

Untersuchung über die Emission positiver Sekundärionen und die Reflexion von Edelgasionen an Festkörperoberflächen

Von V. WALTHER und H. HINTENBERGER

Aus dem Max-Planck-Institut für Chemie (Otto-Hahn-Institut), Mainz

(Z. Naturforsch. 18 a, 843–853 [1963]; eingegangen am 30. April 1963)

Rare gas ions He^+ , Ne^+ , Ar^+ , Kr^+ and Xe^+ , the energy of which could be continuously varied between 100 and 30 000 eV, were produced in an electron impact ion source, and focussed on a target. The secondary target ions were measured. A portion of the secondary ions was analysed in a parabola spectrograph according to their masses and energies. The yield of positive secondary ions of graphite, copper, and gold targets increases slowly with increasing primary energies, starting at 4 keV. It further shows a systematic dependence on primary ion mass. The results are described by an empirical formula. At a primary energy between 1 and 2 keV the yield curves show a maximum, the height of which depends on the previous treatment of the target.

The target materials graphite, aluminium, iron, copper, silver, tantalum, tungsten, platinum, and gold were investigated with the parabola spectrograph. The spectra, detected on a photographic plate, consist 1) of the mass spectrum of the secondary ions from the target material and of the ions resulting from surface contaminations and 2) of the spectrum of reflected rare gas ions. The ions of type 1) appear at an energy value corresponding to the post-acceleration of the parabola spectrograph. The reflected rare gas ions which were monoenergetic prior to reflection blacken a sharply defined portion of the parabola which increases in length with decreasing mass of primary ions m_1 and increasing mass of target atoms m_2 . If the masses of the rare gas ions exceeded that of the target material, no reflected ions could be observed. A sharp intensity maximum is superimposed on that portion of the parabola which is due to the reflected rare gas ions. The position of this intensity maximum exhibits a systematic change with regard to the end portions of the parabola with the mass number of both reflected ions and target atoms.

Bei Beschuss eines Festkörpers mit Ionen werden aus dem Festkörper, dem Target, Gitterbausteine ausgelöst, die als neutrale Atome oder als Ionen die Oberfläche verlassen. Untersucht man sämtliche vom Target ausgehenden Teilchen ohne Berücksichtigung ihrer Ladung, indem man z. B. den Gewichtsverlust des Targetmaterials nach dem Ionenbeschuss oder die Menge des auf einem Kollektor niedergeschlagenen Targetmaterials mißt, so spricht man von Zerstäubung (*sputtering*). Zusammenfassende Berichte über die Zerstäubung geben MASSEY und BURHOP¹ und WEHNER². Betrachtet man dagegen nur diejenigen Teilchen, die positiv oder negativ geladen das Target verlassen, so spricht man von Sekundärionenemission.

Außer den aus dem Targetmaterial ausgelösten Ionen, den eigentlichen Sekundärionen, beobachtet man auch Ionen und Atome, die von Oberflächen-

verunreinigungen herrühren und Ionen und Atome von dem Element, das auf den Festkörper aufgeschossen wird. Diese beiden Gruppen werden, soweit es möglich ist, getrennt von der eigentlichen Sekundärionenemission behandelt. Durch Messung mit elektrischen Auffängern lassen sich die einzelnen Stromanteile meistens nicht voneinander unterscheiden. Deshalb wurden in dieser Arbeit die vom Target ausgehenden Sekundärströme außer durch Auffänger zusätzlich auch mit einem Parabelspektrographen untersucht, in welchem die positiven Ionenströme nach Massen und Energien getrennt und auf Photoplaten registriert wurden. Im Vergleich zu den zahlreichen Arbeiten, die sich mit der Zerstäubung beschäftigen, gibt es nur wenige Veröffentlichungen, bei denen die Sekundärionen untersucht und nach Massen analysiert wurden, wobei als Analysator bisher stets ein Massenspektrometer verwendet wurde^{3–10}.

¹ H. S. W. MASSEY u. E. H. S. BURHOP, *Electronic and Ionic Impact Phenomena*, Clarendon Press, Oxford 1952.

² G. K. WEHNER, *Advances in Electronics and Electronphysics*, Academic Press, Inc. Vol. VII, S. 239, New York 1955.

³ R. E. HONIG, *J. Appl. Phys.* **29**, 549 [1958].

⁴ R. C. BRADLEY, *J. Appl. Phys.* **30**, 1 [1959].

⁵ R. C. BRADLEY, A. ARKING u. D. S. BEERS, *J. Chem. Phys.* **33**, 764 [1960].

⁶ R. C. BRADLEY u. E. RUEDL, *J. Appl. Phys.* **33**, 880 [1962].

⁷ H. E. STANTON, *J. Appl. Phys.* **31**, 678 [1960].

⁸ V. J. VEKSLER, *Sov. Phys.* **11**, 235 [1960].

⁹ J. H. CARMICHAEL u. E. A. TRENDLENBURG, *J. Appl. Phys.* **29**, 1570 [1958].

¹⁰ B. V. PANIN, *Sov. Phys.* **14**, 1 [1962]; **15**, 215 [1962].



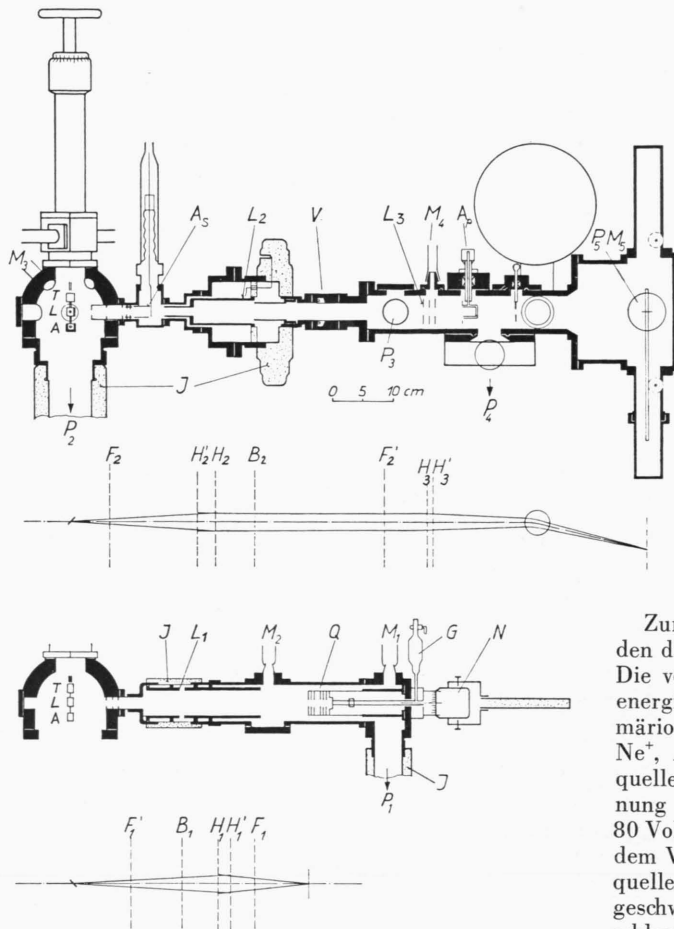


Abb. 1. Schematisierte Abbildung der Apparatur. Man denke sich den unteren Teil (Ionenquelle Q mit Beschleunigungslinse L_1) um die Targetachse TLA um 90° aus der Zeichenebene herausgedreht, so daß der Primärionenstrahl und der im Parabelspektrographen untersuchte Strahl einen rechten Winkel miteinander einschließen. Die Bezugslinie B_i , auf welche die Lage der Haupt- und Brennebenen $H_iH'_i$, $F_iF'_i$ des stark schematisierten Strahlengangs bezogen wird, liegt jeweils in der Mitte des Rohrlinsenspaltes.

