

KfK 4206  
März 1987

# **Gitterplatzbesetzung nichtlöslicher Fremdatome in Aluminium nach Implantation und Bestrahlung**

M. K. Kloska  
Institut für Nukleare Festkörperphysik

**Kernforschungszentrum Karlsruhe**



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE  
Institut für Nukleare Festkörperphysik

KfK 4206

GITTERPLATZBESETZUNG NICHTLÖSLICHER FREMDATOME IN  
ALUMINIUM NACH IMPLANTATION UND BESTRAHLUNG\*

Michael K. Kloska

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

---

\*von der Fakultät für Physik der Universität (TH)  
Karlsruhe genehmigte Dissertation.

Als Manuskript vervielfältigt  
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH  
Postfach 3640, 7500 Karlsruhe 1

ISSN 0303-4003

## ZUSAMMENFASSUNG

Mehrere Elemente, deren Atome im Vergleich zu Aluminium übergroß und in Aluminium unlöslich sind, wurden in Aluminiumeinkristalle bei verschiedenen Temperaturen implantiert. Der substitutionelle Anteil und die Gitterplatzbesetzung wurden mit der Ionen-Channeling Methode bestimmt. Der in situ gemessene substitutionelle Anteil zeigt eine starke Abhängigkeit von der Implantationstemperatur. Bei Implantations- und Analysetemperaturen unterhalb der Temperatur der Stufe III ist der substitutionelle Anteil signifikant größer als bei Temperaturen darüber. Mit ansteigenden Werten der Lösungswärme sinkt der substitutionelle Anteil für alle Implantationstemperaturen. Die nichtsubstitutionelle Komponente besteht aus Fremdatom-Leerstellen Komplexen. Diese Komplexe bilden sich bereits in der Abkühlphase der Kaskade. Bei Temperaturen oberhalb der Temperatur der Stufe III werden zusätzlich frei bewegliche Leerstellen von den Fremdatomen eingefangen. Der Einfangradius ist mit der Lösungswärme und der Fehlanpassungsenergie korreliert.

Der Teil der Fremdatom-Leerstellen Komplexe, der bei Temperaturen oberhalb der Temperatur der Stufe III zusätzlich gebildet wird, kann durch Nachbestrahlung mit Ionen verschiedener Masse bei tiefen Temperaturen, selbst bei 5 K, vollständig aufgelöst werden. Die Erhöhung der substitutionellen Komponente durch Nachbestrahlung ist unabhängig von der Fremdatomkonzentration, der Kaskadendichte, der mittleren übertragenen Energie und dem Kaskadeneffektivitätsfaktor. Der Anstieg der substitutionellen Komponente wird durch die Dissoziation von Fremdatom-Leerstellen Komplexen innerhalb der Kollisionsphase der Kaskade verursacht und dient als ein quantitatives Maß für die Rekombination instabiler Frenkel-paare in der Relaxationsphase der Kaskade. Diese Ergebnisse stellen erstmalig eine experimentelle Bestätigung molekulardynamischer Rechnungen der Kaskadenentwicklung dar.

Die Methode des Ionenstrahlinduzierten Mischens ist weniger gut zur Untersuchung grundlegender Prozesse innerhalb der Kaskade geeignet.

## Lattice Site Occupation of Insoluble Impurity Atoms in Aluminium after Implantation and Irradiation

### ABSTRACT

Several elements, whose atoms are oversized and insoluble in aluminium, were implanted in aluminium single crystals at different temperatures. The substitutional fraction and the lattice site location were determined using the ion-channeling technique. The substitutional fractions obtained by in situ analyses are strongly dependent on the implantation temperature. At implantation and analysis temperatures below the temperature of stage III the substitutional fraction is significantly larger than at temperatures above. With increasing heat of solution the substitutional fraction decreases for all implantation temperatures. The non-substitutional component consists of impurity atom-vacancy complexes. These complexes are formed in the cooling phase of the cascade. At temperatures above the temperature of stage III additional free mobile vacancies were captured by the impurity atoms. The capture radius is correlated with the heat of solution and the size mismatch energy.

The part of the impurity atom-vacancy complexes, which is formed additionally at temperatures above the temperature of stage III can be recovered completely by postirradiation with ions of different masses at low temperatures, even at 5 K. The increase of the substitutional fraction is independent of the impurity atom concentration, the cascade density, the mean transferred energy and the damage production efficiency. The increase of the substitutional fraction is attributed to the disassociation of impurity atom-vacancy complexes and serves as a quantitative measure for unstable pair recombination in the relaxation phase of the collision cascade. These results constitute for the first time an experimental confirmation of molecular dynamics calculations of cascade evolution.

Ion beam mixing experiments are less well suited to investigate the basic processes within the cascade.

1.	EINLEITUNG .....	1
2.	EXPERIMENTELLE ANORDNUNG UND PROBENPRÄPARATION .....	3
2.1.	Experimentelle Anordnung .....	3
2.1.1.	Van de Graaff-Beschleuniger, Ionen- beschleuniger und Strahl- führungssystem .....	3
2.1.2.	Tieftemperatur- und Dreiachsen- Goniometer .....	6
2.1.3.	Datenaufnahme und Datenanalyse .....	8
2.2.	Probenpräparation .....	9
2.2.1.	Präparation der Aluminium- einkristalle .....	10
2.2.2.	Herstellung der dünnen Schichten durch Aufdampfen .....	10
3.	PHYSIKALISCHE GRUNDLAGEN DER EXPERIMENTELLEN METHODEN .....	12
3.1.	Ionenimplantation und Ionenbestrahlung .....	12
3.1.1.	Wechselwirkung zwischen Ion und Targetmaterie .....	13
3.1.2.	Defekterzeugung .....	21
3.1.3.	Kaskadenmodelle .....	24
3.2.	Rutherford-Rückstreuung .....	30
3.2.1.	Theoretische Grundlagen .....	30
3.2.2.	Quantitative Auswertung .....	35
3.3.	Ionen-Channeling .....	36
3.3.1.	Das klassische Kontinuummodell .....	41
3.3.2.	Monte-Carlo Simulation .....	43
3.3.3.	Anwendungen des Channeling-Effektes...	43
3.3.4.	Bestimmung des substitutionellen Anteils und der Gitterplatz- besetzung implantierter Fremdatome ...	44
4.	MODELLE ZUR GITTERPLATZBESETZUNG IMPLANTIERTER FREMDATOME .....	48
4.1.	Ersetzungsstoßtheorie .....	48
4.2.	Schnellabschreckung aus der Kaskade .....	51
4.3.	Empirische Modelle .....	52
4.4.	Wechselwirkung von Fremdatomen mit Punktdefekten .....	59
4.5.	Defekt-Antidefekt Reaktion .....	62

5. RESULTATE UND DISKUSSION .....	63
5.1. Gitterplatzbesetzung implantierter Fremdatome in Aluminium .....	63
5.1.1. Gallium implantiert in Aluminium .....	64
5.1.2. Cadmium implantiert in Aluminium .....	67
5.1.2.1. Implantation bei verschiedenen Temperaturen .....	68
5.1.2.2. Temperexperimente .....	72
5.1.2.3. Implantation hoher Cadmiumkonzentrationen .....	76
5.1.2.4. Plastische Verformung des implantierten Bereichs .....	80
5.1.3. Quecksilber implantiert in Aluminium.....	82
5.1.4. Antimon implantiert in Aluminium .....	82
5.1.5. Indium implantiert in Aluminium .....	85
5.1.6. Krypton und Xenon implantiert in Aluminium .....	91
5.1.7. Blei implantiert in Aluminium .....	91
5.1.8. Cäsium und Rubidium implantiert in Aluminium .....	95
5.1.9. Zusammenfassung der Resultate .....	98
5.1.10. Diskussion der Modelle der Gitterplatzbesetzung auf der Basis der experimentellen Ergebnisse .....	100
5.2. Erhöhung der substitutionellen Komponente durch Nachbestrahlung .....	105
5.2.1. Nachbestrahlung des implantierten Aluminium-Cadmium Systems .....	107
5.2.2. Nachbestrahlung des implantierten Aluminium-Antimon Systems .....	122
5.2.3. Nachbestrahlung des implantierten Aluminium-Indium Systems .....	123
5.2.4. Nachbestrahlung des implantierten Aluminium-Blei Systems .....	125
5.2.5. Effekte verursacht durch den Analysestrahl .....	126
5.2.6. Nachbestrahlung mit Molekülionen.....	127
5.2.7. Vergleich der Ergebnisse der Nachbestrahlungsexperimente mit theoretischen Modellen .....	129
5.2.7.1. Einfache Volumensättigung.....	130
5.2.7.2. Modell von Gibbons .....	132
5.2.7.3. Auflösung verschiedener Komplextypen .....	134
5.2.7.4. Exponentialfunktion mit gebrochenem Exponenten .....	137

5.2.7.5. Modell von Bansal und Ardell .....	138
5.2.7.6. Komplexauflösung durch Einfang von frei beweglichen Eigenzwischen- gitteratomen .....	142
5.2.7.7. Molekulardynamische Rechnungen .....	144
5.2.8. Diskussion der Ergebnisse .....	146
6. ZUSAMMENFASSENDE DISKUSSION .....	150
<u>Anhang</u> Ionenstrahlinduziertes Mischen (Ion-Beam- Mixing) .....	152
I. Mixingparameter verschiedener Marker (Ta,W,Au) in Vanadium.....	154
II. Bestrahlungsinduziertes Mischen im Aluminium(Gold)-System .....	156
III. Zusammenfassung und Diskussion der Ergebnisse .....	157
LITERATURVERZEICHNIS .....	160

## 1. EINLEITUNG

Die Ionenimplantation hat im Laufe der letzten Jahre als Technik zur Modifizierung von Oberflächen und oberflächennaher Gebiete bedeutende Verbreitung gefunden. Elektrische, chemische und mechanische Eigenschaften von Materialien können durch Ionenimplantation verändert und verbessert werden. Zahlreiche integrierte Schaltkreise und elektronische Einzelkomponenten werden heute unter Nutzung der Ionenimplantation gefertigt. Dabei wird die Ionenimplantation zur Dotierung, Kontaktierung und zur Erzeugung isolierender Schichten eingesetzt. Die Nutzung der Ionenimplantation zur Verbesserung der katalytischen Eigenschaften von Oberflächen chemischer Katalysatoren ist noch im Versuchsstadium. Dagegen wird die Ionenimplantation zur Härtung von Oberflächen industriell genutzt. Die Standzeit der Prägestempel der ungarischen Münze wird durch Stickstoffimplantation auf ein Vielfaches erhöht /1/. Auch künstliche Knie- und Hüftgelenke aus Titan werden durch Ionenimplantation für die Humanmedizin nutzbar gemacht /2/.

Der Hauptvorteil der Ionenimplantation ist die Möglichkeit, nahezu jedes Ion in nahezu jeden Festkörper einzubringen, ohne Rücksicht auf die Regeln der Metallurgie und ohne Beachtung der Gleichgewichtsphasendiagramme. Aus diesem Grunde werden die Legierungen, die durch Implantation hergestellt wurden, meist metastabil sein. Für das Verständnis und die Voraussage von Eigenschaften implantierter Systeme ist es wünschenswert eine Vorstellung von den Faktoren, die die Fremdatom-Wirtsgitteratom Konfiguration bestimmen, zu erhalten. Die grundlegenden Prozesse können stoßkinetischer Natur sein, oder können thermodynamische Kräfte, verursacht durch lokale Änderung des chemischen Potentials sein. Weiterhin kann die Reaktion der Fremdatome mit Punktdefekten ein wichtiger Prozess sein. Bislang wurden zahlreiche Versuche unternommen um Kriterien zu finden, die die Position der Fremdatome im Wirtsgitter bestimmen.

Sood und Dearnaley /3/ und Picraux /4/ bestimmten die substitutionellen Anteile von zahlreichen, bei 293 K in Aluminium implantierten Elementen. Brice /5/, Darken und Gurry /6/, Miedema et al. /7,8,9/, Chelikowsky /10/, Alonzo und López /11/, Singh und Zunger /12/ und Doyama /13/ entwickelten Modelle zur Vorhersage der Gitterplatzbesetzung.

Im Rahmen dieser Arbeit wird die Gitterplatzbesetzung von, bei verschiedenen Temperaturen, in Aluminium implantierten, unlöslichen Fremdatomen untersucht. Aus dieser Gruppe ist das System AlPb von technischem Interesse. Aluminium-Blei Legierungen, die konventionell nicht herstellbar sind, sollten sich gut als Gleitlagerwerkstoffe eignen /14/. Selbst unter Schwerelosigkeit gelang es in einem Experiment der D1-Mission im Space Shuttle nicht, Al und Pb zu legieren /14/.

Eng mit der Ionenimplantation verknüpft ist die Frage von Struktur und Eigenschaften der Stoß- oder Kollisionskaskade, die sich beim Beschuß mit energetischen Teilchen im Festkörper ausbildet. Ausgehend von theoretischen, phänomenologischen Modellen über Monte-Carlo Simulationen bis hin zu molekulardynamischen Rechnungen existieren zahlreiche Beschreibungen der Eigenschaften von Kaskaden. Die Grundlagen für das Verständnis der Erzeugung und der Struktur von Strahlenschäden legten die Arbeiten von Brinkman /15,16/, Kinchin und Pease /17/ und Seitz und Koehler /18/. Brinkman /15/ führte das Konzept des "Displacement Spike" ein. Das "Thermal Spike" Modell wurde von Seitz und Koehler /18/ eingeführt und von Vineyard /19,20/ und Averback /21/ weiterentwickelt. Guinan /22/ entwickelte ein Kaskadenmodell basierend auf Schockwellen. Robinson und Torrens /23/ und Bier-sack und Haggmark /24/ simulierten Kaskaden unter der Näherung binärer Stöße. King und Benedek /25/ und Guinan und Kinney /26/ beschrieben die zeitliche Entwicklung von Kaskaden mittels molekulardynamischer Rechnungen. Mit Hilfe von Nachbestrahlungsexperimenten soll versucht werden, die vorgeschlagenen Kaskadenmodelle experimentell zu verifizieren.

Es wurden zusätzlich Experimente des Ionenstrahlinduzierten Mischens durchgeführt, deren Ergebnisse im Anhang dieser Arbeit aufgeführt sind.

## 2. EXPERIMENTELLE ANORDNUNG UND PROBENPRÄPARATION

### 2.1 Experimentelle Anordnung

Beschleuniger, Strahlrohrsystem und Streukammern zur Durchführung von Rutherford-Rückstreuexperimenten und Channeling-Messungen befinden sich in der Experimentierhalle 434 des Kernforschungszentrums Karlsruhe. Die Van de Graaff-Beschleuniger und der Ionenbeschleuniger sind in separaten, gut abgeschirmten Räumen aufgebaut. Die Computer zur Datenaufnahme und Datenauswertung befinden sich ebenfalls in der Experimentierhalle.

#### 2.1.1 Van de Graaff-Beschleuniger, Ionenbeschleuniger und Strahlführungssystem

Die Anordnung der Beschleuniger und des zugehörigen Strahlführungssystems des Instituts für Nukleare Festkörperphysik ist in Abb. 1 schematisch dargestellt.

Die zwei Van de Graaff-Beschleuniger mit Maximalspannungen von 2.5 und 3.5 MV werden für Rutherford Rückstreu- und Channeling-Experimente genutzt. Der hierzu benutzte  $\text{He}^+$ -Strahl ist sehr gut kollimiert (Winkeldivergenz  $< 0.01^\circ$ ) und besitzt einen Strahldurchmesser von 0.5 mm. Üblicherweise wird für die Messungen ein Strahlstrom von 10-20 nA gewählt. Die Energie und die Anzahl, der von der Probe unter einem Winkel von  $165^\circ$  zur Strahleinfallsrichtung rückgestreuten Teilchen, wird in einem Raumwinkel von 4.6 msterad in einem Silizium-Oberflächensperrschichtzähler registriert. In Abb. 2 ist die Strahlführung schematisch gezeigt.

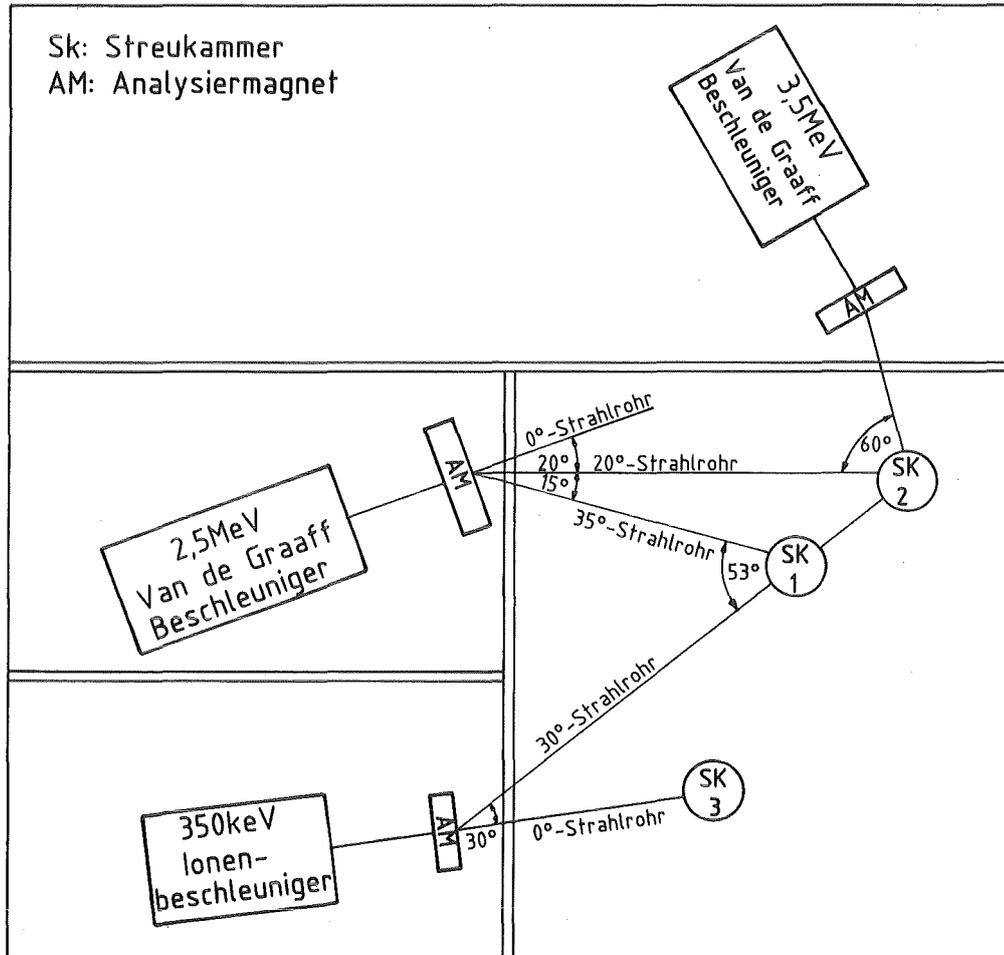


Abb. 1 Schematische Darstellung der experimentellen Anordnung.

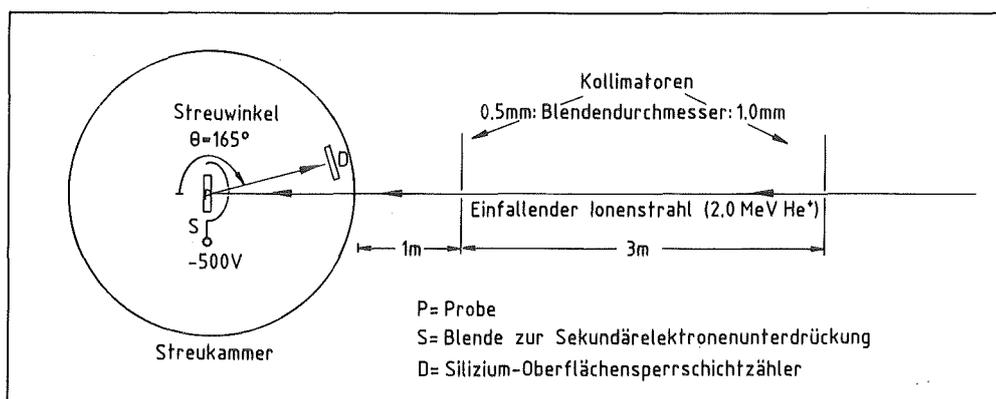


Abb. 2 Strahlweg im Strahlrohr und in der Streukammer.

Der Ionenbeschleuniger /27,28/ mit einer maximal zur Verfügung stehenden Spannung von 350 keV ist in der Lage, nahezu alle Elemente des Periodensystems in einfach oder mehrfach ionisierter Form oder als Molekülonen zu beschleunigen.

Standardmäßig werden Raum- und Tieftemperaturexperimente (5, 77 K) mit dem in Kap. 2.1.2 beschriebenen Tieftemperatur-Goniometer in der Streukammer 1 durchgeführt. In dieser Kammer kann in situ bei tiefen Temperaturen und unter Ultrahochvakuumkonditionen ( $< 5 \cdot 10^{-4}$  Pa bei  $T = 293$  K und  $< 2 \cdot 10^{-6}$  Pa bei  $T \leq 77$  K) implantiert, bestrahlt und analysiert werden. In Kammer 2 wurden Analysen bei  $T = 293$  K mit dem Dreiachsen-Goniometer durchgeführt.

Das Vakuum in den Streukammern und dem Strahlrohrsystem wird durch Turbomolekularpumpen aufrechterhalten.

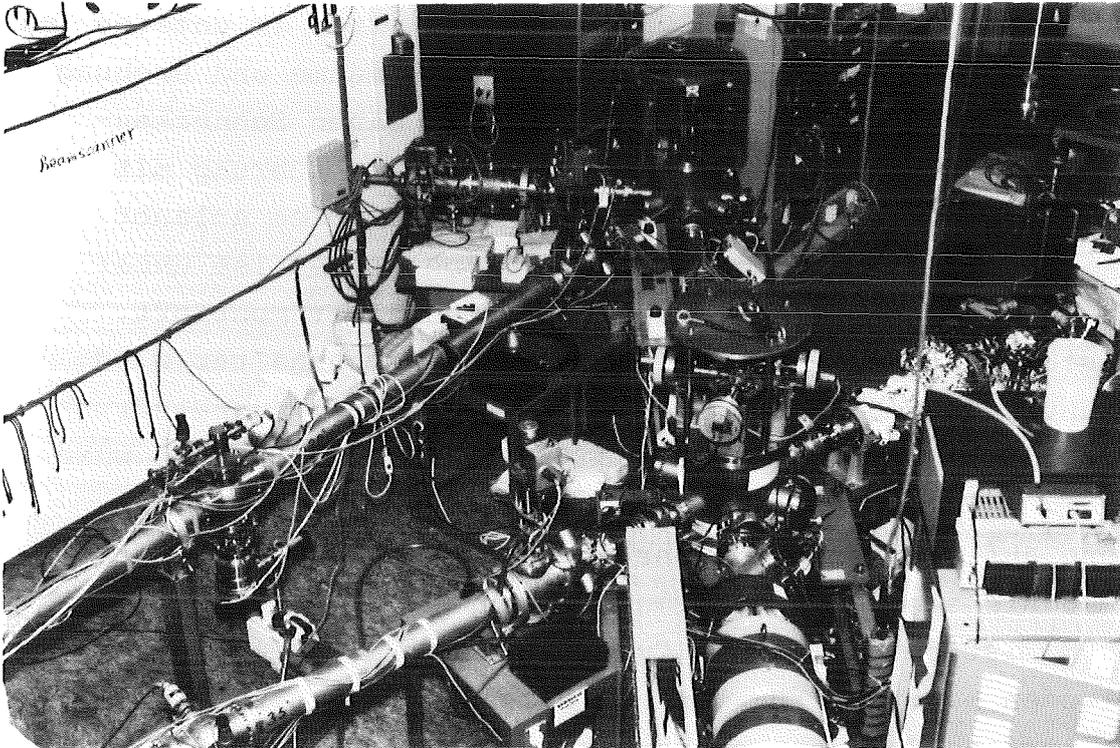


Foto 1 Streukammern und Strahlrohrsystem. Oben im Bild ist Kammer 2, in Bildmitte ist Kammer 1 mit dem eingesetzten Dreiachsengoniometer zu sehen.

### 2.1.2 Tieftemperatur- und Dreiachsen-Goniometer

Zur Bestrahlung und Analyse bei verschiedenen Temperaturen wurden die Proben in ein Tieftemperatur-Goniometer eingebaut. Der Aufbau und die Funktion des Tieftemperatur-Goniometers sind in Ref. /29/ und /30/ detailliert beschrieben.

Bei dem Tieftemperatur-Goniometer handelt es sich um ein mit einem Badkryostaten ausgestattetes Zweiachsen-Goniometer. Wahlweise kann flüssiger Stickstoff (77 K) oder flüssiges Helium (4.2 K) eingefüllt werden. Der Tank besteht aus einem langen Edelstahlrohr, auf dem unten ein Cu-Rechteckblock hartgelötet ist. Am oberen Ende ist es an einen mit einem Zahnkranz versehenen Edelstahlflansch angeschweißt. Die Vakuumabdichtung erfolgt mittels Viton-Rundschnurringen. Diese Konstruktion erlaubt die Drehung des gesamten Einsatzes um die vertikale Achse  $\theta$ . In den Cu-Block ist ein Hohlraum eingefräst, der durch das Edelstahlrohr mit den verflüssigten Gasen befüllt wird. Im unteren Teil dieses Cu-Blocks ist ein UHV-Kugellager zur Aufnahme und Drehung des Probenhalters angebracht. Dieser ist über einen Schneckentrieb, eine Edelstahlstange und eine UHV-Drehdurchführung mit einem Schrittmotor mit Winkelkodierer verbunden. Dies erlaubt eine Rotation um die Probenachse  $\phi$ . Die Probe selbst ist unter Zwischenlage von In-Folie auf einem Cu-Probenhalter montiert. Der thermische Kontakt zwischen Cu-Block und Probenhalter wird, ebenfalls unter Zwischenlage von In-Folie, über den Anpressdruck zweier Druckfedern erreicht. Der Außenmantel des Kryostaten wird mit flüssigem Stickstoff gekühlt. Zur Abschirmung thermischer Einstrahlung auf das Edelstahlrohr und den Cu-Block ist im Innern des Außenmantels eine Cu-Abschirmung angebracht. Um den Probenhalter herum ist ebenfalls ein Cu-Abschirmbecher befestigt. Alle Abschirmblenden besitzen für den einfallenden Ionenstrahl und für die rückgestreuten Teilchen entsprechende Aussparungen. Die Temperaturanzeige erfolgt über einen geeichten Ge-Widerstand, der an der Seite des Cu-Blocks angebracht und mit einer Meßbrücke verbunden ist.

Die Reproduzierbarkeit der Winkel beträgt für  $\theta$   $0.02^\circ$  und für  $\phi$   $0.25^\circ$ , sofern die Winkel von jeweils der gleichen Seite aus angefahren werden /29/.

Die auf die Probe geflossene Ladung wird direkt durch Integration des Ionenstroms, der auf die Probe trifft, gemessen. Die beim Beschuß mit hochenergetischen Ionen auftretenden Sekundärelektronen werden durch eine Blende, die den Probenhalter umschließt und auf einem negativen Potential von 500 V liegt, unterdrückt.

Da der drehbare Probenhalter bezüglich der thermischen Ankopplung an den Cu-Block vermutlich nicht die optimale technische Lösung darstellt, wurde die Temperatur mit einem am Ort der Probe angebrachten Ge-Widerstand gemessen. Während eines Bestrahlungsexperimentes wurde am Probenort eine Temperatur von 5.5 K gemessen /29/.

Für Messungen bei 293 K ohne in situ Bestrahlung wurde ein Dreiachsen-Goniometer verwendet. Zusätzlich, im Vergleich zum Tieftemperatur-Goniometer ist eine Verkipfung um die horizontale Achse  $\alpha$  möglich. Auch bei diesem Goniometer ist die Probe zur Strommessung elektrisch isoliert montiert. Die Sekundärelektronen werden mittels einer Blende, die auf -300 V liegt unterdrückt. Alle drei möglichen Winkelbewegungen  $\theta$ ,  $\alpha$ ,  $\phi$  werden durch Schrittmotoren ausgeführt. Die Absolutwinkel werden mit digitalen Winkelkodierern gemessen.

Beide beschriebenen Goniometer sind für Ultrahochvakuum-Konditionen ausgelegt.

