

Monte-Carlo-Rechnungen und Messungen zur Vielfachstreuung von schweren Ionen in dünnen Folien

J. Zienert, K. Güttner und G. Münzenberg

II. Physikalisches Institut der Justus Liebig-Universität, Gießen

(Z. Naturforsch. 31 a, 949–955 [1976]; eingegangen am 22. Mai 1976)

Monte Carlo Calculations and Measurements Concerning the Multiple Scattering of Heavy Ions in Thin Films

The behaviour of energetic heavy ions in thin films is simulated by means of a Monte Carlo method taking especially into account the energy loss of the scattered particles. Based on a variably matched screened Coulomb potential the calculations yield the angular and energy distributions of the transmitted ions. The results show a good agreement with the theory of Meyer. Furthermore for keV He ions scattering distributions have been measured in C, Al and Ag, which agree fairly well with the computations, if a suitable fit of the screening parameter is used in the Monte Carlo simulations.

I. Einleitung

Das in den letzten Jahren wachsende Interesse an der Vielfachstreuung niederenergetischer Teilchen in dünnen Folien ist sowohl experimenteller als auch theoretischer Art. Zum einen müssen etwa Channeling-Experimente, Messungen von Abbremsquerschnitten und Schichtdickenbestimmungen mit Hilfe von Einfachstreuquerschnitten oftmals in Hinblick auf das Auftreten von Vielfachstreuung korrigiert werden, ebenso muß sie bei vielen Experimenten in Form von Strahlaufweitungen berücksichtigt werden; andererseits liefern die Winkelverteilungen gestreuter Teilchen auch wichtige Informationen über das Wechselwirkungspotential zwischen Ion und Targetatom.

Bei allen Theorien und analytischen Beschreibungen der Vielfachstreuung – wie etwa bei den auf der Theorie von Moliere¹ basierenden analytischen Berechnungen von Meyer² sowie von Sigmund und Winterbon³ – ist die geschlossene Darstellung des Durchganges von geladenen Teilchen durch Materieschichten mit Vereinfachungen und Einschränkungen verbunden. Um dies zu vermeiden, wurden in den letzten Jahren schon mehrfach^{4–9} Computerprogramme erstellt, mit denen Winkelverteilungen statistisch mit Hilfe der Monte-Carlo-Methode ermittelt werden können. Teilweise^{4, 9} wird dabei ein differentieller Wirkungsquerschnitt nach Lindhard et al.¹⁰ benutzt und dieser unter Verwendung von numerisch berechneten Tabellen^{2, 10} integriert, teil-

weise⁵ wird diese Integration mit Hilfe einer empirischen Näherung („magic formula“)¹⁰ auf eine einfach auszuführende Differentiation reduziert. Dagegen kommt in der vorliegenden Arbeit eine variable Potentialanpassungstechnik¹¹ zur Anwendung, mit der auch Eastham⁸ arbeitet; darüber hinaus wird hier zudem die Anwendungsmöglichkeit dieser Technik bei Vergleichen mit experimentellen Ergebnissen untersucht.

Durch das in Abschnitt 2 skizzierte Computerprogramm wird im wesentlichen der Anwendungsbereich älterer Rechnungen^{6, 12} auf keV-Energien ausgedehnt. Der wesentliche Vorteil gegenüber analytischen Vielfachstreutheorien liegt darin, daß elastischer und inelastischer Energieverlust berücksichtigt und untersucht werden können. Nach einem kurzen Überblick über die durchgeführten Versuche (Abschnitt 3) werden in Abschnitt 4 dann Ergebnisse von Computersimulationen und Experimenten untereinander und mit der Theorie von Meyer² verglichen, einige Vorhersagen der letztgenannten werden zudem geprüft.

II. Die Rechenmethode

Bei dem hier verwendeten, in seinen Grundzügen bereits anderswo¹² ausführlich erläuterten Monte-Carlo-Verfahren werden einzelne Teilchenschicksale während der Durchquerung einer Schicht vorgegebener Dicke verfolgt, wobei die aufeinanderfolgenden Streuprozesse mit Hilfe von Zufallszahlen erfaßt werden; der Zusammenhang der letzteren mit dem Streuwinkel ergibt sich dabei indirekt über eine Beziehung zwischen Stoßparameter p und Zufallszahl x :

$$p = p_{\max} \sqrt{1 - x}. \quad (1)$$

Sonderdruckanforderungen an Dr. K. Güttner, 2. Physikalisches Institut der Universität Gießen, Arndtstraße 2, D-6300 Gießen.