1. Apparatur

Zur Untersuchung der Sekundärionenemission wurden die Targetmaterialien mit Edelgasionen beschossen. Die verwendete Apparatur zeigt Abb. 1. Um möglichst energiehomogene und vorwiegend einfach geladene Primärionen zu erhalten, wurden die Edelgasionen He^+ , Ne^+ , Ar^+ , Kr^+ und Xe^+ in einer Elektronenstoßionenquelle Q erzeugt. Die Elektronenbeschleunigungsspannung in der Ionenquelle betrug bei allen Messungen 80 Volt. Das Gas gelangte über ein Nadelventil N aus dem Vorratsgefäß G direkt in den Stoßraum der Ionenquelle. Die Edelgasionen konnten stufenlos auf Voltgeschwindigkeiten zwischen 100 eV und 30 000 eV beschleunigt werden. Eine elektrostatische Rohrlinse L_1 fokussierte die Primärionen zu einem kleinen Brennfleck auf das Target T, so daß dort Stromdichten bis zu $1,3 \cdot 10^{-5} \text{ A/cm}^2$ erreicht wurden. Um den Primärstrom zu messen, wurde durch Hochziehen des Targets an die Stelle des Brennflecks ein Auffänger A mit Schutzpotentialblende gebracht. Zur Kontrolle der Größe des Brennflecks war zwischen Target und Auffänger ein Leuchtschirm L befestigt. Das zu untersuchende Targetmaterial in Form von Plättchen befand sich auf einem Öfchen, das durch ein Wolframband auf über 600°C aufgeheizt werden konnte. Die Temperatur wurde mit einem Nickel-Chromnickel-Thermoelement gemessen. Das Öfchen war, um den Einfallswinkel ändern zu können, um seine vertikale, durch die Targetoberfläche gehende Achse drehbar. Bei allen hier mitgeteilten Messungen betrug jedoch der Einfallswinkel der Primärionen stets 45° .

Die vom Target ausgehenden positiven Ionenströme wurden durch zwei elektrische Auffänger A_s gemessen, die unter den Austrittswinkeln 0° und 45° zur Oberflächennormalen des Targets angebracht waren. Zwei Abschirmblenden, die das Potential des Targets und seiner Umgebung hatten und vor den Auffängern angebracht waren, sollten den Raumwinkel begrenzen und

Um bei der Untersuchung der Sekundärionenemission übersichtliche Ergebnisse zu erhalten, soll der primäre Ionenstrahl, der auf das Target aufgeschossen wird, möglichst nur aus Teilchen eines Elementes mit einheitlicher Masse, einheitlichem Ladungszustand und einheitlicher Energie bestehen. Primärionen, die mit dem Target chemisch reagieren oder sich auf der Targetoberfläche anlagern (Bildung von Selbsttargets), sollen vermieden werden. Der Raum vor dem Target soll feldfrei sein, damit die das Target verlassenden Teilchen in ihrer Laufrichtung unbeeinflusst bleiben. Ferner soll der Restgasdruck in der Apparatur so niedrig sein, daß die Zahl der pro Zeiteinheit auf die Targetoberfläche auftreffenden Restgasmoleküle¹¹ kleiner als die Zahl der auftreffenden Primärionen ist. Diese Forderung führt bei gegebenem Vakuum zu einer unteren Grenze für die primäre Ionenstromdichte.

¹¹ S. DUSHMAN, Sci. Found of Vac. Techn., S. 17, 1949.

verhindern, daß das Feld der Schutzpotentialblende gegen die Sekundärelektronen in den Targetraum durchgriff. Der Raumwinkel, unter dem die Sekundärteilchen erfaßt wurden, betrug $1,04 \cdot 10^{-2}$ steradian. Blendensystem und Auffängerkäfig waren getrennt gehalten, so daß keine Kriechströme von den Blenden zum Käfig gelangen konnten. Der Nachweis der Sekundärströme erfolgte mit einem Schwingkondensator-Meßverstärker. Es konnten $2 \cdot 10^{-14}$ A nachgewiesen werden. Primärstrahl, Targetnormale und die Auffänger für die Sekundärströme befanden sich stets in einer Ebene.

Bei dem Auffänger A_s , der unter 45° angebracht war, konnte die Rückwand des Käfigs hochgezogen werden, ohne daß dadurch das Blendensystem verändert wurde. Somit gelangten die sonst im Auffänger gemessenen Ionen in einen Parabelspektrographen, in dem sie mit 15 kV nachbeschleunigt und in zwei zueinander parallelen elektrischen und magnetischen Feldern nach Massen und Energien getrennt wurden. Die elektrische Ablenkspannung lag direkt an den isoliert in das Hochvakuum eingeführten Magnetpolschuhen. Da die vom Target ausgehenden Sekundärströme sehr klein waren (10^{-11} bis 10^{-13} A), wurden in den Parabelspektrographen statt der sonst üblichen langen Kollimatorstrecke eine Rohrimmersions- und eine Drei-Lochblenden-Einzellinse großer Apertur eingebaut (L_2 und L_3). Durch die Fokussierung des Strahls mit den beiden elektrostatischen Linsen im Parabelspektrographen wurde ein beträchtlicher Gewinn an Intensität erzielt und damit relativ kurze Belichtungszeiten erreicht.

Ionenquelle und Targetraum bis zum Ventil V bestanden aus Edelstahl, die Flansche waren mit Aluminiumdichtungen¹² und die beweglichen Durchführungen über Edelstahlwellkörper gedichtet. Die elektrischen Durchführungen sowie die Fenster und die Ionisationsmanometerröhren waren an Vaconmetall angeschmolzen, die Meßleitungen im Vakuum durch Edelstahlrohre abgeschirmt. Ionenquelle und Targetraum waren bis etwa 100°C ausheizbar, wobei die Höhe der Ausheiztemperatur durch 4 gegossene Hochspannungsisolatoren aus Araldit (J) begrenzt war. Dieser Teil der Apparatur wurde über 2 Hg-Diffusionspumpen P_1 , P_2 evakuiert. Der Restgasdruck betrug ohne Gaseinlaß $2 \cdot 10^{-7}$ Torr, gemessen mit den Ionisationsmanometern M_1 bis M_3 . Der Parabelspektrograph, der aus vernickeltem Messing bestand und mit Gummi-O-Ringen gedichtet war, wurde über drei Öldiffusionspumpen P_3 bis P_5 evakuiert, der Druck mit den Ionisationsmanometern M_4 und M_5 gemessen. Der Restgasdruck im Parabelspektrographen lag meistens zwischen 1 bis $3 \cdot 10^{-6}$ Torr.