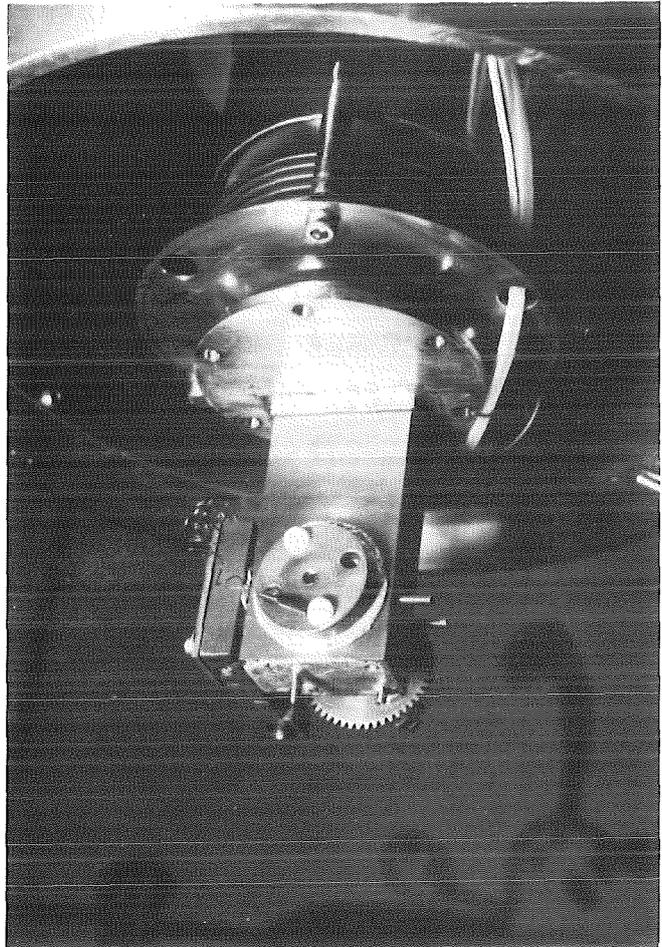
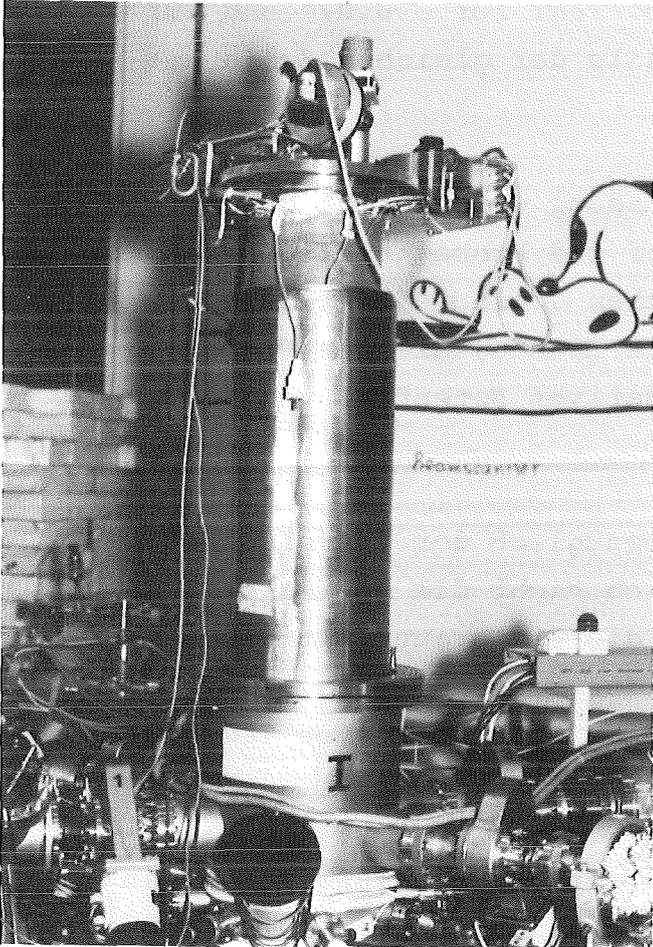


Foto 2 Außenansicht des Tieftemperatur-Goniometers.

Foto 3 Ansicht des Bereichs des Probenhalters.

### 2.1.3 Datenaufnahme und Datenanalyse

Alle Steuerungs- und Meßwerterfassungsaufgaben werden von einem NOVA3 Kleinrechner über ein CAMAC-System bewerkstelligt.

Die Winkelbewegungen der Goniometer werden mittels Vierphasen Schrittmotoren durchgeführt und über digitale Winkelkodierer kontrolliert. Sowohl Schrittmotoren, als auch Winkelkodierer werden über das CAMAC-System betrieben.

Der Ionenstrom, sowohl bei der Analyse, als auch bei Implantation und Bestrahlung wird jeweils direkt auf der Probe gemessen. Dazu ist die Probe elektrisch isoliert und mit einem Stromintegrator verbunden. Der Stromintegrator besitzt einen Strom-zu-Frequenz Wandler, der mit einem Zähler im CAMAC-System verbunden ist.

Das Ausgangssignal des Silizium-Oberflächensperrschichtzählers wird vorverstärkt, durchläuft den Hauptverstärker und wird in einem schnellen ADC digitalisiert. Über DMA wird es direkt in einen Teil des Arbeitsspeichers der NOVA3 geschrieben.

Die Gesamtsteuerung des Experimentes übernimmt ein umfangreiches Computerprogramm /29/.

Zur Auswertung der Spektren und Meßdaten steht neben der NOVA3 noch ein NOVA4 Rechner mit 150 MByte Festplatte, Farbmonitor, Trommelplotter und Drucker zur Verfügung. Zahlreiche Programme zur Auswertung und Darstellung von Spektren, Winkelabhängigen Ausbeutekurven und Meßdaten wurden erstellt.

Zur Monte-Carlo Simulation von Channeling-Experimenten wurde ein MV4000 Rechner verwendet.

## 2.2 Probenpräparation

Zur Untersuchung der Gitterplatzbesetzung implantierter Fremdatome und für die Nachbestrahlungsexperimente wurden als Targetmaterial käufliche Aluminiumeinkristalle verwendet. Vor der Benutzung mußten diese Kristalle geschnitten, geätzt und gereinigt werden.

Für die Experimente zum Ionenstrahlmischen wurden geeignete dünne Schichten durch Aufdampfen im Ultrahochvakuum hergestellt.

### 2.2.1 Präparation der Aluminiumeinkristalle

Hochreine Aluminiumeinkristalle, orientiert in  $\langle 110 \rangle$  und  $\langle 100 \rangle$  Richtung, wurden in Stabform mit 5 und 10 mm Durchmesser von der Fa. IBS, D-8082 Grafrath bezogen. Mittels einer Säuresäge ( $\text{HCl} + \text{H}_2\text{O}$ ) wurden die Einkristalle in etwa 5 mm dicke Scheiben zerschnitten. Der Kristall war beim Schneiden so montiert, daß die Kristallachse etwa  $8^\circ$  gegen die Oberflächennormale verkippt war. Vor jedem Experiment wird die Oberfläche jeweils einer der Scheiben elektrochemisch in einer Lösung aus Methanol ( $\text{CH}_3\text{OH}$ ) und Salpetersäure 65% ( $\text{HNO}_3$ ) zu gleichen Teilen abgeätzt. Dabei stellt der Kristall, der mit einer Aluminiumpinzette gehalten wird, die Anode dar, als Kathode fungiert ein Aluminiumblech. Der Strom wird, je nach Größe des Kristalls, zwischen 3 und 8 A eingestellt. Nach dem Ätzvorgang wird der Kristall in reinem Methanol und darauf folgend in wasserfreiem Äthanol gereinigt. Nach jedem Experiment wird die implantierte Oberflächenschicht mittels des oben beschriebenen elektrochemischen Ätzverfahrens entfernt, so daß derselbe Einkristall für mehrere Experimente zur Verfügung steht. Die so präparierten Einkristalle weisen  $\chi_{\min}$ -Werte zwischen 0.02 und 0.08 auf (siehe S. 44).

### 2.2.2 Herstellung der dünnen Schichten durch Aufdampfen

Zur Herstellung der Dünnschichtstrukturen für die Experimente des Ionenstrahlinduzierten Mischens wurde die in Ref. /31/ ausführlich beschriebene Aufdampfanlage benutzt. Die Schichten wurden durch sequentielles Elektronenstrahlverdampfen von Medium und Marker auf einkristalline Saphirsubstrate hergestellt. Aufdampfmaterialien höchster Reinheit wurden verwendet. Das ölfreie Vakuum wurde durch zweistufige Drehschieber-Vorpumpe, Turbomolekularpumpe, Titanverdampfer und flüssig Stickstoff Kühlfalle aufrecht erhalten. Der Druck im Rezipienten betrug vor und nach dem Aufdampfen  $< 1 \cdot 10^{-7}$  Pa, während des Aufdampfens  $< 3 \cdot 10^{-6}$  Pa. Zu Beginn jedes Aufdampfzyklus wurden die Substrate

auf 700 K geheizt, um eine gute Haftung der Schicht sicherzustellen. Während des Aufdampfens der untersten Schicht des Mediums wurden die Substrate rasch auf 77 K abgekühlt um Diffusionsvorgänge zwischen Medium und Marker zu unterbinden. Markerschichten aus Gold, Wolfram, und Tantal in Vanadium und Markerschichten aus Gold in Aluminium wurden präpariert. Die Markerschichten von einer Dicke zwischen 3 und 5 nm befinden sich in einer Tiefe von 20 nm im Medium. Die Gesamtschichtdicke beträgt 300 nm. Für das V(W) System wurden Proben mit einem zusätzlichen Referenzmarker in 250 nm Tiefe präpariert. Die Aufdampfraten von 0.5 bis 1.0 nm/s und die Gesamtschichtdicken wurden mit einem Quarzschichtdickenmonitor überwacht.

### 3. PHYSIKALISCHE GRUNDLAGEN DER EXPERIMENTELLEN METHODEN

Allen benutzten experimentellen Techniken und Methoden, der Ionenimplantation und Ionenbestrahlung, der Rutherford-Rückstreuung und der Ionen-Channeling Methode, ist gemein, daß sie auf der Wechselwirkung von energetischen Ionen mit den Atomen des Targets und den darauffolgenden Prozessen mit unterschiedlicher Zielsetzung beruhen. Während bei der Ionenbestrahlung der nukleare Energieverlust und damit die Defekterzeugung im Vordergrund steht, ist die unvermeidliche Defekterzeugung bei der Rutherford-Rückstreuanalyse eher unerwünscht. Dagegen ist der elektronische Energieverlust bei der Ionenbestrahlung ein die Reichweite der Ionen verringernder Effekt, der bei Rückstremessungen erst eine Tiefenauflösung und Messung ermöglicht. Bei der Ionen-Channeling Methode nutzt man das, von nuklearem Energieverlust fast freie, Durchfliegen der Ionen parallel zu einer niedrig indizierten Kristallachse eines Einkristalls zur Bestimmung der Gitterplatzbesetzung eingebrachter Fremdatome. Im Gegensatz dazu ist man bestrebt bei der Ionenimplantation Channelingeffekte zu vermeiden, da damit die Reichweite und die Reichweitenverteilung und daraus folgend die Konzentration der implantierten Atome unbestimmt wird.

#### 3.1 Ionenimplantation und Ionenbestrahlung

Die verwendeten Al-Einkristalle wurden unter zwei verschiedenen Zielsetzungen mit Ionen beschossen. Bei der Ionenimplantation ist das Ziel in eine definierte Tiefe eine definierte Konzentration von Fremdatomen einzubringen. Bei der Ionenbestrahlung soll in der Tiefenregion, in der sich die implantierten Fremdatome oder die aufgedampfte Markerschicht befindet, ein definierter Strahlenschaden erzeugt werden. Dies ist gleichbedeutend mit der Deposition einer konstanten Energie pro Einheitstiefe in nukleare Stöße im betrachteten Tiefenintervall. Die Energie der zur Ionenbestrahlung gewählten Ionen

muß so hoch sein, daß sie den implantierten Bereich bzw. die Markerschicht durchdringen und erst in größerer Tiefe im Wirtsgitter bzw. Medium zur Ruhe kommen.

Für beide Vorgehensweisen ist der Abbremsvorgang der Ionen, der sowohl ihre Reichweite, ihre Verteilung als auch die Defekterzeugung bestimmt, von entscheidender Bedeutung. Die wichtigsten Grundlagen der Wechselwirkung schneller Ionen mit Materie, die in der Literatur ausführlich beschrieben sind /32,33,34/, sollen im folgenden, insoweit sie den Energiebereich zwischen 80 keV und 2.0 MeV betreffen so kurz wie möglich beschrieben werden.

In den Gleichungen der folgenden Kapitel ist  $E$  die Energie des Ions,  $Z_1$  und  $Z_2$  sind die Ordnungszahlen von Ion und Targetatom und  $M_1$  und  $M_2$  sind die Massen von Ion und Targetatom.

### 3.3.1 Wechselwirkung zwischen Ion und Targetmaterie

Beim Eindringen in das Target werden die Ionen mit dem spezifischen Energieverlust  $(-dE/dx)$  abgebremst. Im wesentlichen wird der Energieverlust durch zwei Prozesse, nämlich der elastischen Streuung an den (abgeschirmten) Atomkernen (nuklearer Energieverlust) und der Wechselwirkung mit gebundenen oder freien Elektronen (elektronischer Energieverlust), verursacht. Unter der Annahme, daß diese Prozesse nicht korreliert sind, gilt:

$$(-dE/dx) = (-dE/dx)_n + (-dE/dx)_e \quad (1)$$

Bei vorgegebenen Massen von Ion und Target hängt der Anteil der Einzelprozesse am Gesamtenergieverlust sehr stark von der Geschwindigkeit der Ionen, was gleichbedeutend mit ihren Energien ist, ab. Für hohe Geschwindigkeiten, wie sie bei der Rutherford Rückstreuanalyse mit 2.0 MeV  $\text{He}^+$  vorkommen, dominiert der elektronische Energieverlust. Bei kleineren Geschwindigkeiten, wie sie für die Ionenimplantation und Ionenbestrahlung verwendet werden, spielt der nukleare Energieverlust eine wesentliche Rolle (siehe Abb. 3).

### Elektronischer Energieverlust

Im Bereich hoher Energien erreicht der elektronische Energieverlust ein Maximum bei der Ionengeschwindigkeit

$$v_1 = z_1^{2/3} \cdot v_0 \quad (\text{siehe Abb. 3}) \quad (2)$$

wobei  $v_0$  die Bohr'sche Geschwindigkeit

$$v_0 = \frac{e^2}{\hbar} = \alpha \cdot c \quad (3)$$

darstellt. Für Geschwindigkeiten größer als  $v_1$  nimmt  $(-dE/dx)_e$  mit  $1/E$  ab. In diesem Energiebereich, der Bethe-Bloch Bereich genannt wird, erfolgt der Energieübertrag auf einzelne Elektronen. Der elektronische Energieverlust ist hierbei durch /35/

$$\left(\frac{-dE}{dx}\right)_e = \frac{4\pi z_1^2 \cdot z_2 \cdot e^4}{m_e \cdot v^2} \cdot \left(\ln \frac{2mev^2}{I_0} + \dots\right) \quad (4)$$

gegeben. In diesem Energiebereich arbeitet man bei Rückstreu- und Channeling-Messungen mit leichten Ionen und Energien um 2.0 MeV. Damit kann der elektronische Energieverlust auch mit Hilfe der Polynomkoeffizienten nach Ref. /36/ approximiert werden.

Für den Energiebereich der Ionenimplantation und Ionenbestrahlung kann man den Energieverlust näherungsweise als einen kontinuierlichen Prozeß betrachten, in dem der Energieverlust proportional zur Geschwindigkeit des Ions ist /37/. Nach der Einführung dimensionsloser Größen für Energie und Reichweite erhält man /37/:

$$\left(\frac{-d\epsilon}{d\rho}\right)_e = k \cdot \epsilon^{1/2} \quad (5)$$

mit der reduzierten Energie

$$\epsilon = E \cdot \frac{a \cdot M_2}{Z_1 \cdot Z_2 \cdot e^2 \cdot (M_1 + M_2)} \quad (6)$$

wobei

$$a = 0.8853 \cdot a_0 \cdot (Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{-1/2} \quad (7)$$

der Thomas-Fermi Abschirmparameter und  $a_0 = 0.053$  nm der Bohr'sche Radius ist. Die reduzierte Reichweite ist durch

$$\rho = x \cdot \frac{4 \cdot \pi \cdot a^2 \cdot N \cdot M_1 \cdot M_2}{(M_1 + M_2)^2} \quad (N = \text{atomare Dichte}) \quad (8)$$

gegeben. Der Proportionalitätsfaktor wird durch /37/

$$k = \frac{0.0793 \cdot Z_1^{2/3} \cdot Z_2^{2/3} \cdot (M_1 + M_2)^{3/2}}{Z_1^{1/2} \cdot M_1^{3/2} \cdot M_2^{1/2}} \quad (9)$$

ausgedrückt. In Abb. 3 ist der Verlauf des elektronischen Energieverlusts in Abhängigkeit von der reduzierten Energie  $\epsilon^{1/2}$  für beide betrachteten Energiebereiche graphisch dargestellt.

Zur Verdeutlichung sind in Tab. 1 Werte von  $\epsilon^{1/2}$  und  $k$  für einige typische Fälle von Rückstreuanalyse, Ionenbestrahlung und Ionenimplantation aufgeführt.

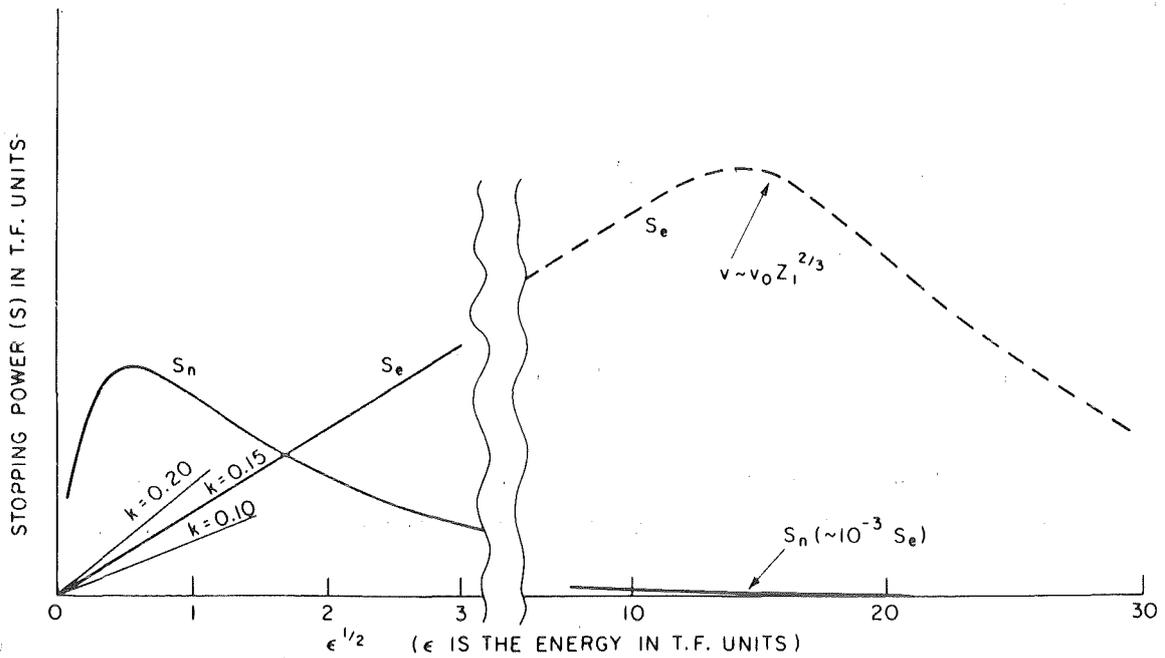


Abb. 3 Abhängigkeit des elektronischen ( $S_e$ ) und des nuklearen ( $S_n$ ) Energieverlusts von der reduzierten Energie  $\epsilon^{1/2}$  /38/.

Ion	Target	$\epsilon^{1/2}$	k
2.0 MeV He <sup>+</sup>	in Al	28.58	-----
200 keV He <sup>+</sup>	in Al	9.04	0.432
300 keV Ne <sup>+</sup>	in Al	3.67	0.160
300 keV Kr <sup>+</sup>	in Al	1.12	0.112
80 keV Cd <sup>+</sup>	in Al	0.43	0.111
300 keV Pb <sup>+</sup>	in Al	0.46	0.114

Tabelle 1 Werte der reduzierten Energie  $\epsilon^{1/2}$  und des Proportionalitätsfaktors k für die Bereiche der Rückstreuanalyse, der Ionenbestrahlung und der Ionenimplantation.

### Nuklearer Energieverlust

Der nukleare Energieverlust kommt durch die Wechselwirkung der Ionen mit den Kernen der Targetatome zustande. Im betrachteten Energiebereich handelt es sich dabei um einen elastischen Stoßprozeß, der als klassisches Zweikörperstreuproblem behandelt werden kann und als primäres Ereignis bezeichnet wird /39/.

Bei einem elastischen Stoß überträgt das Ion auf das Targetatom die kinetische Energie

$$T = T_m \cdot \sin^2(\theta/2) \quad (10)$$

dabei ist  $T_m$  die maximal übertragbare Energie. Sie wird ausschließlich bei einem Stoß mit dem Streuwinkel  $\theta = \pi$  ( $\theta =$  Streuwinkel im Schwerpunktsystem) übertragen und beträgt

$$T_m = \gamma \cdot E \quad (11)$$

mit

$$\gamma = \frac{4 \cdot M_1 \cdot M_2}{(M_1 + M_2)^2} \quad (12)$$

Durch diesen Stoßprozeß wird dem ursprünglich ruhenden Targetatom die Energie  $T$  übertragen. Ist dieser Energieübertrag größer als eine Schwellenenergie  $E_D$  kann das Targetatom die Potentialsenke seines Gitterplatzes verlassen. Die Verlagerungsenergie  $E_D$  ist in Einkristallen abhängig von der Kristallorientierung /25/ und besitzt für Metalle Werte zwischen 15 und 80 eV /40,41/. Für Al wurde ein Wert von  $E_D = 18$  eV ermittelt /42/. Ein verlagertes, energiereiches Targetatom kann seinerseits durch elastische Stöße weitere Targetatome verlagern (sekundäre Ereignisse) und damit eine Stoßkaskade oder eine sogenannte Subkaskade auslösen.

Diese Betrachtung gilt für Stoßprozesse mit ruhenden Targetatomen. Falls ein Targetatom bereits durch einen Stoß mit einem Energieübertrag  $< E_D$  angeregt ist, ist bei einem zweiten Stoß die zur Verlagerung notwendige Energie  $< E_D$ . Die Verlagerungsenergie  $E_D$  wird daher in einer dichten Kaskade oder Subkaskade, in der nahezu alle Atome angeregt sind, deutlich abgesenkt.

Der gesamte nukleare Energieverlust beträgt /39/:

$$(-dE/dx)_n = N \cdot \int_{E_D}^{\gamma \cdot E} T \cdot \frac{d\sigma}{dT} dT \quad (13)$$

$d\sigma/dT$  ist der differentielle Verlagerungsquerschnitt. Die in Abb. 3 aufgetragene Kurve des nuklearen Energieverlustes in reduzierten Einheiten ist mit Hilfe eines analytischen Ausdrucks für  $(-dE/dx)_n$  aus Ref. /43/ berechnet.

Für den differentiellen Streuquerschnitt gilt:

$$d\sigma = 2\pi p dp \quad (14)$$

mit dem Stoßparameter  $p$ , dem Abstand, in dem das Ion am Targetatomkern vorbeifliegen würde, wenn es zwischen ihnen keine Wechselwirkung gäbe.

$d\sigma(E, T)$  läßt sich berechnen, indem man  $p$  als Funktion von  $\theta$  ausdrückt und  $\theta$  dann durch  $T$  ersetzt. Der Zusammenhang zwischen  $p$  und Streuwinkel  $\theta$  lautet gemäß der elastischen Streutheorie /39/:

$$\theta = \pi - 2p \cdot \int_{r_m}^{\infty} \frac{1/r^2}{(1 - v(r)/E_1 - p^2/r^2)^{1/2}} d^3r \quad (15)$$

mit

$r$  = interatomarer Abstand

$r_m$  = minimaler Annäherungsabstand

$$E_1 = \frac{M_2}{M_1 + M_2} \cdot E$$

Die Integration in Gleichung (15) läßt sich nur für sehr wenige Formen von  $V(r)$  analytisch durchführen. Geeignet ist das reine Coulombpotential oder das Nielsen-Potential /39/. Im Energiebereich der Ionenimplantation eignet sich ein Coulombpotential mit einer Abschirmfunktion  $\phi$ :

$$V(r) = \frac{z_1 \cdot z_2 \cdot e^2}{r} \cdot \phi\left(\frac{r}{a}\right) \quad (16)$$

Die besten Werte für  $V(r)$  erhält man aus Berechnungen der Abschirmfunktionen aus dem Thomas-Fermi Atommodell. Für die Abschirmfunktion erhält man keinen geschlossenen Ausdruck, man approximiert sie durch inverse Potenzpotentiale /37/.

Zur Beschreibung der nuklearen Wechselwirkung von leichten Ionen mit den Targetatomen eignet sich das Coulombpotential. Differentieller Verlagerungsquerschnitt:

$$\frac{d\sigma}{dT} = \frac{4 \cdot \pi \cdot a_0^2 \cdot M_1 \cdot z_1^2 \cdot z_2^2 \cdot E_R^2}{M_2 \cdot E} \cdot \frac{1}{T^2} \quad (17)$$

mit  $E_R = \frac{e^2}{2a_0}$

Totaler Verlagerungsquerschnitt:

$$\sigma_D = \frac{4 \cdot \pi \cdot a_0^2 \cdot M_1 \cdot z_1^2 \cdot z_2^2 \cdot E_R^2 (1 - E_D / (\gamma \cdot E))}{M_2 \cdot E \cdot E_D} \quad (18)$$

Die Wahrscheinlichkeit, daß die bei einem Stoß übertragene Energie zwischen  $T$  und  $T + dT$  liegt ist umgekehrt proportional zu  $T^2$ . Die mittlere bei einem primären Ereignis übertragene Energie ist /39/:

$$\bar{T} = \frac{E_D \cdot \ln(\gamma \cdot E / E_D)}{1 - E_D / (\gamma \cdot E)} \quad (19)$$

Zur Beschreibung der Wechselwirkung schwerer Ionen mit den Targetatomkernen eignet sich das Nielsen-Potential

$$V(r) = (Z_1 \cdot Z_2 \cdot e^2 \cdot a \cdot e^{*-1}) / r^2 \quad (20)$$

$e^*$  = Eulersche Zahl = 0.5772 ...

besser. Für  $d\sigma/dT$ ,  $\sigma_D$  und  $\bar{T}$  folgt daraus:

$$\frac{d\sigma}{dT} = \frac{\pi^2 \cdot a^2 \cdot E_a \cdot \gamma^{1/2}}{8 \cdot E^{1/2} \cdot T^{3/2}} \quad (21)$$

$$\sigma_D = \frac{\pi^2 \cdot a^2 \cdot E_a \cdot \gamma^{1/2}}{4 (E \cdot E_D)^{1/2}} \quad (22)$$

$$\bar{T} \approx (\gamma \cdot E \cdot E_D)^{1/2} \quad (23)$$

### Reichweite und Reichweitenstreuung

Die Reichweiten, projizierten Reichweiten und Reichweitenstreuungen der Ionen, die zur Implantation und Bestrahlung verwendet wurden, wurden mit Hilfe eines Computer-Programms /24/, das auf den, den elektronischen und nuklearen Energieverlust beschreibenden Gleichungen beruht, berechnet.

### 3.1.2 Defekterzeugung

Der nukleare Energieverlust beschreibt den Anteil der ursprünglichen Energie des eingeschossenen Ions, der in Stoßprozessen auf die in Ruhe befindlichen Targetatome übertragen wird. Als primärer Prozeß werden dabei Atome verlagert und somit Frenkelpaare erzeugt. Ein Frenkelpaar besteht aus einem Eigenzwischengitteratom und einer zurückbleibenden Leerstelle. Die Anzahl der erzeugten Frenkelpaare ist durch Gleichung (24) gegeben /21/.

$$N(E) = \int dE' / S_{\text{tot}}(E') \cdot \int dT \frac{d\sigma(E', T)}{dT} \nu(T) \quad (24)$$

Das Energiespektrum der primär angestoßenen Targetatome wird durch  $d\sigma(E', T)/dT$  ausgedrückt,  $S_{\text{tot}}(E')$  ist der totale Energieverlustparameter und  $\nu(T)$  ist die sogenannte "Damage"-Funktion. Das wesentliche an  $\nu(T)$  ist, daß sie eine Materialeigenschaft widerspiegelt und unabhängig von der Art der Bestrahlung ist. Üblicherweise verwendet man zum Ausdruck von  $\nu(T)$  das modifizierte Kinchin-Pease Modell /17,44/.

$$\begin{aligned} \nu^{\text{KP}}(T) &= 0 && \text{für} && T < E_D \\ &= 1 && \text{für} && E_D < T < 2.5 E_D \\ &= \frac{0.8 \cdot E_N(T)}{2 \cdot E_D} && \text{für} && T > 2.5 E_D \end{aligned} \quad (25)$$

$E_N(T)$  = Anteil der übertragenen Energie T, der in nuklearen Stößen deponiert wird.

Als quantitatives Maß für die Defektproduktion wird der Begriff der "dpa" (displacements per atom) verwendet, der angibt, wie oft ein Atom im Mittel während einer Bestrahlung verlagert worden ist. Es gilt:

$$\text{dpa} = (0.8 \cdot F_D \cdot \phi) / (2 \cdot E_D \cdot N) \quad (26)$$

mit

$E_D$  = Energieschwelle für eine Verlagerung, Verlagerungsenergie

$N$  = Atomare Dichte

$F_D$  = Energie in nukleare Stöße oberhalb  $E_D$  pro Einheitstiefe

$\phi$  = Fluenz der eingeschossenen Ionen

Der typische Wert der Verlagerungsenergie von 25 eV ist deutlich größer als die Energie von 5 eV, die zur thermischen Bildung eines Eigenzwischengitteratoms notwendig ist. Der Grund für diese Differenz ist die hochgradig irreversible Natur des Verlagerungsprozesses. Die Energiedifferenz zwischen der Verlagerungsenergie ( $\approx 25$  eV) und der gespeicherten potentiellen Energie des Eigenzwischengitteratoms ( $\approx 5$  eV) wird nach Beendigung der "Displacement"-Phase als thermische Anregung an das Gitter abgegeben /45/. Wird dem primär angestoßenen Atom eine größere Energie übertragen, ist es in der Lage andere Atome von ihrem Gitterplatz zu verlagern, bevor es zur Ruhe kommt. Diese sekundären Atome können wiederum weitere Atome verlagern, was zu einem "Displacement Spike" oder einer Stoßkaskade führt. Jedes primär angestoßene Teilchen, das genug Energie besitzt, bildet somit eine individuelle Subkaskade /46/.

Ein Al-Atom mit einer kinetischen Energie von 20 eV hat eine Geschwindigkeit von  $1.2 \cdot 10^6$  cm/s und benötigt somit eine Zeit von  $1.7 \cdot 10^{-14}$  s, um einen Gitterabstand von etwa 0.2 nm zu durchqueren /45/. Die gesamte Stoßkaskade ist in  $\approx 10^{-13}$  s abgeschlossen. Für diese kurzen Zeiten kann man das umgebende Gitter als in Ruhe befindlich ansehen, da die Frequenzen der thermischen Gitterschwingungen  $< 10^{13}$  1/s sind.

Bei Bestrahlungen mit verschiedenen Ionen werden die Frenkelpaare von primär angestoßenen Atomen unterschiedlicher Energie erzeugt (siehe Abb. 4) /47/.