Dieses Werk wurde im Jahr 2013 vom Verlag Zeitschrift für Naturforschung in Zusammenarbeit mit der Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften e.V. digitalisiert und unter folgender Lizenz veröffentlicht: Creative Commons Namensnennung-Keine Bearbeitung 3.0 Deutschland Lizenz.

Zum 01.01.2015 ist eine Anpassung der Lizenzbedingungen (Entfall der Creative Commons Lizenzbedingung „Keine Bearbeitung“) beabsichtigt, um eine Nachnutzung auch im Rahmen zukünftiger wissenschaftlicher Nutzungsformen zu ermöglichen.

This work has been digitalized and published in 2013 by Verlag Zeitschrift für Naturforschung in cooperation with the Max Planck Society for the Advancement of Science under a Creative Commons Attribution-NoDerivs 3.0 Germany License.

On 01.01.2015 it is planned to change the License Conditions (the removal of the Creative Commons License condition “no derivative works”). This is to allow reuse in the area of future scientific usage.

Hier wird p_{\max} , der maximal zugelassene Stoßparameter, durch den halben Abstand nächster Nachbarn gegeben und bestimmt die maximal berücksichtigte Reichweite des Wechselwirkungspotentials, woraus ein endlicher totaler Wirkungsquerschnitt $\sigma_{\tau} = \pi p_{\max}^2$ resultiert. Die Wegstrecken s zwischen den einzelnen Stoßzentren werden als konstant angenommen.

Es sei darauf hingewiesen, daß das Einzelstreuproblem klassisch gelöst und der Streuprozess selbst als elastischer Zwei-Teilchen-Stoß behandelt werden kann^{2, 5, 13}. Als Wechselwirkungspotential dient dabei ein Thomas-Fermi-Potential:

$$V_{\text{ww}}(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \Phi\left(\frac{r}{a}\right). \quad (2)$$

Für die Abschirmfunktion $\Phi(r/a)$ wird eine analytische Beziehung von Moliere¹ benutzt:

$$\Phi(r/a) = 0,1 e^{-6r/a} + 0,55 e^{-1,2r/a} + 0,35 e^{-0,3r/a}. \quad (3)$$

Der darin auftretende Abschirmparameter a ist nach Lindhard¹⁰ durch

$$a = 0,8853 a_0 (Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{-1/2} \quad (4)$$

mit $a_0 = 5,292 \cdot 10^{-9}$ cm gegeben. Um jedoch bei der Berechnung des Streuwinkels χ eine geschlossene Integration zu gewährleisten, wird mit einer Potentialanpassungsmethode¹¹ unter Verwendung eines abgeschnittenen Coulomb-Potentials

$$V_A(r) = E_c \left(\frac{a_c}{r} - 1 \right) \text{ für } r \leq a_c, \quad (5)$$

$$= 0 \quad \text{für } r > a_c$$

(E_c , a_c : Anpassungsparameter) gearbeitet. Im Gegensatz zu der in den früheren Rechnungen¹² benutzten Anpassung in einem festen Wert von r wird bei niedrigeren Energien das Ersatzpotential V_A variabel an V_{ww} in dem bei dem jeweiligen Stoß auftretenden Stoßparameter p angepaßt, um eine Unterschätzung der Klein-Winkel-Streuung zu vermeiden, die bei Stoßprozessen niederenergetischer Ionen durchaus noch einen wesentlichen Beitrag zur Streuverteilung liefern kann.

Der bei jedem Stoß neben der Ablenkung eines Teilchens auftretende elastische Energietransfer wird nach der sich aus Energie- und Impulssatz ergebenden klassischen Formel berechnet. Der unelastische Energieverlust infolge von Elektronenanregung wird als kontinuierliche Größe auf den geraden Wegstücken zwischen zwei Streuprozessen berücksichtigt;

der differentielle Energieverlust läßt sich dabei aus der Formel von Lindhard et al.¹⁴ errechnen:

$$\left| \frac{dE}{dr} \right|_{\text{el}} = K E^{1/2}. \quad (6)$$

Ebenso ist es möglich, experimentell aus Daten für den elektronischen Bremsquerschnitt ermittelte Werte für dE/dr zu verwenden.

