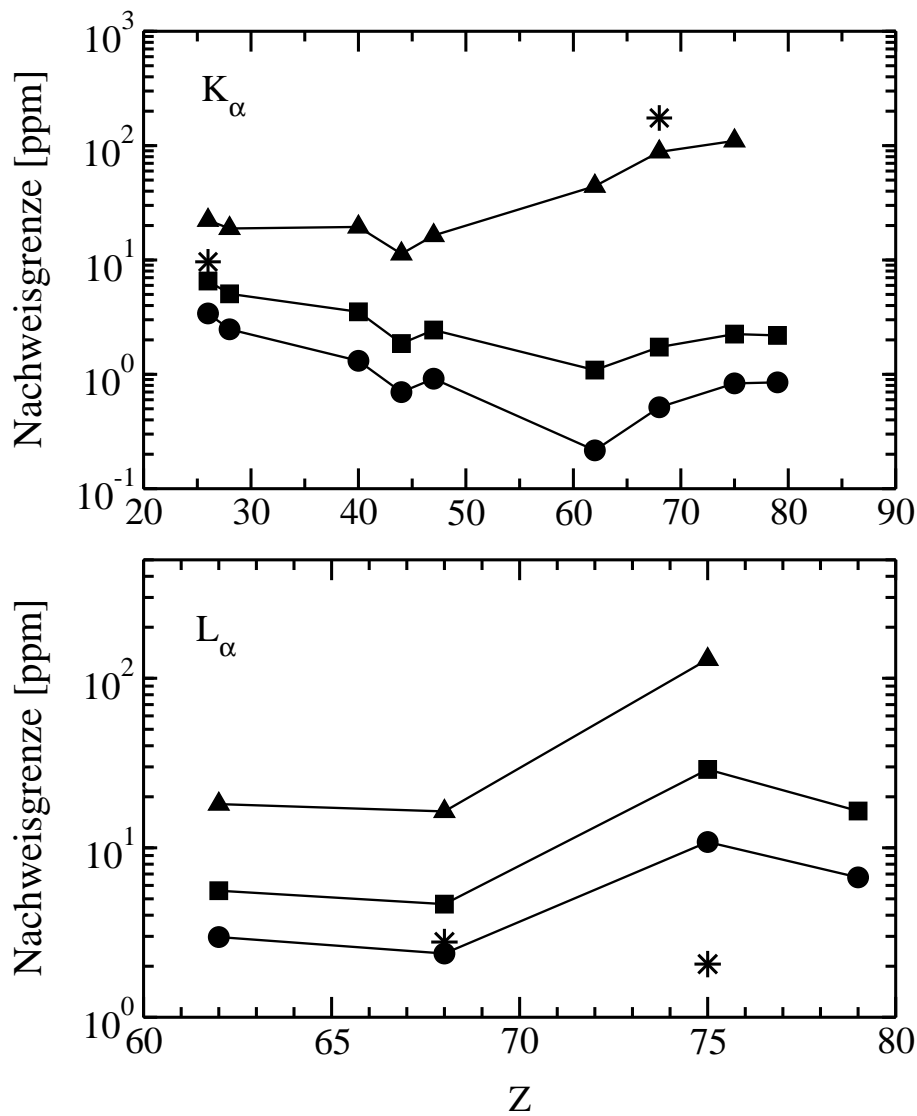


Abbildung 5.14: Nachweisgrenzen verschiedener Elemente (K_α - und L_α -Linien) in Kohlenstoff (Kreise), Silizium (Quadrate) und Gold (Dreiecke) für 16 MeV Protonen. Zusätzlich sind für 70 MeV Kohlenstoffionen Nachweisgrenzen einiger Elemente in Gold (Sterne) eingezeichnet.

200 μm) angenommen. Zur Bestimmung der Nachweisgrenze wurden die K_α - und L_α -Linien verwendet, da sie die jeweils größte Intensität aufweisen. Zusätzlich sind in Abbildung 5.14 für 70 MeV Kohlenstoffionen experimentell bestimmte Nachweisgrenzen einiger Elemente in Gold (Sterne) eingezeichnet.

Wie man erkennen kann, sind bei Verwendung von 16 MeV Protonen die Nachweisgrenzen der betrachteten Elemente in leichten Matrizen besser als 10 ppm (K_α -Linien). Für schwere Elemente in schweren Matrizen steigt die Nachweisgrenze jedoch bis auf

400 ppm an. Die Verwendung von 70 MeV Kohlenstoffionen ergibt keine Verbesserung der Sensitivität. Verwendet man zum Nachweis die L_α -Linien, können mit 16 MeV Protonen schwere Elemente in leichten Matrizen im 10 ppm Bereich nachgewiesen werden. In schweren Matrizen steigt die Nachweisgrenze um ca. eine halbe Größenordnung an. Verwendet man hierzu 70 MeV Kohlenstoffionen, können deutlich verbesserte Nachweisgrenzen erzielt werden.

Obwohl der kontinuierliche Untergrund bei Verwendung von 16 MeV Protonen über dem für 3 MeV Protonen liegt (siehe Abbildung 5.12), können Nachweisgrenzen erreicht werden, die etwa nur eine Größenordnung schlechter sind als bei Protonen mit Energien von 3 MeV [69]. Dies liegt hauptsächlich an den großen Röntgenproduktionsquerschnitten. Zudem trägt auch der große Raumwinkel (≈ 0.5 sr) des verwendeten Detektors in der aufgebauten Anlage zu der guten Nachweisgrenze bei (vgl. Gleichung (5.20)). Dieser ist etwa 10 mal größer als bei herkömmlichen Experimenten [69].

5.3.7 Folgerungen für die Anwendung

Im Hinblick auf mögliche Anwendungsgebiete der teilcheninduzierten Röntgenfluoreszenzanalyse mittels hochenergetischer Ionen sollen aus dem vorangegangenen Vergleich einige Folgerungen für die Anwendungsgebiete gezogen werden.

Wie gezeigt wurde, ist die Schädigung der Probe durch hochenergetische Protonen deutlich geringer als bei niedrigeren Energien. Aus diesem Grunde sollten PIXE Untersuchungen bei leicht zu schädigenden Proben, wie etwa Polymere, mit hochenergetischen Protonen durchgeführt werden. Aufgrund der großen Analysiertiefen können mit hochenergetischen Protonen deutlich dickere Proben untersucht werden als mit niederenergetischeren Protonen. Wegen der reduzierten lateralen Aufstreuung bei hohen Projektilenergien ist eine verbesserte laterale Auflösung bei der bildgebenden Mikro-PIXE möglich.

Der Einsatz schwerer Ionen hingegen liefert bis auf größere Röntgenproduktionsquerschnitte keine weiteren Vorteile. Im Gegensatz zu hochenergetischen Protonen muß bei der quantitativen Analyse mit schweren Ionen die Abhängigkeit der Röntgenproduktion von der Projektilenergie und dem Ladungszustand des Projektils berücksichtigt werden. Aufgrund der unzureichenden theoretischen Beschreibung diskreter und kontinuierlicher Röntgenproduktionsquerschnitte muß für quantitative Analysen hier auf experimentell bestimmte Wirkungsquerschnitte zurückgegriffen werden.

Wird eine hohe Sensitivität für den Nachweis eines Elements in einer Matrix gefordert, ist im Einzelfall zu prüfen, bei welcher Projektilenergie und -sorte dies erreichbar ist.