2. Die Ausbeute an positiven Ionen

Für die Ausbeutemessungen wurden nur die elektrischen Auffänger benötigt. Es wurde kontinuierlich ein Gasstrom in die Ionenquelle eingelassen. Da-

durch stieg der Druck im Targetraum je nach der eingelassenen Gasmenge von $2 \cdot 10^{-7}$ Torr auf einen Wert zwischen $1 \cdot 10^{-6}$ und $6 \cdot 10^{-6}$ Torr an. Während der Messung mußte der Druck konstant bleiben. Es wurde dann der Primärstrom I_p mit dem Auffänger A an der Stelle des Brennflecks, und zwar, um eventuelle zeitliche Veränderungen während der Messung zu erkennen, sowohl bei zunehmender und abnehmender Beschleunigungsspannung gemessen. Anschließend kam das Target an die Stelle des Brennflecks und es wurden mit dem Auffänger A_s unter 0° und 45° zur Targetnormalen die Sekundärströme $i^+(0^\circ)$ und $i^+(45^\circ)$ bestimmt, ebenfalls bei zunehmender und abnehmender Beschleunigungsspannung. Unmittelbar danach wurde wieder I_p gemessen. Der Druck an der Ionenquelle war nach dem Gaseinlaß etwa 100-mal größer als vor dem Gaseinlaß, so daß man annehmen kann, daß der Anteil der in der Ionenquelle gebildeten Restgasionen im Primärstrahl nur etwa 1% betrug.

Mit der Messung der Ausbeute an positiven Ionen wird die Anzahl der Ionen bestimmt, die im Mittel beim Auftreten eines Primärions von der Targetoberfläche ausgeht. Der gemessene positive Sekundärstrom i^+ setzt sich zusammen aus den eigentlichen Sekundärionen, die aus dem Targetmaterial stammen, aus den positiven Ionen von Oberflächenverunreinigungen und aus den positiven Primärionen, die am Target reflektiert werden (diese Zusammensetzung des gemessenen Sekundärstroms entnimmt man z. B. den später diskutierten Parabelspektren). In dieser Arbeit werden die Werte für die Ausbeute so mitgeteilt, wie sie aus den gemessenen Strömen i^+ und I_p erhalten werden. Ist der Sekundärstrom stets proportional dem Primärstrom, dann kann man die Ausbeute an positiven Ionen durch den Quotienten $\gamma^+ = i^+/I_p$ definieren. Die so definierte Ausbeute bezieht sich also nicht nur auf die eigentlichen Sekundärionen aus dem Targetmaterial.

Mit den Auffängern wurden nur diejenigen Sekundärströme gemessen, die unter den Austrittswinkeln 0° und 45° in den durch das Blendensystem des Auffängers vorgegebenen festen Raumwinkel $\Delta\Omega$ gelangten. Um einen Anhaltspunkt zu bekommen, wie groß die gesamte Ausbeute im Raumwinkel 2π ist, kann man unter Zugrundelegung des allerdings nur annähernd erfüllten cos-Gesetzes für die Ausbeute in Abhängigkeit vom Aus-

¹² H. HINTENBERGER, Z. Naturforschg. 6 a, 459 [1951].

trittswinkel β^{13-15} über den halben Raumwinkel integrieren

$$i^+(2\pi) = \frac{i^+(0^\circ)}{\Delta\Omega} 2\pi \int_0^{\pi/2} \cos\beta \sin\beta d\beta = i^+(0^\circ) \frac{\pi}{\Delta\Omega}.$$

Mit dem geometrisch bestimmten Wert für $\Delta\Omega = 1,04 \cdot 10^{-2}$ steradian gibt $\pi/\Delta\Omega \approx 300$. Multipliziert man also den unter 0° gemessenen Sekundärstrom mit 300, so erhält man näherungsweise den emittierten Sekundärstrom für den gesamten Raumwinkel 2π , wobei die reflektierten Ionen, die das cos-Gesetz verfälschen, unberücksichtigt bleiben.

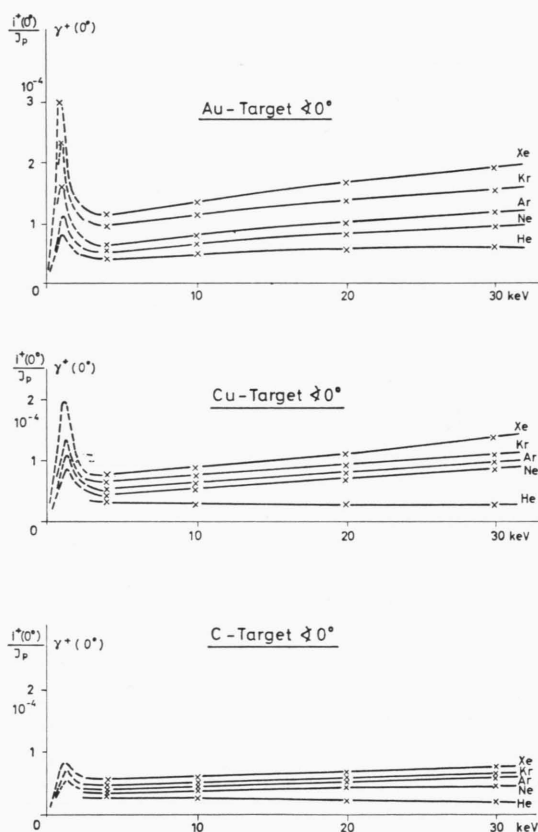


Abb. 2. Die Ausbeute $i^+(0^\circ)/I_p$ von positiven Ionen in Abhängigkeit von der Energie der Edelgasionen bei einem Gold-, Kupfer- und Graphittarget. Der Einschusswinkel betrug 45° , der Austrittswinkel 0° zur Targetnormalen. Die Maxima sind gestrichelt eingezeichnet, da ihre Höhe u. a. stark von der Targetvorbehandlung abhängt.

Die Ausbeute von positiven Ionen wurde in Abhängigkeit von Energie und Masse der Edelgasionen, vom Austrittswinkel, von der Bestrahlungszeit und der Targettemperatur gemessen. Abb. 2 zeigt als charakteristisches Beispiel die Ausbeute als Funktion der Energie der Edelgasionen bei einem Gold-, Kupfer- und Graphittarget, jeweils gemessen bei 20°C unter dem Austrittswinkel 0° . Die Beschleunigungsspannung der Primärionen wurde kontinuierlich verändert. Der Übersichtlichkeit wegen sind in Abb. 2 nur einige der Meßpunkte eingezeichnet.