III. Experimentelles

Die Experimente wurden mit He-Ionen mit Energien zwischen 20 und 55 keV durchgeführt. Die Strahlkollimation lag bei $0,3^\circ$, der Öffnungswinkel des Detektors (schwenkbarer Graphit-Faraday-Käfig mit mehreren Blenden) bei $0,4^\circ$, das Vakuum zwischen 10^{-5} und $6 \cdot 10^{-6}$ Torr. Als Streufolien dienten Kohlefolien mit Dicken von 100–1000 Å, sowie Al- und Ag-Folien mit Dicken von 200–600 Å, die durch Aufdampfen im Hochvakuum (besser als 10^{-5} Torr) hergestellt wurden. Die Schichtdicken wurden interferometrisch nach Tolansky¹⁵ bestimmt.

IV. Ergebnisse

IV. 1) Winkelverteilungen

Um Vergleiche mit der Theorie von Meyer² durchführen zu können, müssen noch einige dort benutzte, dimensionslose Größen definiert werden:

Reduzierte Energie

$$\varepsilon = \frac{M_2 a E}{(M_1 + M_2) Z_1 Z_2 e^2}, \quad (7)$$

Reduzierter Winkel

$$\tilde{\vartheta} = \frac{\varepsilon}{2} \frac{M_1 + M_2}{M_2} \vartheta, \quad (8)$$

Reduzierte Schichtdicke

$$\tau = \pi a^2 N t. \quad (9)$$

Dabei bedeuten M die Massen, Z die Ordnungszahlen von ankommenden Teilchen bzw. Targetatom, t die Dicke und N die Volumendichte der Folie. Zudem sollte erwähnt werden, daß für die Berechnung der theoretischen Werte von ε und $\tilde{\vartheta}$ jeweils eine in den Monte-Carlo-Simulationen bestimmte mittlere Energie $\bar{E} = E_{\text{in}} - \frac{1}{2} \Delta E$ der Teilchen in der Schicht verwendet wird, um der Nichtberücksichtigung des Energieverlustes ΔE in der Theorie von Meyer Rechnung zu tragen.

Zwei Beispiele für gerechnete Streuverteilungen zeigt die Abb. 1, die außerdem auch die nach Meyer

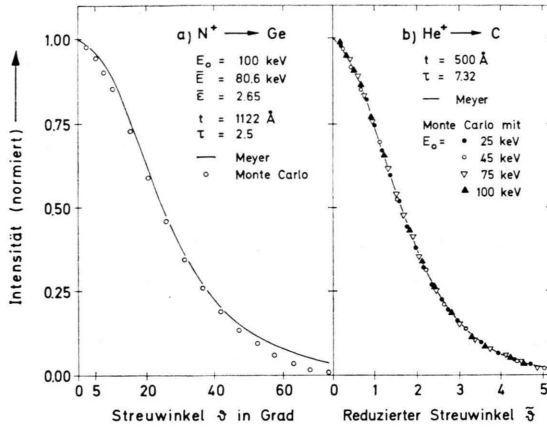


Abb. 1. Vergleich der Winkelverteilung nach Meyer mit Monte-Carlo-Simulation für 100 keV N-Ionen, gestreut in einem 1122 Å dicken Ge-Target (a), und für He-Ionen verschiedener Energien, gestreut in 500 Å C (b).