5.4 Quantitative Analysen

Nach der Diskussion der Vor- und Nachteile der teilcheninduzierten Röntgenfluoreszenzanalyse mit hochenergetischen Ionen soll zum Abschluß die quantitative Analyse zweier Proben gezeigt werden. Als Projektile wurden für beide Messungen 16 MeV Protonen verwendet. Gegenüber 70 MeV Kohlenstoffionen vereinfacht sich die Analyse der Daten mit 16 MeV Protonen, da hier die Energieänderung der Projektile in der Probe und die daraus resultierende Änderung der Röntgenproduktionsquerschnitte nicht berücksichtigt werden muß.

5.4.1 Goldmedaille

Obwohl es einige Algorithmen gibt, die eine qualitative und quantitative Analyse von Röntgenfluoreszenzspektren mit Protonen der Energien von einigen MeV ermöglichen [77, 78], gibt es bislang kein Programm, das eine Analyse von Röntgenspektren erlaubt, die mit Protonen von einigen 10 MeV oder schweren Ionen erzeugt wurden. Die bestehenden Programme versagen hier, da Wirkungsquerschnitte für hochenergetische Ionen, insbesondere Querschnitte für schwere Probenelemente, nicht berücksichtigt sind. Außerdem fehlt in diesen Programmen das Bremsvermögen der Probenelemente bei diesen Projektilenergien sowie die Absorption höherenergetischer K-Röntgenstrahlung schwerer Elemente. Aus diesem Grund erfolgt momentan die Auswertung der gemessenen Röntgenspektren von Hand.

Am Beispiel einer Goldmedaille [112] soll gezeigt werden, daß mit der aufgebauten Anlage grundsätzlich quantitative Analysen mittels teilcheninduzierter Röntgenfluoreszenzanalyse durch hochenergetische Protonen möglich sind. Da zum Zeitpunkt der Messung die Anzahl der einfallenden Protonen nicht über den Strom, der über die Probe abfließt, bestimmt werden konnte, wurde die ursprünglich etwa 2.5 mm dicke Medaille auf 10 μm (18.4 mg/cm²) gewalzt. Damit wurde die Transmission der Protonen durch die Probe gewährleistet und der Strahlstrom mit einem Faraday-Cup hinter der Probe gemessen. Da bei dieser Dicke der Energieverlust der verwendeten 16 MeV Protonen in der Probe kleiner 2% ist [24], wird dieser vernachlässigt. Die Meßgeometrie entspricht der in Abschnitt 5.2.1 vorgestellten. Der Strahlstrom betrug ca. 3 pA.

Abbildung 5.15 zeigt das Röntgenspektrum der gemessenen Medaille. Man erkennt die Kupfer K-, Gold L- und K- sowie Silber K-Röntgenlinien. Außerdem sind bei ca. 40 keV zwei weitere Linien zu erkennen. Diese Linien können weder als niederenergetische Gammalinien der in der Probe befindlichen Elemente noch als Röntgenlinien anderer Elemente identifiziert werden. Deshalb muß davon ausgegangen werden, daß es sich um sogenannte pile-up Signale handelt, die bei gleichzeitiger Detektion, z.B.

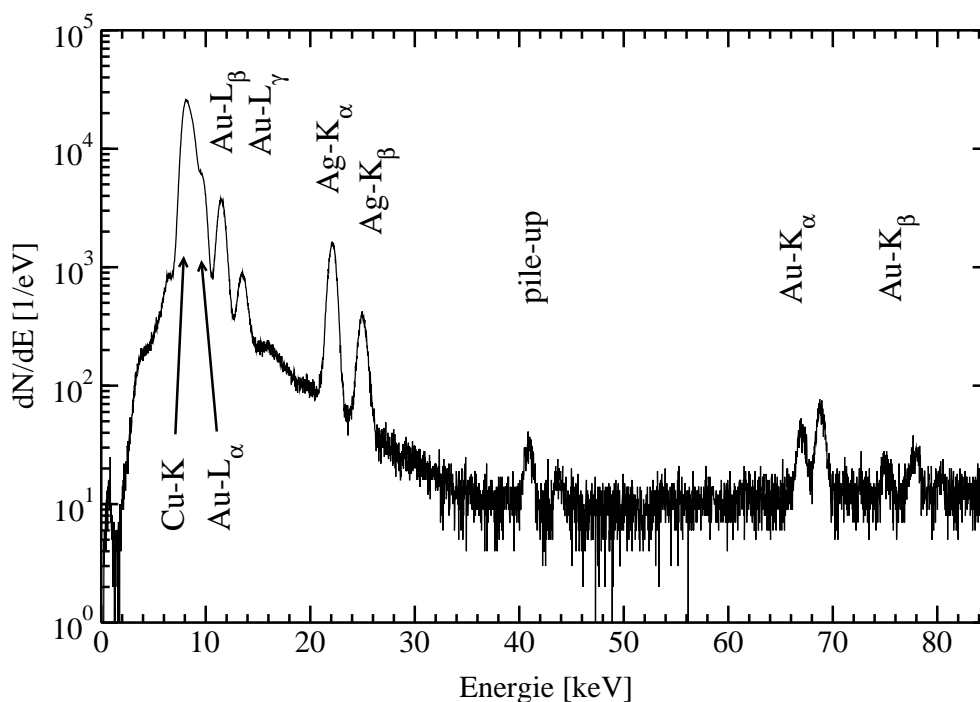


Abbildung 5.15: Röntgenspektrum einer gewalzten Goldmedaille.

zweier Silber K-Quanten, entstehen.

Die Bestimmung der Elementkonzentration erfolgt über die Kupfer K-, Silber K_α - und Gold K_α -Linien. Als Röntgenproduktionsquerschnitte wurden die experimentell bestimmten Werte aus Abschnitt 5.2.2 verwendet. Da für Kupfer keine experimentellen Daten vorliegen, wurde der berechnete Querschnitt aus der ECPSSR-Theorie verwendet. Die relativ gute Übereinstimmung dieser Theorie mit den experimentellen Daten der Nachbarelemente (vgl. Abbildung 5.5) rechtfertigt diesen Schritt. Bei der Konzentrationsbestimmung wurde zusätzlich die Absorption der erzeugten Röntgenquanten in der Probe berücksichtigt. Da für die Absorption bereits vor der Berechnung eine Konzentration angegeben werden muß, wurden hierfür Startwerte angegeben und dann iterativ so verändert, daß die Konzentrationen gegen Endwerte konvergieren. Die Konzentrationen wurden mittels Beziehung (5.5) bestimmt. Außerdem wurde die Orientierung der Probe zur Strahlachse und zum Röntgendetektor in der Probendicke berücksichtigt. Nimmt man an, daß die Medaille nur die drei oben genannten Elemente enthält, besteht sie aus (54.4 ± 9.2) gew.% Kupfer, (12.1 ± 2.1) gew.% Silber und (33.6 ± 5.7) gew.% Gold. Dies entspricht einer 333er Goldmedaille (d.h. einer Medaille, die aus 33.3 gew.% Gold besteht). Die Fehler ergeben sich aus den Unsicherheiten der Querschnitte und der Detektoreffizienz. Verwendet man statt der Gold K_α -Linien die L_β -Linie so erhält man (57.7 ± 9.8) gew.% Kupfer, (13.2 ± 2.2) gew.% Silber und

(29.1 ± 4.9) gew.% Gold. Im Rahmen des Fehlers stimmt dieses Ergebnis mit der Berechnung über die Gold K_{α} -Linien überein.