Die in den folgenden Abschnitten mitgeteilten Ergebnisse sind repräsentativ für eine große Zahl von Einzelmessungen. Die Ausbeute wurde an mehreren Targetproben aus dem gleichen Material bestimmt. Dabei schwankten die Ausbeutewerte nach gleicher Vorbehandlung des Targets bis zu 20%. Auch wenn die Messungen nach längeren Zeiträumen (einigen Monaten) wiederholt wurden, ergaben sich innerhalb dieser Fehlergrenzen die gleichen Werte.

Ab 4 keV steigt die Ausbeute für Ne^+ , Ar^+ , Kr^+ und Xe^+ bei den drei Targetmaterialien mit wachsender Primärenergie langsam an. Die Ausbeutekurven für positive Ionen zeigen qualitativ etwa den gleichen Verlauf mit der Energie, wie er von mehreren Autoren^{13, 14, 16} experimentell für die Zerstäubungsausbeuten (Zahl der neutralen und ionisierten Teilchen pro einfallendes Ion) gefunden wurde. Man kann nun die Werte der Zerstäubungsausbeute, bezogen auf gleiche Energie der Edelgasionen, gleichen Raumwinkel und gleiches Targetmaterial mit den hier mitgeteilten Messungen für positive Ionen vergleichen. Dieser Vergleich wird natürlich keine genauen Werte ergeben, da die Versuchsbedingungen bei den einzelnen Autoren sehr unterschiedlich sind. Jedoch kann man dem Vergleich z. B. mit den Werten von ALMÉN und BRUCE¹⁶, ROL, FLUIT und KISTEMAKER¹³ sowie YONTS, NORMAND und HARRISON¹⁷ entnehmen, daß etwa 1% des bei Ionenbeschuss zerstäubten Materials positiv geladen ist¹⁸.

Die Ausbeute an positiven Ionen, gemessen unter 0° zur Targetnormalen, zeigt ferner einen eindeutigen Gang mit der Massenzahl der Edelgasionen. Die Ausbeute bei entsprechenden Energien liegt um so

¹³ P. K. ROL, J. M. FLUIT u. J. KISTEMAKER, Physica **26**, 1000 [1960].

¹⁴ F. GRÖNLUND u. W. J. MOORE, J. Chem. Phys. **32**, 1540 [1960].

¹⁵ B. COBIĆ u. B. PEROVIĆ, Proc. 4. Int. Conf. of Ionization Phenomena in Gases, North Holland Publ. Co., Amsterdam, Vol. 1, p. 260, 1959.

¹⁶ O. ALMÉN u. G. BRUCE, Nucl. Instr. Meth. **11**, 257 [1961].

¹⁷ O. C. YONTS, C. E. NORMAND u. D. E. HARRISON, J. Appl. Phys. **31**, 447 [1960].

¹⁸ V. WALTHER u. H. HINTENBERGER, Z. Naturforsch. **17 a**, 1034 [1962].

höher, je größer die Masse der Edelgasionen ist. Für He^+ ist die Ausbeute stets am kleinsten, für Xe^+ stets am größten. Die gleiche Massenabhängigkeit wurde allgemein auch bei der Messung der Zerstäubungsausbeuten beobachtet^{13, 14, 16, 17}, wobei man nur die Ergebnisse bei Beschuß mit gleichartigen Ionen, z. B. mit Edelgasionen, untereinander vergleichen kann. Unter 45° gelangt ein besonders hoher Anteil von am Target reflektierten Primärionen in den Auffänger, so daß man unter diesem Winkel bei der elektrischen Messung nicht diese systematische Massenabhängigkeit der Ausbeute an positiven Ionen beobachten kann. Erst wenn man die unter 45° vom Target ausgehenden Ionen in dem Parabelspektrographen analysiert, wobei die eigentlichen Sekundärionen und die Ionen der Oberflächenverunreinigungen von den reflektierten Ionen getrennt werden, erkennt man auch hier die erwähnte Massenabhängigkeit der Ausbeute.

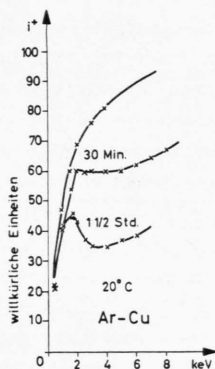


Abb. 3 a.

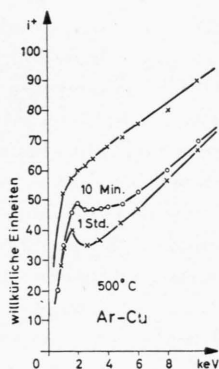


Abb. 3 b.

Abb. 3 a, b. Das Maximum nach verschieden langer Bestrahlungszeit für Ar^+ auf Cu bei 20°C und bei 500°C , zunächst bei einer zuvor unbestrahlten Oberfläche, dann nach den angegebenen Bestrahlungszeiten.

Die Ausbeutekurven der positiven Ionen zeigen zwischen 1 und 2 keV ein Maximum, welches bisher nicht beobachtet worden ist. Abb. 3 a zeigt die Ausbildung des Maximums für das Beispiel Ar^+ auf Cu in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit. Eine zuvor unbestrahlte Cu-Oberfläche ergibt einen sehr großen Sekundärstrom i^+ , dessen Verlauf in Abhängigkeit von der Energie jedoch kein Maximum zeigt. Nach 30 min langem Beschuß des Cu-Targets mit 30 keV Ar^+ -Ionen ist das Maximum angedeutet, nach $1\frac{1}{2}$ -stündigem Beschuß mit 30 keV Ar^+ -Ionen ist es ausgeprägt. Die Ausbildung des Maximums mit der Bestrahlungszeit bei 500°C zeigt Abb. 3 b. Bei mehrstündigem Beschuß

des Cu-Targets mit 30 keV Ar^+ -Ionen nimmt die Intensität des Maximums wieder ab, bleibt aber durchaus meßbar. Das Maximum wurde stets unter den Austrittswinkeln 0° und 45° zur Targetnormalen gemessen.

Ein Vergleich der Maxima bei den drei Targetmaterialien, Abb. 2, zeigt, daß das Maximum im allgemeinen am stärksten bei Gold, weniger stark bei Kupfer und in der Regel am schwächsten bei Graphit ausgeprägt ist. Für Xe^+ und Kr^+ ist es stärker als für Ne^+ und He^+ . Nur für He^+ auf Graphit kann kein Maximum mehr festgestellt werden. Bei einem Versuch wurde der Sekundärstrom für He^+ auf Graphit gemessen, der kein Maximum zeigt, unmittelbar danach Ar eingelassen und ein Maximum beobachtet. Anschließend wurde wieder mit He gemessen und kein Maximum gefunden.