ermittelten Winkelverteilungen enthält. Die Übereinstimmung ist fast immer gut, jedoch weichen bei sehr großen Schichtdicken die simulierten Streupprofile vor allem in ihren Schwänzen oft von den analytisch berechneten ab (Abb. 1 a), wobei allerdings zu beachten ist, daß Meyers Theorie auf Klein-Winkel-Streuung ($\vartheta \lesssim 20^\circ$) beschränkt ist. Des weiteren bestätigt Abb. 1 b die Folgerung von Meyer, daß die in reduzierten Größen gezeichnete Form der Winkelverteilung von der Energie der einfallenden Teilchen unabhängig ist². Einen allgemeineren Überblick ermöglicht die Abb. 2, in der für vier verschiedene reduzierte Winkel, d. h. für vier unterschiedliche Stellen der jeweiligen Streupprofile, ein Vergleich bezüglich der normierten Intensität zwischen theoretischen Kurven und simulierten Ergebnissen für sechs Ion-Target-Kombinationen über einen Schichtdicken-

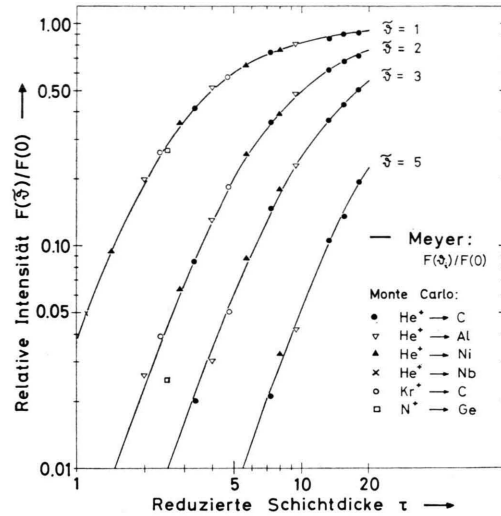


Abb. 2. Vergleich zwischen Monte-Carlo-Rechnungen und der Theorie von Meyer: Intensität für verschiedene reduzierte Winkel ϑ , bezogen auf die Intensität in Durchschußrichtung, als Funktion der reduzierten Schichtdicke τ .

bereich von $1 < \tau < 20$ dargestellt ist. Hier erkennt man noch besser die im allgemeinen gute Übereinstimmung.

IV. 2. Schichtdickenabhängigkeit der Halbwertsbreite

Ein wesentliches Resultat der Theorie von Meyer ist die Feststellung, daß für alle Ion-Target-Kombinationen und unabhängig von der mittleren Beschußenergie eine universelle Funktion existieren soll, die das Verhältnis zwischen reduzierter Halbwertsbreite $\tilde{\vartheta}_{1/2}$ und reduzierter Foliendicke τ beschreibt. Diese Funktion ist in Abb. 3 zusammen mit Computer-

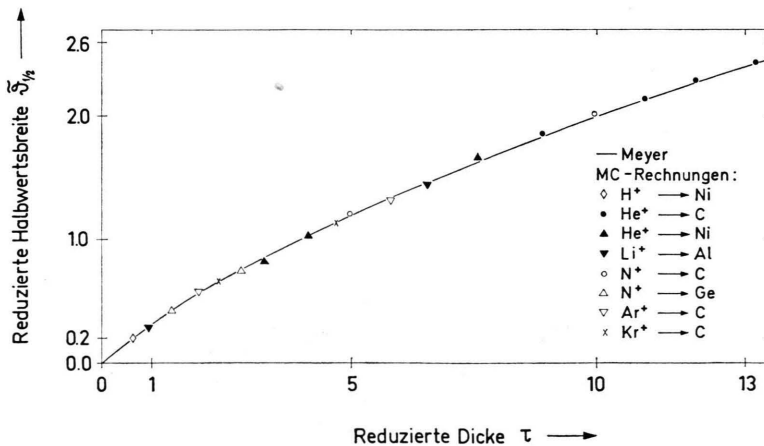


Abb. 3. Reduzierte Halbwertsbreite als Funktion der reduzierten Dicke: Vergleich zwischen Monte-Carlo-Rechnungen für verschiedene Ion-Target-Kombinationen und der universellen Funktion $\tilde{\vartheta}_{1/2}(\tau)$ nach Meyer² (durchgezogene Kurve).

simulationen für verschiedene Ion-Target-Kombinationen und Schichtdicken dargestellt, wobei letztere den aus der Theorie sich ergebenden universellen Zusammenhang gut bestätigen.