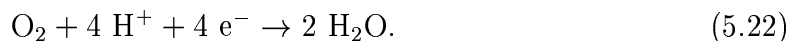
5.4.2 Brennstoffzellenmembran

Als weiteres Beispiel für eine quantitative Analyse schwerer Elemente dient eine Membran einer Direkt-Methanol-Brennstoffzelle, die am Lehrstuhl E 19 des Physik Departments der Technischen Universität München entwickelt wird [113].

Das Prinzip einer Brennstoffzelle beruht auf einer elektrochemischen Reaktion, bei der Wasserstoff und Sauerstoff reagieren, sobald ein elektrischer Kontakt zwischen ihnen hergestellt wird. An der Anode (Wasserstoffseite) der Brennstoffzelle findet dann die Halbreaktion



statt. An der Kathode (Sauerstoffseite) reagiert



Die vorgestellte Brennstoffzelle verwendet statt reinem Wasserstoff Methanol (CH_3OH). Wichtigstes Bauteil der Brennstoffzelle ist die Ionenaustauschmembran auf der sich Anode und Kathode befinden. Die Membran besteht aus dem Fluorpolymer Nafion (Du Pont). Auf dieses Polymer wird beidseitig Platin aufgebracht. Platin dient auf der Anoden- wie auch auf der Kathodenseite als Katalysator.

Ist der Brennstoff mit Kohlenmonoxid (CO) verunreinigt, kommt es zu einer Passivierung des Katalysators und die Membran wird unbrauchbar. So reichen bereits 10 ppm Kohlenmonoxid im Methanol aus, um die Brennstoffzelle unbrauchbar zu machen [114]. Durch die Beimischung von Ruthenium zu Platin im Massenverhältnis 1:1 auf der Anodenseite kann sich bis zu 100 ppm Kohlenmonoxid im Brennstoff befinden, ohne daß es zu einer Funktionseinschränkung der Brennstoffzelle kommt.

Im folgenden soll die Platin- und Rutheniumbelegung einer 30 mg/cm^2 dicken Membran bestimmt werden, die aus einer bereits eingesetzten Brennstoffzelle ausgebaut wurde. Der relative Energieverlust der Protonen in der Membran ist kleiner 5% und kann vernachlässigt werden. Um die Absorption niederenergetischer Röntgenlinien in der Membran zu bestimmen, wurde deren Zusammensetzung mittels der ERD-Methode (**E**lastic **R**ecoil **D**etection, vgl. z.B. [9]) ermittelt. Diese Ionenstrahltechnik eignet sich zur Konzentrationsbestimmung leichter Elemente. Schwere Elemente wie etwa Platin und Ruthenium können damit nicht nachgewiesen werden. Den ERD-Messungen

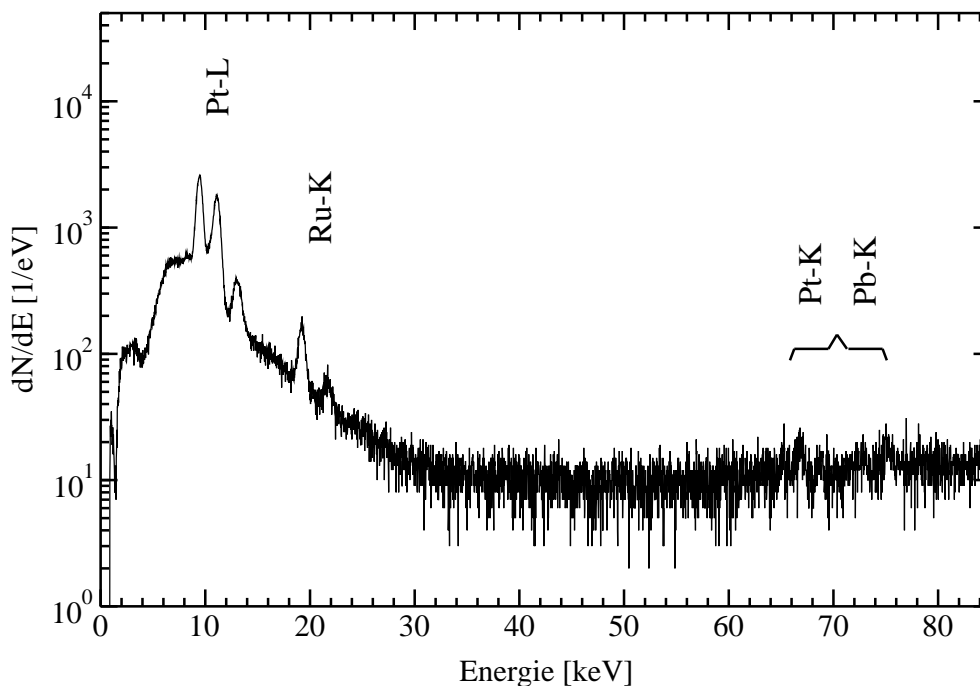


Abbildung 5.16: Röntgenspektrum einer Membran aus einer Direkt-Methanol-Brennstoffzelle.

zufolge besteht die Membran aus 93.0 at% Kohlenstoff und 6.7 at% Fluor. Der Sauerstoffanteil ist kleiner 0.3 at%.

Bei der PIXE Messung der Probe konnte nicht festgestellt werden, ob die mit Ruthenium versehene Seite der Membran zum Detektor hingewandt oder von ihm abgewandt war (vgl. Abbildung 5.3). Da aber die Absorption der Ruthenium K-Linien in der Membran kleiner 5% [86] und damit kleiner als der Fehler, der zur Analyse verwendeten Wirkungsquerschnitte ist, spielt die Orientierung der Membran zum Detektor keine Rolle.

Abbildung 5.16 zeigt das Röntgenspektrum der Membran. Neben den Platin L-Linien können auch die Ruthenium K-Linien beobachtet werden. Da die Platin K-Linien (ca. 67-78 keV) mit K-Linien von Blei (75-87 keV), das in dieser Messung zur Abschirmung von γ -Quanten eingesetzt wurde, überlappen und außerdem der Linieninhalt sehr gering ist, können diese Linien zur quantitativen Analyse nicht eingesetzt werden. Unter Verwendung von Beziehung (5.1) erhält man aus der Ruthenium K_{α} -Linie für die Belegung der Anode von $(5.9 \pm 0.6) \cdot 10^{17} \text{at/cm}^2$ ($(1.0 \pm 0.1) \cdot 10^{-4} \text{g/cm}^2$). Verwendet man die Ruthenium K_{β} -Linie, so erhält man $(5.8 \pm 0.6) \cdot 10^{17} \text{at/cm}^2$. Im Rahmen des Fehlers stimmt dieses Ergebnis mit der Berechnung über die Ruthenium K_{α} -Linie überein.