Soweit aus den bisherigen Messungen hervorgeht, liegt das Maximum stets bei $1,6 \pm 0,4$ keV. Innerhalb dieser Grenzen konnte bisher kein Einfluß des Targetmaterials, der Masse der aufgeschossenen Edelgasionen, der Größe des Primärstromes oder des Restgasdruckes in der Apparatur auf die Lage des Maximums festgestellt werden.

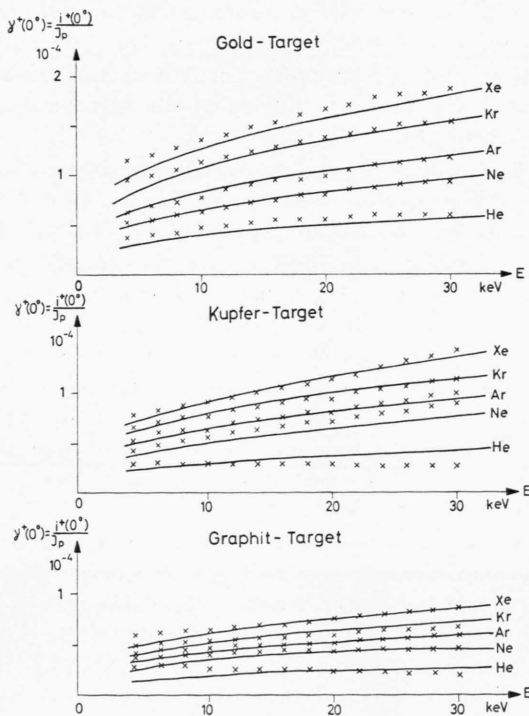


Abb. 4. Die eingezeichneten Kreuze sind Meßpunkte, die ausgezogenen Kurven sind mit der empirischen Formel für den Austrittswinkel 0° ($i^+(0^\circ)$) berechnet. Die Ordinate ist im Vergleich zu Abb. 2 um das Doppelte vergrößert.

Abb. 4 zeigt nochmals die Ausbeute an positiven Ionen in Abhängigkeit von der Energie in dem Bereich zwischen 4 und 30 keV. Die eingezeichneten Kreuze sind Meßpunkte. Die Ordinate ist im Vergleich zu Abb. 2 um das Doppelte vergrößert. Es wurde nun versucht, die gemessenen Kurven für He, Ne, Ar, Kr und Xe auf Gold, Kupfer und Graphit durch eine empirische Formel darzustellen. Läßt man zunächst die beiden Kurven für He auf Kupfer und Graphit unberücksichtigt, so lassen sich die hier gefundenen Ausbeutewerte für den Raumwinkel 2π beschreiben durch die empirische Formel

$$\gamma^+(2\pi) = C m_2^\alpha m_1^\beta E^\epsilon$$

mit den Konstanten $C = 9 \cdot 10^{-4}$, $\alpha = 1/4$, β und ϵ beide gleich $1/3$, wenn E in keV und m_1 und m_2 in Atomgewichtseinheiten gemessen werden. Die ausgezogenen Kurven in Abb. 4 sind berechnet (angegeben für den Austrittswinkel 0° zur Targetnormalen). Für He auf Kupfer und Graphit läßt sich wesentlich bessere Übereinstimmung mit den Meßwerten erzielen, wenn die obige Formel mit dem Glied $1,56 \cdot e^{-0,033 E}$ für Kupfer und mit $1,93 \cdot e^{-0,033 E}$ für Graphit multipliziert wird. Wenn man von den beiden Fällen der extrem niederen Massen (He auf Cu und C) absieht, werden durch diese empirische Formel mit 4 Konstanten bei 3 Targetmaterialien und 5 verschiedenen Edelgasen die Meßwerte auf 20% genau beschrieben.

Es wurde ferner die Ausbeute an positiven Ionen in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit bei konstanter Primärenergie untersucht. Ein Target, das vor dem Einbau in die Apparatur mechanisch gereinigt worden war, ergibt bei der ersten Bestrahlung Ausbeutewerte, die oft sechsmal größer sind als die in Abb. 2 gezeigten Werte. Bei anhaltender Bestrahlung ging der Wert der Ausbeute stetig zurück, bis nach etwa 20 min ein Wert erreicht war, der auch bei längerer Bestrahlung konstant blieb. War das Target einige Stunden unbestrahlt im Vakuum, so zeigte sich wieder eine Zeitabhängigkeit der Ausbeute, nur daß jetzt der konstante, immer wieder reproduzierbare Endwert schon nach wenigen Minuten erreicht war. Abb. 5 a zeigt als typisches Beispiel den Verlauf der Ausbeute mit der Bestrahlungszeit an einem neuen, unausgeheizten Goldtarget bei Beschuß mit 10 keV Kr^+ -Ionen. Entsprechende Kurven ergaben sich bei Ar^+ und Xe^+ auf Kupfer.

Die Ausbeute wurde ferner in Abhängigkeit von der Targettemperatur untersucht, indem jeweils bei

20, 100, 200, 300, 400 und 500°C der Verlauf der Ausbeute in Abhängigkeit von der Energie der Primärionen gemessen wurde. Es ergab sich, daß die Ausbeute im Temperaturbereich zwischen 100 und 500°C innerhalb der Fehlergrenzen konstant blieb.

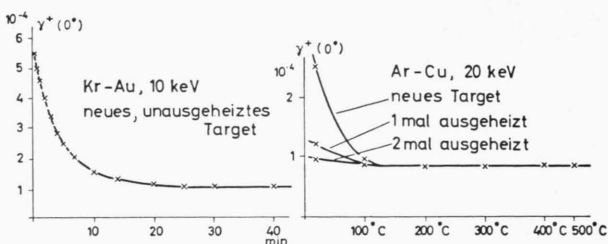


Abb. 5 a.

Abb. 5 b.

Abb. 5 a, b. Die Ausbeute in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit bzw. der Targettemperatur bei einer konstanten Energie der Edelgasionen.

Sie hatte in diesem Bereich den Wert, den man auch nach längerer Bestrahlung des Targets erreicht und der stets reproduzierbar ist. Lediglich zwischen 20 und 100°C nimmt die Ausbeute mit wachsender Temperatur ab. Beim Abkühlen des Targets durchläuft man von 500° bis 100° wieder die Kurve, die man beim Aufheizen erhielt, erreicht aber bei 20°C nicht mehr den Ausgangswert. Abb. 5 b zeigt wieder ein typisches Beispiel für Ar^+ auf Kupfer, entsprechende Kurven wurden auch für Kr^+ auf Graphit und für Xe^+ auf Graphit, Kupfer und Gold erhalten.

Es kann angenommen werden, daß dieser Verlauf der Ausbeute in Abhängigkeit von der Temperatur durch Oberflächenverunreinigungen entsteht, die bereits zwischen 20 und 100°C zum großen Teil vom Target wegdampfen. Der konstante Verlauf der Ausbeute oberhalb 100°C bedeutet jedoch nicht, daß in diesem Bereich saubere Oberflächen vorhanden sind. Bei den in dieser Arbeit vorhandenen Versuchsbedingungen konnte nie mit wirklich reinen Oberflächen gearbeitet werden, denn dafür war der Gasdruck in der Apparatur zu hoch. Man kann jedoch aus Abb. 5 b schließen, daß oberhalb 100°C reproduzierbare Oberflächenverhältnisse erreicht wurden.