Vergleicht man jedoch Meyers Folgerung mit experimentellen Ergebnissen (Abb. 4), so erhält man

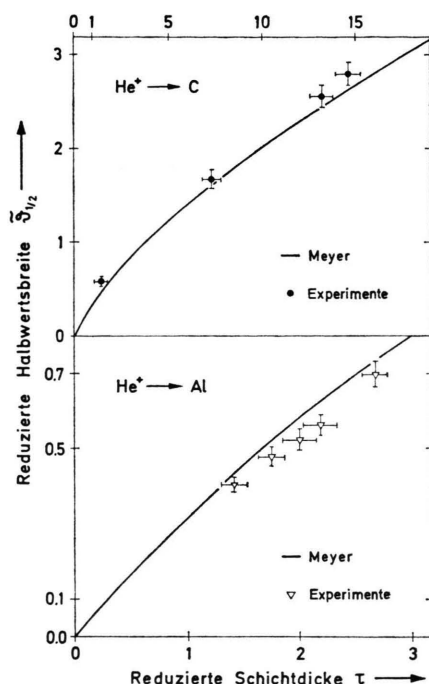


Abb. 4. Vergleich zwischen Experimenten und der Theorie von Meyer: Reduzierte Halbwertsbreite als Funktion der reduzierten Foliendicke für He-Ionen, gestreut in C- bzw. Al-Folien.

ziemlich systematisch auftretende Diskrepanzen, die gemessenen Werte liegen teils über (Kohlenstoff), teils unter (Al) der universellen $\tilde{\sigma}_{1/2}(\tau)$ -Kurve, zeigen zwar wenigstens einen qualitativ ähnlichen Verlauf, sprechen aber gegen einen universellen Zusammenhang zwischen $\tilde{\sigma}_{1/2}$ und τ .

IV.3. Anpassung des Abschirmparameters, Vergleich zwischen Monte-Carlo-Rechnungen und Experimenten

Die eben erwähnten systematischen Abweichungen können nun dazu benutzt werden, den Abschirmparameter, für den in den Rechnungen zunächst immer die Darstellung von Lindhard [Gl. (4)] verwendet wurde, mit Hilfe einer Methode von Meyer und Krygel¹⁶ aus experimentell ermittelten Vielfachstreu-

verteilungen zu bestimmen. Dabei wurden für jede Ion-Target-Kombination die Messungen einzeln ausgewertet und daraus der Mittelwert errechnet, die so genommenen Werte a_{exp} sind zusammen mit den nach Lindhard bestimmten Abschirmradien in Tab. 1 aufgeführt.

Tab. 1. Vergleich der durch Anpassung an die Experimente gewonnenen Abschirmradien mit den aus der Lindhardschen Beziehung (4) ermittelten Werten.

Ion-Target-Kombination	a in Å gemäß Lindhard	a_{exp} in Å (Mittelwert)
He \rightarrow C	0,212	0,234 *
He \rightarrow Al	0,176	0,158
He \rightarrow Ag	0,1225	0,100

* Bernhard et al.¹⁸: $a_{\text{exp}} = 0,242$ Å.

Führt man Monte-Carlo-Rechnungen mit den experimentell ermittelten Abschirmparametern durch, so erzielt man im Rahmen der Fehlergrenzen eine gute Übereinstimmung zwischen Rechnung und Messung. Dies gilt zum einen für die einzelnen Winkelverteilungen, wie man am Beispiel der Streuung von He-Ionen in Al- und C-Targets erkennt: sowohl bei Abb. 5 für ein einzelnes Streuprofil als auch bei

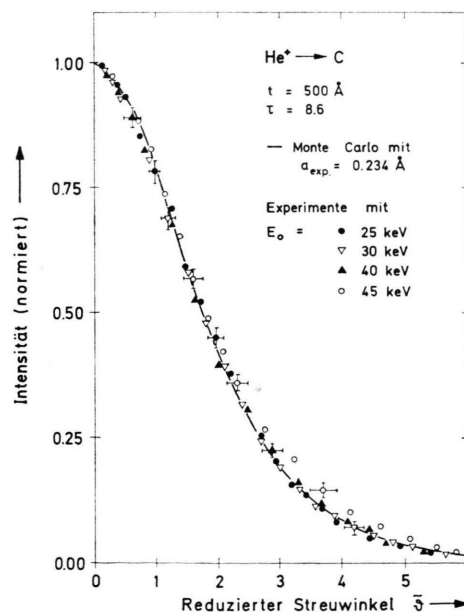


Abb. 5. Darstellung einer experimentell ermittelten Winkelverteilung in reduzierten Größen für He-Ionen mit verschiedenen Energien, gestreut in 500 Å C, im Vergleich mit einer unter Verwendung von a_{exp} durchgeführten Monte-Carlo-Simulation.