Für Platin kann nur die Summe der Belegung von Anode und Kathode angegeben werden. Da im Gegensatz zu den Ruthenium K-Linien, die Absorption der niederenergetischeren Platin L-Linien, die aus der vom Detektor abgewandten Seite der Membran stammen, nicht mehr vernachlässigt werden kann, wurde zur Bestimmung der Platinbelegung angenommen, daß auf beiden Seiten die Belegung dieses Elements gleich groß ist [114]. Unter Verwendung von Beziehung (5.5) erhält man aus der L_α -Linie für die gesammte Platinbelegung der Membran (Anoden- und Kathodenseite) $(2.8 \pm 0.3) \cdot 10^{18} \text{at/cm}^2$ ($(9.1 \pm 0.9) \cdot 10^{-4} \text{g/cm}^2$). Im Rahmen des Fehlers stimmt dies mit den Ergebnissen aus der Auswertung der L_β -Linie bzw. L_γ -Linie überein (L_β : $(2.8 \pm 0.3) \cdot 10^{18} \text{at/cm}^2$, L_γ : $(3.0 \pm 0.3) \cdot 10^{18} \text{at/cm}^2$).

Nimmt man an, daß die Platinbelegung auch nach dem Betrieb der Brennstoffzelle an Anode und Kathode gleich groß ist (je $4.6 \cdot 10^{-4} \text{g/cm}^2$), muß davon ausgegangen werden, daß im Betrieb etwa 78% des aufgebrauchten Rutheniums desorbiert wurde. Da die Desorption des Katalysatormaterials wesentlich zum Verständnis von Alterungsmechanismen von Brennstoffzellen beiträgt, sollen in Zukunft weitere Messungen dieser Art durchgeführt werden.

6. Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurden grundlegende Komponenten des Rasterionenmikroskops SNAKE entwickelt, aufgebaut und in Betrieb genommen. Außerdem wurden wesentliche Meßprinzipien mit einem makroskopischen Strahl getestet und physikalische Grundlagen für die Analytik mittels IONENTRANSMISSIONSMIKROSKOPIE und teilcheninduzierter Röntgenfluoreszenzanalyse untersucht. Auf dieser Grundlage ist es künftig möglich, bestehende Ionenstrahltechniken zu erweitern, zu kombinieren oder neue Analysemethoden mit fokussierten, hochenergetischen Ionen zu entwickeln. Der Aufbau der zur Fokussierung der Ionen notwendigen supraleitenden Linse ist nahezu abgeschlossen. In ersten Experimenten mit reduzierten Strahlströmen (einigen kHz) sind bereits Strahldurchmesser von 700 nm möglich, sodaß mit einem baldigen Einsatz des kompletten Rasterionenmikroskops zu rechnen ist.

Mit dem aufgebauten Magnetspektrographen können hochauflösende Transmissionsexperimente durchgeführt werden. Um Energieverluste auch über einen größeren Energiebereich messen zu können, sollte die Energieakzeptanz des Magnetspektrographen erweitert werden. Dies kann entweder durch einen längeren CCD-Sensor oder durch einen alternativen Detektor mit einer Ortsauflösung unter 50 μm realisiert werden. Um Felddriften des Spektrographen zu kompensieren, kann in zukünftigen Messungen eine bereits installierte, auf dem NMR-Prinzip basierende Magnetfeldregelung und -messung eingesetzt werden. Bei Verfügbarkeit eines fokussierten Ionenstrahls ist es dann möglich, mit schweren Ionen laterale Dickenänderungen im Bereich einer Monolage Kohlenstoff aufzulösen sowie Energieverlustbreiten präzise zu vermessen.

Zu den zukünftigen Hauptaugenmerkern der teilcheninduzierten Röntgenfluoreszenzanalyse gehört der Nachweis von Elementen leichter als Chrom ($Z = 24$). Hierzu kann ein Röntgendetektor mit einer Energieauflösung von ca. 150 eV direkt in die Probenkammer montiert werden. Da im Gegensatz zum jetzigen Meßaufbau dann auf ein Kammerfenster, das niederenergetische Röntgenstrahlung absorbiert, verzichtet werden kann, ist der Nachweis leichter Elemente möglich. Allerdings muß bei einer solchen Versuchsanordnung untersucht werden, inwieweit rückgestreute Protonen den kontinuierlichen Untergrund der Messung erhöhen oder gar zur Zerstörung der Detektors führen. Um generell den Untergrund bei PIXE Messungen zu verringern, muß der Abstand zwischen der Probe und dem Faraday-Cup, der zur Strahlstrommessung benötigt

wird, weiter vergrößert werden. Zur quantitativen PIXE Analyse sollte zukünftig ein Computerprogramm entwickelt werden, das sowohl die Absorption der Röntgenstrahlung in dicken Proben wie auch die Röntgenproduktionsquerschnitte hochenergetischer Ionen berücksichtigt.

Diese Arbeit hat den Grundstein für die Analytik und Modifikation von Materialien mit hochenergetischen Ionen im Submikrometerbereich gelegt. Weitere Entwicklungen, insbesondere die Proton-Proton-Streuung zum dreidimensionalen Wasserstoffnachweis und die Bestrahlung lebender Zellen mit einzelnen Ionen, werden in Zukunft die methodischen Möglichkeiten von SNAKE komplettieren.

7. Danksagung

Hiermit möchte ich mich recht herzlich bei all denen bedanken, die mich bei meiner Arbeit unterstützt haben.

Vielen Dank

- Herrn Prof. Dr. H.-J. Körner für die Möglichkeit, diese Arbeit an seinem Lehrstuhl durchzuführen und für die Unterstützung, die er meiner Arbeit während der gesamten Zeit entgegengebracht hat,
- Herrn Dr. G. Dollinger für die engagierte Betreuung und die zahlreichen fruchtbaren Diskussionen,
- den Herren G. Datzmann, A. Hauptner und P. Reichart für die gute Zusammenarbeit, auch in langen Strahlzeittagen und -nächten,
- Herrn Dr. P. Maier-Komor und Frau K. Nacke für die Herstellung sämtlicher Targetfolien,
- Herrn Dr. A. Bergmaier, der im Kampf mit der Datenaufnahme stets als Sieger den Ring verließ,
- Herrn Dr. L. Rohrer für sein großes Engagement, das er für SNAKE aufbrachte,
- Herrn Dr. K. Sera für die Überlassung des Programms zur Berechnung der Ionisationsquerschnitte,
- Herrn H. Seeger und Herrn P. Hartung für die vielen Konstruktionen, die sie während meiner Arbeit anfertigten,
- den Herren R. Lang und M. Klöckner, der Werkstatt am Beschleunigerlabor sowie den Mitarbeitern der mechanischen Werkstatt des Physik Departments für die prompte und präzise Fertigung der großen Anzahl von Bauteilen,
- der Rechnergruppe des Beschleunigerlabors – R. Lutter, O. Schaile und K. Steinberger – für die Hilfe bei unzähligen Problemen rund um Rechner und Datenaufnahme,

- den Operateuren und der Betriebsmannschaft des Tandem Beschleunigers für die Unterstützung bei den Strahlzeiten; insbesondere den Herren W. Carli, H. Welzenbach und S. Koschatz für das Interesse an meiner Arbeit
- und allen weiteren Mitarbeitern von E12, die mir in den kleinen Dingen des täglichen Institutslebens geholfen haben.