3. Die Massenspektren und die Energieverteilung der Sekundärionen und der reflektierten Ionen

Die folgende Untersuchung umfaßt die Targetmaterialien Graphit, Aluminium, Eisen, Kupfer, Silber, Tantal, Wolfram, Platin und Gold, von denen

Tabelle nicht aufgeführt. Es treten aber außer bei den angegebenen Massenzahlen auch bei der Massenzahl 55 bis 60 und bei der Massenzahl etwa 70 schwerere Verunreinigungen auf.

Massenzahl	Ionenart	Massenzahl	Ionenart
12	C ⁺	24	C ₂ ⁺ , Mg ⁺
13	C ⁺ , CH ⁺	28	CO ⁺ , N ₂ ⁺
14	N ⁺ , CH ₂ ⁺	29	C ₂ H ₅ ⁺
15	CH ₃ ⁺	39	K ⁺
16	CH ₄ ⁺	41–43	C ₃ H _{5–7} ⁺
18	H ₂ O ⁺	44	CO ₂ ⁺ , C ₃ H ₈ ⁺
23	Na ⁺		

Tab. 1.

Ferner beobachtet man im Massenspektrum oft Na- und K-Ionen, die wegen ihrer geringen Ionisierungsenergie bevorzugt auftreten und mit größerer Intensität erscheinen als es ihrer tatsächlichen Häufigkeit entspricht. Massen der Edelgasionen, welche die gleiche Energie wie die eben besprochenen Massen haben, konnten, wahrscheinlich aus Intensitätsgründen, nicht eindeutig nachgewiesen werden.

Den 2. Teil des Parabelspektrums bilden die reflektierten Edelgasionen*, die bei einer wesentlich höheren Energie im Spektrum liegen als die eigentlichen Sekundärionen und die Ionen von Oberflächenverunreinigungen. Sie schwärzen auf der Photoplatte relativ scharf begrenzte Parabelstücke²⁰, deren Länge nicht von der Belichtungszeit abhängt. Diesen Parabelstücken entspricht eine gewisse Energiebreite der reflektierten Ionen, obwohl die Ionen vor ihrer Reflexion nahezu monoenergetisch waren, denn ihre Energiebreite vor der Reflexion war kleiner als 0,15%. Das Parabelstück ist um so länger, 1. je kleiner die Masse der Edelgasionen m_1 und 2. je größer die Masse der Targetatome m_2 ist. Als Beispiel zeigt Abb. 7** zum Vergleich einmal Ne⁺, Ar⁺ und Kr⁺ auf Gold ($m_2 = 197$), und, um den Einfluß der Masse des Targetmaterials zu zeigen, Ne⁺ und Ar⁺ auf Silber ($m_2 = 108$).

Verbindet man die hochenergetischen Endpunkte der einzelnen Parabelstücke der verschiedenen Edelgasionen für das Beispiel Edelgase auf Gold, so erhält man eine in Abb. 6 mit $\delta = 1$ bezeichnete Kurve: Sie nähert sich asymptotisch derjenigen Geraden, auf der die Ionen auf der Photoplatte auftreten würden,

die ohne Energieverlust an der Targetoberfläche reflektiert worden wären. (Im Beispiel der Abb. 6 betrug die Primärenergie der Edelgasionen $E_0 = 15$ keV, die Nachbeschleunigungsspannung im Parabelspektrographen U_0 ebenfalls 15 kV, so wie es bei den Aufnahmen der Abb. 7 und 8 der Fall war. Ionen, die ohne Energieverlust reflektiert würden, lägen daher im Parabelspektrum bei 30 keV.) Die niederenergetischen Endpunkte der einzelnen Parabelstücke liegen unabhängig von dem Targetmaterial im Beispiel der Abb. 6 bei einer Voltgeschwindigkeit von 22,5 keV. Das entspricht der Energie von Edelgasionen, die bei der Reflexion mit der halben Primärenergie reflektiert ($E_0/2 = 7,5$ keV) und danach im Parabelspektrographen mit $U_0 = 15$ kV nachbeschleunigt wurden. Auch wenn die Primärenergien der Edelgasionen 10 keV oder 5 keV betrugen, lagen die niederenergetischen Endpunkte der einzelnen Parabelstücke innerhalb der Fehlergrenzen wieder bei $E_0/2 + U_0$. (Die Nachbeschleunigung durch den Parabelspektrographen U_0 betrug stets bei allen Aufnahmen 15 kV.)

War die Masse der Edelgasionen m_1 größer als die Masse der Targetatome m_2 , so wurden keine Edelgasionen im Spektrum festgestellt. Bei den Targetmaterialien Au, Pt, W und Ta wurden sämtliche Edelgasionen reflektiert, bei Ag noch He⁺, Ne⁺, Ar⁺ und Kr⁺, bei Cu und Fe noch He⁺, Ne⁺ und Ar⁺ und bei C nur noch He⁺.

Dem durch die reflektierten Ionen geschwärzten Parabelstück ist ein Intensitätsmaximum überlagert, das so scharf begrenzt ist, daß man sich das Spektrum der reflektierten Ionen zusammengesetzt denken kann aus einem Anteil von monoenergetisch reflektierten Ionen und aus einem Anteil von reflektierten Ionen mit einer Energiebreite, wie sie durch die Länge des geschwärzten Parabelstücks angezeigt wird. Die Lage des Intensitätsmaximums zeigt in bezug auf die Enden des Parabelstücks einen systematischen Gang mit der Masse m_1 der Primärionen und der Targetatommasse m_2 : während das scharfe Intensitätsmaximum z. B. bei Ne⁺ auf Au am hochenergetischen Ende des Parabelstücks liegt, ist es bei Ar⁺ auf Au bereits zu etwas niedrigeren Energien hin verschoben und liegt bei Kr⁺ auf Au am niederenergetischen Ende des Parabelstücks (Abb. 7 a, b, c).

* Eine ausführliche Literaturzusammenstellung der bisher über die Reflexion von Ionen durchgeführten Arbeiten findet man z. B. in einer Arbeit von C. BRUNNÉE¹⁹.

** Abb. 7 a–e und 8 a–f auf Tafel S. 828 b.

¹⁹ C. BRUNNÉE, Z. Phys. **147**, 161 [1957].

²⁰ V. WALTHER u. H. HINTENBERGER, Z. Naturforsch. **17 a**, 964 [1962].

Den gleichen Gang des Intensitätsmaximums entnimmt man aus Abb. 8 a bis c für Ne^+ , Ar^+ und Kr^+ auf Pt und aus Abb. 8 e und f für Ne^+ und Ar^+ auf Ta.