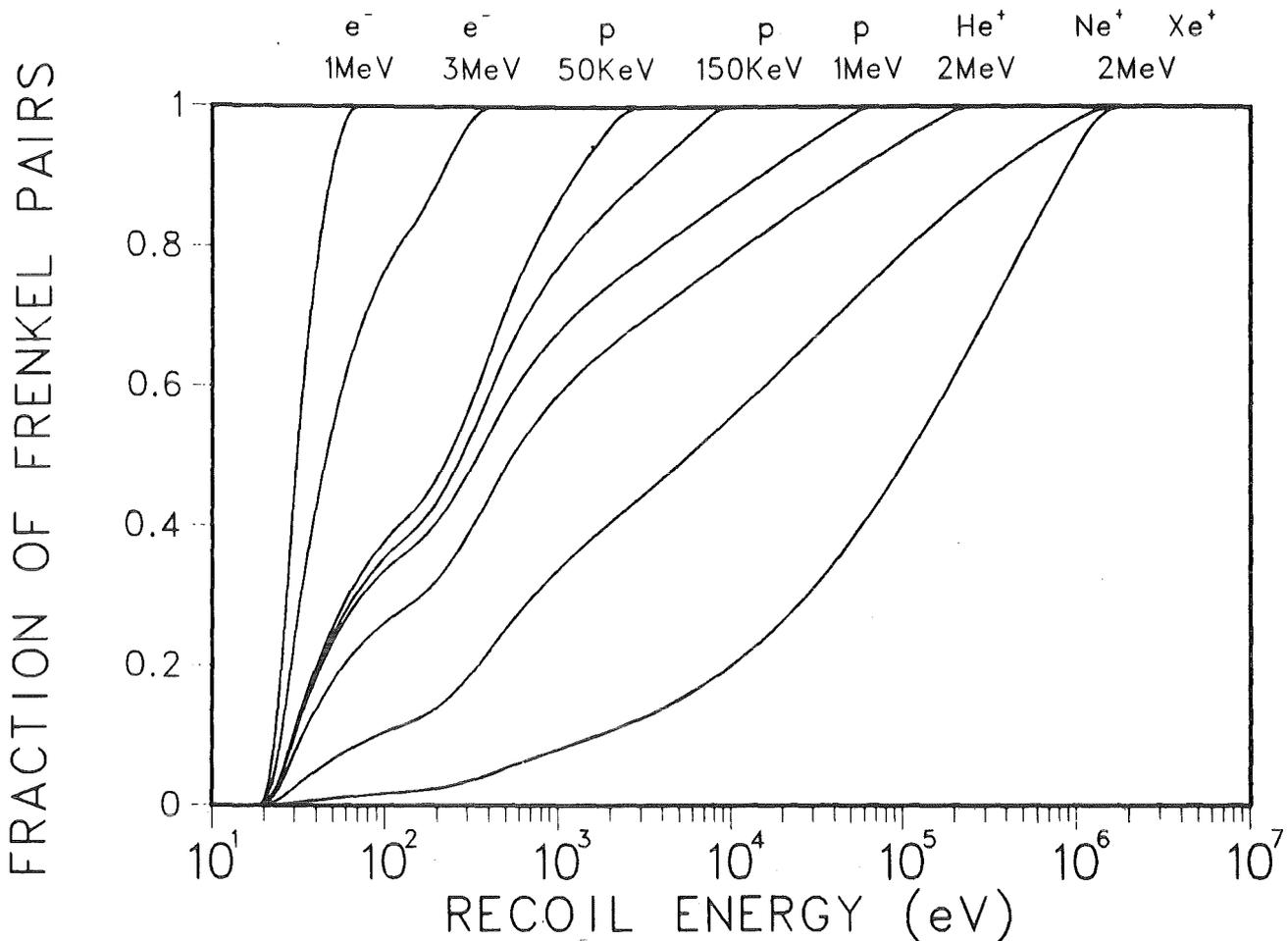


Abb. 4 Anteil der erzeugten Frenkelpaare in Abhängigkeit von der primär übertragenen Energie für verschiedene Bestrahlungen in Oberflächennäherung /47/.

Aus Abb. 4 wird deutlich, daß nur bei  $e^-$  Bestrahlung die Frenkelpaare direkt aus dem primären Ereignis stammen. Schon bei 50 keV Protonenbestrahlung werden 50% der Frenkelpaare aus Ereignissen mit primär übertragener Energie von 250 eV und damit aus einer Stoßkaskade heraus erzeugt.

Aus Widerstandsmessungen unter Bestrahlung bei tiefen Temperaturen, unter der Annahme, daß jedes Frenkelpaar einen konstanten Beitrag zum spezifischen Widerstand liefert, ist bekannt, daß die Anzahl der residenten Frenkelpaare mit der

primär übertragenen Energie abnimmt /21/. Dem wird mit dem Kaskadeneffektivitätsfaktor oder der Effektivität der Defektproduktion  $\xi(T)$  Rechnung getragen.

$$v(T) = v^{KP}(T) \cdot \xi(T) \quad (27)$$

Für  $e^-$  Bestrahlung ist  $\xi(T) = 1$  und sättigt für  $T \rightarrow \infty$  bei 0.4 /21/. Die Kaskadenregion enthält nach Beendigung der Stoßkaskade beträchtliche kinetische Energie, und viele Atome sind in einer instabilen Konfiguration. Die Defektkonzentration wird durch stimulierte Rekombinationen nach Beendigung der Stoßkaskade im thermisch hoch angeregten Gitter in Abhängigkeit von der primär übertragenen Energie in jeder individuellen Subkaskade verringert. Dieser thermisch angeregte Relaxationsprozeß wird "Thermal Spike" genannt /18,19,20,21/. Er ist ein inhärenter Bestandteil jeder Stoßkaskade.

Bei Temperaturen bei denen Punktdefekte beweglich sind, können sich aus den ursprünglichen Defekten Defektkonfigurationen wie Eigenzwischengitteratom- und Leerstellencluster oder Versetzungsringe oder Versetzungszonen bilden.

Bei der Bestrahlung von Ag und W bei 10 K mit schweren Ionen wurde die direkte Bildung von Eigenzwischengitteratomclustern /48/ und Leerstellenclustern /48,49/ als Folge von Kaskaden beobachtet.

### 3.1.3 Kaskadenmodelle

Im Gegensatz zur Erzeugung isolierter Frenkelpaare als primäres Ereignis bei der Elektronenbestrahlung /50/ oder als Folge eines Neutrinorückstoßes /51/ ist das charakterisierende der Kaskade die Verlagerung mehrerer Atome in einem eng begrenzten Bereich des Targets. Drei verschiedene Entwicklungen der Kaskade sind möglich /46/.

- I) Besitzt das Ion eine niedrige Masse oder werden Ionen hoher Energie verwendet, ist die freie Weglänge zwischen den Ion-Targetatom Stößen groß. Bei jedem Stoß wird auf ein Targetatom die Energie  $T$  übertragen, und das primär angestoßene Targetatom initiiert eine Subkaskade. Diese Subkaskaden sind entlang der Spur des Ions in größeren Abständen aufgereiht und überlappen nicht ( $T > E_D$ ).
- II) Ionen mittlerer Masse und niedrigerer Energie erzeugen entlang ihrer Trajektorie Subkaskaden, die enger beieinander liegen, aber im allgemeinen nicht wesentlich überlappen (siehe Abb. 5).
- III) Nur bei dem Beschuß sehr schwerer Targetatome mit schweren Ionen niedriger Energie nähert sich die mittlere freie Weglänge des Ions dem Gitterabstand. Durch den Überlapp der Subkaskaden kann zwischen den einzelnen Subkaskaden nicht mehr unterschieden werden. Es bildet sich eine einzige dichte, lokale Kaskade heraus /49/.

Im allgemeinen und speziell im Bereich der in dieser Arbeit gewählten Ionenenergien und Target- und Ionenmassen treten nur Kaskaden des Typs I und II auf. Diese Kaskaden sind durch das Energiespektrum der primär angestoßenen Targetatome und durch die Struktur der Subkaskaden bestimmt. Schon bei weniger als 10 verlagerten Atomen ist die Struktur einer Subkaskade voll ausgebildet /47/. Zur vollständigen Beschreibung der Wirkung der Kaskade auf das Targetmaterial ist die Betrachtung der Subkaskaden hinreichend.

In Abb. 5 ist schematisch gezeigt, daß ab einer Fluenz von  $\approx 10^{13}$  Ionen/cm<sup>2</sup> ein räumlicher Überlapp der Kaskaden auftritt. Ein zeitlicher Überlapp von Kaskaden läßt sich ausschließlich durch Bestrahlung mit schweren Molekülionen niedriger Energie erreichen.

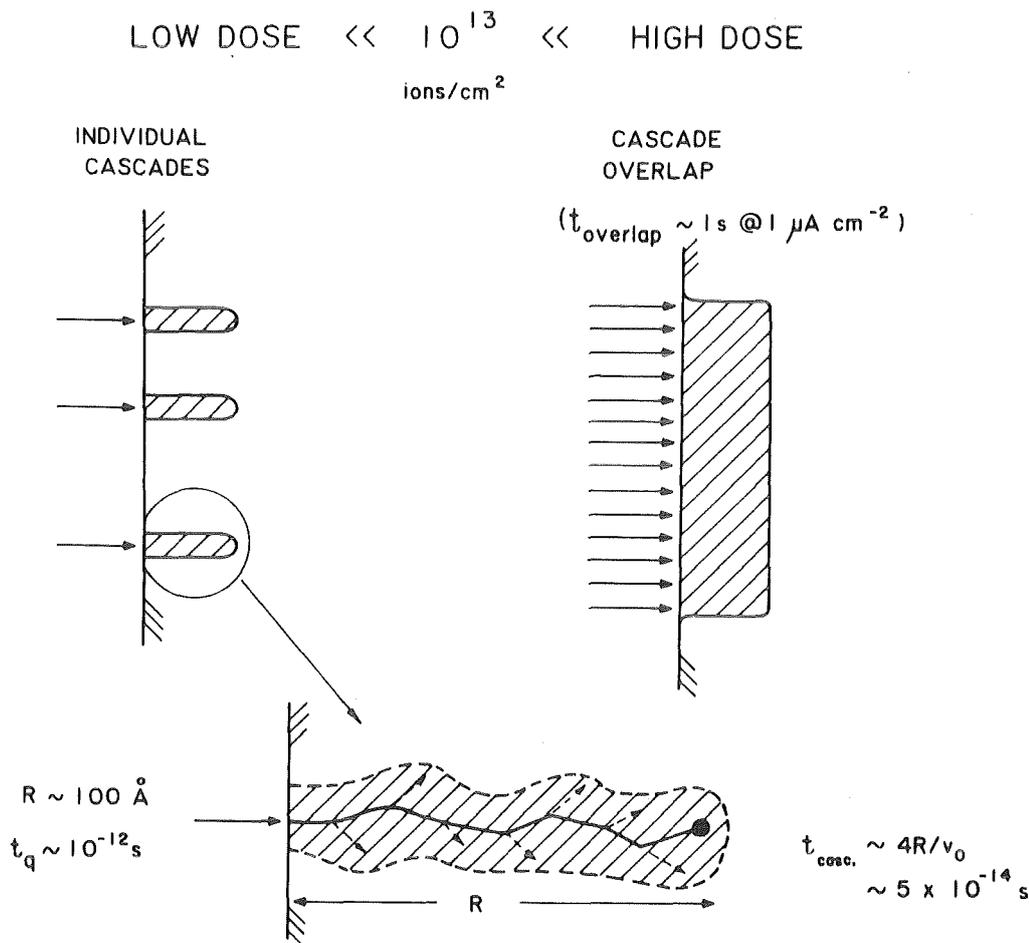


Abb. 5 Schematische Darstellung von räumlichem Kaskadenüberlapp. /38/ .

Stellvertretend für viele andere, ähnliche Kaskadenmodelle werden ein frühes (1954), theoretisches und ein aktuelles (1983), auf molekulardynamischen Rechnungen basierendes Kaskadenmodell vorgestellt.

Brinkman /15,16/ entwickelte ein Modell zur Beschreibung des Strahlenschadens in Metallen, verursacht durch die Bestrahlung mit energiereichen Teilchen. In Abb. 6 ist eine Subkaskade initiiert durch ein mit T = 1 keV primär angestoßenes Targetatom gezeigt /15/. Alle Atome, die einen inneratomaren Abstand von der Spur des primär angestoßenen Atoms entfernt waren, sind verlagert worden. Jedes dieser sekundär verlagerten Atome verlagerte

im Mittel ein drittes. Die Eigenzwischengitteratome bilden eine Wolke um ein Zentrum von Leerstellen. Diese Konfiguration ist instabil.

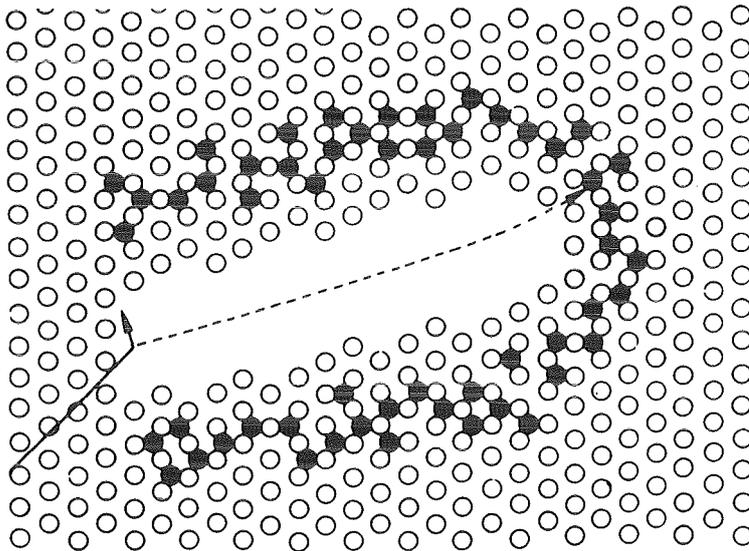


Abb. 6 Stoßkaskade im Zustand instabiler Konfiguration.  
o Targetatom, ● Eigenzwischengitteratom, —→ Spur  
des Ions, ----→ Spur des primär angestoßenen Teilchens /16/.

Im Bereich der Eigenzwischengitteratome ist die atomare Dichte um 10% erhöht /16/, es herrscht hoher Druck, und die Atome besitzen eine hohe kinetische Energie. Diese instabile Konfiguration relaxiert in der Weise, daß die Targetatome, die zwischen Eigenzwischengitteratomwolke und Leerstellenzentrum liegen und bislang nicht verlagert wurden, in das Leerstellenzentrum relaxieren. Die Summe der in der Kaskade bewegten Atome ist dadurch mehr als doppelt so groß wie die Anzahl der ursprünglich verlagerten.

King und Benedek /25/ und Guinan und Kinney /26/ führten molekulardynamische Rechnungen zur zeitlichen Entwicklung von Kaskaden in Metallen durch. Der zeitliche Ablauf läßt sich in drei Phasen unterteilen. In Abb. 7 sind quantitative Daten graphisch dargestellt.

I) Kollisionsphase

In einer Zeit von  $\approx 2 \cdot 10^{-13}$  s wird die Energie des primär angestoßenen Atoms über Generationen von verlagerten Atomen verteilt, bis kein weiteres Atom verlagert werden kann. Die Summe der verlagerten Atome ist 4 bis 10 mal größer /25,26,52/ als konventionell berechnet /17,44/.

II) Relaxationsphase

In dieser Phase, die nach  $\approx 5 \cdot 10^{-13}$  s abgeschlossen ist, findet eine athermische Rekombination instabiler Defekte statt. Die ursprüngliche Kristallstruktur wird wieder aufgebaut. Am Ende der Relaxationsphase entspricht die Anzahl der Frenkelpaare dem konventionell berechneten Wert /25/.

III) Abkühlphase

Dieser Bereich der Kaskade ist durch eine hohe verbliebene thermische Anregung, verbunden mit großer Defektbeweglichkeit gekennzeichnet. Die Abkühlphase, die  $\approx 2 \cdot 10^{-12}$  s dauert wird auch "Thermal Spike" genannt. Am Ende dieser Phase ist die Kaskadenregion im thermischen Gleichgewicht mit der Umgebung. Bis zu 60% der nach der Relaxationsphase verbliebenen Defekte rekombiniert aufgrund der gegenüber Gleichgewichtstransporttheorien 10 mal höheren Defektbeweglichkeit in der Abkühlphase /26/.

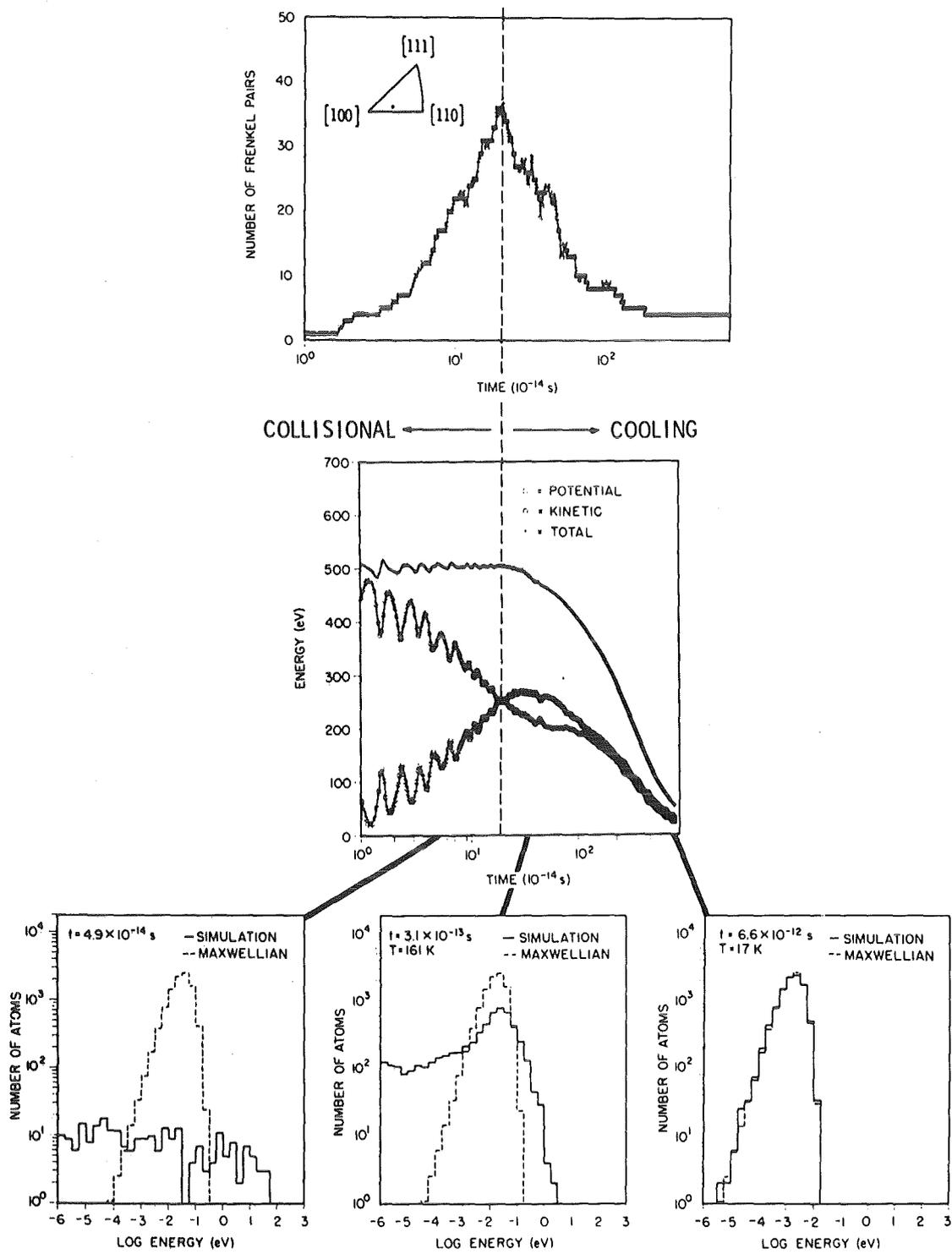


Abb. 7 Graphische Darstellung der Ergebnisse der molekulardynamischen Simulation einer 500 eV Subkaskade /25/.

Kollisions- und Relaxationsphase bilden zusammen den "Displacement Spike". Das Verhältnis der Anzahl im "Displacement Spike" verlagertes Atome zur Anzahl nach der Relaxationsphase residenter Frenkelpaare ist unabhängig von der Energie des primär angestoßenen Atoms.

### 3.2 Rutherford Rückstreuung

Die Rutherford Rückstreuenspektroskopie ist eine gut bekannte und weit entwickelte zerstörungsfreie Analysenmethode oberflächennaher Gebiete in Festkörpern. Zahlreiche Standardwerke beschreiben die theoretischen Grundlagen und die vielfältigen Anwendungen /53,54/. Im Rahmen dieser Arbeit sei nur auf die wichtigsten Grundgleichungen und die zur Erklärung notwendigen Fakten eingegangen.

#### 3.2.1 Theoretische Grundlagen

Ein gut kollimierter, divergenzarmen Strahl energetischer  ${}^4\text{He}^+$  Teilchen (typisch 2.0 MeV) trifft auf die Probe. Die Energie und die Anzahl der im Winkel von  $165^\circ$  von den Targetatomen rückgestreuten Teilchen wird in einem Silizium-Oberflächensperrschichtzähler registriert (siehe Abb. 2). Für die benutzte Einfallenergie kann der Prozeß, der zur Rückstreuung der Ionen führt, als elastischer Stoß zwischen zwei isolierten Teilchen beschrieben werden.

#### Massentrennung

Die Energie der von Atomen an der Oberfläche der Probe rückgestreuten Teilchen sei  $E_1$ , die Einfallenergie  $E_0$ . Das Verhältnis dieser Energien wird durch den kinematischen Faktor  $k$ , der von den Massen des Ions  $M_1$  (4.0026 amu) und der streuenden Targetatome  $M_2$  und dem Streuwinkel  $\theta$  abhängt, bestimmt.

$$E_1 = k \cdot E_0 \quad (28)$$

$$k = \left[ \frac{(M_2^2 - M_1^2 \cdot \sin^2 \theta)^{1/2} + M_1 \cdot \cos \theta}{M_1 + M_2} \right]^2 \quad (29)$$

Da  $E_1$  bei festgelegter Masse des Ions  $M_1$  und festgelegtem Streuwinkel  $\theta$  nur von  $M_2$  abhängt, ist durch die Messung der Energie der rückgestreuten Teilchen eine Massentrennung in mehrkomponentigen Targets möglich. In Abb. 8 ist das nicht-orientierte Rückstreupektrum einer mit Pb implantierten Al Probe gezeigt (a). Die kinematischen Faktoren für Al und Pb sind:  $k(\text{Al}) = 0.556$  und  $k(\text{Pb}) = 0.927$ . Die Energien der an Al und Pb Atomen an der Oberfläche rückgestreuten Teilchen ergeben sich zu 1111 keV und 1854 keV. Diese Energien sind in Abb. 8 durch Pfeile gekennzeichnet.

### Tiefenskalierung

Neben der Massentrennung erlaubt die Methode der Rutherford Rückstreuung auch eine Bestimmung der Tiefe, in der der Streuprozess stattfand. Auf dem Weg durch das Target bis in die Tiefe  $x$  wo der Streuprozess stattfindet, und auf dem Weg bis zur Probenoberfläche verliert das Ion Energie durch inelastische Wechselwirkung mit den Elektronen des Targets. Diese Ion-Elektron Stöße ändern die Flugrichtung des Ions nur um sehr kleine Winkelbeträge ( $\ll 0.01^\circ$ ). Der spezifische Energieverlust  $\frac{dE}{dx}$  hängt von der Spezies und Geschwindigkeit des Ions und von der atomaren Dichte und Zusammensetzung des Targets ab. In oberflächennahen Bereichen und dünnen Schichten setzt man für die energieabhängige Funktion  $\frac{dE}{dx}(E)$  einen konstanten Wert an; dies bezeichnet man als Oberflächennäherung. Damit ist

$$E(x) = E_0 - x \cdot \left. \frac{dE}{dx} \right|_{E_0} \quad (30)$$

und

$$E_1 = k \cdot E(x) - \frac{x}{|\cos\theta|} \cdot \left. \frac{dE}{dx} \right|_{k \cdot E_0} \quad (31)$$

wobei die spezifischen Energieverluste für den Einfallsweg an der Stelle  $E_0$  und für den Ausfallsweg an der Stelle  $k \cdot E_0$  genommen werden. Die Energiedifferenz  $\Delta E$  der Energien von Ionen, die an der Probenoberfläche und in der Tiefe  $x$  rückgestreut wurden ist proportional zur Tiefe  $x$

$$\Delta E = [S] \cdot x \quad (32)$$

Den Proportionalitätsfaktor  $[S]$  nennt man Rückstreuenergieverlustparameter.

$$[S] = k \cdot \left. \frac{dE}{dx} \right|_{E_0} + \frac{1}{|\cos\theta|} \left. \frac{dE}{dx} \right|_{k \cdot E_0} \quad (33)$$

Die Form von  $[S]$  für die Streuung eines Ions an einem Atom der Sorte  $A$  in einem zweikomponentigen Target  $A_m B_n$  ist durch

$$[S]_{A_m B_n}^A = N \cdot \left( k_A \cdot \left. \varepsilon_{A_m B_n}^A \right|_{E_0} + \frac{1}{|\cos\theta|} \cdot \left. \varepsilon_{A_m B_n}^A \right|_{k_A \cdot E_0} \right) \quad (34)$$

gegeben. Dabei ist der Abbremsquerschnitt  $\varepsilon$ :

$$\varepsilon = \frac{1}{N} \cdot \frac{dE}{dx} \quad (35)$$

mit der atomaren Dichte  $N$ . In einem Target der Zusammensetzung  $A_m B_n$  wird  $\varepsilon$  nach der Bragg'schen Regel berechnet. Der Energieverlust in einem mehrkomponentigen Target ist gleich der Summe der Energieverluste der einzelnen Komponenten, gewichtet mit deren Konzentration. An der Stelle  $E$  ist  $\varepsilon_{A_m B_n}^A$  demnach:

$$\varepsilon_{A_m B_n}^A(E) = m \cdot \varepsilon^A(E) + n \cdot \varepsilon^B(E) \quad (36)$$

$\epsilon^A$  und  $\epsilon^B$  sind die Abbremsquerschnitte der Komponenten A und B. Die Abbremsquerschnitte lassen sich durch ein Polynom halbempirisch approximieren /36/.

$$\epsilon = \sum_{i=0}^5 a_i \cdot E^i, \quad 0.4 \text{ MeV} \leq E_0 \leq 4.0 \text{ MeV} \quad (37)$$

Die Polynomkoeffizienten  $a_i$  sind in /36/ tabelliert.

Bei mehrkomponentigen Targets ergibt sich somit für jede Komponente eine separate Tiefenskala mit eigener Skalierung, abhängig von der Masse des Targetatoms und der atomaren Zusammensetzung des Targets. In Abb. 8 sind für Al und Pb die jeweiligen Tiefenskalen angegeben.

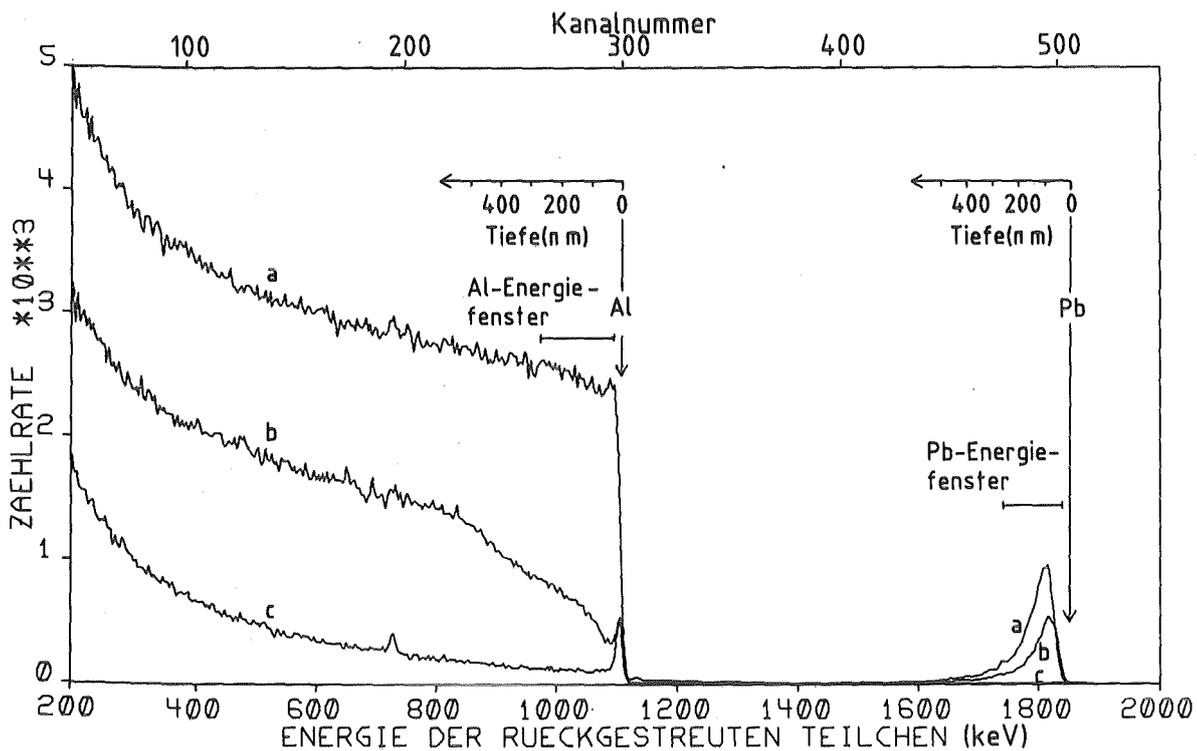


Abb. 8 Energiespektren der von einem mit Blei implantierten Aluminium-Einkristall rückgestreuten  $\alpha$ -Teilchen.

- |             |   |   |
|-------------|---|---|
| Einkristall | { | a: bei der Messung willkürlich bewegt.          |
|             |   | b: in $\langle 110 \rangle$ Richtung orientiert |
|             |   | c: orientiert; vor der Implantation             |

Atomare Zusammensetzung

Die Wahrscheinlichkeit, daß ein rückgestreutes Ion auf die empfindliche Fläche des Detektors trifft, ist durch den Streuquerschnitt  $\sigma$  gegeben.

$$\sigma = \frac{1}{\Omega} \int_{\Omega} \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right) d\Omega \quad (38)$$

$\Omega$  ist der Raumwinkel, den der Detektor erfäßt. Im betrachteten Energiebereich beschreibt das Coulomb-Potential die Wechselwirkung zwischen Ion und Targetatom. Es gilt die Rutherford'sche Streuformel für den differentiellen Streuquerschnitt im Laborsystem.