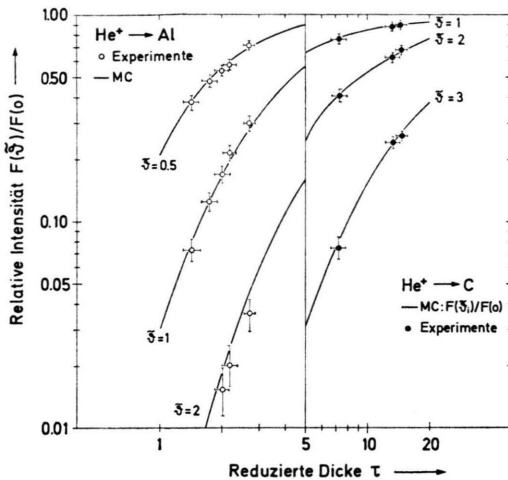


Abb. 6. Vergleich zwischen experimentell ermittelten Ergebnissen und Computersimulationen (MC), gerechnet mit a_{exp} gemäß Tabelle 1: Intensität für verschiedene reduzierte Winkel $\tilde{\theta}$, bezogen auf die Intensität in Durchschußrichtung, als Funktion von τ .

Abb. 6 als Überblick über zwei Ion-Target-Kombinationen mit Folien unterschiedlicher Dicke treten größere Abweichungen nur in den Verteilungsschwänzen auf; zudem bestätigt sich auch hier die in IV.1) erwähnte Vorhersage von Meyer (Abbildung 5). Zum anderen liegen aber auch die gemessenen reduzierten Halbwertsbreiten hinreichend gut auf rechnerisch gewonnenen, für jede Ion-Target-Kombination charakteristischen und energieunabhängigen $\tilde{\theta}_{1/2}(\tau)$ -Kurven, wie Abb. 7 zeigt. Dort sind neben eigenen Messungen auch Ergebnisse von Högberg et al.¹⁷ und Bernhard et al.¹⁸ eingetragen, die dem Verlauf der errechneten Kurve ebenfalls recht gut folgen.

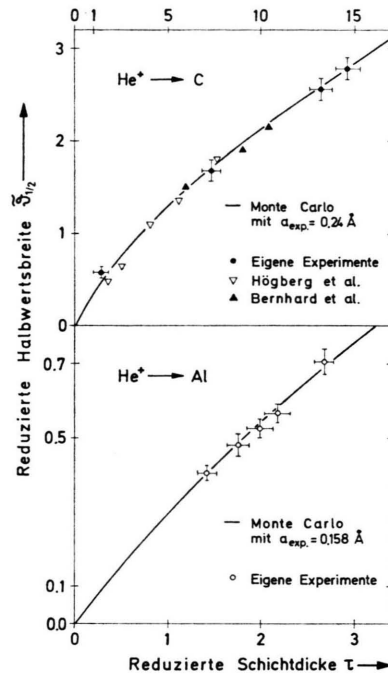


Abb. 7. Vergleich zwischen mit Hilfe von a_{exp} gewonnenen Computersimulationen und Experimenten (neben eigenen auch solche von Högberg¹⁷ und Bernhard et al.¹⁸): $\tilde{\theta}_{1/2}$ als Funktion von τ für He-Ionen, gestreut in C- bzw. Al-Folien.