Den Einfluß der Massenzahl m_2 des Targetmaterials auf die Lage des Intensitätsmaximums erkennt man in Abb. 7 d, e bei Ne^+ und Ar^+ auf Silber. Das Maximum liegt hier jeweils bei niedrigeren Energien als z. B. bei Ne^+ und Ar^+ auf Gold. Jedoch ist die Lage des Maximums in bezug auf die Enden des Parabelstückes unabhängig von der Energie der Primärionen; so liegt das Intensitätsmaximum für das Beispiel Ne^+ auf Gold auch bei anderen Primärenergien stets am hochenergetischen Ende des Parabelstückes. (Gemessen wurde auch hier mit den Primärenergien 5, 10 und 15 keV.)

Wie die Spektren ferner zeigen, verlassen sowohl die Sekundärionen als auch die reflektierten Ionen vorwiegend einfach geladen das Target. Mehrfach geladene Ionen wurden, wahrscheinlich wegen zu geringer Intensität, nicht mit Sicherheit beobachtet.

Es sei noch kurz auf den Nullpunkt, die Spur des unabgelenkten Strahls auf der Photoplatte, rechts unten im Parabelspektrum hingewiesen. Der Nullpunkt wurde nicht etwa durch Streulicht z. B. der Ionisationsmanometerröhren oder der Ionenquelle erzeugt. Wurde eine Quarzglasplatte in den Parabelspektrographen gestellt, so wurde keinerlei Schwärzung beobachtet. Wie man aus den Spektren entnehmen kann, geht die Intensität des Nullpunkts etwa parallel mit der Intensität der reflektierten Ionen. Werden keine reflektierten Edelgasionen beobachtet ($m_1 > m_2$), so ist der Nullpunkt höchstens sehr schwach, meistens aber überhaupt nicht zu erkennen. Am stärksten ist der Nullpunkt bei Beschuß des Targets mit He^+ und Ne^+ , am schwächsten bei Beschuß mit Xe^+ ausgeprägt. Man kann daher annehmen, daß der Nullpunkt außer von den z. B. durch Umladung im Parabelspektrographen neutralisierten Ionen und den neutral aus dem Target austretenden Atomen vorwiegend von den an der Targetoberfläche bei der Reflexion neutralisierten Edelgasionen erzeugt wird.

4. Diskussion der Energie und der Energiebreite der reflektierten Edelgasionen

Wenn aus den beiden Enden der Parabelstücke im Spektrum die maximale und die minimale Energie der reflektierten Edelgasionen bestimmt und als

Funktion der Masse m_1 der aufgeschossenen Edelgasionen aufgetragen wird, erhält man die in den Abb. 9 a bis i gezeigten Diagramme. Die eingezeichneten Kreuze und Quadrate sind Meßpunkte, die stark ausgezogenen Linien bei den Massen He, Ne, Ar und Kr geben die Energiebreite der reflektierten Ionen an, die jeweils der Länge der geschwärtzten Parabelstücke entsprechen. Es fällt dabei auf, daß die Mindestenergie innerhalb der Meßfehler stets mit der halben Primärenergie der aufgeschossenen Edelgasionen übereinstimmt ($E_{R\min} = E_0/2$). Das wurde nicht nur bei den in den Diagrammen gezeigten Beispielen, in denen die Primärenergie $E_0 = 15$ keV betrug, sondern auch in den Fällen für $E_0 = 10$ keV und $E_0 = 5$ keV beobachtet. Die Kurven $E_{R\min} = E_0/2$ sind aus gleich zu ersiehenden Gründen in den Diagrammen mit $\delta = m_1/m_2$, die Kurven für die Maximalenergien der reflektierten Edelgasionen mit $\delta = 1$ gekennzeichnet. Beide Kurvenarten lassen sich durch die Formel

$$E_R = E_0 \left\{ 1 - \frac{2 m_1 m_2 (1 + \delta) + m_2^2 (1 - \delta^2)}{2 (m_1 + m_2)^2} \right\}$$

darstellen. Für $\delta = 1$ erhält man daraus $E_{R\max}$, für $\delta = m_1/m_2$ ergibt die Formel $E_{R\min} = E_0/2$. Wie aus den Abbildungen zu ersehen ist, stimmt diese Formel mit den Meßergebnissen für die Reflexion von Edelgasionen an Targets mit hohen Atomgewichten (Au, Pt, W und Ta) gut überein. Für Targets mit leichteren Atomgewichten (Ag, Cu, Fe, Al und C) ist die Übereinstimmung nicht mehr ganz so gut. Man kann aber bessere Übereinstimmung erzielen, wenn statt der Masse m_2 der Targetatome eine etwas größere Masse $m_2' = \alpha m_2$ ($\alpha > 1$) in die Formel eingesetzt wird. In Abb. 9 e bis h sind in die Diagramme auch die Kurven für $E_{R\max}$ mit $\alpha = 1,0, 1,5$ und $2,0$ eingezeichnet.

Die obige Gleichung unterscheidet sich von dem entsprechenden Ausdruck, der sich für den nicht zentralen und nicht vollkommen elastischen Stoß glatter Kugeln mit den Massen m_1 und m_2 ergibt, nur dadurch, daß in der Klammer vor dem Bruch der Faktor $1/2$ statt $\cos^2 \vartheta_2$ steht, wobei ϑ_2 den Winkel bedeutet, den die Geschwindigkeit der Masse m_2 nach dem Stoß mit der Einfallsrichtung der Masse m_1 einschließt. Mit dem Ausdruck für die Energie nach einem schiefen Stoß zweier freier Massenpunkte sind unsere Beobachtungen, insbesondere für die aus den Parabelspektren folgenden Mindestenergien