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left( \frac{Z_1 \cdot Z_2 \cdot e^2}{4E} \right)^2 \cdot \frac{4}{\sin^4 \theta} \cdot \frac{\left( \left( 1 - \left( \frac{M_1}{M_2} \sin \theta \right)^2 \right)^{1/2} + \cos \theta \right)^2}{\left( 1 - \left( \frac{M_1}{M_2} \cdot \sin \theta \right)^2 \right)^{1/2}} \quad (39)$$

Dabei ist  $e$  die Elementarladung und  $Z_1$  und  $Z_2$  sind die Ordnungszahlen von Ion und Targetatom.

Bei senkrechtem Strahleinfall und Anwendung der Oberflächennäherung ist die Zahl  $H$  der mit dem Detektor im Energiefenster  $\Delta E$  registrierten Teilchen:

$$H = \sigma(E_0) \cdot \Omega \cdot Q \cdot N \cdot \frac{\Delta E}{[S]} \quad (40)$$

Die Ladung, die auf die Probe geflossen ist, ist  $Q$  und  $N$  ist die atomare Dichte des Targets.  $\frac{\Delta E}{[S]}$  entspricht dem Tiefenintervall  $\Delta x$ , in dem durch die Wahl des Energiefensters im Spektrum gemessen wird. Die Gleichung (40) wird auf die Komponenten A und B angewandt. Durch anschließende Quotientenbildung erhält man für das Konzentrationsverhältnis:

$$\frac{N_A}{N_B} = \frac{m}{n} = \frac{\sigma_B}{\sigma_A} \cdot \frac{[S]_A^{A_m B_n}}{[S]_B^{A_m B_n}} \cdot \frac{H_A}{H_B} \quad (41)$$

Für sehr kleine Detektorraumwinkel können die Streuquerschnitte durch die differentiellen Streuquerschnitte ersetzt werden. Wenn die Massen der Komponenten A und B nicht allzu unterschiedlich sind, weicht der Quotient  $[S]_A^{A_m B_n} / [S]_B^{A_m B_n}$  nicht wesentlich von 1 ab. Für eine kleine Konzentration von B im Wirtsgitter A kann das Target näherungsweise als reines Element betrachtet werden, es genügt  $[S]_A^A$  und  $[S]_B^A$  zu berechnen.

### 3.3.2 Quantitative Auswertung

Zur Eichung der Massenskala wird eine Eichprobe verwendet. Sie besteht aus einer 2 nm dicken Al,Au - Schicht, aufgedampft auf ein Kohlenstoffsubstrat. Aus den bekannten Massen von Al und Au und den Lagen der entsprechenden Signale im Spektrum wird die Massenskala festgelegt. Die Verstärkung von Vor- und Hauptverstärker wurde üblicherweise so eingestellt, daß das Signal von Al auf Kanal 300 und das von Au auf Kanal 503 erscheint. Die Energieeichung ergibt sich damit bei  $E_0 = 2 \text{ MeV}$  zu  $\Delta E = 3.65 \text{ keV/Kanal}$ . Die Energieauflösung des gesamten Systems von Detektor und der nachgeschalteten elektronischen Komponenten beträgt 18 keV.

Die Tiefenskalen für die im Spektrum aufscheinenden Massen werden unter Verwendung der Gleichungen (32), (34) und (36) und der Polynom-Approximation /36/ erstellt.

Die Konzentration implantierter Fremdatome wird durch Messung der Höhe des Fremdatomsignals und des Wirtsgittersignals in korrespondierender Tiefe unter Verwendung von Gleichung (41) bestimmt (siehe Abb. 8a).

Die Anzahl implantierter Atome wird mit Hilfe der Formel:

$$N_i = \frac{A_I \cdot Z_H^2 \cdot N \cdot \Delta E}{H_H \cdot Z_I^2 \cdot [S_n]} \cdot 10^{-8} \quad (42)$$

ermittelt.

- $A_I$  = Fläche des Fremdatomsignals [Counts]  
 $Z_H$  = Ordnungszahl der Wirtsgitteratome  
 $N$  = Atomare Dichte des Wirtsgitters [Atome/cm<sup>3</sup>]  
 $\Delta E$  = Energieeichung [keV/Kanal]  
 $H_H$  = Zählrate im Wirtsgitter [Counts]  
 $Z_I$  = Ordnungszahl der Fremdatome  
 $[S_n]$  = Energieverlustparameter [keV/Å]

Für alle Auswertungen der Rückstreuungsmessungen wurden Computerprogramme erstellt oder benutzt.

### 3.3 Ionen-Channeling

Wird ein einkristallines Target mit einem hochenergetischen ( $\approx$  MeV) He<sup>+</sup> Strahl parallel zu einer niedrigindizierten Kristallrichtung beschossen, ist die Eindringtiefe der Teilchen größer, als beim Beschuß einer gleichen polykristallinen Probe. Gleichzeitig ist bei diesem sogenannten orientierten Einschuß die Rückstreuerausbeute erheblich reduziert. Das Phänomen der Transparenz eines Einkristalls in niedrigindizierten Kristallrichtungen für energetische Teilchen wird Channeling-Effekt genannt.

Die Idee, daß ein Kristallgitter die Trajektorie eines energetischen Ions beeinflussen könnte, wurde bereits 1912 von Stark /55/ vorgeschlagen, geriet jedoch in Vergessenheit. Mit der Hilfe von zwei "Zufällen" wurde der Channeling-Effekt um 1959 entdeckt. Bei der Computersimulation von Ionenreichweiten in Festkörpern wurde die Rechenzeit außerordentlich lang, wenn man das Ion entlang einer Hauptkristallachse einschöß. In einkristallinen Detektoren für die Kernphysik wurde ein anormales Verhalten des Energieverlusts im Detektor, abhängig von dessen Orientierung, beobachtet. Nach seiner Entdeckung wurde der Channeling-Effekt detailliert studiert und zur Untersuchung

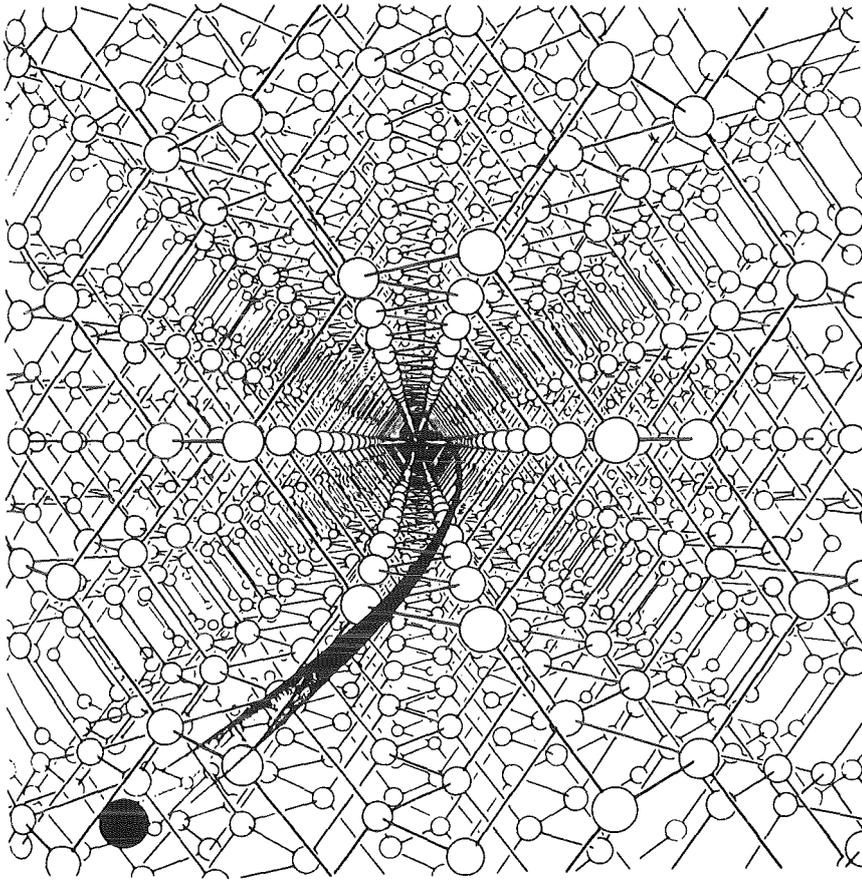


Abb. 9 Künstlerische Darstellung eines im  $\langle 110 \rangle$  orientierten Diamantgitter channelnden Teilchens/62/.

anderer Probleme eingesetzt. Zahlreiche Arbeiten beschreiben die Grundlagen und vielfältigen Anwendungen des Channeling-Effektes /56,57,58,59,60,61,62/.

Falls der Channeling-Effekt nur auf der geometrischen Transparenz des Einkristalls für energiereiche Teilchen beruhte, wäre der kritischen Winkel  $\psi_{1/2}$ , d.h. der halbe maximale Kippwinkel, unter dem die Teilchen gegen die niedrigindizierte Kristallachse einfallen dürften, um noch dem Channeling-Effekt zu unterliegen, rein geometrisch bestimmbar und für eine Kristalltiefe von  $1 \mu\text{m} < 0.004^\circ$ . Tatsächlich beträgt der kritische Winkel bei  $2.0 \text{ MeV He}^+$  Ionen für Aluminium  $\psi_{1/2} \approx 0.65^\circ$ . Die Energieabhängigkeit des kritischen Winkels wäre ebenfalls nicht erklärbar.

Das Channeling energetischer, geladener Teilchen im Einkristall wird durch einen Führungseffekt der Atomketten oder Ebenen erzeugt. Die Bewegung der Teilchen findet unter Erhaltung der transversalen Energie  $E_{\perp}$  in Bezug auf die reflektierende Atomreihe statt.

$$U(\vec{r}) + E \cdot \psi^2(\vec{r}) \equiv E_{\perp} = \text{const.} \quad (43)$$

$\vec{r}$  ist der Einfallswinkel,  $U(\vec{r})$  das effektive Wechselwirkungspotential der Ionen mit den Targetatomen,  $E$  die Energie der Ionen und  $\psi(\vec{r})$  der momentane Winkel zwischen Kettenrichtung und Bahntangente. Da nur kleine Werte von  $\psi$  interessant sind, wurde die Näherung

$$E \cdot \sin^2\psi \approx E \cdot \psi^2 \quad (\psi \rightarrow 0) \quad (44)$$

gemacht.

Das Prinzip der Erhaltung der transversalen Energie gilt nur für den idealen Kristall. Wird als Target ein perfekter Kristall benutzt, wird durch die thermische Bewegung der Targetatome, durch unkorrelierte Stöße mit Elektronen und durch die korrelierte Folge von Kleinwinkelstößen die transversale Energie der Teilchen mit zunehmender Tiefe größer, bis die Teilchen irgendwann den Kanal verlassen. Dieser als Dechanneling bezeichnete Prozeß wird auch durch Störungen des Kristallgitters, wie Punktdefekte oder Versetzungen und durch den Einbau von Fremdatomen hervorgerufen. Eine schematische Darstellung der Vorgänge beim Channeling-Prozeß ist in Abb. 10 gegeben. Im idealen Kristall (a) werden Ionen, die parallel zu Atomketten einfallen entweder von der ersten Atomlage rückgestreut, was zum Oberflächenpeak führt, oder unterliegen dem Channeling mit Trajektorien großer Wellenlänge, bezogen auf die Atomabstände. Führen die Atome thermische Schwingungen aus (b), sind die Oszillationen der Teilchenbahnen kürzer und die Dechannelingrate nimmt zu. Verzerrungen

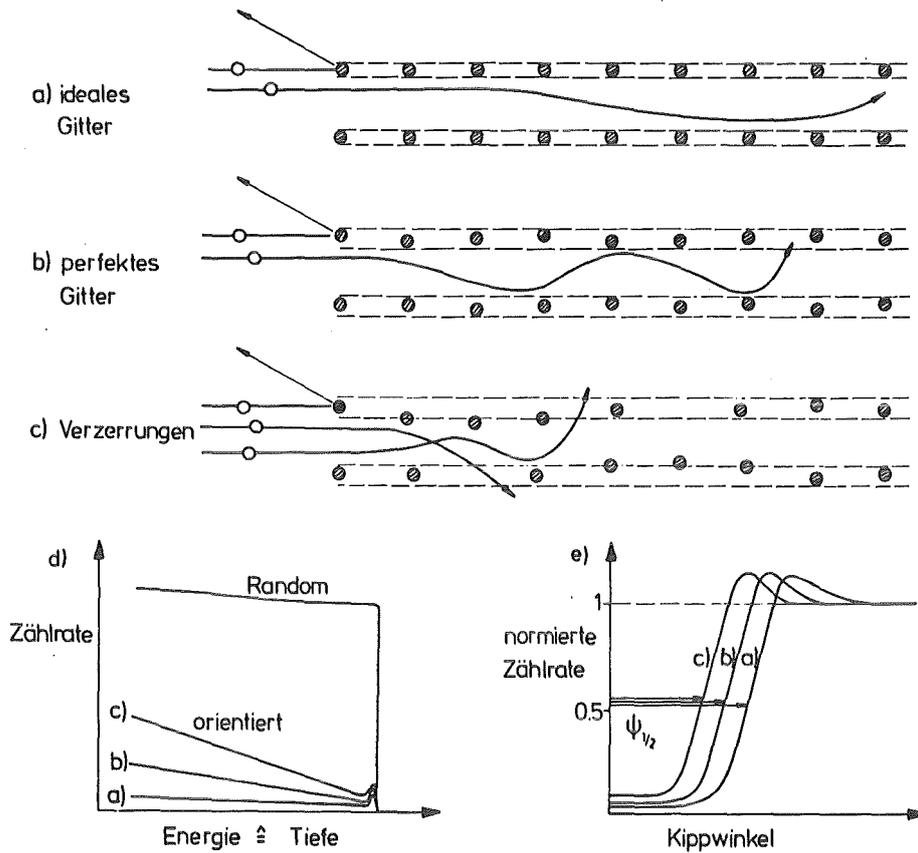


Abb. 10 Trajektorien von Ionen und zugehörige Rückstreuenspektren und winkelabhängige Ausbeutekurven.

aufgrund von Gitterfehlern (c) haben einen noch stärkeren Dechanneling-Effekt.

In (d) sind die zu (a) (b) und (c) zugehörigen Rückstreuenspektren schematisch dargestellt. Als "Random"-Spektrum wird das Rückstreuenspektrum bei nicht orientierter Probe bezeichnet. Dieses Spektrum wird aufgenommen, indem die niedrigindizierte Kristallrichtung um einige Grad gegen den Teilchenstrahl verkippt und während der Messung um die Oberflächennormale rotiert wird. Die Rückstreuenspektren aufgenommen bei orientierter Probe werden auch als "Aligned"-Spektren bezeichnet. Verkippt man die Einschubrichtung gegenüber der orientierten Lage, nimmt die Rückstreausbeute zu. Integriert man alle Rückstreuereignisse in einen bestimmten Energieintervall bzw. Tiefenbereich (Energiefenster in Abb. 8) und trägt diese Zählrate als Funktion des Kippwinkels auf, erhält man die winkel-

abhängige Ausbeutekurve (e). Normiert wird auf die Random-Ausbeute. Die winkelabhängige Ausbeutekurve ist durch zwei wesentliche Parameter gekennzeichnet, der minimalen Ausbeute bei orientiertem Einschub  $\chi_{\min}$ , und der Halbwertsbreite  $\psi_{1/2}$ . Führen die Atome thermische Schwingungen aus, nimmt durch den Dechanneling-Prozeß die Rückstreuerausbeute zu (d), die minimale Ausbeute  $\chi_{\min}$  wird größer und die Halbwertsbreite  $\psi_{1/2}$  nimmt ab (e). In Abb. 11 sind neben dem Random-Spektrum zwei bei 5 und 293 K gemessene Aligned-Spektren eines Al-Einkristalls dargestellt.

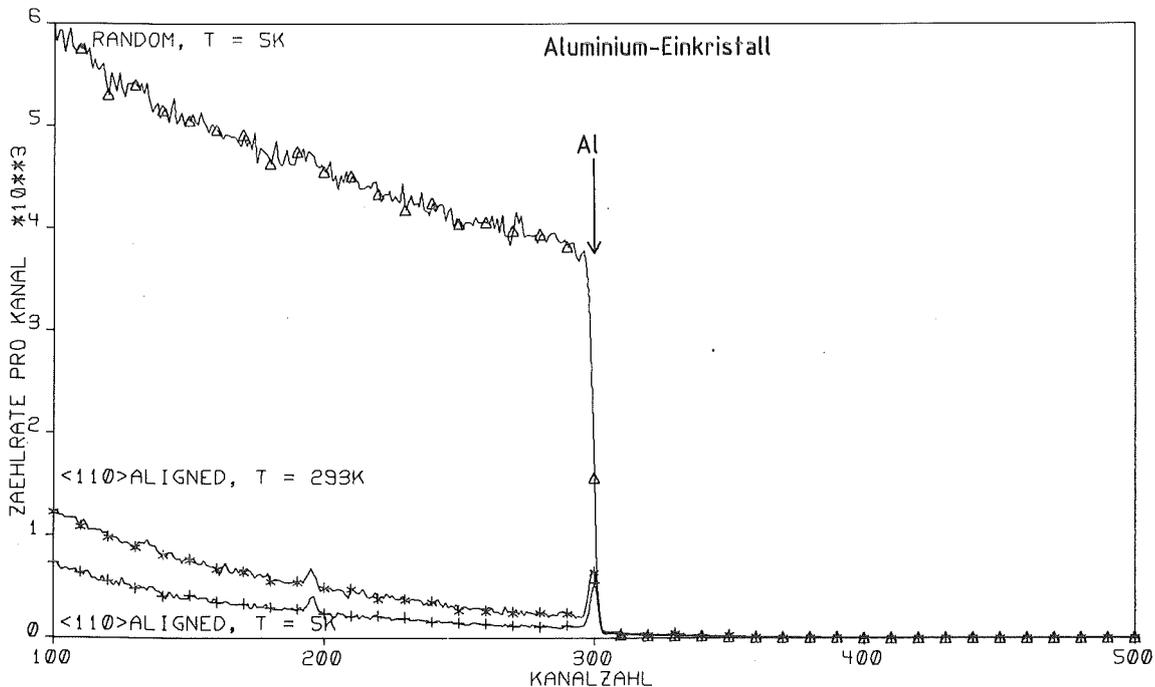


Abb. 11 Rückstreuenspektren eines nichtimplantierten Aluminiumeinkristalls bei  $T_M = 5$  und 293 K.

Zur quantitativen Messung sollte das Energiefenster (siehe Abb. 8) möglichst nahe an der Oberfläche, unterhalb des Oberflächenpeaks, gewählt werden, damit in dem beobachteten Tiefenintervall bei orientiertem Einschub möglichst wenig Dechanneling auftritt.

### 3.3.1 Das klassische Kontinuummodell

Die grundlegende Arbeit für das Verständnis des Channeling-Effekts wurde 1965 von Lindhard /64/ in Form des Kontinuummodells veröffentlicht. Der wesentliche Gedanke bei der Einführung des Kontinuummodells war, daß die korrelierte Folge von Reflektionen, die von einer Atomkette auf ein schnelles Ion ausgeübt wird, durch einen glatten Potentialschlauch angenähert werden kann, solange ein kritischer Abstand  $\rho_c$  zur Atomkette nicht unterschritten wird (siehe Abb. 12). Lindhard /64/ bewies, daß für den Channeling-Effekt die klassische Mechanik anwendbar bleibt.

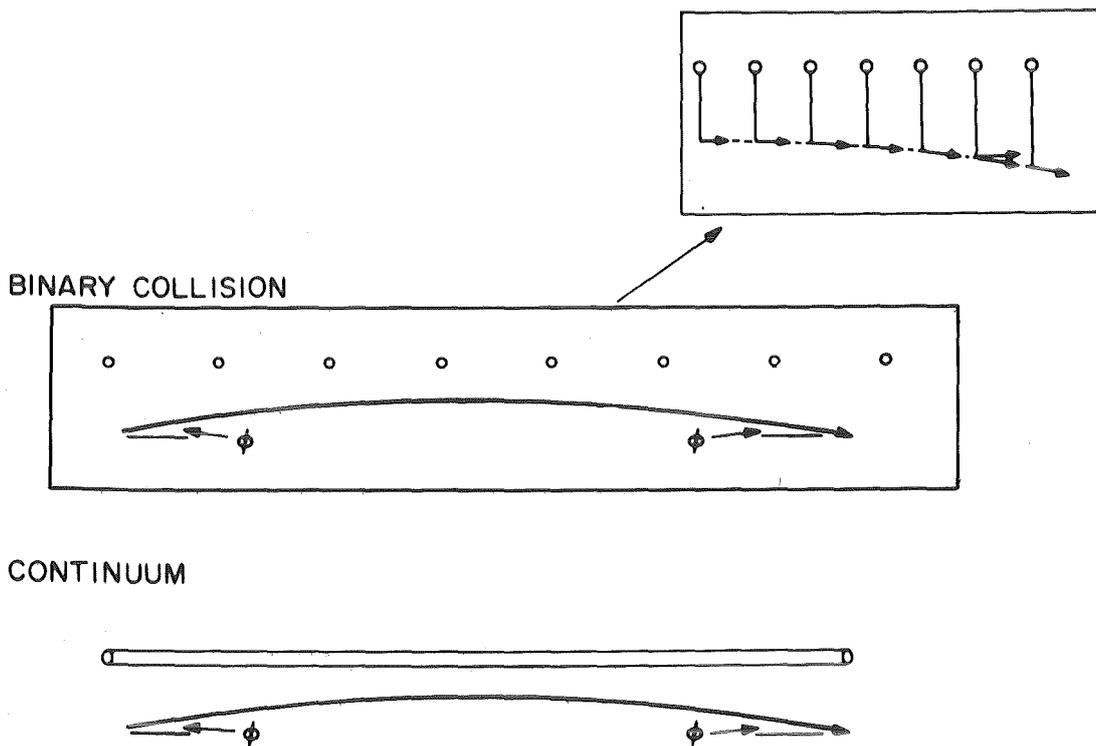


Abb. 12 Teil der Trajektorie eines channelnden Teilchens. Die Sequenz binärer Stöße kann durch das Kontinuummodell beschrieben werden /56/.

Es wird angenommen, daß die Ladung der Atome in einer Reihe oder Ebene gleichmäßig über die Reihe oder Ebene verteilt ist. Die Wechselwirkung des channelnden Teilchens mit einer Reihe von Atomen wird durch ein Kontinuumpotential  $U(r)$  beschrieben, wobei  $r$  der senkrechte Abstand von der Reihe ist und  $d$  der Gitterabstand.

$$U(r) = \frac{1}{d} \int_{-\infty}^{\infty} V(\sqrt{z^2 + r^2}) dz \quad (45)$$

$V(\tilde{r})$  ist ein abgeschirmtes Coulombpotential mit  $\tilde{r}$  in Zylinderkoordinaten. Für das axiale Kontinuumpotential erhält man /56,64/:

$$U_a(r) = \frac{z_1 \cdot z_2 e^2}{d} \ln \left[ \left( \frac{Ca}{r} \right)^2 + 1 \right] \quad (46)$$

mit  $C^2 \approx 3$  und der Abschirmlänge  $a$ . Überlagert man diese Einzelkettenpotentiale zu einem Summenpotential, das durch den Beitrag aller einen Kanal umgebenden Ketten gebildet wird und löst die Bewegungsgleichung eines geführten Teilchens für dieses Potential, so erhält man die Flußverteilung der geführten Teilchen, die an Stellen der Potentialminima Maxima aufweist und an Stellen der Potentialmaxima Minima. Mit Hilfe der Kontinuumnäherung lassen sich Werte für den kritischen Winkel  $\psi_c$  und für die minimale Ausbeute  $\chi_{\min}$  abschätzen /56/.

$$\psi_c(u) = \frac{\psi_1}{\sqrt{2}} \left[ \ln \left( \left( \frac{Ca}{u} \right)^2 + 1 \right) \right]^{1/2} \quad (47)$$

$$\psi_1 = \sqrt{\frac{2 \cdot z_1 \cdot z_2 \cdot e^2}{E \cdot d}} \quad (48)$$

Dabei ist  $u$  die mittlere transversale thermische Vibrationsamplitude.

$$\chi_{\min}(u) = N \cdot d \cdot \pi \cdot u^2 \quad (49)$$

Das Kontinuummodell beinhaltet Kleinwinkelstöße mit Elektronen und die Abnahme der Energie der Ionen durch elektronischen Energieverlust nicht. Die Beschreibung des Channeling-Effekts im Fall von Kristalldefekten oder eingelagerten Fremdatomen ist ebenfalls unmöglich, so daß die Anwendung des Kontinuummodells sehr begrenzt bleiben muß.

### 3.3.2 Monte-Carlo Simulation

Bei der Computer-Simulation des Channeling-Effekts treten die erwähnten Beschränkungen des Kontinuummodells nicht auf. Erst durch die Computer-Simulation ist eine eingehende Defektanalyse und eine Beurteilung der Auswirkungen, die der Einbau von Fremdatomen auf den Channeling-Effekt hat, möglich /29,65/. Das Computerprogramm /29/ das die Trajektorien schneller geladener  $^4\text{He}$  Teilchen in Einkristallen berechnet beruht auf dem Modell des binären Stoßes. Die Simulation verläuft in der folgenden Weise.

Ein Teilchen wird auf das Target geschossen, dessen Kristallstruktur im Rechner gespeichert ist. Die Elementarzelle ist auf die Channeling-Richtung projiziert in einzelne Streuebene unterteilt. Die Streuwinkel des Ions mit allen umgebenden Wirtsgitter- und Fremdatomen einer Streuebene werden berechnet. Der tatsächliche Streuwinkel ergibt sich durch Summation über alle Einzelstreubeiträge. Mit der geänderten Bahnasymptote tritt das Teilchen in die nächste Streuebene ein. Die Wahrscheinlichkeit für Rückstreuung wird berechnet /29/.

### 3.3.3 Anwendungen des Channeling-Effekts

Der Channeling-Effekt erlaubt eine Vielzahl praktischer Anwendungen, wie die Untersuchung von Gitterfehlern, das Studium von Oberflächen und epitaxialen Schichten oder die Gitterplatzbestimmung von Dotierungs- und Fremdatomen. Im Rahmen dieser Arbeit wird die Channeling-Methode hauptsächlich

lich zur Bestimmung des substitutionellen Anteils und der Gitterplatzbesetzung implantierter Fremdatome in Aluminium-Einkristallen genutzt.

### 3.3.4 Bestimmung des substitutionellen Anteils und der Gitterplatzbesetzung implantierter Fremdatome

Die Grundlage für die Bestimmung der Position von Fremdatomen im Wirtsgitter ist die Wechselwirkung der Flußverteilung channelnder Teilchen mit den Fremdatomen. Fremdatome auf substitutionellen Gitterplätzen erfahren den gleichen Fluß wie die Wirtsgitteratome und zeigen daher in der winkelabhängigen Ausbeutekurve das gleiche Verhalten. Dagegen erfahren interstitielle Fremdatome eine ganz andere kippwinkelabhängige Flußverteilung, was zu einer gänzlich anderen winkelabhängigen Rückstreuerausbeute führt. Durch Messungen in verschiedenen Orientierungen des Einkristalls ( $\langle 100 \rangle$ ,  $\langle 110 \rangle$ ,  $\langle 111 \rangle$ ) läßt sich die Position der Fremdatome eindeutig festlegen (siehe Tab. 2, S. 47).

Die wichtigste Voraussetzung zur Gitterplatzbestimmung ist eine ausreichende energetische Trennung der Signale von Wirtsgitter- und Fremdatom. Dies ist nur dann gegeben, wenn die Masse des Fremdatoms größer als die des Wirtsgitteratoms ist. Für das System AlPb in Abb. 8 ist diese Voraussetzung gut erfüllt.

Zur Bestimmung des substitutionellen Anteils  $f_s$  setzt man im Bereich des Fremdatomsignals ein Energiefenster und in der korrespondierenden Tiefe des Wirtsgittersignals ebenfalls eines (siehe Abb. 8, S. 33). Das Verhältnis der Zählraten von Aligned-(b) zu Random-(a) Spektrum im jeweiligen Energiefenster wird gebildet:

$$\chi_{\min}^h = R_A^h / R_R^h \quad , \quad \chi_{\min}^i = R_A^i / R_R^i \quad (50)$$

wobei  $R_A^h$  und  $R_R^h$  die Aligned- und Random-Zählraten des Wirtsgitters und  $R_A^i$  und  $R_R^i$  die der Fremdatome sind. Der substitutionelle Anteil ist:

$$f_s = \frac{1 - \chi_{\min}^i}{1 - \chi_{\min}^h} \quad (51)$$

Gleichung (51) ist eine Näherung, die nur gültig ist, wenn der nichtsubstitutionelle Anteil der Fremdatome auf Gitterplätzen niedriger Symmetrie lokalisiert ist.

In Abb. 13 sind einige Defektkonfigurationen gezeigt, die im kubisch-flächenzentrierten Gitter auftreten können, und die mit der Channeling-Methode analysiert werden können.