Literaturverzeichnis

- [1] F. Watt, Nucl. Instr. and Meth. B **130** (1997) 1.
- [2] S.A.E. Johansson and T.B. Johansson, Nucl. Instr. and Meth. **137** (1976) 473.
- [3] M.Q. Ren, W.Y. Ong, J. Makjanic, and F. Watt, Nucl. Instr. and Meth. B **158** (1999) 418.
- [4] G. Demortier, F. Fernandez-Gomez, M.A. Ontalba Salamanca, and P. Coquay, Nucl. Instr. and Meth. B **158** (1999) 275.
- [5] G.S. Bench and G.J.F. Legge, Nucl. Instr. and Meth. B **40** (1989) 655.
- [6] M.Q. Ren, P.S.P. Thong, U. Kara, and F. Watt, Nucl. Instr. and Meth. B **150** (1999) 179.
- [7] G.W. Grime and F. Watt, *Principles and Application of High Energy Ion Microbeams*, Adam Hilger, Bristol, 1987.
- [8] T. Osipowicz, S.Y. Chiam, F. Watt, G. Li, and S.J. Chua, Nucl. Instr. and Meth. B **158** (1999) 653.
- [9] A. Bergmaier, Doktorarbeit, Technische Universität München, 1999.
- [10] Ch. Yang, E.J. Teo, T. Osipowicz, F. Watt, D. Jamieson, K.K. Lee, and B. Tomcik, Nucl. Instr. and Meth. B **158** (1999) 706.
- [11] B.L. Cohen, C.L. Fink, and J.H. Degnan, J. Appl. Phys. **43** (1972) 19.
- [12] T. Osipowicz, J.A. van Kan, T.C. Sum, J.L. Sanchez, and F. Watt, Nucl. Instr. and Meth. B **161** (2000) 83.
- [13] J.A. van Kan, J.L. Sanchez, T. Osipowicz, and F. Watt, Microsystem Technologies **6** (2000) 82.
- [14] C.G. Ryan, D.N. Jamieson, W.L. Griffin, and G. Cripps, Nucl. Instr. and Meth. B **158** (1999) 18.

- [15] T. Kamiya, T. Suda, and R. Tanka, Nucl. Instr. and Meth. B **104** (1995) 43.
- [16] T. Butz, R.-H. Flaggmeyer, J. Heitmann, D.N. Jamieson, G.J.F. Legge, D. Lehmann, U. Reibetanz, T. Reinert, A. Saint, D. Spemann, R. Szymanski, W. Tröger, J. Vogt, and J. Zhu, Nucl. Instr. and Meth. B **161** (2000) 323.
- [17] F. Watt, T. Osipowicz, T.F. Choo, I. Orlic, and S.M. Tang, Nucl. Instr. and Meth. B **136** (1998) 313.
- [18] F. Watt, I. Orlic, K.K. Loh, C.H. Sow, P. Thong, S.C. Liew, T. Osipowicz, T.F. Choo, and S.M. Tang, Nucl. Instr. and Meth. B **85** (1994) 708.
- [19] B.E. Fischer, Nucl. Instr. and Meth. B **10** (1985) 693.
- [20] B.E. Fischer, private Mitteilung.
- [21] G. Hinderer, G. Dollinger, G. Datzmann, and H.-J. Körner, Nucl. Instr. and Meth. B **130** (1997) 51.
- [22] P. Reichart, Diplomarbeit, Technische Universität München, 1999.
- [23] K.M. Prise, O.V. Belyakov, M. Folkard, and B.D. Micheal, Int. J. Radiat. Biol. **793** (1998) 74.
- [24] J.F. Ziegler, J.P. Biersack, and U. Littmark, *The Stopping and Range of Ions in Matter*, Pergamon Press, New York, 1985.
- [25] P. Sigmund and K.B. Winterbon, Nucl. Instr. and Meth. **119** (1974) 541.
- [26] A.D. Marwick and P. Sigmund, Nucl. Instr. and Meth. **126** (1975) 317.
- [27] G. Datzmann, G. Dollinger, A. Hauptner C. Goeden, H.-J. Körner P. Reichart, and O. Schmelmer, eingereicht bei Nucl. Instr. and Meth. B.
- [28] A. Hauptner, Diplomarbeit, Technische Universität München, 1999.
- [29] G.W. Grime and F. Watt, *Beam Optics of Quadrupol Probe-Forming Systems*, Adam Hilger, Bristol, 1984.
- [30] I.G. Brown, *The Physics and Technology of Ion Sources*, J. Wiley & Sons Inc., New York, 1989.
- [31] C. Goeden, Diplomarbeit, Technische Universität München, 1998.
- [32] High Voltage Engineering Europe, Amersfoort, Netherlands.

- [33] O. Schmelmer, G. Dollinger, G. Datzman, C. Goeden, and H.-J. Körner, Nucl. Instr. and Meth. B **158** (1999) 107.
- [34] U.A.S Tapper, W.R. McMurray, G.F. Ackermann, C. Churms, G. De Villiers, D. Fourie, P.J. Groenewald, J. Kritzing, C.A. Pineda, J. Pilcher, H. Schmitt, K. Springhorn, and T. Swart, Nucl. Instr. and Meth. B **77** (1993) 17.
- [35] G. Datzmann, Doktorarbeit, Technische Universität München.
- [36] W. Carli, P. Hartung, H. Jakob, H. Münzer, and L. Rohrer, Jahresbericht, Beschleunigerlaboratorium der Universität und der technischen Universität München (1996) 2.
- [37] K.L. Brown, D.C. Carey, and F. Rothacker, *Third-Order Transport, A Computer Program For Designing Charged Particle Beam Transport Systems*, 1995.
- [38] J. Adamczewski, J. Meijer, A. Stephan, H.H. Bukow, and C. Rolfs, Nucl. Instr. and Meth. B **114** (1996) 172.
- [39] E.J. Burger and D.A. Smith, Rev. Sci. Instr. **33** (1962) 1371.
- [40] S. Hildenbrandt and W. Krause, *Fertigungsgerechtes Gestalten in der Feingeräte-technik*, Vieweg, Braunschweig, 1977.
- [41] *Handbook of Chemistry and Physics*, pp. 10–239, CRC Press, London and Tokio, 1998.
- [42] M. Löffler, H.-J. Scheerer, and H. Vonach, Nucl. Instr. and Meth. **111** (1973) 1.
- [43] E. Zanotti, M. Bisenberger, R. Hertenberger, and H. Kader, Nucl. Instr. and Meth. B **310** (1991) 706.
- [44] Landolt-Börnstein, *Production of Radionuclides at Intermediate Energies*, Landolt-Börnstein, New Series I, Volume 13d, Springer-Verlag, 1994.
- [45] Landolt-Börnstein, *Production of Radionuclides at Intermediate Energies*, Landolt-Börnstein, New Series I, Volume 13a, Springer-Verlag, 1991.
- [46] C. Broude, R. Lutter, O. Schaile, K. Steinberger K. Schöffel, and P.G. Thiolf, Jahresbericht, Beschleunigerlaboratorium der Universität und der technischen Universität München (1998) 104.
- [47] H. Essel and N. Kurz, <http://www-gsi-vms.gsi.de/daq/home.html>.