IV. 3) Energieverlustverteilungen

Das Computerprogramm ist so aufgebaut, daß sowohl Verteilungen des gesamten Energieverlustes als auch solche für elektronischen und nuklearen Energieverlust getrennt errechenbar sind. Somit können damit nicht nur allgemeine Energieverlust- und Energiestragglinguntersuchungen durchgeführt werden,

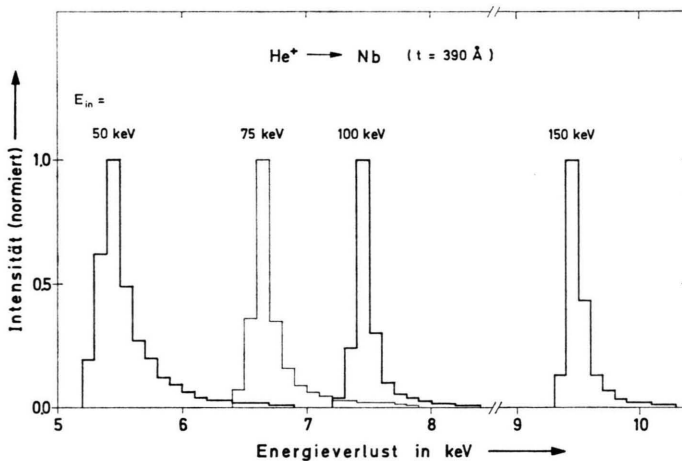


Abb. 8. Mit dem Monte-Carlo-Programm errechnete Gesamtenergieverlustverteilungen für He-Ionen mit verschiedenen Einschüßenergien E_{in} , gestreut in 390 Å Nb.

sondern man kann etwa auch den nuklearen Energieverlust aus Monte-Carlo-Simulationen erhalten, von gemessenen Gesamtenergieverlusten abziehen und daraus dann Aussagen über die so experimentell ermittelten elektronischen Energieverluste gewinnen. Im vorliegenden Fall wurden keine speziellen Untersuchungen in dieser Richtung angestellt, die Energieverlustverteilung wurde aber bei jedem Rechenlauf automatisch mitgeliefert.

Als Beispiel zeigt die Abb. 8 eine Reihe von rechnerisch ermittelten Gesamtenergieverlustverteilungen für He-Ionen mit verschiedenen Einschußenergien,

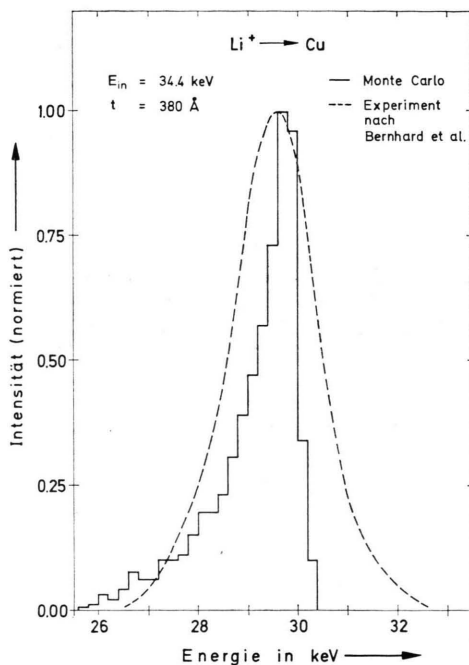


Abb. 9. Rechnerisch ermittelte Energieverteilung von 34,4 keV Li-Ionen nach Durchqueren einer 380 Å dicken Cu-Folie im Vergleich mit einem gemessenen Spektrum nach Bernhard et al.¹⁹. — Für die Rechnung wurden beim elektronischen Energieverlust die aus dem Experiment ermittelten Konstanten verwendet.

die in Al-Targets von 390 Å Dicke aufgestreut wurden. Die Zunahme des Energiestragglings zu kleinen Einschußenergien hin ist dabei gut zu erkennen. Bei Vergleichen zwischen errechneten und gemessenen Verteilungen — ein solcher ist in Abb. 9 dargestellt — muß bedacht werden, daß bei den Computersimulationen weder die natürliche Energiebreite des Eingangsstrahls noch das begrenzte Auflösungsvermögen der Energiedetektoren berücksichtigt werden. Auch sind zum Beispiel Halbleiterdetektoren nur bis zu einem bestimmten Öffnungswinkel empfindlich; daher sind die vor allem von Kernstößen herrührenden Verteilungsschwänze zu kleinen Endenergien hin bei mit solchen Detektoren gemessenen Verteilungen wegen der Nichtberücksichtigung von Teilchen unter großen Streuwinkeln meist weniger stark ausgeprägt als bei berechneten.