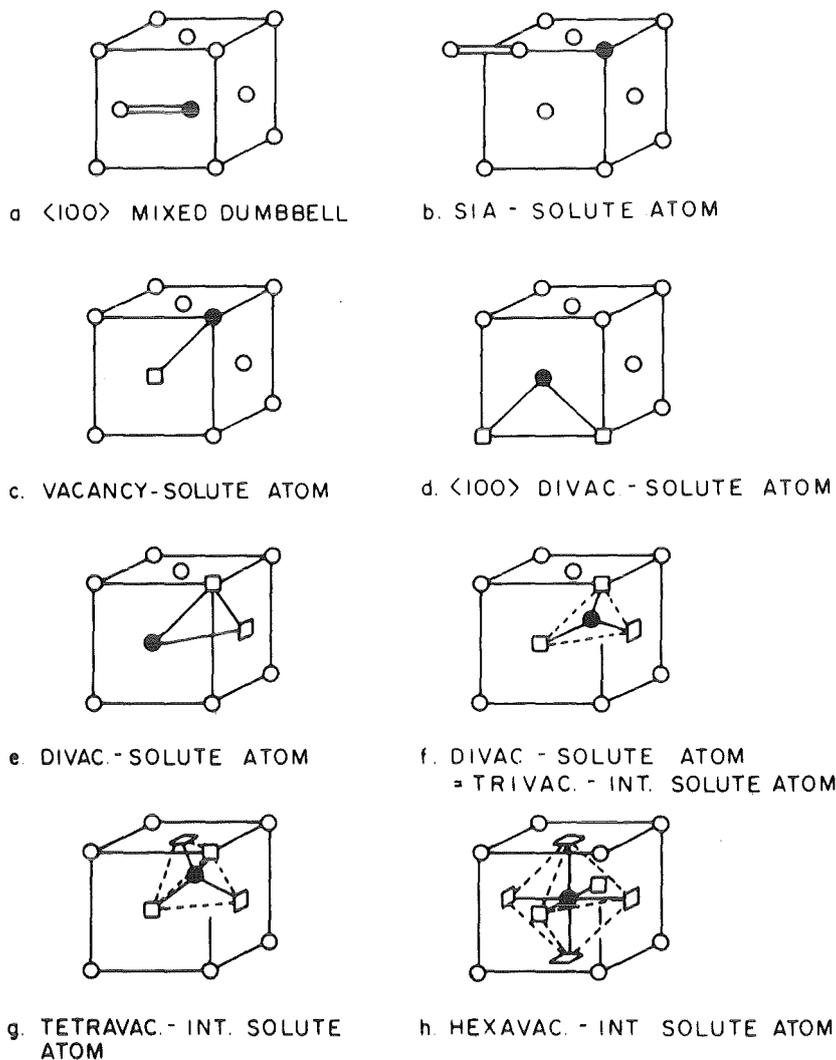


Abb. 13 Einfache Fremdatom-Defekt Konfigurationen im kubisch-flächenzentrierten Kristall /60/.

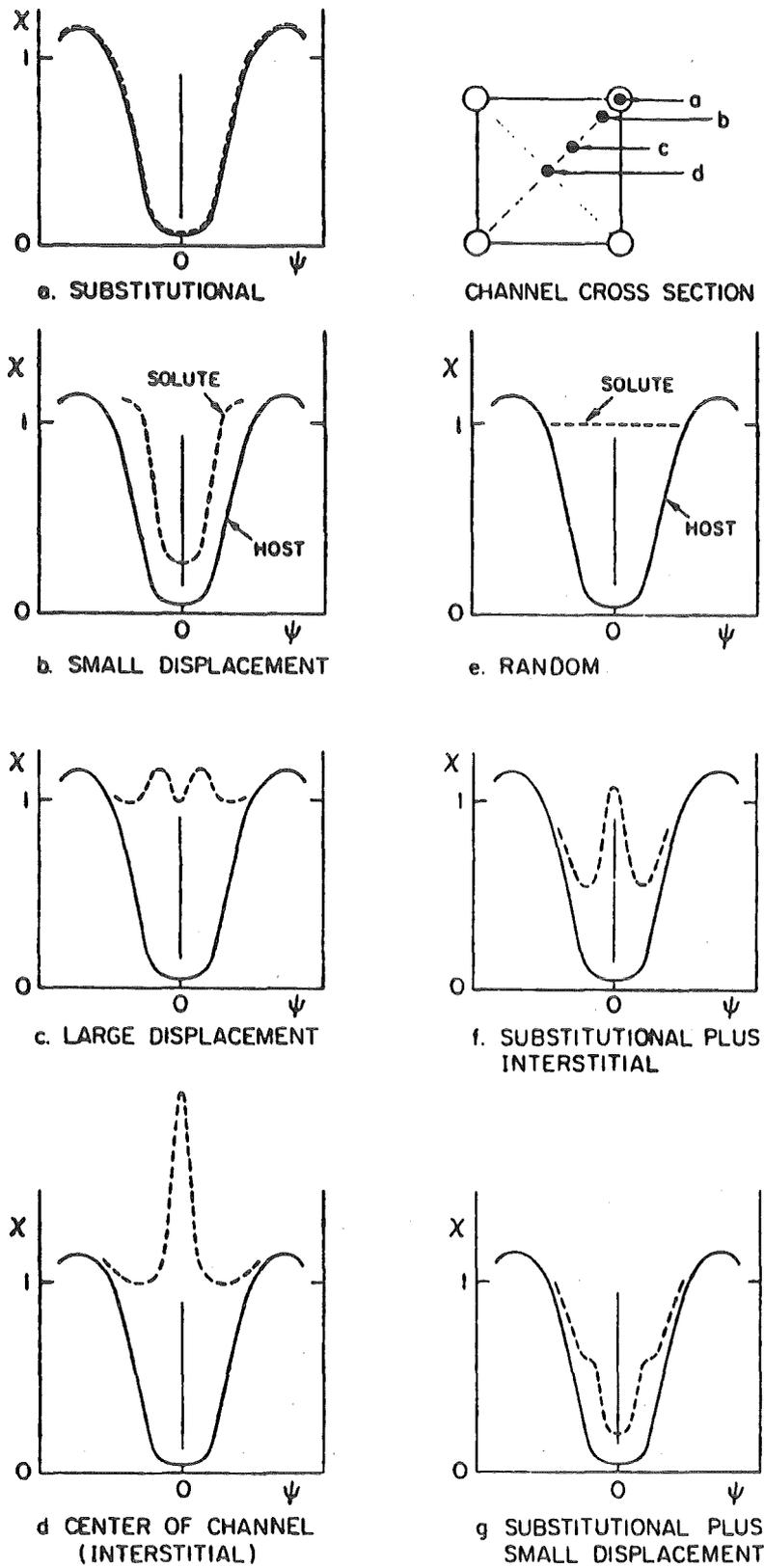


Abb. 14 Winkelabhängige Ausbeutekurven für verschiedene Positionen der Fremdatome im Wirtsgitter /61/.

Zur Bestimmung der Gitterplatzbesetzung ist neben der Rückstreuerausbeute, bestimmt durch die Flußdichte am Ort des Fremdatoms (siehe Tab. 2) die Form der winkelabhängigen Ausbeutekurve der Fremdatome (siehe Abb. 14) von ausschlaggebender Bedeutung.

In Abb. 14 sind die winkelabhängigen Ausbeutekurven für folgende Gitterpositionen aufgetragen: a) substitutionell, b) gestört substitutionell, c) tetraedrische Position, d) interstitiell, e) Position niedriger Symmetrie, f) substitutionell und interstitiell und g) substitutionell und ein Anteil gestört substitutionell. Die Projektionen der Positionen der Fremdatome, innerhalb der verschiedenen Defekt-konfigurationen (siehe Abb. 13), auf die niedrigindizierten Kristallorientierungen, sind in Tab. 2 aufgezeichnet. Außerdem ist der effektive Fluß am Ort des Fremdatoms angegeben.

CHANNEL COMPLEX	$\langle 111 \rangle$	$\langle 100 \rangle$	$\langle 110 \rangle$	$\langle 112 \rangle$	ION FLUX $g_i F_i$			
					$\langle 111 \rangle$	$\langle 100 \rangle$	$\langle 110 \rangle$	$\langle 112 \rangle$
MIXED DUMBELL INTERSTITIAL					0.57	0.32	1.44	1.32
TRI- VACANCY SOLUTE					0.56	1.64	1.32	1.01
TETRA- VACANCY SOLUTE					0	2.27	1.10	0.69
HEXA- VACANCY SOLUTE					0	0	2.24	2.06

Tabelle 2 Projizierte Positionen der Fremdatome und effektive Ionenflüsse /60/.

#### 4. MODELLE ZUR GITTERPLATZBESETZUNG IMPLANTIERTER FREMDATOME

Im Gegensatz zu konventionellen Legierungsmethoden ist die Ionenimplantation ohne Rücksicht auf die Metallurgie in der Lage, alle langzeit-stabilen Elemente in andere Materialien in Bereiche nahe der Oberfläche einzubringen. Die Konzentration und die Verteilung der implantierten Atome in der Tiefe kann exakt vorgegeben und gut reproduziert werden. Eine Frage von grundsätzlicher Bedeutung ist, welche Position die implantierten Atome am Ende ihrer Trajektorien im Wirtsgitter einnehmen. Daher ist es wünschenswert, die Faktoren, die die Gitterplatzbesetzung bestimmen, zu ermitteln. Die grundlegenden Prozesse, die die Gitterplatzbesetzung von Fremdatomen in einem vorgegebenen Wirtsgitter bestimmen, können stoßkinetischer Natur, Effekte innerhalb der Kaskade, thermodynamischer Natur, chemische Effekte, mechanisch treibende Kräfte und Wechselwirkungen zwischen den Fremdatomen selbst sein. Im folgenden werden die in der Literatur am häufigsten erwähnten Modelle zur Gitterplatzbesetzung vorgestellt.

##### 4.1 Ersetzungsstoßtheorie

Die Ersetzungsstoßtheorie, von Brice /5/ formuliert, beruht auf einem rein kinematischen Ansatz zur Beschreibung der Gitterplatzbesetzung implantierter Ionen. Ein Ion hoher Energie, das auf einen Festkörper trifft, dringt in ihn ein und verliert seine Energie durch inelastische Wechselwirkung mit den Elektronen und durch elastische Stöße mit den Wirtsgitteratomen. Am Ende der Trajektorie des Ions dominiert der nukleare Energieverlust. In diesem Bereich besteht die Wahrscheinlichkeit  $P$ , daß das Ion ein Wirtsgitteratom von dessen Platz stößt und danach nicht mehr genügend kinetische Energie besitzt, um diesen Gitterplatz wieder zu verlassen. Dieser Prozeß wird Ersetzungsstoß genannt.

Unter folgenden kinematischen Bedingungen sind Ersetzungsstöße möglich. Das eingeschossene Ion besitzt die Energie  $E_1(t)$  und die Masse  $M_1$ . Ein Wirtsgitteratom der Masse  $M_2$  wird von seinem Gitterplatz gestoßen, wenn es eine Energie  $T$  empfängt, die größer als die Verlagerungsenergie  $E_D$  ist. Für Al ist  $E_D = 18 \text{ eV}$  /42/. Das Ion wird von der so geschaffenen Leerstelle eingefangen, wenn seine verbliebene Energie  $(E_1(t) - T) < E_C$ , wobei  $E_C$  die Einfangenergie ist. Den maximalen Wert, den  $T$  annehmen kann, ist  $T_M = \gamma \cdot E_1(t)$ , dies gilt für den zentralen Stoß. Hierbei ist  $\gamma$  der bekannte kinematische Faktor:  $\gamma = 4M_1 \cdot M_2 / (M_1 + M_2)^2$ . Ein Ersetzungsstoß kann nicht erfolgen, wenn  $E_1(t) < E_D/\gamma$  und wenn  $E_1(t) > E_C/(1-\gamma)$  sind. Im ersten Fall ist das Ion nicht in der Lage das Wirtsgitteratom zu verlagern, im zweiten Fall kann es von der Leerstelle nicht eingefangen werden. Diese Bedingungen sind in Abb. 15 graphisch dargestellt. Nur in dem schraffierten Bereich sind Ersetzungsstöße möglich. Für die Systeme Al (Wirtsgitter) und Rb, Cd und Pb (Ionen) sind die  $\gamma$ -Werte von 0.73,

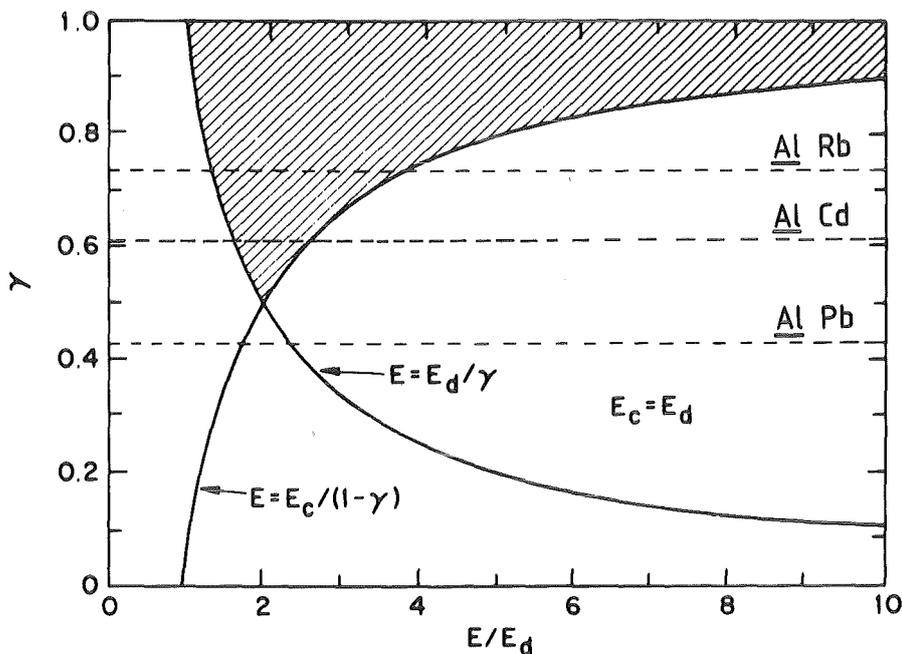


Abb. 15 Nur in der schraffierten Region der  $\gamma$ -E Ebene sind Ersetzungsstöße möglich /5/.

0.62 und 0.41 in Abb. 15 eingezeichnet. Hierbei zeigt sich, daß für die Systeme AlRb und AlCd Ersetzungsstöße möglich sind, für AlPb jedoch nicht.

Zur Bestimmung der Wahrscheinlichkeit eines Ersetzungsstoßes für ein vorgegebenes Ion-Target System muß der Wirkungsquerschnitt für die Übertragung einer Energie  $T$  berechnet werden. Als Streupotential wird das Thomas-Fermi Potential in der Formulierung von Lindhard /37/ verwendet (siehe Kap. 3.1.1). Die Wahrscheinlichkeit  $P$  für Ersetzungsstöße im Al-Wirtsgitter ist in Abb. 16 in Abhängigkeit von der Ordnungszahl  $Z$  des Ions dargestellt.

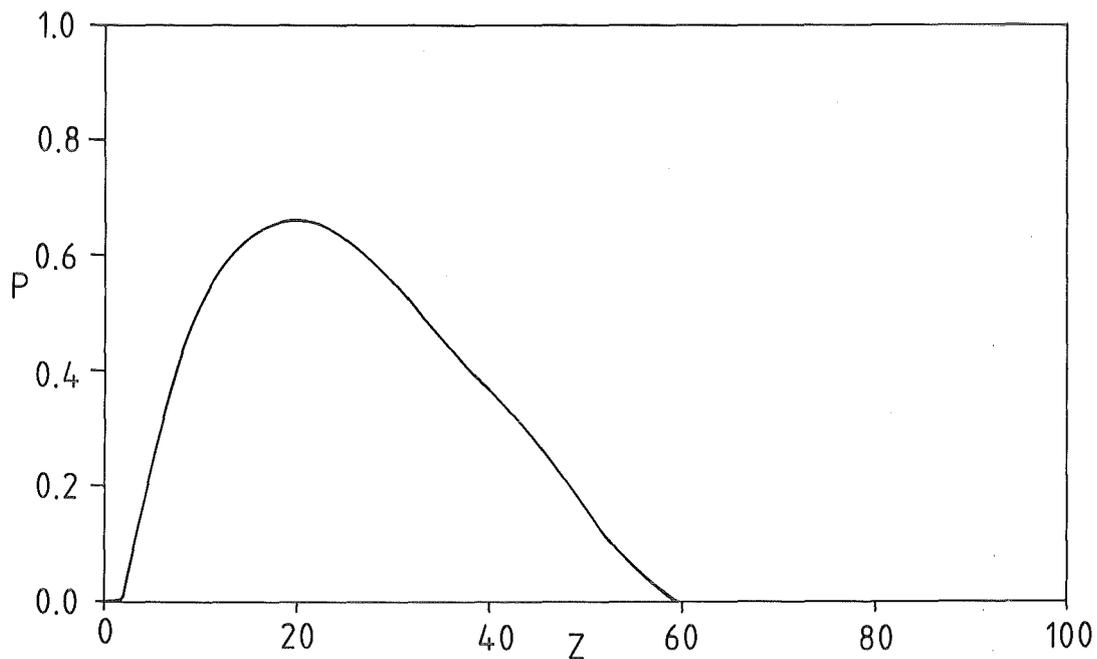


Abb. 16 Wahrscheinlichkeit für Ersetzungsstöße in Aluminium in Abhängigkeit von der Ordnungszahl  $Z$  des Ions.

Die Ersetzungsstoßtheorie erlaubt für das Wirtsgitter Al eine maximale Wahrscheinlichkeit von  $\approx 0.65$  für Ersetzungsstöße bei Ionen mit Ordnungszahlen  $Z$  um 20. Dies bedeutet, daß bei  $T_I \rightarrow 0$  K für diese Ionen eine maximale substitutionelle Komponente von  $f_s \approx 0.65$  erwartet werden muß. Ionen mit  $Z > 60$  sollten demnach nicht die Möglichkeit besitzen auf substitutionellen Gitterplätzen zur Ruhe zu kommen.

Sood und Dearnaly /3/ verglichen experimentelle Werte von  $f_s$  mit der theoretischen Kurve für die Ersetzungsstoßwahrscheinlichkeit im Wirtsgitter Cu bei  $T_I = 293$  K. Dabei zeigten sich gravierende Diskrepanzen, die von der Defektbeweglichkeit bei  $T = 293$  K herrühren könnten.

Um thermodynamische Effekte auszuschließen, implantierten Azzam und Meyer /66,67/ verschiedene Ionen bei  $T_I = 5$  K in V als Wirtsgitter. Auch hier war die Ersetzungsstoßtheorie nicht in der Lage die experimentellen Ergebnisse zu beschreiben.

#### 4.2 Schnellabschreckung aus der Kaskade

Poate et al. /68/ haben vorgeschlagen, die erhöhte Löslichkeit von Ag in Cu bis zu 16 at.% Ag bei der Implantation von Ag in Cu durch einen ultraschnellen Abschreckprozeß zu erklären. Die Abschreckzeit  $t_q$  bei der Ionenimplantation ist

$$t_q \approx \frac{r^2}{4D} \quad (52)$$

Bei einem angenommenen individuellen mittleren Kaskadenradius  $r$  von 5 nm und einer thermischen Diffusionskonstante  $D$  von  $8 \cdot 10^{-3}$  cm<sup>2</sup>/s ergibt sich eine Abschreckzeit von etwa  $10^{-11}$  s. Das ist etwa die gleiche Zeit, die notwendig ist um das angeregte Rumpfnionensystem durch Stöße mit Elektronen zu thermalisieren /25/. Bei einer angenommenen mittleren "Kaskadentemperatur" von  $10^3$  K  $\approx 0.1$  eV/Atom ergibt sich die sehr hohe Abschreck-

rate von  $\approx 10^{14}$  K/s. Verglichen mit konventionellen Schnellabschreckmethoden aus der Schmelze und aus dem festen Zustand mit Abschreckraten bis zu  $10^6$  K/s, bei der bereits viele übersättigte Lösungen hergestellt werden können, stellt die Ionenimplantation eine ultraschnelle Abschreckmethode dar.

Aus Experimenten der Schnellabschreckung aus der Dampfphase auf gekühlte Substrate mit Abschreckraten bis zu  $10^{10}$  K/s ist bekannt, daß selbst bei diesen hohen Abschreckraten Metalle in kristalliner Form aufwachsen. Verantwortlich dafür ist die meist einfache Kristallstruktur und die ungeordnete metallische Bindung. Substanzen, die eine kompliziertere Kristallstruktur, d.h. mehrere Atome pro Einheitszelle besitzen, wachsen bei diesem Vorgehen amorph auf. Reine Metalle, mit der Ausnahme von  $\alpha$ -Ga, das für ein Metall eine pathologische Kristallstruktur besitzt, lassen sich durch Bestrahlung nicht amorphisieren /69/. Zur Amorphisierung müssen mehrere Atomprozent eines Glasbildners beigefügt werden /70/. Unter der Voraussetzung, daß die Fremdatome in hoher Verdünnung vorliegen, kann der Schluß gezogen werden, daß der substitutionelle Gitterplatz die wahrscheinlichste Lage für ein Fremdatom in einem metallischen Wirtsgitter, das lokal bei der Ionenimplantation ultraschnell abgeschreckt wird, darstellt. Das Modell der Schnellabschreckung aus der Kaskade prognostiziert somit einen hohen substitutionellen Anteil der implantierten Fremdatome.

#### 4.3 Empirische Modelle

Im Verlauf der letzten 20 Jahre wurden mehrere empirische Modelle zur Voraussage von Löslichkeiten und Gitterplatzbesetzungen in der festen Phase vorgeschlagen. Die Modelle basieren darauf, daß zwei physikalische Größen, die die Verbindungsbildung beeinflussen, gegeneinander aufgetragen werden. Die sich ergebende Ebene wird empirisch in Gebiete verschiedener Gitterplatzbesetzung aufgeteilt.

### Darken-Gurry Darstellung

Darken und Gurry /6/ benutzten für ihre Darstellung zur Beschreibung von substitutionellen Löslichkeiten in der festen Phase die von Hume-Rothery et al. /71/ vorgeschlagenen Regeln und Parameter. Diese Regeln besagen in ihrer einfachsten Form, daß Elemente, die die gleiche Kristallstruktur und kleine Differenzen in der atomaren Größe und der Elektronegativität besitzen, ineinander löslich sein sollten. Die metallischen Radien für die Koordinationszahl 12 und die Elektronegativitäten nach Pauling und Yuan /72/ sind die gewählten Parameter /6/ (siehe Tab. 3).

Element	r(nm) /71/	$\phi^*$ (V) /72/
Al	0.143	1.5
Ga	0.141	1.6
Cd	0.154	1.7
Hg	0.157	1.9
Sb	0.162	1.9
Kr	0.221	3.1
In	0.166	1.7
Xe	0.240	2.7
Pb	0.175	1.8
Rb	0.248	0.8
Cs	0.267	0.7

Tabelle 3 Atomare Radien für die Koordinationszahl 12 und Werte der Elektronegativität.

In Abb. 17 ist die Darken-Gurry Darstellung für das Wirtsgitter Al angegeben, eingetragen sind nur die in dieser Arbeit untersuchten Fremdatome. Elemente, die substitutionelle Lösungen bilden sollten, liegen in dieser Darstellung innerhalb einer Ellipse mit den Hauptachsen "15% des Radius des Wirtsgitteratoms" und "0.4 V Differenz in der Elektronegativität".

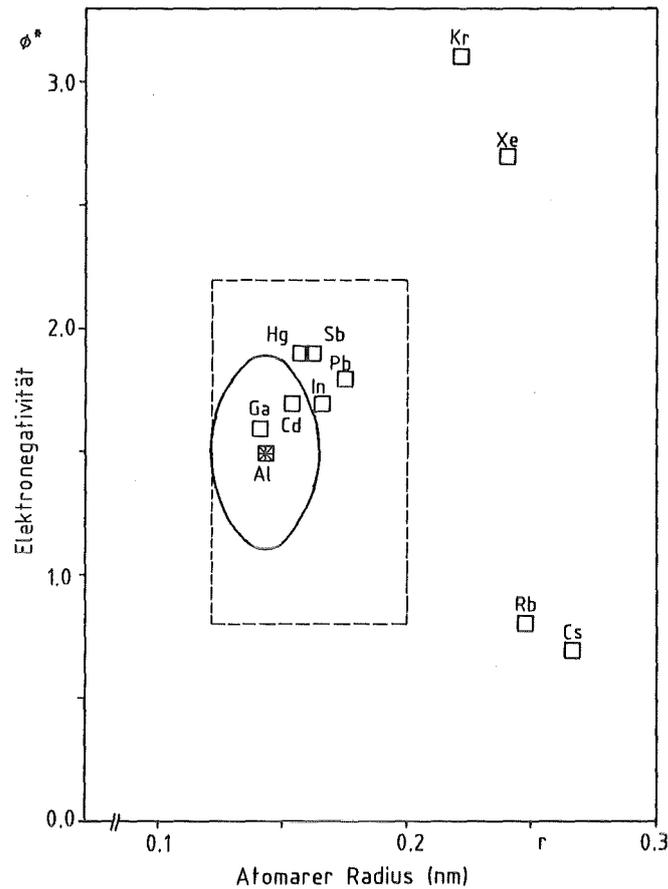


Abb. 17 Darcken-Gurry Darstellung für das Wirtsgitter Aluminium

Für die Voraussage von Löslichkeiten haben die Hume-Rothery Regeln einen Erfolg von  $\approx 50\%$ , für Nichtlöslichkeiten  $\approx 90\%$  /10/. Sood /73/ hat die Hume-Rothery Regeln für implantierte Systeme modifiziert. Seine empirisch gewonnene Aussage ist, daß metastabile substitutionelle Lösungen gebildet werden, wenn der atomare Radius des Fremdatoms weniger als  $-15\%$  bis  $+40\%$  von Radius des Wirtsgitteratoms abweicht und die Differenz der Elektronegativität nicht größer als  $\pm 0.7$  V ist. Diese Grenzen sind in Abb. 17 als unterbrochene Linie eingezeichnet.

### Miedema Regeln

Miedema et al. /7,8,9/ haben erfolgreiche Theorien zur Verbindungsbildung erarbeitet. Thermo-chemische Parameter für die Elemente wurden entwickelt, mit denen es gelang, die Bildungswärmen  $\Delta H_f$  von weit über 1000 Verbindungen richtig vorauszusagen /9/. Die Regeln von Miedema beruhen auf zwei Parametern, der elektrischen Austrittsarbeit  $\phi^*$  und der

Elektronendichte an der Grenze der Wigner-Seitz Zelle  $n_{ws}^{1/3}$   
(siehe Tab. 4).

Die Bildungswärme  $\Delta H_f$  wird gemäß Gleichung (53) berechnet.

$$\Delta H_f = -P(\Delta\phi^*)^2 + Q(\Delta n_{ws}^{1/3})^2 \quad (53)$$

Die Parameter P und Q sind empirisch zu bestimmende Konstanten. Ein Unterschied in  $\phi^*$  resultiert in einem Ladungstransfer über die Grenze verschiedener atomarer Zellen, was einen negativen Beitrag zu  $\Delta H_f$  liefert. Ein Unterschied in  $n_{ws}^{1/3}$  impliziert einen Energieaufwand, um die Diskontinuität der Elektronendichte an der Grenze der Wigner-Seitz Zelle zu verschmieren, was einen positiven Beitrag zu  $\Delta H_f$  liefert. Im makroskopischen Bild entspricht  $n_{ws}$  der Oberflächenspannung des elementaren, flüssigen Metalls.

Für hohe Verdünnung der Fremdatome geht die Bildungswärme  $\Delta H_f$  in die Lösungswärme  $\Delta H_{sol}$  über. Die Parameter des elektronischen Anteils der Lösungswärme  $\Delta H_{sol,el}$  sind das chemische Potential ( $\mu$ ) und die Elektronendichte an der Grenze der Wigner-Seitz Zelle  $n_{ws}^{1/2}$  (siehe Tab. 4).

Element	$n_{ws}^{1/2}$ /9/	$\mu$ (V) /9/
Al	1.39	4.20
Ga	1.31	4.10
Cd	1.24	4.05
Hg	1.24	4.20
Sb	1.26	4.40
Kr	0.20	0.70
In	1.17	3.90
Xe	0.20	0.70
Pb	1.15	4.10
Rb	0.60	2.10
Cs	0.55	1.95

Tabelle 4 Elektronendichte an der Grenze der Wigner-Seitz Zelle und Werte des chemischen Potentials.

In Abb. 18 sind die in das Al-Wirtsgitter implantierten Fremdatome in der Miedema-Darstellung aufgetragen. Der Bereich der Substitutionalität, dessen Ausdehnung experimentell zu bestimmen ist, nimmt in dieser Darstellung die Form einer flachen Ellipse um das Wirtsgitteratom mit  $\approx 45^\circ$  Neigung an /10,74/. Chelikowsky /10/ zeigte, daß die Koordinaten von Miedema auch zur Beschreibung metastabiler Systeme in der Lage sind.

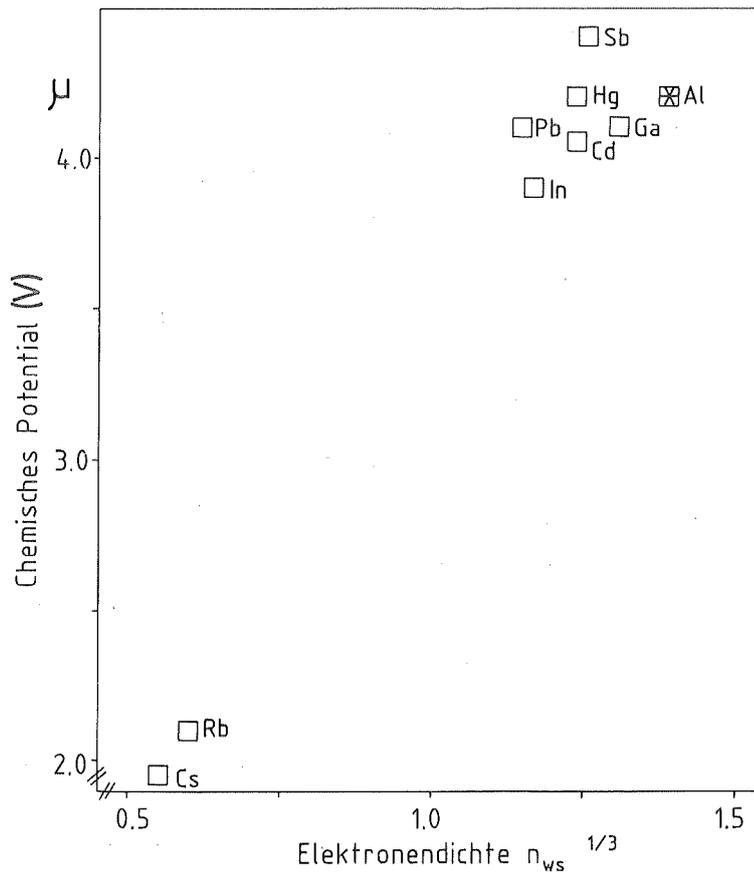


Abb. 18 Auftragung der Miedema-Parameter  $\mu$  und  $n_{ws}^{1/3}$  nach Chelikowsky /10/.