- [48] Micron Semiconductor Ltd, Lancing, Sussex, England.
- [49] EG & G Ortec, Oak Ridge, Tennessee, USA.
- [50] P.N. Cooper, *Introduction to Nuclear Radiation Detectors*, Cambridge University Press, Cambridge, 1986.
- [51] L.C. Northcliffe and R.F. Schilling, Nucl. Data Tables A **7** (1970) 233.
- [52] F. Watt and J.P. Landberg, Nucl. Instr. and Meth. B **77** (1993) 249.
- [53] C.M. Frey, Doktorarbeit, Technische Universität München, 1997.
- [54] N. Bohr, Phil. Mag. **6** (1915) 30.
- [55] P.V. Vavilov, Sov. Phys. JETP **5** (1957) 749.
- [56] J. Lindhard and M. Scharff, Dan. Mat. Fys. Medd. **15** (1953) 27.
- [57] E. Bonderup and P. Hvelplund, Phys. Rev. A **4** (1971) 562.
- [58] F. Besenbacher, J.U. Andersen, and E. Bonderup, Nucl. Instr. and Meth. **168** (1980) 1.
- [59] C.M. Frey, G. Dollinger, A. Bergmaier, T. Faestermann, and P. Maier-Komor, Nucl. Instr. and Meth. B **99** (1995) 205.
- [60] O. Schmelmer, G. Dollinger, C.M. Frey, A. Bergmaier, and S. Karsch, Nucl. Instr. and Meth. B **145** (1998) 261.
- [61] J. Besserer, J. de Boer, W. Carli, P. Hartung, M. Moosburger, P. Quicken, L. Rohrer, and H. Steffens, Jahresbericht, Beschleunigerlaboratorium der Universität und der technischen Universität München (1996) 113.
- [62] M. Boulouednine, Diplomarbeit, Technische Universität München, 1992.
- [63] H. Halder, N. Menzel, B. Hietel, and K. Wittmaack, Nucl. Instr. and Meth. B **150** (1999) 90.
- [64] R.K. Dutta, M. Sudarshan, S.N. Bhattacharyya, V. Chakravorty, and S.N. Chintalapudi, Nucl. Instr. and Meth. B **143** (1998) 403.
- [65] L. Pages, E. Bertel, H. Joffre, and L. Sklavenitis, Atomic Data **4** (1972) 1.
- [66] A.G. Fitzgerald, *Quantitative Microbeam Analysis*, Proceedings of the Fortieth Scottish Universities Summer School in Physics, Dundee, 1993.

- [67] G. Kullerud, R.M. Steffen, P.C. Simms, and F.A. Rickley, *Chem. Geol.* **25** (1979) 245.
- [68] H. Mommsen, *Archäometrie*, Teubner Studienbücher, Stuttgart, 1986.
- [69] K. Ishii and S. Morita, *Nucl. Instr. and Meth. B* **34** (1988) 209.
- [70] G. Schmahl, D. Rudolph, G. Schneider, J. Thieme, T. Schliebe, B. Kaulich, and M. Hettwer, *Microelectronic Engineering* **32** (1996) 351.
- [71] A. Snigirev, V. Kohn, I. Snigireva, and B. Lengeler, *Nature* **384** (1996) 49.
- [72] G. Schmahl, D. Rudolph, B. Lengeler, and Ch. Schroer, *Phys. Blätter* **57** (2001) 43.
- [73] A. Knöchel, W. Petersen, and G. Tolkiehn, *Anal. Chim. Acta* **173** (1985) 105.
- [74] *Table of Isotopes*, Wiley-Interscience, 1996.
- [75] J. Byrne and N. Howarth, *J. Phys. B* **3** (1970) 280.
- [76] D.D. Cohen, *Nucl. Instr. and Meth. B* **22** (1987) 55.
- [77] J.A. Maxwell, J.L. Campbell, and W.J. Teesdale, *Nucl. Instr. and Meth. B* **43** (1989) 218.
- [78] I. Orlic, J. Makjanic, G.H.J. Tros, and R.D. Vis, *Nucl. Instr. and Meth. B* **49** (1990) 166.
- [79] O. Sakamoto, E. Iwamoto, J. Ishikawa, and T. Takagi, *Nucl. Instr. and Meth. B* **54** (1991) 75.
- [80] A. Denker and K.H. Maier, *Nucl. Instr. and Meth. B* **150** (1999) 118.
- [81] M.A. Reis and A.P. Jesus, *Atomic Data and Nuclear Data Tables* **63** (1996) 1.
- [82] I. Orlic, C.H. Sow, and S.M. Tang, *Atomic Data and Nuclear Data Tables* **56** (1994) 159.
- [83] M. Hajivaliei, S. Puri, M.L. Garg, D. Mehta, A. Kumar, S.K. Chamoli, D.K. Avasthi, A. Mandal, T.K. Nandi, K.P. Singh, N. Singh, and I.M. Govil, *Nucl. Instr. and Meth. B* **160** (2000) 203.
- [84] K. Shima, T. Mikumo, and H. Tawara, *Atomic Data and Nuclear Data Tables* **34** (1986) 357.

- [85] Z. Elekes, A.Z. Kiss, I. Biron, T. Calligaro, and J. Salomon, Nucl. Instr. and Meth. B **168** (2000) 305.
- [86] J.H. Hubbell and S.M. Seltzer, *Tables of X-Ray Mass Attenuation Coefficients and Mass Energy-Absorption Coefficients*, NITIR 5632, 1997.
- [87] O. Schmelmer, G. Dollinger, G. Datzmann, A. Hauptner, H.-J. Körner, and P. Reichart, eingereicht bei Nucl. Instr. and Meth. B.
- [88] S. Flügge, W. Mehlhorn, and V. Schmidt, Phys. Rev. Lett. **20** (1972) 7.
- [89] E.G. Berezhko and N.M. Kabachnik, J. Phys. B **10** (1977) 2467.
- [90] V.V. Sizov and N.M. Kabachnik, J. Phys. B **13** (1980) 1601.
- [91] H. Paul and J. Sacher, Atomic Data and Nuclear Data Tables **42** (1989) 105.
- [92] M. Poncet and Ch. Engelmann, Nucl. Instr. and Meth. **159** (1979) 455.
- [93] W. Brandt, R. Laubert, and I. Sellin, Phys. Lett. **21** (1966) 518.
- [94] W. Brandt and G. Lupicki, Phys. Rev. A **23** (1981) 1717.
- [95] K. Sera, private Mitteilung.
- [96] M.O. Krause, J. Phys. Chem. Ref. Data **8** (1979) 307.
- [97] D.V. Rao, R. Cesareo, and G.E. Gigante, Appl. Phys. A **62** (1996) 381.
- [98] T. Mukoyama, Int. J. PIXE **1** (1991) 209.
- [99] A.R. Azordegan, H.L. Sun, Y.C. Yu, J.L. Duggan, F.D. McDaniel, E.K. Lin, C.W. Wang, and G. Lapicki, J. Phys. B **30** (1997) 353.
- [100] J.M. Hansteen, O.M. Johnsen, and L. Kocbach, Atomic Data and Nuclear Data Tables **15** (1975) 305.
- [101] V.S. Nikolaev, Sov. Phys. JEPT **24** (1967) 847.
- [102] T.S. Ho, D. Umberger, R.L. Day, M. Lieber, and F.T. Chan, Phys. Rev. A **24** (1981) 705.
- [103] H.D. Betz, Rev. Mod. Phys. **44** (1972) 465.
- [104] G. Dollinger, T. Faestermann, and P. Maier-Komor, Nucl. Instr. and Meth. B **64** (1992) 422.