V. Zusammenfassung

Zusammenfassend kann festgestellt werden, daß das Monte-Carlo-Rechenprogramm geeignet ist, die Wechselwirkung energiereicher Ionen mit dünnen Filmen zu beschreiben. Die Ergebnisse zeigen eine gute Übereinstimmung mit analytischen Berechnungen nach Meyer in deren Gültigkeitsbereich; darüber hinaus kann jedoch mit dem Programm auf Grund der Berücksichtigung des Energieverlustes auch die Wechselwirkung in dickeren Folien und infolge der variablen Potentialanpassung in jedem Stoßparameter die Streuung zu großen Winkeln hin simuliert werden. Bei Verwendung eines experimentell angepaßten Abschirmparameters stimmen auch gerechnete und gemessene Resultate genügend gut überein.

Herrn Prof. Dr. H. Ewald danken wir für die Anregung zu dieser Arbeit und sein Interesse bei der Durchführung. Außerdem sind wir dem Hochschulrechenzentrum Gießen zu Dank verpflichtet, daß uns ausreichend Rechenzeit für die sehr umfangreichen Rechnungen zur Verfügung gestellt wurde.

- ¹ G. Moliere, Z. Naturforsch. **2a**, 133 [1947]. — G. Moliere, Z. Naturforsch. **3a**, 78 [1948].
- ² L. Meyer, Phys. Stat. Sol. (b) **44**, 253 [1971].
- ³ P. Sigmund u. K. B. Winterbon, Nucl. Instrum. Meth. **119**, 541 [1974].
- ⁴ T. Ishitani, R. Shimizu u. K. Murata, Jap. J. Appl. Phys. **11**, 125 [1972]. — T. Ishitani, R. Shimizu u. K. Murata, Phys. Stat. Sol. (b) **50**, 681 [1972].
- ⁵ H. G. Schäffler, Dissertation IPP 9/14 [1973], Institut für Plasmaphysik, Garching bei München.
- ⁶ K. Güttner u. G. Münzenberg, 5th Int. Conf. on Atomic Collisions in Solids, Gatlinburg, USA, 1973.

- ⁷ K. Güttner, G. Münzenberg u. J. Zienert, 7th Yugoslav Symposium on Physics of Ionized Gases, Rovinj 1974. — K. Güttner, G. Münzenberg u. J. Zienert, DPG-Tagung, Köln 1975.
- ⁸ D. A. Eastham, Nucl. Instrum. Meth. **125**, 277 [1975].
- ⁹ W. Möller, G. Pospiech u. G. Schrieder, Nucl. Instrum. Meth. **130**, 265 [1975].
- ¹⁰ J. Lindhard, V. Nielsen u. M. Scharff, Mat. Fys. Medd. Dan. **36**, no. 10 [1968].
- ¹¹ G. Leibfried u. O. S. Oen, J. Appl. Phys. **33**, 2257 [1962].
- ¹² K. Güttner, Z. Naturforsch. **26a**, 1290 [1971].

- ¹³ G. Carter u. J. S. Colligon, Ion Bombardment in Solids, Heineman Educational Books Ltd., London 1963.
- ¹⁴ J. Lindhard, M. Scharff u. H. E. Schiøtt, Mat. Fys. Medd. Dan. **33**, no. 14 [1963]. — J. Lindhard u. M. Scharff, Phys. Rev. **124**, 128 [1961].
- ¹⁵ S. Tolansky, Multiple-Beam Interference Microscopy of Metals, Academic Press, New York/London 1970.
- ¹⁶ L. Meyer u. P. Krygel, Nucl. Instrum. Meth. **98**, 381 [1972].
- ¹⁷ G. Høgberg, H. Norden u. H. G. Berry, Nucl. Instrum. Meth. **90**, 283 [1970].
- ¹⁸ F. Bernhard, P. Krygel, R. Manns u. S. Schwabe, Rad. Eff. **13**, 249 [1972].
- ¹⁹ F. Bernhard, U. Müller-Jahreis, G. Rockstroh u. S. Schwabe, Phys. Stat. Sol. (b) **35**, 285 [1969].