Alonzo und López /11/ haben den elektronischen Anteil der Lösungswärme  $\Delta H_{sol,el}$  gegen den atomaren Radius  $r$  (siehe Tab. 3) aufgetragen. Auch in dieser Auftragung (siehe Abb. 19) ist der Bereich der Substitutionalität empirisch zu ermitteln, er besitzt die Form einer liegenden Ellipse um das Wirtsgitteratom /11/. Diese Darstellung angewandt auf die Bildung metastabiler Lösungen durch Ionenimplantation verbessert die Trennung der substitutionellen von den nichtsubstitutionellen Elementen /11/.

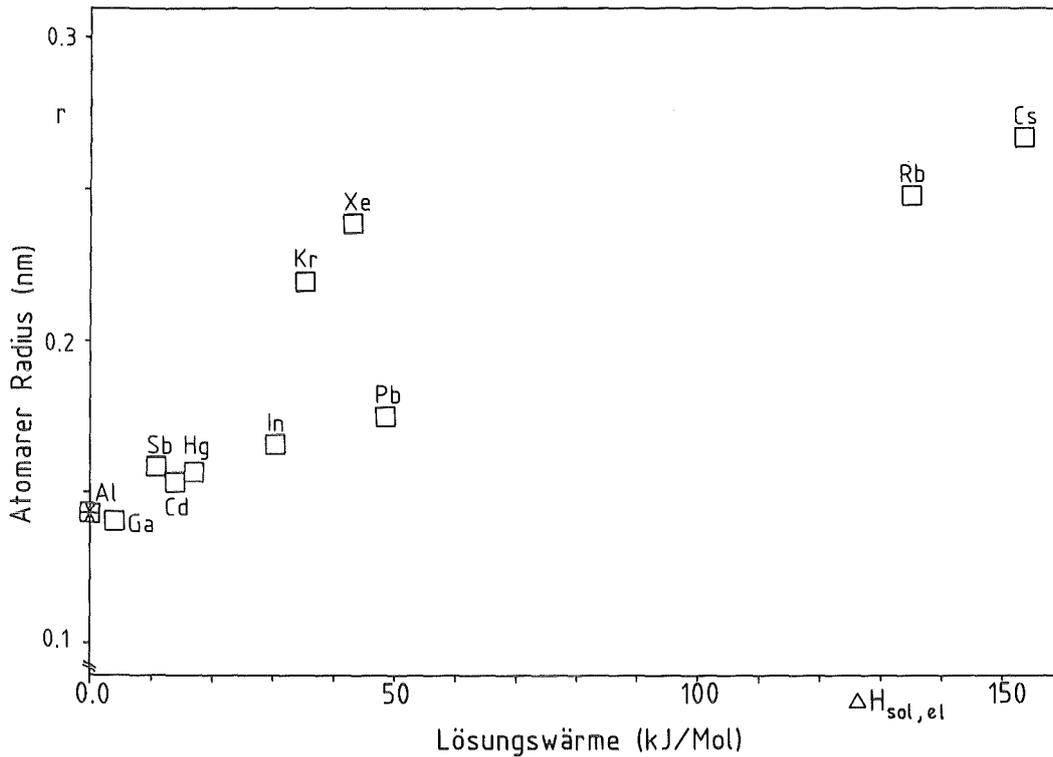


Abb. 19 Auftragung der Elemente nach Alonzo und López /11/  
(100 kJ/Mol  $\approx$  1 eV/Atom).

### Berechnung der Lösungswärme $\Delta H_{\text{sol}}$

Die Lösungswärme ist diejenige Energie, die aufgewandt werden muß, um ein Wirtsgitteratom durch ein Fremdatom zu ersetzen. Dabei gilt die Voraussetzung, daß die Fremdatome hoch verdünnt sind, und somit Wechselwirkungen zwischen ihnen vernachlässigt werden können. Die Lösungswärme  $\Delta H_{\text{sol}}$  setzt sich aus dem elektronischen Teil der Lösungswärme  $\Delta H_{\text{sol,el}}$  und der Fehlanpassungsenergie  $\Delta H_{\text{size}}$  zusammen.

$$\Delta H_{\text{sol}} = \Delta H_{\text{sol,el}} + \Delta H_{\text{size}} \quad (54)$$

Der elektronische Anteil der Lösungswärme  $\Delta H_{\text{sol,el}}$  eines Elements B in hoher Verdünnung im Wirtsmetall A ist nach Ref. /7,9/ gegeben durch:

$$\Delta H_{\text{sol,el}}^{\text{B in A}} = P \frac{V_B^{2/3}}{(n_{\text{ws}}^{-1/3})_{\text{av}}} \cdot \left( -(\Delta\mu)^2 + \frac{Q}{P} (\Delta n_{\text{ws}}^{1/3})^2 \right), \quad (55)$$

dabei sind P und Q die experimentell bestimmten Konstanten aus Gleichung (53) und  $V_B$  ist das molare Volumen des Elements B.

Unter Verwendung der Theorie von Eshelby /75/ wird die Fehlanpassungsenergie approximiert:

$$\Delta H_{\text{size}} = 1.25 \overline{B \cdot V_m} \delta^2 c_A c_B \quad (56a)$$

$$\delta = 2 (V_A^{1/3} - V_B^{1/3}) / (V_A^{1/3} + V_B^{1/3}) , \quad (56b)$$

dabei ist  $\overline{B \cdot V_m}$  der Durchschnittswert des Produktes von Bulkmodul und molarem Volumen,  $c_A$  und  $c_B$  sind die jeweiligen Konzentrationen /7/.

Zur Berechnung der numerischen Werte von  $\Delta H_{\text{sol}}$  wurde ein Computerprogramm /9,67/ verwendet.

#### Modell von Singh und Zunger

Zur Bestimmung von Löslichkeit und Gitterplatzbesetzung bei der Ionenimplantation verwenden Singh und Zunger /12/ nicht-empirische Orbitalradius-Koordinaten. Auf der Basis nicht-lokaler atomarer Pseudopotentialrechnungen wurden Orbitalradien berechnet. Aus den Orbitalradien werden die Parameter  $R_\sigma$  und  $R_\pi$  berechnet.

$$R_\sigma(A,B) = |(r_p^A + r_s^A) - (r_p^B + r_s^B)| \quad (57a)$$

$$R_\pi(A,B) = |r_p^A - r_s^A| + |r_p^B - r_s^B| \quad (57b)$$

Das Modell berücksichtigt nur die Radien der s- und p-Orbitale. Die Werte der Radien sind in /76/ tabelliert. Im Gegensatz zu anderen bisher vorgestellten Koordinaten sind  $R_\sigma$  und  $R_\pi$  nicht wirtsgitterinvariant. Für das Wirtsgitter Al sind die Orbitalradiuskoordinaten in Abb. 20 eingetragen. Der Bereich der Löslichkeit ist auch hier empirisch zu ermitteln und besitzt meist die Form einer flachen, um  $45^\circ$  geneigten Ellipse um das Wirtsgitteratom.

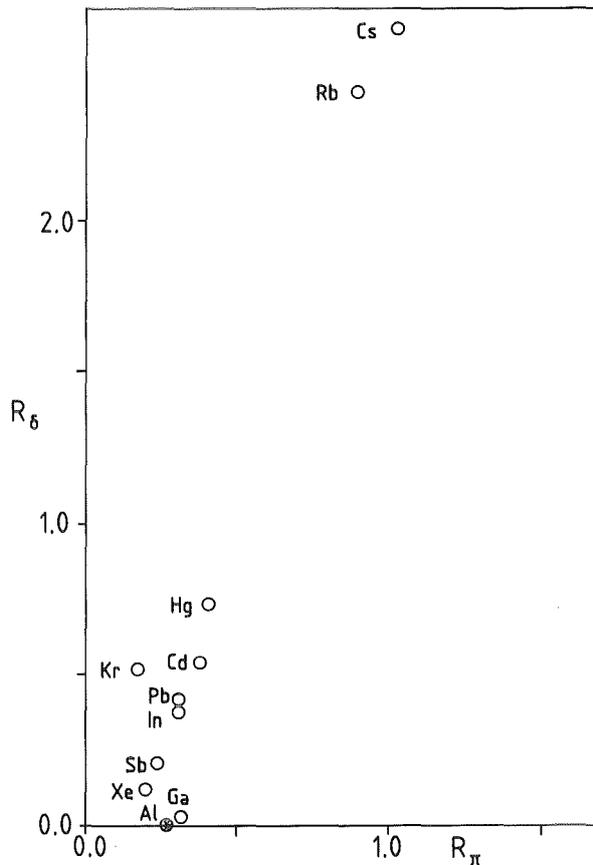


Abb. 20 Orbitalradiuskoordinaten für das Wirtsgitteratom Aluminium.

#### 4.4 Wechselwirkung von Fremdatomen mit Punktdefekten

Aus zahlreichen Untersuchungen /56,60,77,78,79,80/ ist bekannt, daß Fremdatome in Metallen mit Punktdefekten wechselwirken. Die dabei entstehenden Konfigurationen wurden unter Anwendung verschiedenster, sich zum Teil ergänzender Methoden wie Channeling, Positronenvernichtung, Mößbauerspektroskopie und gestörter  $\gamma$ - $\gamma$  Winkelkorrelation (PAC) bestimmt.

Fremdatome sind in der Lage in Metalleinkristallen bewegliche Defekte einzufangen. Deren Wechselwirkung mit den Fremdatomen kann mit der Channeling-Methode beobachtet werden, wenn sie mit einer Verlagerung des Fremdatoms vom Gitterplatz verbunden ist. Der Einfluß von Eigenzwischengitteratomen und

Leerstellen kann durch die verschiedenen Temperaturen, bei denen die Defekte beweglich sind differenziert werden. In Metallen besitzen Eigenzwischengitteratome generell eine niedrigere Aktivierungsenergie als Leerstellen. Für Al ergeben sich somit folgende Verhältnisse:

- I) Bei Temperaturen unterhalb der Temperatur der Stufe I (35 K) /50/ sind weder Eigenzwischengitteratome, noch Leerstellen beweglich.
- II) Bei Temperaturen zwischen den Temperaturen von Stufe I (35 K) und Stufe III (220 K) sind Eigenzwischengitteratome beweglich, Leerstellen nicht.
- III) Bei Temperaturen oberhalb der Temperatur der Stufe III (220 K) /50/ sind sowohl Eigenzwischengitteratome, als auch Leerstellen beweglich.

Die Größe des Fremdatoms ist ein bedeutender Faktor, der bestimmt, welche Art von Defekten eingefangen wird. Als allgemeine Regel gilt, kleinere Fremdatome auf substitutionellen Gitterplätzen kontrahieren das Gitter und fangen daher bevorzugt Eigenzwischengitteratome ein, größere Fremdatome auf substitutionellen Gitterplätzen expandieren das Gitter und fangen daher bevorzugt Leerstellen ein. Dabei wird jeweils die Verspannungsenergie des Gitters reduziert /56/.

Der Einfang eines Al-Eigenzwischengitteratoms an einem kleineren Fremdatom, wie Ag, Mn, Ge, Cr, Zn, Fe oder Cu resultiert in der Bildung einer gemischten Hantel /58/. Dieser Defekttyp ist mindestens bis zur Temperatur der Stufe III stabil.

Einige größere Fremdatome, wie Sn und Mg /58/ oder In und Hf /81/ in Aluminium sind bei Temperaturen knapp oberhalb der Temperatur der Stufe I ebenfalls in der Lage, Eigenzwischengitteratome einzufangen. Die Eigenzwischengitteratome werden in diesem Fall an das Gitterverzerrungsfeld und nicht direkt an das Fremdatom ge-

bunden. Es erfolgt keine Hantelbildung und somit auch keine Verrückung des Fremdatoms von seinem substitutionellen Gitterplatz. Dieser Defekttyp, genannt "Shallow Trapping", ist wenig stabil und zerfällt bereits bei  $\approx 100 \text{ K}$  /58,81/.

Der Einfang von einer oder mehreren Leerstellen an einem größeren Fremdatom resultiert in der Bildung von Fremdatom-Leerstellen Komplexen. In Al als Wirtsgitter wurden im System AlIn Fremdatom-Dileerstellen Komplexe /82,83/, in den Systemen AlIn und AlSn Fremdatom-Trileerstellen Komplexe /60,80,84/, in den Systemen AlIn und AlSn Fremdatom-Tetra-leerstellen Komplexe /60,80,84/, in den Systemen AlIn und AlSn Fremdatom-Hexaleerstellen Komplexe /60,84/ und im AlIn Fremdatom-Leerstellen Komplexe mit mehr als sechs Leerstellen /85,86/ beobachtet. Jede dieser Konfigurationen führt zu einer Verlagerung des Fremdatoms und somit zur Möglichkeit der Identifizierung der Komplexe durch Channeling-Messungen. Fremdatom-Leerstellen Komplexe heilen bei Temperaturen zwischen 300 und 500 K aus /80/.

Die Bindungsenergie zwischen einem In-Fremdatom und einer Leerstelle wird von Wichert et al./87/ mit  $B_{vi} > 0.2 \text{ eV}$  angenommen. Ho und Benedek /88/ erhielten aus Pseudopotential-rechnungen maximale Bindungsenergien von  $\approx 0.02 \text{ eV}$ . Doyama /13/ korreliert die Bindungsenergie  $B_{vi}$  mit der Lösungswärme  $\Delta H_{sol,el}$   $B_{vi} \approx \frac{1}{\alpha} \cdot \Delta H_{sol}$  mit  $\alpha$  zwischen 9 und 12. Die Lösungswärme ist die Energie, die notwendig ist um ein Wirtsgitteratom durch ein Fremdatom zu ersetzen. Eine hohe Lösungswärme bedeutet somit eine starke Verzerrung des Gitters und des Elektronensystems nahe des Fremdatoms. Durch den Einfang einer oder mehrerer Leerstellen kann diese Verzerrung relaxieren. Der Energiegewinn durch Relaxation, d.h. die Bindungsenergie ist um so höher, je größer die Verzerrung war.

#### 4.5 Defekt-Antidefekt Reaktion

Fremdatom-Defekt Konfigurationen können durch ihren jeweiligen Antidefekt aufgelöst werden, falls die Fremdatom-Defekt Bindungsenergie nicht zu hoch ist.

Gemischte Hanteln, erzeugt durch Bestrahlung bei Temperaturen zwischen den Temperaturen der Stufe I und III werden beim Aufwärmen ab der Temperatur der Stufe III durch bewegliche Leerstellen aufgelöst. Wird der Leerstellenfluß durch eingefügte geeignete Senken behindert, verzögert sich der Auflösungsprozeß /58/.

Fremdatom-Leerstellen Komplexe können durch mobile Eigenzwischengitteratome aufgelöst werden. Swanson et al. /89,90/ lösten Fremdatom-Leerstellen Komplexe in den Systemen AlIn und AlSn durch Nachbestrahlung mit 1.0 MeV  $\text{He}^+$  bei 70 K auf.

## 5. RESULTATE UND DISKUSSION

### 5.1 Gitterplatzbesetzung implantierter Fremd- atome in Aluminium

Welchen Gitterplatz implantierte Fremdatome im Wirtsgitter nach der Implantation einnehmen ist eine grundlegende Frage im Bereich der Modifikation von Festkörpern durch Ionenimplantation. Zur Voraussage des Gitterplatzes, den das Ion am Ende seiner Trajektorie einnimmt, existieren sowohl empirische, als auch theoretische Modelle. Bislang sind lediglich für die Wirtsgitter Cu /73/, Be /91/, Fe /92/, V /92,93/ und Al /3,94/ systematische Untersuchungen durchgeführt worden. Neben der Ionen-Channeling Methode werden zur Messung des substitutionellen Anteils und der Konfiguration, die die Fremdatome im Wirtsgitter bilden, Elektronen-Channeling-/95/, gestörte  $\gamma$ - $\gamma$  Winkelkorrelation (PAC)-/78,79/, Mößbauer-/96/, Positronenlebensdauer-/97/ Methoden verwandt. Für Untersuchungen im Wirtsgitter Al bietet sich aufgrund dessen niedriger Masse die Ionen-Channeling Methode an. Durch die Wahl der Implantationstemperaturen  $T_I = 5, 77$  und  $293$  K lassen sich die Einflüsse der Beweglichkeit von Eigenzwischengitteratomen und Leerstellen separieren, da in Al die Stufen  $I_A - I_E$  zwischen  $15$  und  $45$  K und die Stufe III bei  $220$  K liegen/50/.

Substitutionelle Anteile, in Al implantierter Fremdatome, wurden bislang, außer für AlIn /80/, nur bei  $T_I = 293$  K bestimmt /3,4/.

In dieser Arbeit soll die Gitterplatzbesetzung und die substitutionellen Anteile implantierter, unlöslicher, übergroßer Fremdatome in Al untersucht werden. Dazu wurden die Elemente Ga, Cd, Hg, Sb, Kr, In, Xe, Pb, Rb und Cs in Konzentrationen zwischen  $0.03$  und  $11.7$  at.% mit Energien zwischen  $80$  und  $600$  keV in Al-Einkristalle implantiert.

### 5.1.1 Gallium implantiert in Aluminium

Im Gleichgewichtsphasendiagramm zeigt Ga bis zu  $\approx 9$  at.% in Al Löslichkeit /98/. Gallium wurde bei einer Temperatur von 77 K in Al-Einkristalle implantiert. Bei einer Fluenz von  $1.0 \cdot 10^{16} \text{ Ga}^+/\text{cm}^2$  und einer Implantationsenergie von 200 keV wurde im Maximum eine Ga-Konzentration von 1.35 at.% gemessen. In Abb. 21 sind das Random und das orientierte Rückstreuungsspektrum gezeigt.

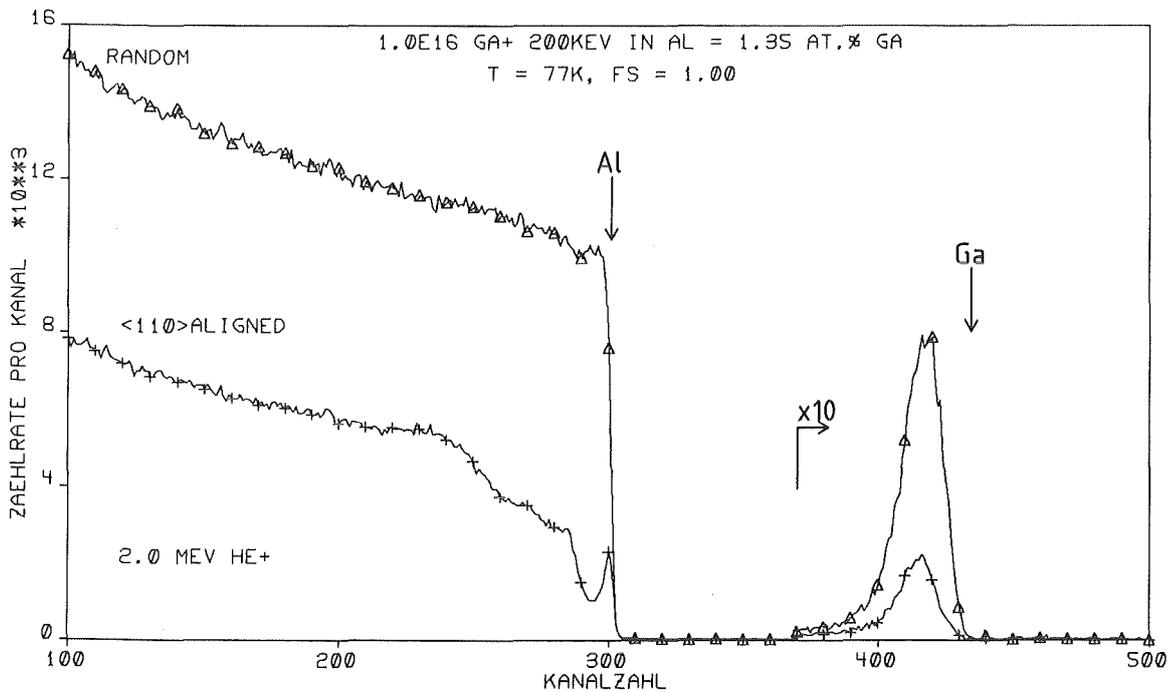


Abb. 21 Rückstreuungsspektren eines mit  $1.0 \cdot 10^{16} \text{ Ga}^+/\text{cm}^2$ , 200 keV bei 77 K implantierten Al-Einkristalls.

Der substitutionelle Anteil  $f_s$  beträgt 1.0 /94/. In Abb. 22 sind die winkelabhängigen Ausbeutekurven für Al und Ga, die hervorragend übereinstimmen, aufgetragen. Die kritischen Winkel betragen  $\psi_{1/2} (\text{Al, Ga}) = 0.65^\circ$ . Daraus ergibt sich, daß die bei  $T_I = 77$  K implantierten Ga-Atome sich zu 100% auf substitutionellen Gitterplätzen des Al-Wirtsgitters befinden.

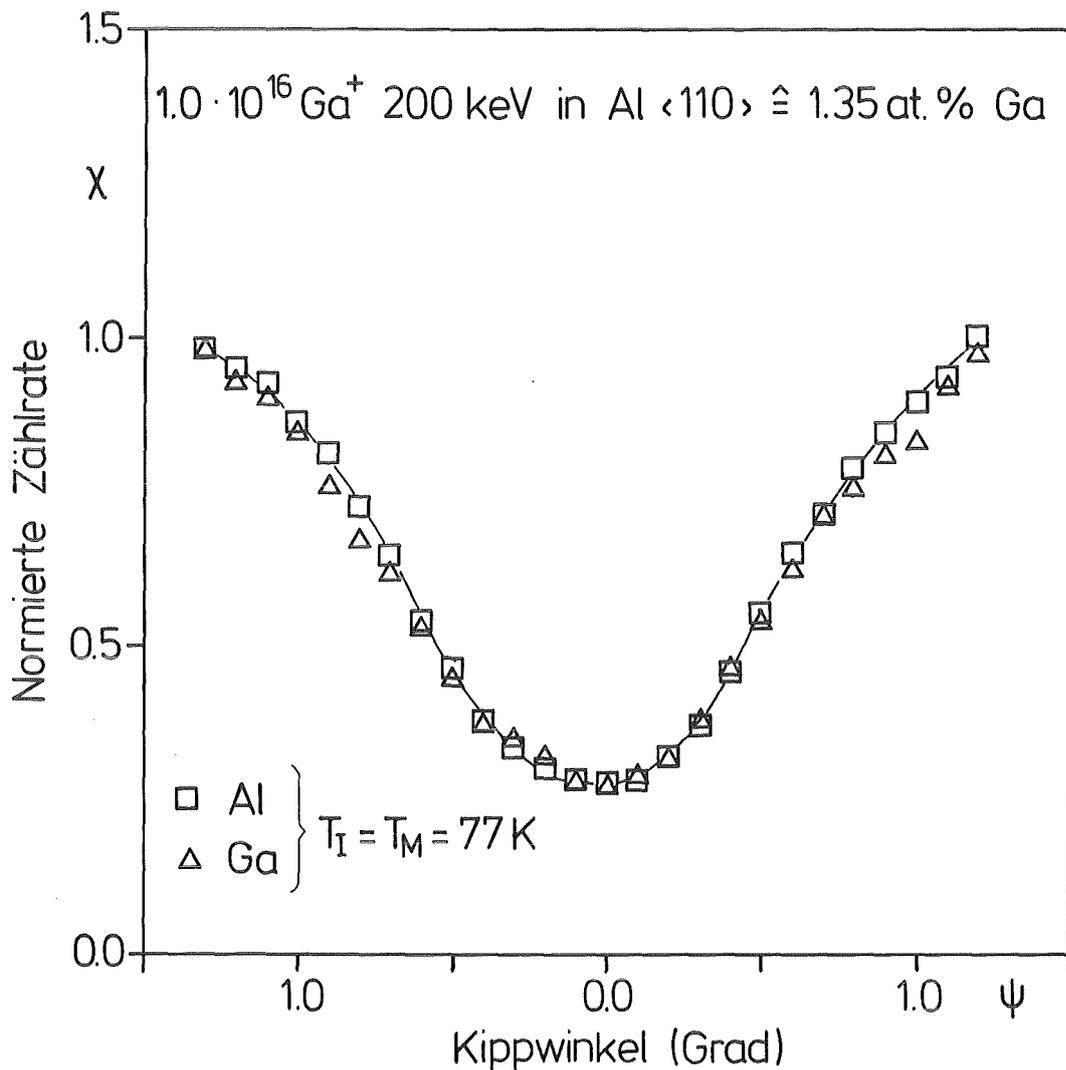


Abb. 22 Winkelabhängige Ausbeutekurven für 2.0 MeV  $^4\text{He}^+$  Ionen, rückgestreut von einem mit Ga implantierten Al-Einkristall. Implantation und Analyse wurden bei 77 K *in situ* durchgeführt.

Auf eine Implantation bei 5 K wurde verzichtet, da auch ein zusätzliches Unterdrücken der Beweglichkeit der Eigenzwischengitteratome den bereits bei  $T_I = 77$  K erreichten maximal möglichen Wert von 1.0 für den substitutionellen Anteil nicht erhöhen kann.

Nach dem Aufwärmen auf 293 K wurde ein  $f_s$ -Wert von 0.93 gemessen. Der kritische Winkel verengte sich temperaturbedingt, blieb aber für Al und Ga nahezu gleich ( $\psi_{1/2}(\text{Al}) = 0.59^\circ$ ,  $\psi_{1/2}(\text{Ga}) = 0.58^\circ$ ).

Hussain und Linker /99/ bestimmten nach der Implantation von  $5.3 \cdot 10^{15} \text{ Ga}^+/\text{cm}^2$ , 150 keV bei 293 K einen substitutionellen Anteil von  $f_s = 0.87$  bei gleichzeitiger Verengung der winkelabhängigen Ausbeutekurve (siehe Abb. 23) von Ga gegenüber der von Al.

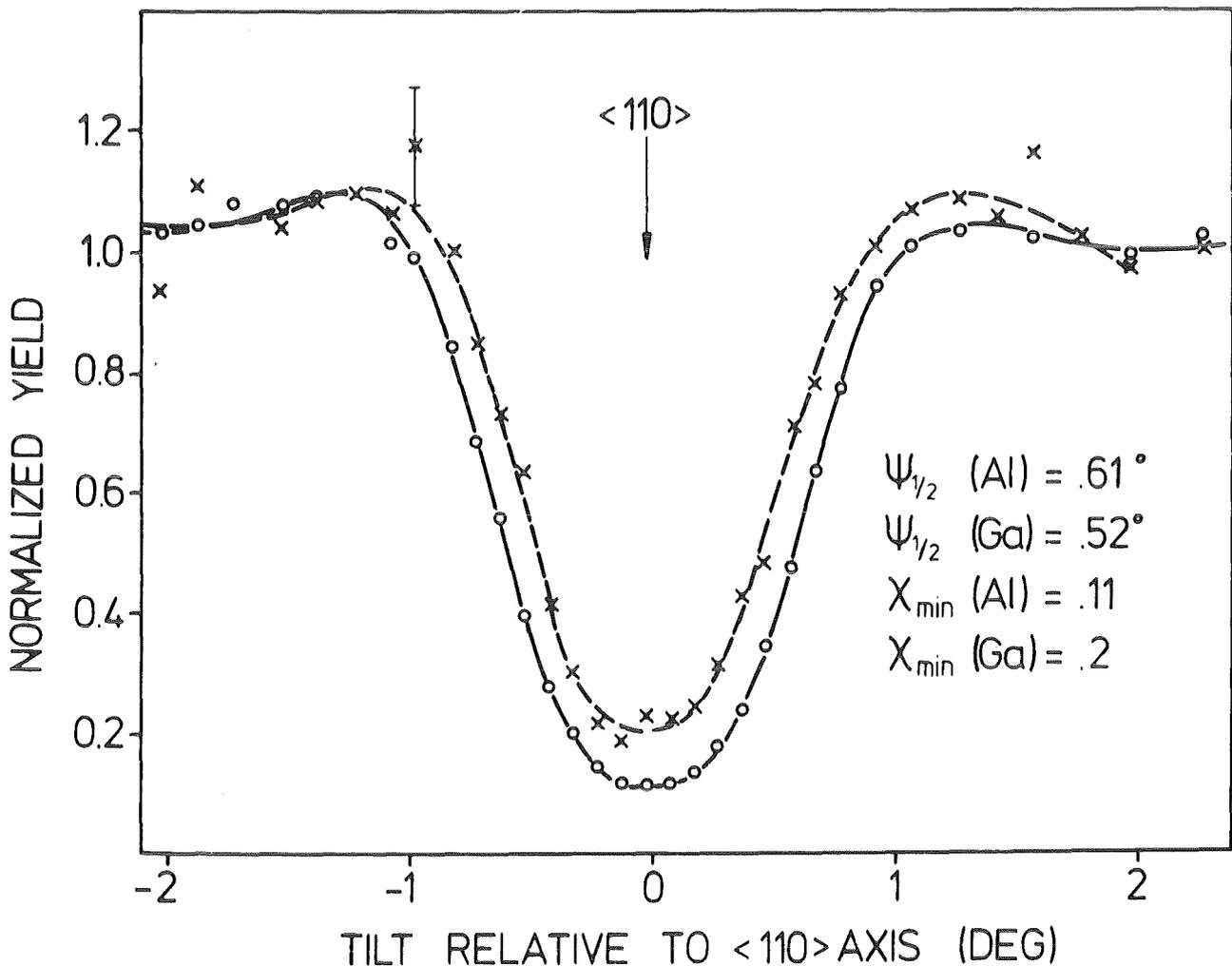


Abb. 23 Winkelabhängige Ausbeutekurven für das bei 293 K implantierte und analysierte AlGa System /99/.

Nach Kurzzeittempern der bei 293 K implantierten Probe mit einem gepulsten Elektronenstrahl /100/ mit einer Energiedichte von  $2.4 \text{ J/cm}^2$  stieg  $f_s$  auf 1.0 an, und die Werte der kritischen Winkel wurden identisch /101/.