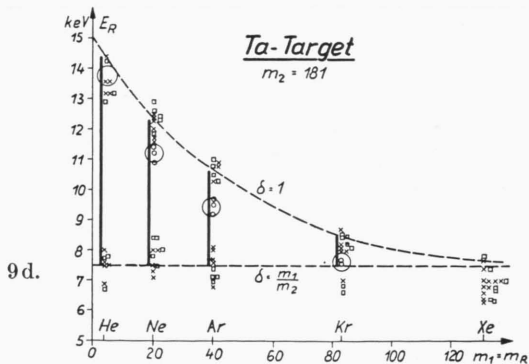
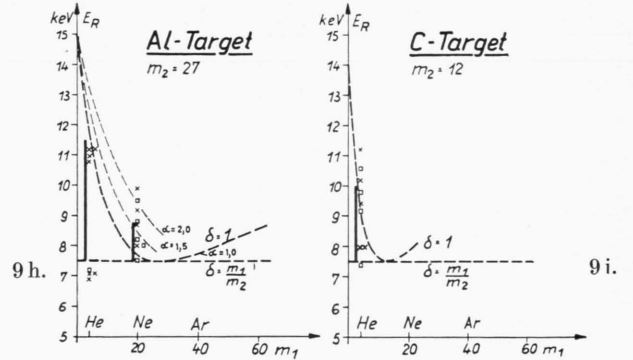
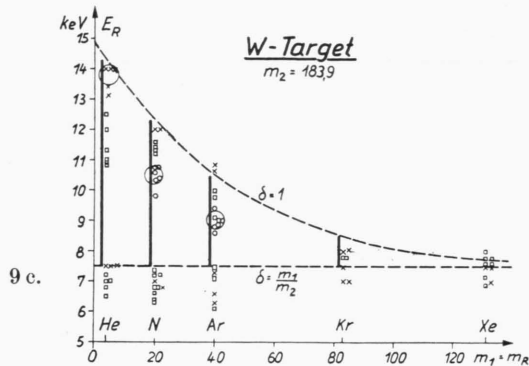
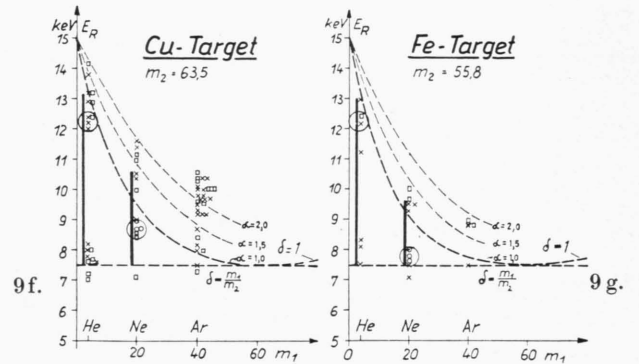
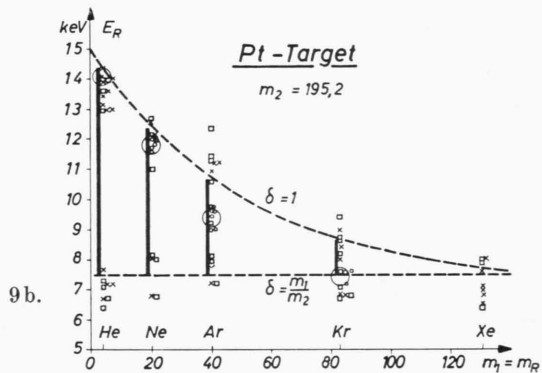
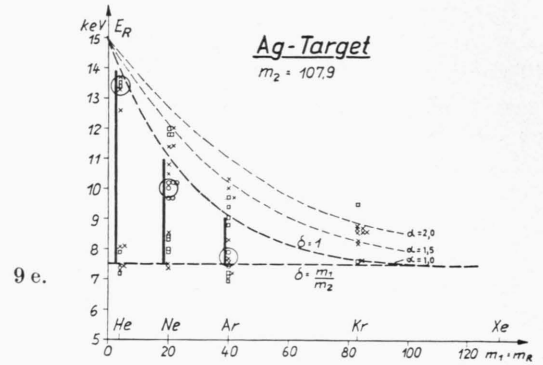
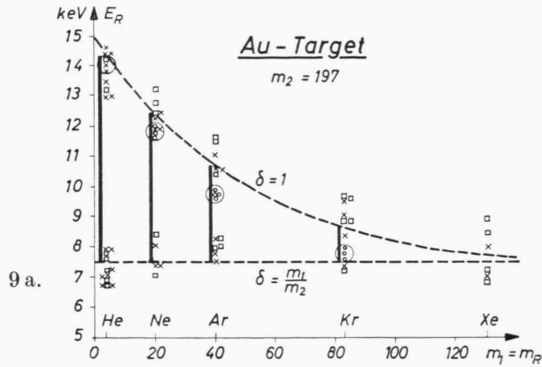


Abb. 9 a bis i. Energie und Energiebreite der reflektierten Edelgasionen entsprechend der Lage der Parabelstücke im Spektrum sowie ihrer Länge. Die gestrichelten Kurven sind berechnet. Die Kreise stellen den monoenergetischen Anteil der reflektierten Ionen dar.

nicht in Einklang zu bringen *. Die obige Gleichung soll zunächst nur als eine empirisch gefundene Beziehung angesehen werden, welche die bisher vorliegenden Beobachtungen für alle Edelgas-Targetkombinationen zufriedenstellend beschreibt. Auf eine theoretische Interpretation soll erst eingegangen werden, sobald der Gültigkeitsbereich der Gleichung durch weitere Versuche näher untersucht ist.

Die Lage der Intensitätsmaxima, d. h. der Spuren der monoenergetisch reflektierten Ionen, ist in den Abb. 9 a bis g durch Kreise markiert. Sie hängt vom Verhältnis der Massen m_1 und m_2 ab und wandert mit zunehmendem m_1/m_2 in der bereits früher durch die Beispiele der Abb. 7 und 8 belegten Weise vom hochenergetischen zum niederenergetischen Ende des Parabelstückes. (Bei Xe ist für alle Targetmaterialien das Parabelstück so kurz, daß die Spur der monoenergetischen Ionen und die kurze Parabel zusammenfallen.) Eine theoretische Deutung für das Auftreten eines monoenergetischen Anteils der reflektierten Ionen soll erst versucht werden, wenn

durch weitere Versuche mehr Erfahrungsmaterial vorliegt.

An Hand der Spektren erkennt man ferner, daß die durch die reflektierten Ionen erzeugten Parabelstücke bei den leichten Primärionenmassen nicht nur länger, sondern auch stärker geschwärzt sind als bei den schweren Primärionen. Diese Massenabhängigkeit bei der Schwärzung könnte dadurch hervorgerufen sein, daß leichte Ionen die Photoplatte stärker schwärzen als schwere Ionen. Da aber außerdem das Parabelstück bei leichten Ionen länger ist als bei schweren Ionen, kann man annehmen, daß die Anzahl der leichten reflektierten Ionen größer ist als die Zahl der schweren reflektierten Ionen. Eine Klärung soll später durch elektrometrische Messungen erbracht werden.

Zum Schluß möchten wir Fräulein M. MONERJAN danken für ihre Mitarbeit bei den photographischen Aufnahmen und bei der Auswertung der photographischen Platten.

* In einer vorläufigen Notiz ²⁰ haben wir bei einem Versuch zur Interpretation unserer Meßergebnisse irrtümlich behauptet, daß die beobachtete Maximal- und Minimalenergie der reflektierten Ionen durch ein Modell elastischer Kugeln, wobei die Energieabgabe an das Gitter mittels eines Gitterwechselwirkungskoeffizienten ähnlich dem Restitutionskoeffizienten ²¹ in Rechnung gesetzt wird, gedeutet wer-

den kann. Die beobachtete Minimalenergie $E_{R\min} = E_0/2$ läßt sich damit jedoch nicht in Einklang bringen. Für $m_1 \ll m_2$ stimmt jedoch die Maximalenergie der reflektierten Ionen mit den aus der Formel für den elastischen Stoß folgenden Energiewerten überein.

²¹ E. B. HENSCHKE, Phys. Rev. **106**, 737 [1957].