-
- [105] K. Ishii, T. Satoh, S. Matsuyama, H. Yamazaki, Y. Tokai, A. Sugimoto, and K. Yamamoto, *Int. J. PIXE* **9** (1999) 1.
- [106] J.E. Miraglia, *Phys. Rev. A* **39** (1988) 2908.
- [107] M.C. Pacher and J.E. Miraglia, *Phys. Rev. A* **41** (1990) 2574.
- [108] T.C. Chu, K. Ishii, A. Yamadera, M. Sebata, and S. Morita, *Phys. Rev. A* **24** (1981) 1720.
- [109] A. Yamadera, K. Ishii, K. Sera, M. Sebata, and S. Morita, *Phys. Rev. A* **23** (1981) 24.
- [110] H.W. Schnopper, J.P. Delvaille, K. Kalta, A.R. Sohval, M. Abdulwahab, K.W. Jonesa, and H.E. Wegner, *Phys. Lett. A* **47A** (1974) 61.
- [111] W. Lichten, *Phys. Rev. A* **9** (1974) 1458.
- [112] G. Datzmann, private Mitteilung.
- [113] K.A. Friedrich and U. Stimming, *Nachr. Chem. Tech. Lab.* **47** (1999) 198.
- [114] A. Friedrich, private Mitteilung.

Abbildungsverzeichnis

1.1	Prinzipieller Aufbau eines Rasterionenmikroskops.	2
2.1	Reichweite verschiedener Ionen in Silizium.	8
2.2	Volle laterale Halbwertsbreite eines Protonenstrahls in Kohlenstoff und Silizium in Abhängigkeit der Probendicke.	9
3.1	Schematische Darstellung des transversalen, eindimensionalen Phasenraums und Projektion der Impuls- und Ortsverteilung des Ionenstrahls.	12
3.2	Schematische Darstellung der Komponenten des Rasterionenmikroskops SNAKE am Münchener Tandem Beschleuniger.	15
3.3	Mittels TRANSPORT berechnete Einhüllende des Ionenstrahls in x- und y-Richtung.	16
3.4	Schnitt durch zwei Schlitzformen.	17
3.5	Schnitt durch eine Mikroschlitzhälfte.	19
3.6	Um die Zerstörung der Wafer bei geschlossenen Schlitzen zu vermeiden, sind beide Schlitzhälften zueinander versetzt.	20
3.7	Bestimmung der Schlitzapertur über den transmittierten Ionenstrahl.	22
3.8	Energieverteilung des Strahls hinter den Mikroschlitzen.	23
3.9	Energieverteilung des Strahls hinter den Mikroschlitzen bei einer Apertur von 4 μm für fünf verschiedene Winkelintervalle.	24
3.10	Verhältnis des integralen Spektrumsinhalts von niederenergetischem Ausläufer zum Maximum der Energieverteilung in Abhängigkeit der Schlitzapertur für verschiedene Winkelintervalle.	25
3.11	Seitenansicht des Experimentierplatzes.	27
3.12	Aufsicht auf die Probenkammer mit eingebauten Detektoren.	28
3.13	Schnitt durch die Ionisationskammer.	31
3.14	Ein mit der Ionisationskammer gemessenes Energiespektrum von 70 MeV Kohlenstoffionen.	32
3.15	Transmissionsaufnahme eines Goldgitters.	33
4.1	Energiespektrum eines Ionenstrahls bei STIM-Experimenten.	36

4.2	Absolute Dickenauflösung für 20 MeV Protonen, 70 MeV Kohlenstoff- und 90 MeV Schwefelionen in Abhängigkeit der Kohlenstoffdicke.	39
4.3	Übersicht über den 0°-Spektrographen.	41
4.4	Ausgangssignal des Zeilensensors für 20 MeV Protonen.	42
4.5	Energiespektrum des 90 MeV Schwefelstrahls.	44
5.1	Prinzip der teilcheninduzierten Röntgenfluoreszenzanalyse.	48
5.2	Fluoreszenzausbeuten in Abhängigkeit der Kernladungszahl.	49
5.3	Meßgeometrie zur teilcheninduzierten Röntgenfluoreszenzanalyse.	52
5.4	Röntgen- und Gammaspektrum der zur Energieeichung und Effizienzbestimmung verwendeten ²⁴¹ Am-Quelle.	54
5.5	Röntgenproduktionsquerschnitte für verschiedene Targetelemente.	57
5.6	Verhältnis der experimentell bestimmten Querschnitte zu den berechneten Werten $\sigma^{\text{exp.}}/\sigma^{\text{theor.}}$ für die K- und L-Röntgenproduktion.	58
5.7	Röntgenproduktionsquerschnitte für verschiedene Targetelemente.	60
5.8	Röntgenproduktionsquerschnitte für Eisen und Gold in Abhängigkeit der Protonenenergie.	63
5.9	Anordnung zur Bestimmung der Analysiertiefe schwerer Elemente.	65
5.10	Nachweis von Gold.	66
5.11	Beiträge zum kontinuierlichen Untergrund des Röntgenspektrums einer Goldfolie durch 16 MeV Protonen.	70
5.12	Einzelne Beiträge des Untergrunds durch Bremsstrahlung.	71
5.13	Beiträge zum kontinuierlichen Untergrund des Röntgenspektrums einer Goldfolie durch 70 MeV Kohlenstoffionen.	73
5.14	Nachweisgrenzen verschiedener Elemente in Kohlenstoff, Silizium und Gold.	75
5.15	Röntgenspektrum einer gewalzten Goldmedaille.	78
5.16	Röntgenspektrum einer Membran aus einer Direkt-Methanol-Brennstoffzelle.	80

A. Anhang

A.1 Bezeichnung der Röntgenlinien

Röntgenlinie	Übergang
K_{α_1}	K - L ₃
K_{α_2}	K - L ₂
K_{α_3}	K - L ₁
K_{β_1}	K - M ₃
K_{β_2}	K - N ₂ N ₃
K_{β_3}	K - M ₂
K_{β_4}	K - N ₄ N ₅
K_{β_5}	K - M ₄ M ₅
$KO_{2,3}$	K - O ₂ O ₃
$KP_{2,3}$	K - P ₂ P ₃
L_{α_1}	L ₃ - M ₅
L_{α_2}	L ₃ - M ₄
L_{β_1}	L ₂ - M ₄
$L_{\beta_{2,15}}$	L ₃ - N ₄ M ₅
L_{β_3}	L ₁ - M ₃
L_{β_4}	L ₁ - M ₂
L_{β_5}	L ₃ - O ₄ O ₅
L_{β_6}	L ₃ - N ₁
L_{γ_1}	L ₂ - N ₄
L_{γ_2}	L ₁ - N ₂
L_{γ_3}	L ₁ - N ₃
L_{γ_6}	L ₂ - O ₄
L_{ν}	L ₂ - M ₁
L_l	L ₃ - M ₁

Bezeichnung der Röntgenlinien (Siegbahn Notation). Tabelle aus [74].