Die Ergebnisse erlauben den Schluß, daß Ga unterhalb der Temperatur der Stufe III implantiert keine nennenswerte Wechselwirkung mit Punktdefekten ausübt. Daraus resultierend besetzt es zu 100% substitutionelle Gitterplätze. Nach Aufwärmen dieser Probe auf 293 K besetzen noch 93% der Ga-Atome substitutionelle Gitterplätze, der Rest befindet sich auf Plätzen niedrigerer Symmetrie. Die Verengung der winkelabhängigen Ausbeutekurve von Ga bei  $T_I = 293 \text{ K}$  kann mit einer statischen Verlagerung der Ga-Atome um  $0.016 \text{ nm}$  beschrieben werden /99,101/.

### 5.1.2 Cadmium implantiert in Aluminium

Das Gleichgewichtsphasendiagramm des Aluminium-Cadmium Systems /98/ ist in Abb. 24 dargestellt. Die maximale Löslichkeit von Cd in Al beträgt 0.1 at.% bei  $649^\circ\text{C}$  /102/.

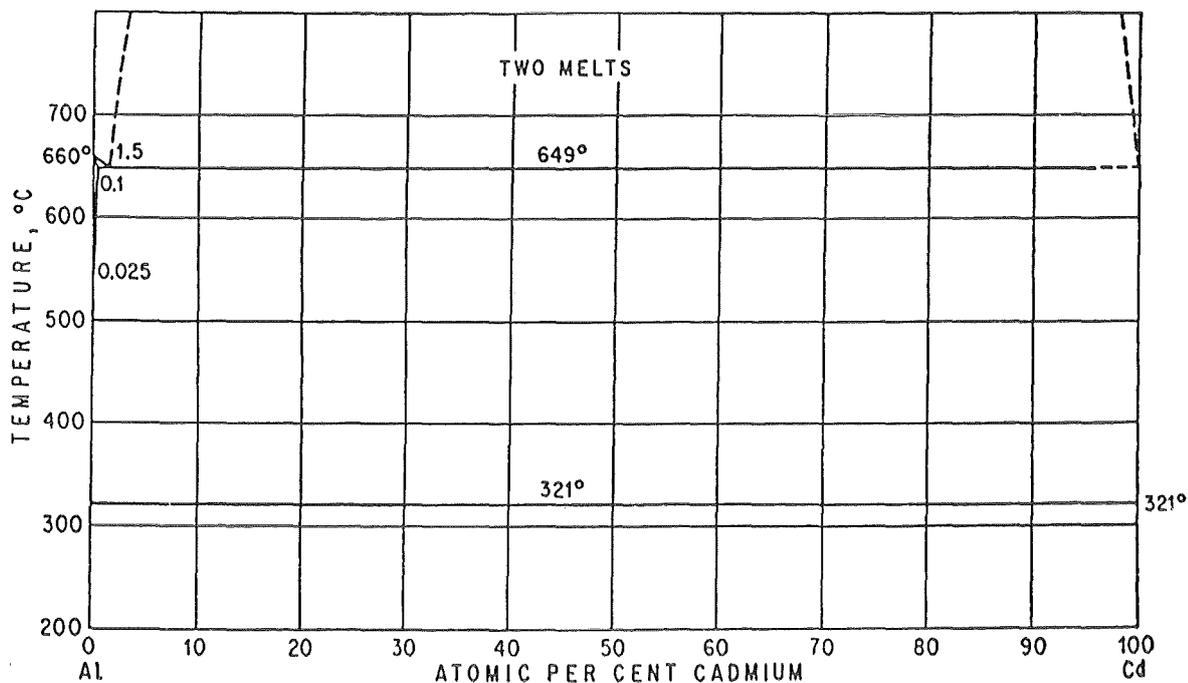


Abb. 24 Gleichgewichtsphasendiagramm des Al-Cd Systems /98/.

Cadmium im Wirtsgitter Al erfüllt die Hume-Rothery Regeln /71/ in der Darken-Gurry Darstellung /6/ (Siehe Abb. 17, S. 53) und sollte demnach löslich sein. Gegen eine Löslichkeit gemäß empirischer Modelle spricht nur die verschiedene Kristallstruktur von Al (kubisch-flächenzentriert) und Cd (hexagonal). Cadmium in Al besitzt einen elektronischen Anteil der Lösungswärme von 14.2 kJ/Mol und eine Fehlanpassungsenergie von 6.1 kJ/mol /7,9/.

Sood und Dearnaley /3/ implantierten  $1.0 \cdot 10^{16} \text{ Cd}^+/\text{cm}^2$ , 300 keV bei 293 K und bestimmten einen substitutionellen Anteil von  $f_s = -0.04$ .

Battaglin et al. /103/ implantierten  $1.7 \cdot 10^{16} \text{ Cd}^+/\text{cm}^2$  bei 293 K und bestrahlten diese Probe danach bei 293 K mit Laserpulsen bis zu einer Energiedichte von  $4.5 \text{ J/cm}^2$ . Der substitutionelle Anteil war bis zu einer Energiedichte von  $2 \text{ J/cm}^2$  unverändert zwischen  $f_s = 0.0$  und  $f_s = 0.1$ . Bei  $4.5 \text{ J/cm}^2$  wanderte das Cd an die Oberfläche der Probe und schied aus.

Die Oberfläche eines mit Cd bei 293 K implantierten Al-Einkristalls wurde bei der gleichen Substrattemperatur mit einem gepulsten Elektronenstrahl (PEBA) /100/ beschossen, aufgeschmolzen und schnellabgeschreckt. Auch hierbei ergaben sich von  $f_s \approx 0.0$  keine Abweichungen /104/.

#### 5.1.2.1 Implantation bei verschiedenen Temperaturen

Cadmium wurde bei 5, 77 und 293 K in Al implantiert, und danach wurden in situ Rückstreupektren und winkelabhängige Ausbeutekurven aufgenommen. In Abb. 25 und 26 sind die Random und  $\langle 110 \rangle$ -Aligned Spektren für  $T_I = 77$  und 293 K dargestellt.

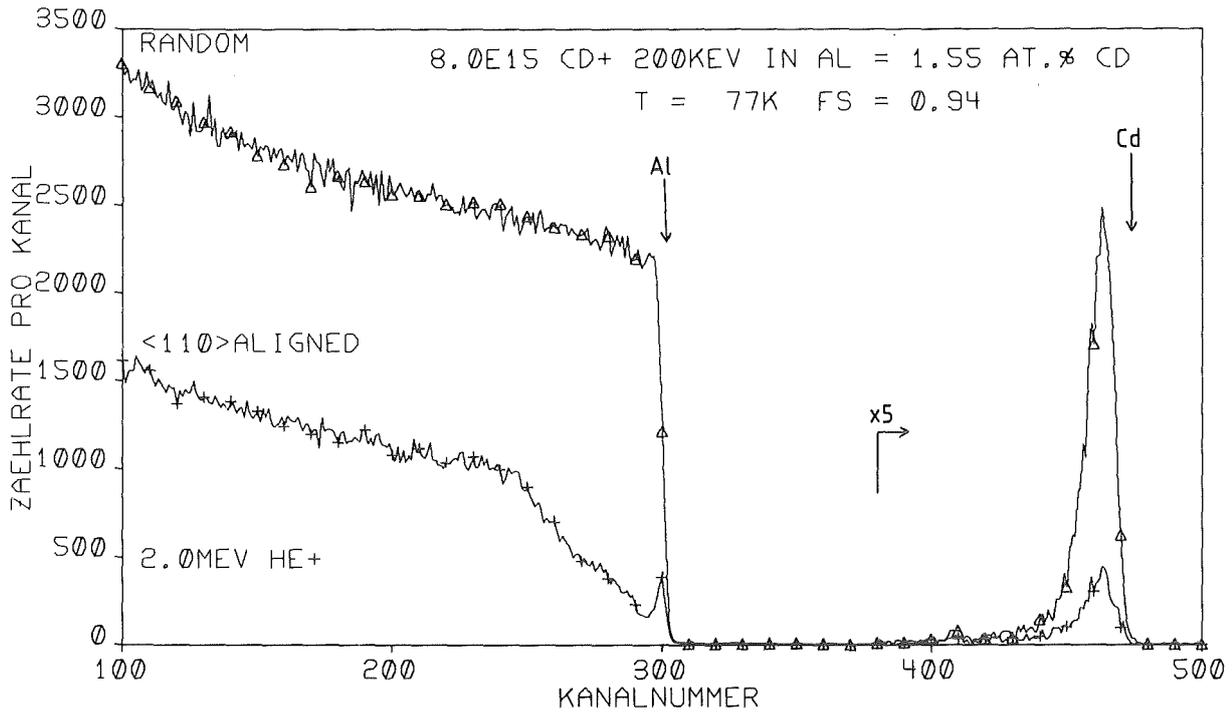


Abb. 25 Rückstreuenspektren einer AlCd Probe, implantiert und analysiert in situ bei 77 K.

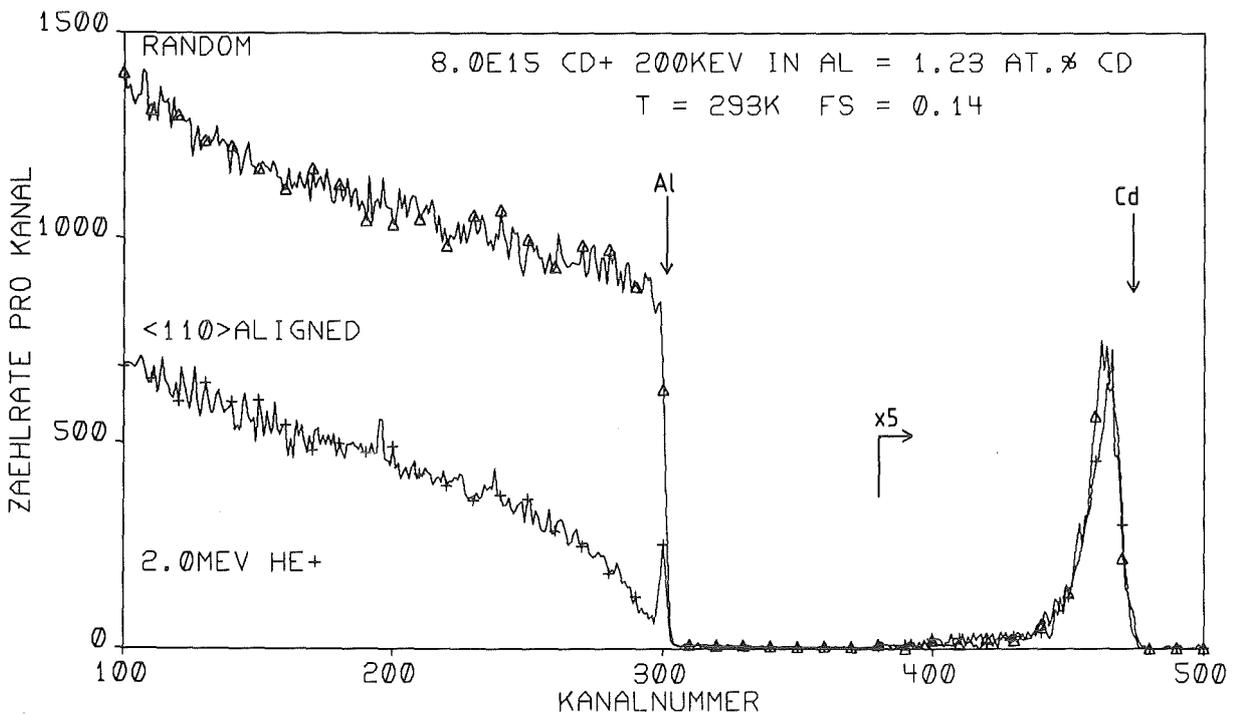


Abb. 26 Rückstreuenspektren einer AlCd Probe, implantiert und analysiert in situ bei 293 K.

Die substitutionellen Anteile betragen  $f_s = 0.94$  bei  $T_I = 77$  K und  $f_s = 0.14$  bei  $T_I = 293$  K. Bei  $T_I = 5$  K beträgt der substitutionelle Anteil  $f_s = 1.0$  /105/. In Abb. 27 sind die winkelabhängigen Ausbeutekurven für  $T_I = 5$  K (a),  $T_I = 77$  K (b) und  $T_I = 293$  K (c) aufgetragen. Bei einer Implantations-temperatur von  $T_I = 5$  K kommen die Cd-Atome zu 100% auf substitutionellen Gitterplätzen zur Ruhe. Die kritischen Winkel für Al und Cd sind identisch. Bei  $T_I = 77$  K ist die Winkel für Al und Cd sind identisch. Bei  $T_I = 77$  K ist die

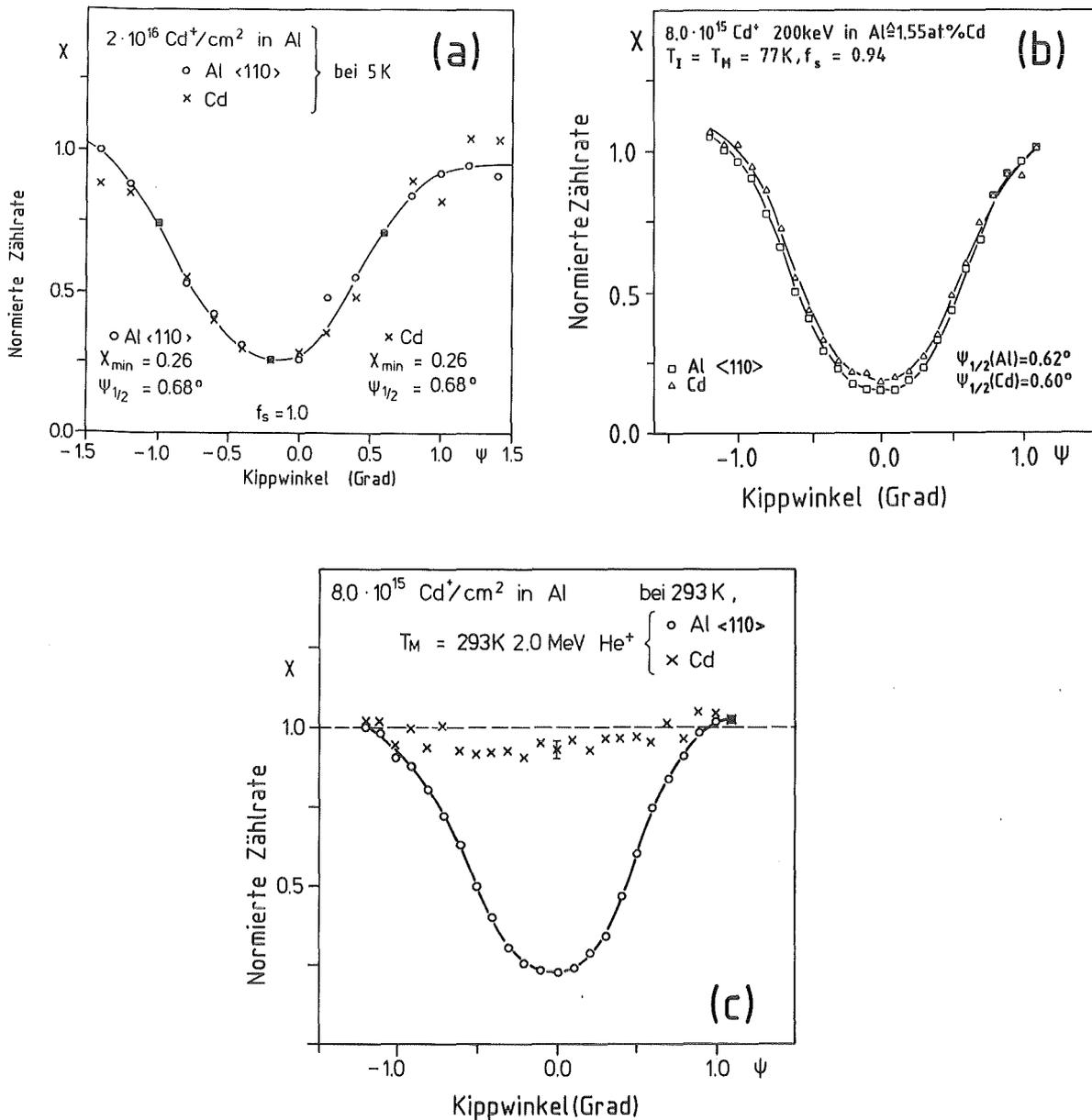


Abb. 27 Winkelabhängige Ausbeutekurven von mit Cd implantierten Al-Einkristallen in  $\langle 110 \rangle$ -Orientierung. Die Implantation und Analyse wurde in situ bei 5 K (a), 77 K (b) und 293 K (c) durchgeführt.

winkelabhängige Ausbeutekurve von Cd gegenüber der von Al leicht verengt. Dies deutet auf einen gestört substitutionellen Gitterplatz der Cd-Atome hin, verursacht durch die Nachbarschaft einer Leerstelle, zu der hin das Cd-Atom relaxiert. Die leichte Struktur im Cd-Signal nahe dem Kippwinkel  $0.0^\circ$  läßt auf einen kleinen Anteil einer weiteren Defektkomponente schließen. Bei einer Implantationstemperatur von  $T_I = 293$  K zeigen die Cd-Datenpunkte außer einem kleinen, vermutlich nahe substitutionellen Anteil, keine eindeutig zuordnungsbar Defektstruktur. Etwa 85% der Cd-Atome besetzen nichtreguläre Gitterplätze niedriger Symmetrie, vermutlich in Form verschiedener Typen von Fremdatom-Leerstellen Komplexen.

Um zu prüfen, ob diese Annahme zutreffend ist, wurden neben den Messungen in  $\langle 110 \rangle$ -Kristallrichtung im AlCd System auch Messungen in  $\langle 100 \rangle$ -Kristallorientierung durchgeführt.

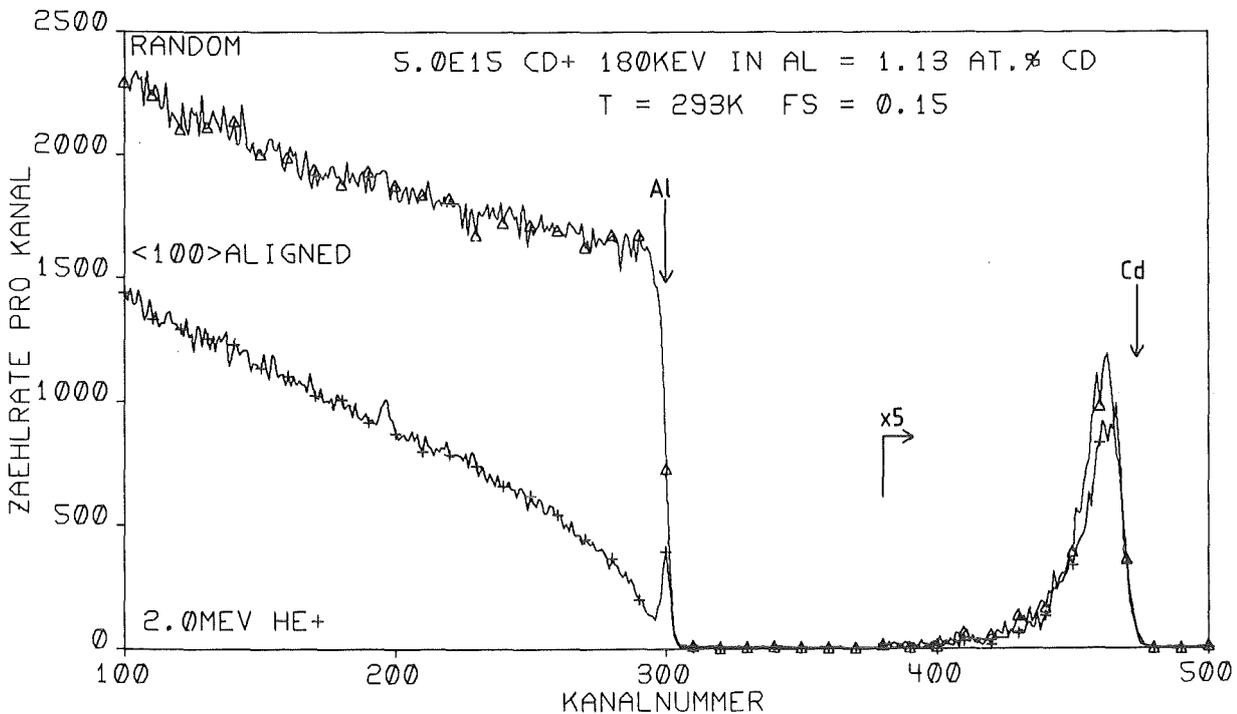


Abb. 28 Random und  $\langle 100 \rangle$  orientiertes Rückstreuenspektrum eines bei 293 K mit Cd implantierten und analysierten Al-Einkristalls.

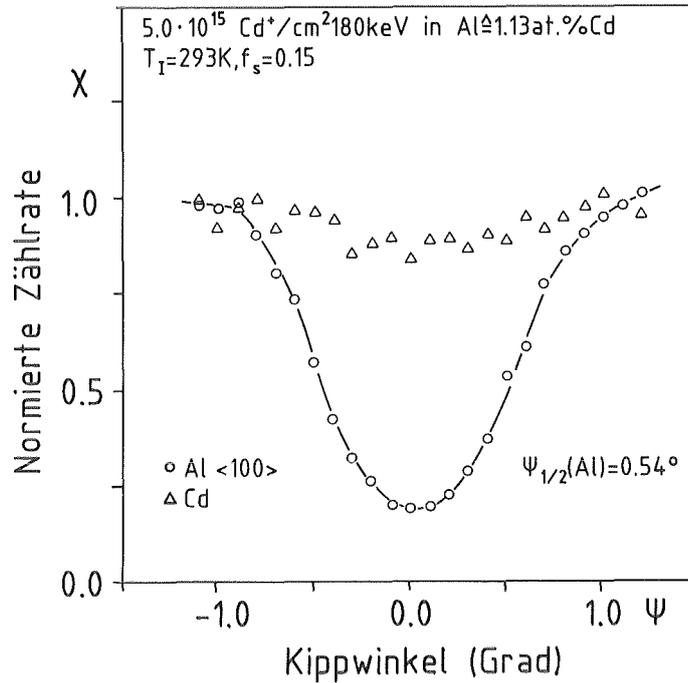


Abb. 29 Winkelabhängige Ausbeutekurven von einem bei 293 K mit Cd implantierten Al-Einkristall in <100>-Orientierung.

In Abb. 28 und 29 sind die Rückstreuenspektren und die winkelabhängigen Ausbeutekurven bei  $T_I = 293$  K in <100>-Orientierung dargestellt. Die Struktur der winkelabhängigen Ausbeutekurve des Cd-Signals in <100>-Richtung ist nahezu identisch mit der in <110>-Richtung (siehe Abb. 27). Diese Unabhängigkeit von der Raumrichtung bestätigt die oben gemachten Vermutungen über die Anordnung der Cd-Atome bei  $T_I = 293$  K.

#### 5.1.2.2 Temperexperimente

Beim Aufwärmen einer bei  $T_I = 77$  K implantierten AlCd Probe verengt sich die winkelabhängige Ausbeutekurve von Cd signifikant ab  $T_A \approx 200$  K. Außerdem bildet sich eine Struktur heraus. In Abb. 30 sind die winkelabhängigen Ausbeutekurven für Al bei 77 K und für Cd bei 77, 220 und 293 K aufgetragen. Die durchgezogenen Linien stellen Monte-Carlo

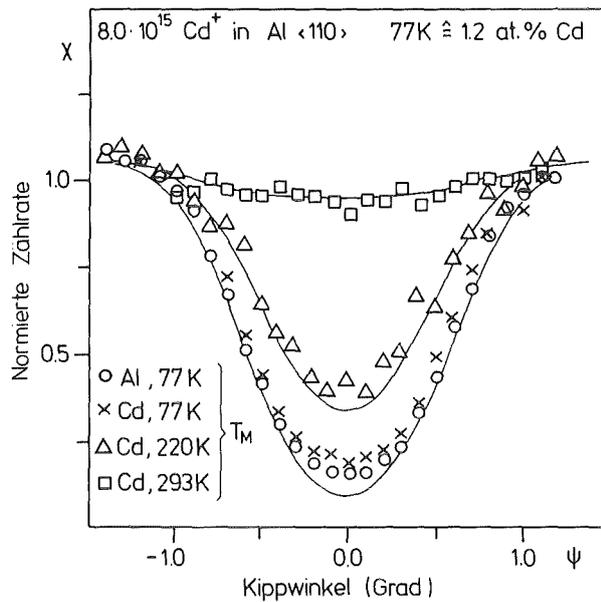


Abb. 30 Winkelabhängige Ausbeutekurven eines bei 77 K mit Cd implantierten Al-Einkristalls. Das Signal der Cd-Atome wurde bei  $T_M = 77, 220$  und 293 K gemessen.

Simulationsrechnungen<sup>+</sup> dar (siehe Kap. 3.3.2). Bei  $T_A = 220$  K wurde angenommen, daß 80% der Cd-Atome 0.16 Å von ihrem Gitterplatz in <110>-Richtung verlagert sind, und sich 20% auf willkürlich verteilten Plätzen befinden. Die Verlagerung wird durch den Einfang von einer Leerstelle und der darauffolgende Relaxation des Fremdatoms verursacht, was zur Bildung eines Fremdatom-Dileerstellen Komplexes führt. Bei weiterer Temperaturerhöhung werden zusätzliche Leerstellen eingefangen, und der Zustand, wie er auch bei Direktimplantation bei 293 K vorliegt, wird erreicht (vergleiche Abb. 27c).

Alle bisherigen Ergebnisse zeigten keine Anzeichen von Cd-Prezipitaten bis zu implantierten Cd-Konzentrationen von  $\approx 1.5$  at.%. Um Cd-Prezipitate zu provozieren, wurde ein Al-Einkristall, der bei 293 K mit 1.9 at.% Cd implantiert wurde, auf 520 K für 30 min getempert. Dabei wurde keine Änderung festgestellt. Erst nachdem der Kristall auf 670 K für 30 min getempert wurde schied Cd aus. In Abb. 31 sind die Rückstreuungsspektren vor (a) und nach (b) dem Tempern gezeigt.

<sup>+</sup>Für die Durchführung der Monte-Carlo Simulationsrechnungen danke ich Herrn Dr. O. Meyer herzlich.

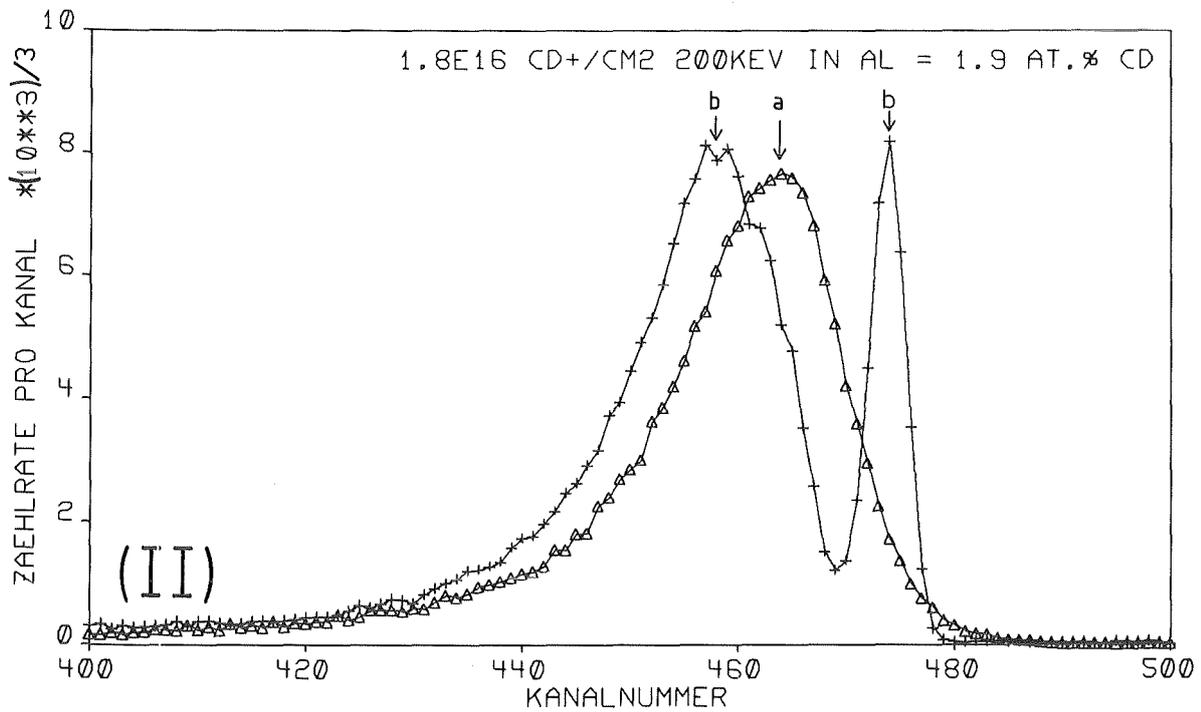
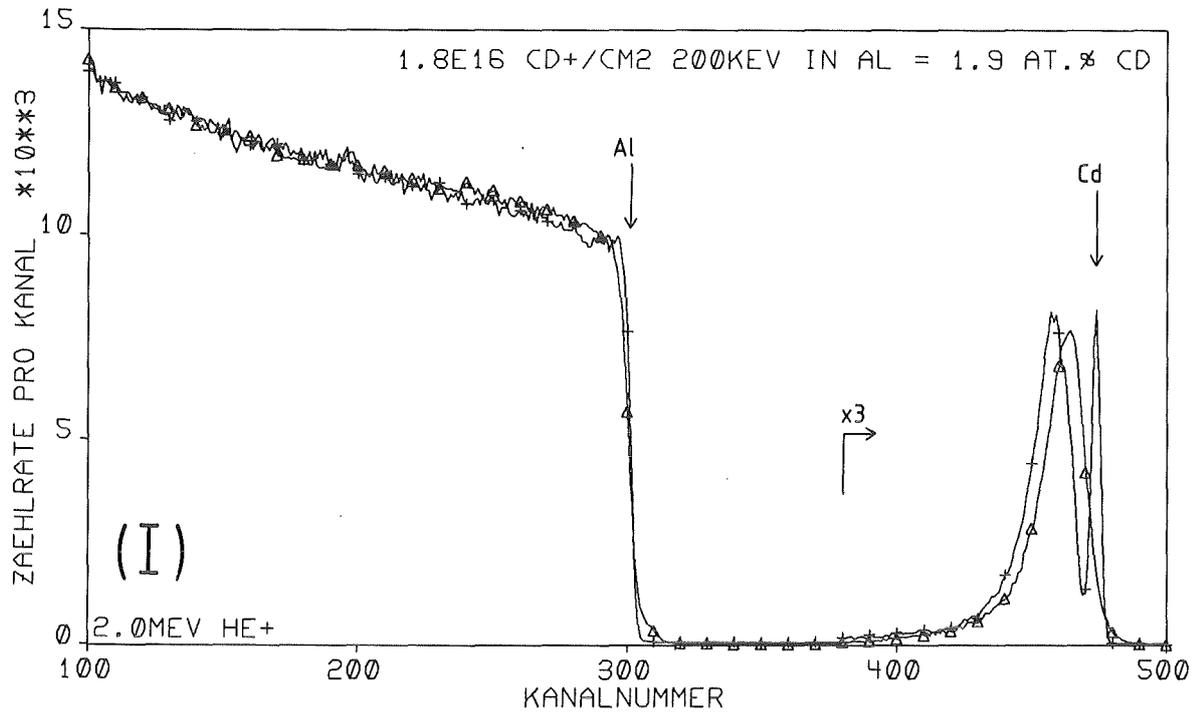


Abb. 31 Rückstreuungsspektren der unbehandelten (a) und der auf 670 K, 30 min getemperten (b) AlCd Probe. Der Bereich des Cd-Signals ist in (II) vergrößert dargestellt.