A.2 Röntgenproduktionsquerschnitte

A.2.1 Querschnitte für 16 MeV Protonen

Z	$\sigma_K^{\text{exp.}}$ [barn]	$\sigma_K^{\text{semi.}}$ [barn]	σ_K^{ECPSSR} [barn]
26	$(4.68 \pm 0.57) \cdot 10^2$	$(4.34 \pm 0.28) \cdot 10^2$	$(4.93 \pm 0.25) \cdot 10^2$
27	$(6.18 \pm 0.79) \cdot 10^2$	$(4.07 \pm 0.20) \cdot 10^2$	$(4.56 \pm 0.23) \cdot 10^2$
28	$(3.43 \pm 0.43) \cdot 10^2$	$(3.78 \pm 0.19) \cdot 10^2$	$(4.21 \pm 0.21) \cdot 10^2$
40	$(7.12 \pm 0.86) \cdot 10^1$	$(1.09 \pm 0.65) \cdot 10^2$	$(1.23 \pm 0.73) \cdot 10^2$
42	$(5.07 \pm 0.61) \cdot 10^1$	$(8.45 \pm 0.52) \cdot 10^1$	$(9.72 \pm 0.58) \cdot 10^1$
44	$(7.91 \pm 0.95) \cdot 10^1$	$(6.55 \pm 0.39) \cdot 10^1$	$(7.68 \pm 0.46) \cdot 10^1$
46	$(2.19 \pm 0.26) \cdot 10^1$	$(5.06 \pm 0.30) \cdot 10^1$	$(6.06 \pm 0.37) \cdot 10^1$
47	$(3.89 \pm 0.47) \cdot 10^1$	$(4.44 \pm 0.27) \cdot 10^1$	$(5.38 \pm 0.32) \cdot 10^1$
62	5.88 ± 0.51	6.15 ± 0.37	9.03 ± 0.54
64	4.35 ± 0.37	4.75 ± 0.29	7.16 ± 0.42
66	1.73 ± 0.29	3.67 ± 0.22	5.71 ± 0.36
68	2.15 ± 0.19	2.84 ± 0.17	4.56 ± 0.28
75	1.17 ± 0.10	1.18 ± 0.07	2.14 ± 0.13
78	1.02 ± 0.18	$(8.11 \pm 0.05) \cdot 10^{-1}$	1.56 ± 0.09
79	1.04 ± 0.19	$(7.23 \pm 0.04) \cdot 10^{-1}$	1.41 ± 0.08

Z	$\sigma_L^{\text{exp.}}$ [barn]	$\sigma_L^{\text{semi.}}$ [barn]	σ_L^{ECPSSR} [barn]
62	$(1.32 \pm 0.13) \cdot 10^3$	$(1.12 \pm 0.99) \cdot 10^3$	$(8.81 \pm 0.78) \cdot 10^2$
64	$(1.20 \pm 0.12) \cdot 10^3$	$(1.06 \pm 0.93) \cdot 10^3$	$(8.47 \pm 0.75) \cdot 10^2$
66	$(9.91 \pm 0.98) \cdot 10^2$	$(9.89 \pm 0.87) \cdot 10^2$	$(8.15 \pm 0.72) \cdot 10^2$
68	$(7.31 \pm 0.72) \cdot 10^2$	$(9.24 \pm 0.82) \cdot 10^2$	$(7.83 \pm 0.69) \cdot 10^2$
75	$(5.08 \pm 0.49) \cdot 10^2$	$(7.04 \pm 0.63) \cdot 10^2$	$(6.53 \pm 0.58) \cdot 10^2$
78	$(7.51 \pm 0.93) \cdot 10^2$	$(6.17 \pm 0.55) \cdot 10^2$	$(5.94 \pm 0.53) \cdot 10^2$
79	$(5.04 \pm 0.50) \cdot 10^2$	$(5.89 \pm 0.52) \cdot 10^2$	$(5.75 \pm 0.52) \cdot 10^2$

Experimentelle, semiempirische und theoretische Röntgenproduktionsquerschnitte σ_K und σ_L .

A.2.2 Querschnitte für 70 MeV Kohlenstoff

Z	$\sigma_K^{\text{exp.}}$ [barn]	$\sigma_K^{\text{semi.}}$ [barn]	σ_K^{ECPSSR} [barn]
26	$(7.87 \pm 0.99) \cdot 10^4$	$(1.14 \pm 0.68) \cdot 10^4$	$(1.23 \pm 0.61) \cdot 10^4$
27	$(1.57 \pm 0.20) \cdot 10^4$	$(9.77 \pm 0.59) \cdot 10^3$	$(1.07 \pm 0.53) \cdot 10^4$
28	$(1.16 \pm 0.83) \cdot 10^4$	$(8.36 \pm 0.50) \cdot 10^3$	$(9.23 \pm 0.46) \cdot 10^3$
40	$(3.42 \pm 0.41) \cdot 10^2$	$(1.03 \pm 0.62) \cdot 10^3$	$(1.33 \pm 0.67) \cdot 10^3$
42	$(4.06 \pm 0.49) \cdot 10^2$	$(7.16 \pm 0.43) \cdot 10^2$	$(9.53 \pm 0.48) \cdot 10^2$
44	$(4.12 \pm 0.49) \cdot 10^2$	$(5.02 \pm 0.30) \cdot 10^2$	$(6.84 \pm 0.34) \cdot 10^2$
46	$(9.36 \pm 0.11) \cdot 10^1$	$(3.51 \pm 0.21) \cdot 10^2$	$(4.89 \pm 0.24) \cdot 10^2$
47	$(1.44 \pm 0.17) \cdot 10^2$	$(2.94 \pm 0.18) \cdot 10^2$	$(4.18 \pm 0.21) \cdot 10^2$
62	4.06 ± 0.35	$(2.30 \pm 0.14) \cdot 10^1$	$(4.18 \pm 0.21) \cdot 10^1$
64	3.78 ± 0.32	$(1.66 \pm 0.99) \cdot 10^1$	$(3.16 \pm 0.16) \cdot 10^1$
66	$(8.71 \pm 1.16) \cdot 10^{-1}$	$(1.21 \pm 0.73) \cdot 10^1$	$(2.41 \pm 0.12) \cdot 10^1$
68	2.17 ± 0.19	8.83 ± 0.53	$(1.85 \pm 0.09) \cdot 10^1$
70	1.06 ± 0.09	6.46 ± 0.39	$(1.43 \pm 0.07) \cdot 10^1$

Z	$\sigma_L^{\text{exp.}}$ [barn]	$\sigma_L^{\text{semi.}}$ [barn]	σ_L^{ECPSSR} [barn]
62	$(1.31 \pm 0.12) \cdot 10^4$	$(2.21 \pm 0.13) \cdot 10^4$	$(2.18 \pm 0.19) \cdot 10^4$
64	$(1.07 \pm 0.10) \cdot 10^4$	$(1.97 \pm 0.12) \cdot 10^4$	$(1.96 \pm 0.17) \cdot 10^4$
66	$(6.09 \pm 0.62) \cdot 10^3$	$(1.74 \pm 0.10) \cdot 10^4$	$(1.78 \pm 0.16) \cdot 10^4$
68	$(7.41 \pm 0.74) \cdot 10^3$	$(1.54 \pm 0.09) \cdot 10^4$	$(1.60 \pm 0.14) \cdot 10^4$
70	$(4.21 \pm 0.59) \cdot 10^3$	$(1.37 \pm 0.08) \cdot 10^4$	$(1.43 \pm 0.13) \cdot 10^4$
75	$(5.47 \pm 0.53) \cdot 10^3$	$(9.84 \pm 0.59) \cdot 10^3$	$(1.13 \pm 0.10) \cdot 10^4$
78	$(7.72 \pm 0.77) \cdot 10^3$	$(8.01 \pm 0.48) \cdot 10^3$	$(8.99 \pm 0.84) \cdot 10^3$
79	$(6.35 \pm 0.63) \cdot 10^3$	$(7.47 \pm 0.44) \cdot 10^3$	$(8.45 \pm 0.79) \cdot 10^3$

Experimentelle, semiempirische und theoretische Röntgenproduktionsquerschnitte σ_K und σ_L .