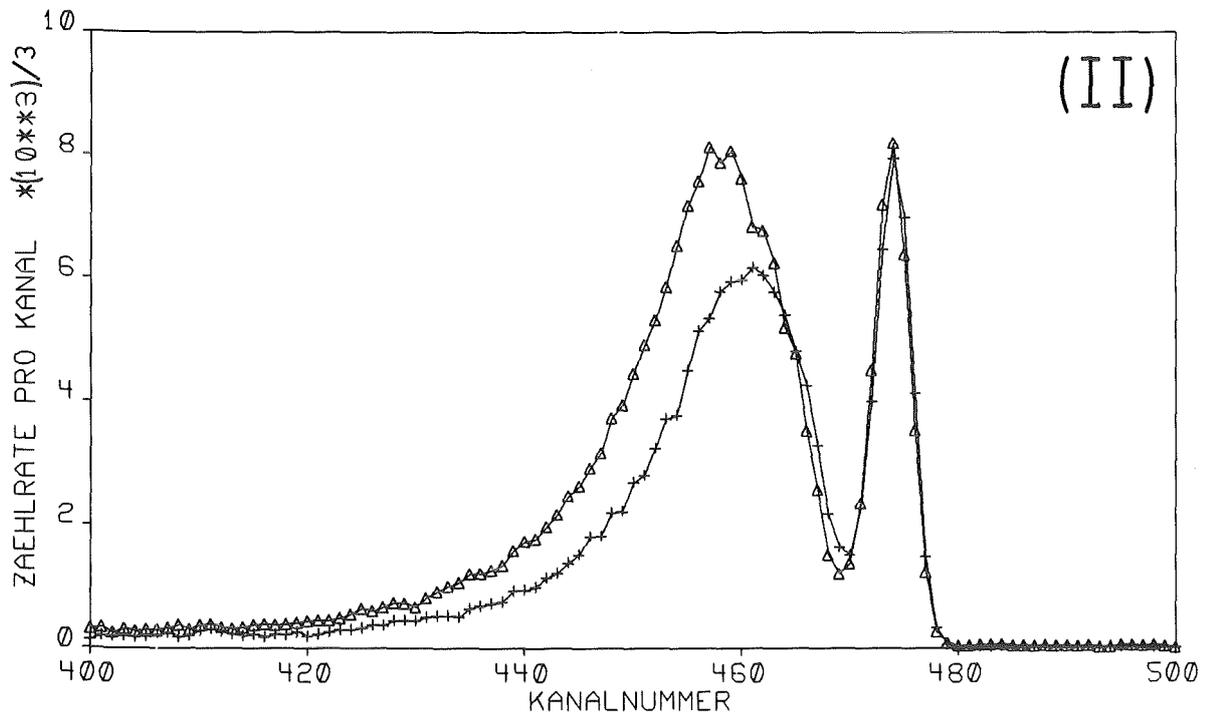
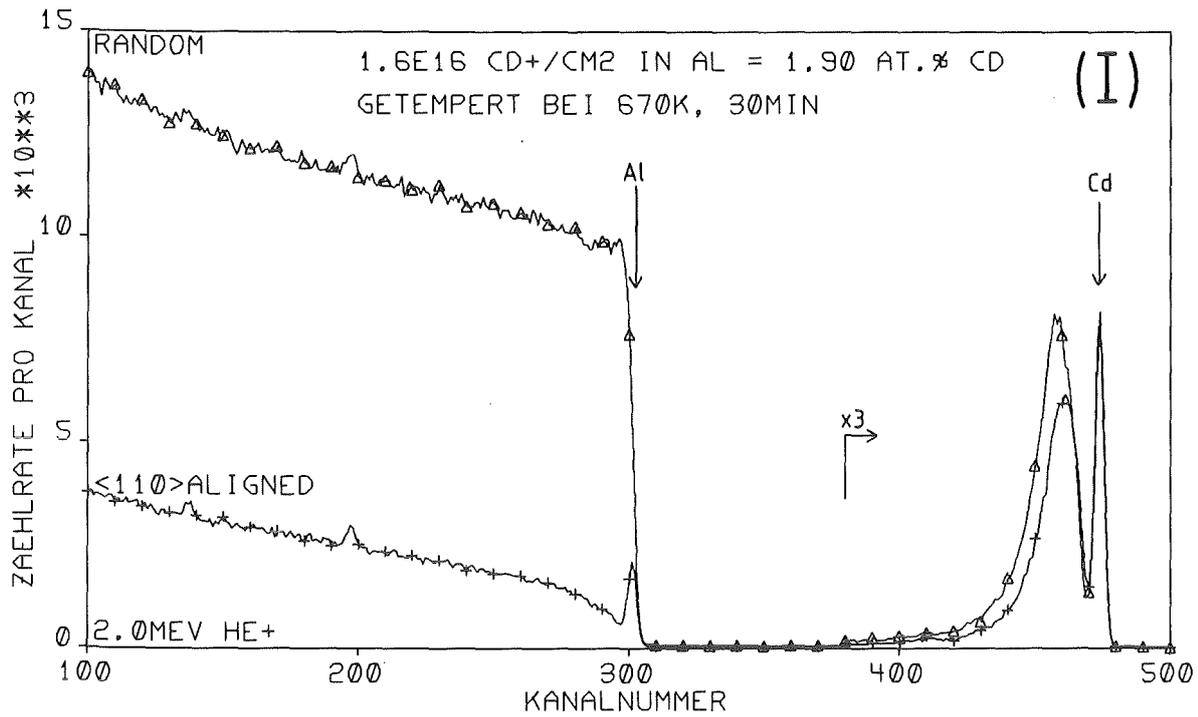


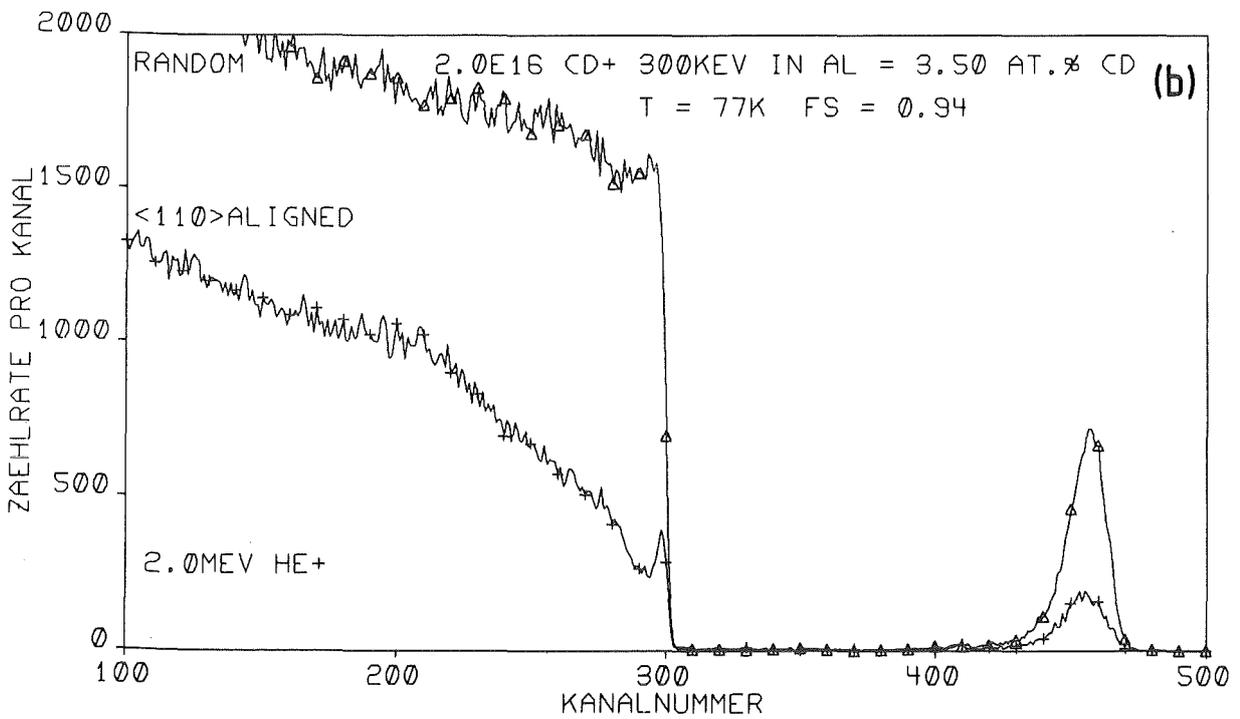
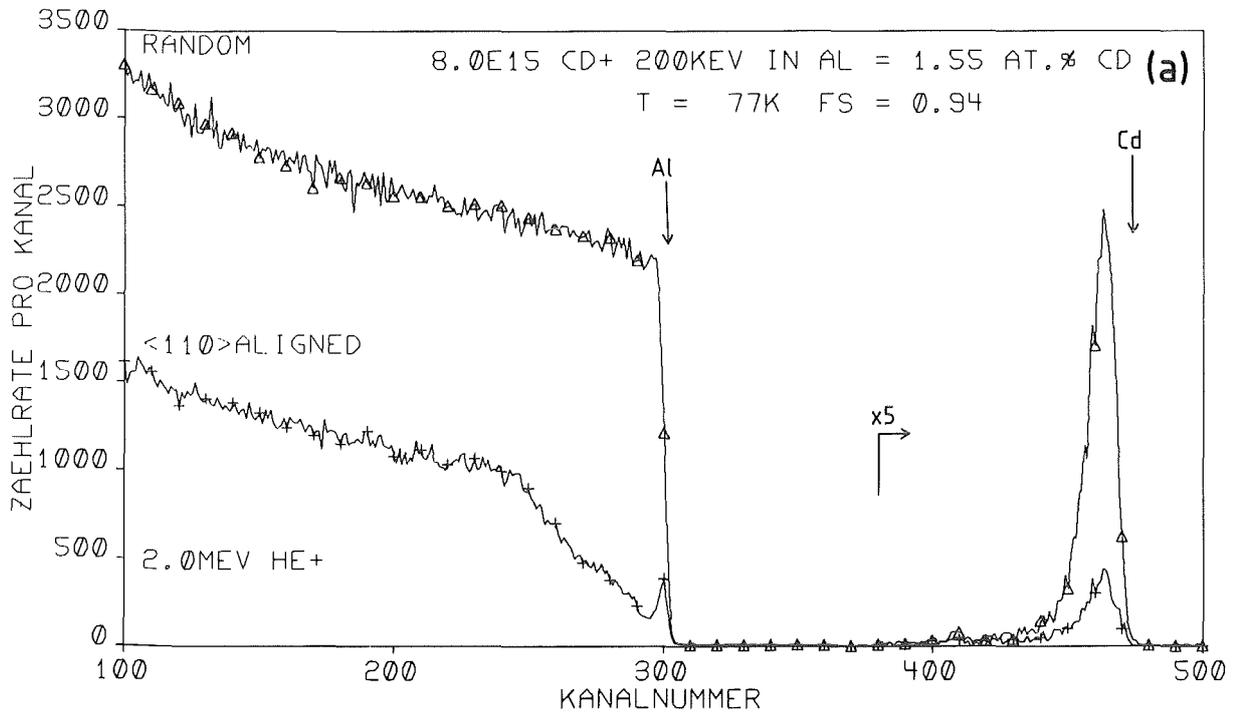
Abb. 32 Random und <110>-Aligned Spektren der getemperten Probe.  
In (II) ist der Bereich des Cd-Signals gedehnt wiedergegeben.

Besonders bemerkenswert ist, daß keine Präzipitatbildung innerhalb des Kristalls erfolgte, sondern eine Ausscheidung von Cd an der Oberfläche. Dies wird durch den Vergleich der Random und  $\langle 110 \rangle$ -Aligned Spektren nach dem Tempern deutlich (siehe Abb. 32). Während im Innern des Kristalls der Wert des substitutionellen Anteils vor dem Tempern erhalten ist, liegt das Cd an der Oberfläche als Ausscheidung vor. Daraus kann der Schluß gezogen werden, daß Cd-Leerstellen Komplexe in Al eine hohe Stabilität besitzen, unter thermischer Anregung laufen sie eher zu einer Senke, in diesem Fall ist es die Oberfläche, als daß sie im Innern des Kristalls zerfallen und sich Cd-Präzipitate bilden.

#### 5.1.2.3 Implantation hoher Cadmiumkonzentrationen

Eine Erhöhung der Implantationsdosis kann zur Amorphisierung /70/, zur Bildung kohärenter oder inkohärenter Ausscheidungen /106/, zur plastischen Verformung des implantierten Bereichs /107,108/ oder zu keinem Einfluß auf die Konfiguration der Fremdatome führen.

Bei  $T_I = 77$  K wurden 1.55, 3.5, 7.5 und 10.2 at.% Cd in Al-Einkristalle implantiert. In Abb. 33 sind die Rückstreuungsspektren dieser Proben gezeigt. In Abb. 34 sind die winkelabhängigen Ausbeutekurven für  $c_I = 1.2$  und 10.2 at.% Cd aufgetragen. Der substitutionelle Anteil  $f_s$  ist in diesem Konzentrationsbereich unverändert  $f_s = 0.94$ . Aus der Form der Spektren und der winkelabhängigen Ausbeutekurven läßt sich schließen, daß selbst bei  $\approx 10$  at.% die Cd-Atome substitutionell und nicht in Form kohärenter Präzipitate vorliegen. Beim Aufwärmen der Probe mit 10.2 at.% Cd auf  $T_A = 293$  K sinkt  $f_s$  auf 0.48. Etwa 50% der Cd-Atome haben ihren substitutionellen Gitterplatz verlassen und vermutlich, ebenso wie bei niedrigen Cd-Konzentrationen, mit Leerstellen Fremdatom-Leerstellen Komplexe gebildet. Nimmt man pro Cd-Atom minimal eine zugewanderte Leerstelle an, so läßt sich damit die Leer-



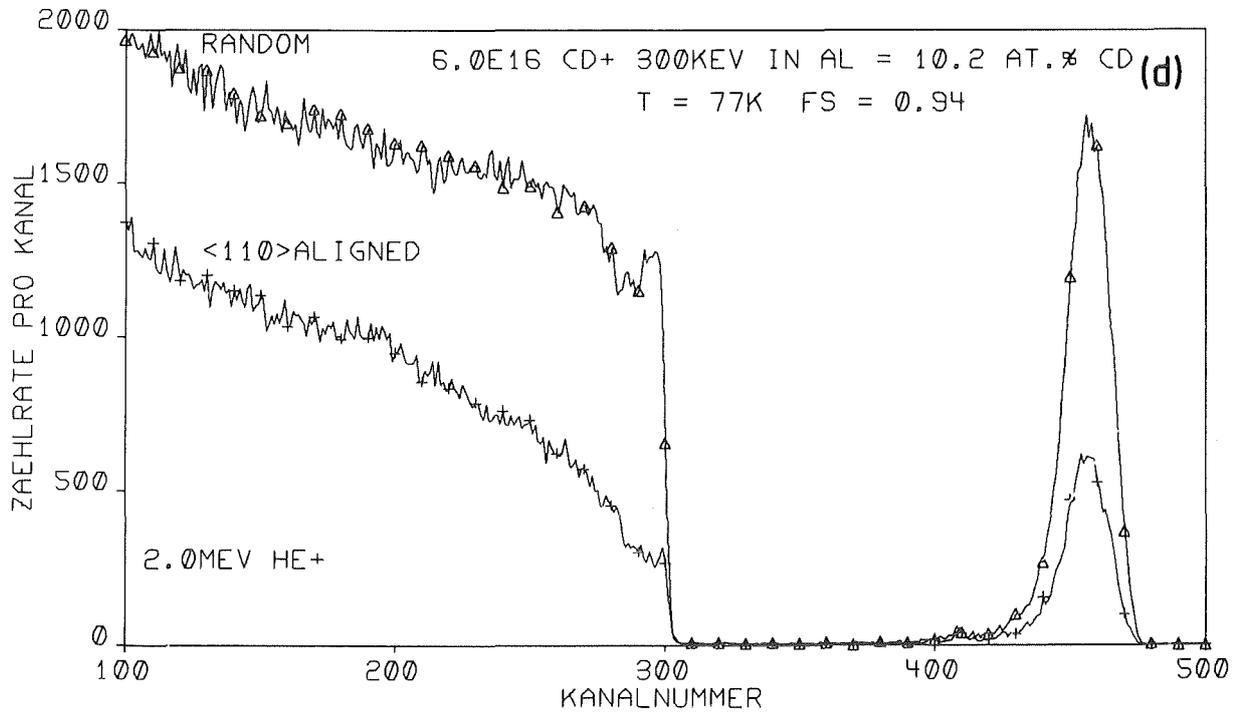
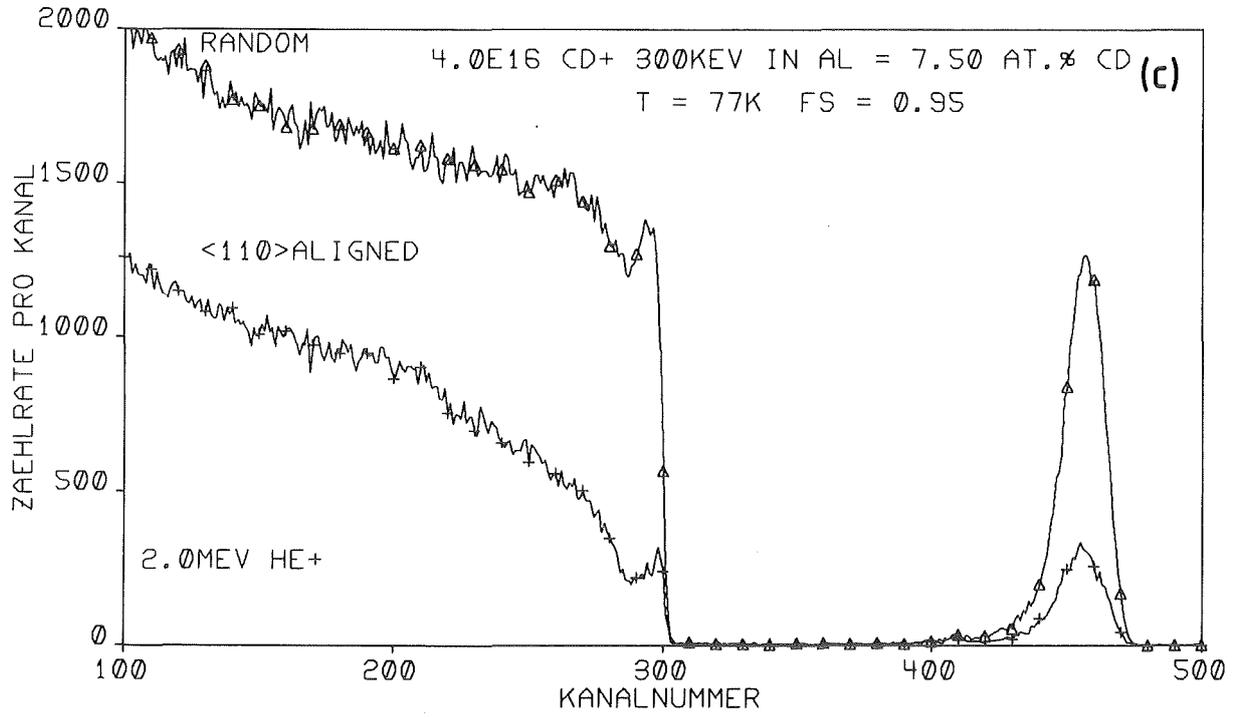


Abb. 33 Rückstreuungsspektren von Al-Einkristallen implantiert bei 77 K mit 1.55 (a), 3.5 (b), 7.5 (c) und 10.2 (d) at.% Cd.

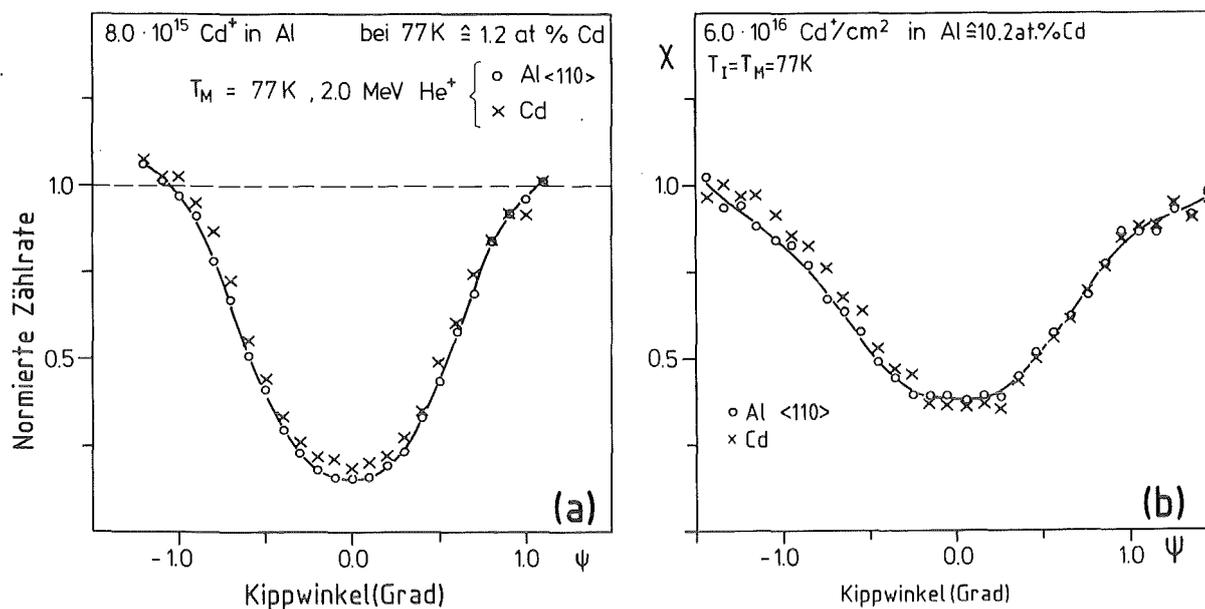


Abb. 34 Winkelabhängige Ausbeutekurven, aufgenommen bei  $T_I = T_M = 77 \text{ K}$  und  $c_I = 1.2$  (a) und  $10.2$  (b) at. % Cd.

stellenkonzentration im implantierten Bereich zu  $\approx 5\%$  abschätzen. Dieser Wert stimmt recht gut mit Literaturangaben /109/ überein.

Die Probe wurde danach erneut auf  $77 \text{ K}$  abgekühlt und mit  $200 \text{ keV He}^+$  Ionen nachbestrahlt. Mit einer Fluenz von  $1 \cdot 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  war es möglich, alle Fremdatom-Leerstellen Komplexe aufzulösen. Der substitutionelle Anteil stieg wieder auf  $f_s = 0.94$ . Da es unmöglich ist, Präzipitate, die größer als  $1 \text{ nm}$  sind, unter Bestrahlung aufzulösen /110/ und sich bei größeren Präzipitaten eine mittlere Größe der Präzipitate unter Bestrahlung einstellt /111/, ist sicher, daß selbst bei der Implantation von  $10 \text{ at. \% Cd}$  die Bildung von Cd-Leerstellen Komplexen, gegenüber von Ausscheidungen, bevorzugt ist. Dem Prozeß der Erhöhung der substitutionellen

Komponente durch Nachbestrahlung bei tiefen Temperaturen wurde an dieser Stelle vorgegriffen, eine ausführliche Beschreibung ist in Kap. 5.2.1 gegeben.

#### 5.1.2.4 Plastische Verformung des implantierten Bereichs

Meyer und Azzam /107,108/ beobachteten erstmals an den kubisch-raumzentrierten Wirtsgittern Nb und V eine plastische Verformung des implantierten Bereichs bei Hochdosisimplantationen von As, Sn, Te und Cs in oberflächennahe Gebiete.

Nachdem die Implantation von 10.2 at.% Cd mit 300 keV bei 77 K zu keiner Änderung der physikalischen Konfiguration im Vergleich zu kleinen Implantationsdosen führte, wurde bei 77 K  $4 \cdot 10^{16} \text{ Cd}^+/\text{cm}^2$  mit 80 keV in die oberste Region des Al-Einkristalls implantiert. Während bei der Implantation in größeren Tiefen die durch die Implantation verursachten Verzerrungen durch "Swelling" und die Beweglichkeit der Eigenzwischengitteratome abgebaut werden können, führte die Hochdosisimplantation von Cd in oberflächennahe Gebiete zur plastischen Verformung des implantierten Bereichs.

In Abb. 35 sind die winkelabhängigen Ausbeutekurven von implantiertem Bereich und nichtimplantierten, tieferen Regionen des Wirtsgitters aufgetragen. Die Minima in den Ausbeutekurven von Al sind um  $0.55^\circ$  gegeneinander versetzt. Der substitutionelle Anteil der Cd-Atome im plastisch verformten Bereich bei  $T_I = T_M = 77 \text{ K}$  ist  $f_s = 0.85$ . Der kritische Winkel von Cd ist mit  $\psi_{1/2}(\text{Cd}) = 0.83^\circ$  gegenüber dem von Al mit  $\psi_{1/2}(\text{Al}) = 0.73^\circ$  deutlich größer. Dies ist ein starkes Indiz für erfolgte kohärente Ausscheidung von Cd im plastisch verformten Bereich.

Da es bislang nur durch Tempern auf 670 K gelang, inkohärente Cd-Ausscheidungen an der Oberfläche, jedoch nicht im Inneren des Kristalls zu provozieren, wurde versucht, durch

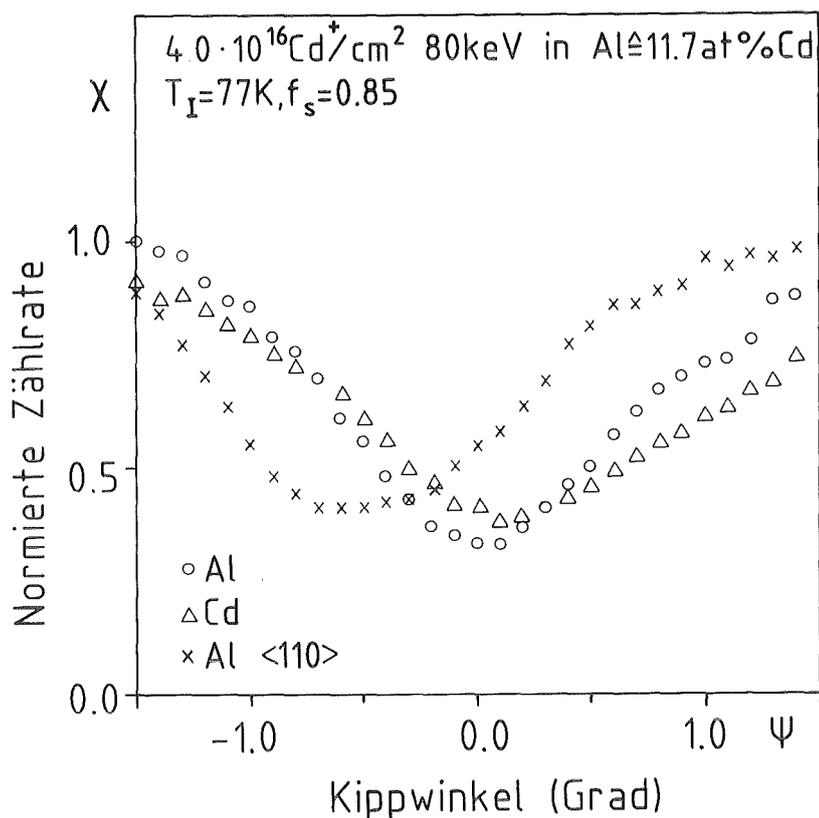


Abb. 35 Winkelabhängige Ausbeutekurven eines mit 11.7 at.% Cd oberflächennah implantierten Al-Einkristalls. Dargestellt sind die Signale von Al (o) und Cd ( $\Delta$ ) im implantierten Bereich und von Al (x) in unbeeinflusster größerer Tiefe.

Bestrahlung mit dichten Kaskaden eine inkohärente Ausscheidung der Cd-Atome zu erreichen.

Al-Einkristalle mit plastisch verformten implantierten Bereichen an der Oberfläche ( $\cong$  11 at.% Cd) wurden bei 77 K mit  $7.0 \cdot 10^{13} \text{Hg}_2^+/\text{cm}^2$ , 300 keV Quecksilbermolekülonen beschossen. Diese Fluenz entspricht 1.2 dpa. Keine der gemessenen Größen wurden durch diese Bestrahlung beeinflusst, eine inkohärente Cd-Ausscheidung fand nicht statt, obwohl die Energiedichte innerhalb der Kaskade 0.48 eV/Atom betrug /112/. Bei einer Energiedichte von 0.49 eV/Atom geht das Kaskadenvolumen im Inneren des Al-Einkristalls in die flüssige Phase über /113/. Aus dieser Energiedichte folgt ein mittlerer

Kaskadenradius von  $r_k = 1.53 \text{ nm}$  /113/. Bei einer Diffusionskonstante von  $5.7 \cdot 10^{12} \text{ nm}^2/\text{s}$  /114/ und einer Kaskadenlebensdauer von  $10^{-11} \text{ s}$  könnten sich die Fremdatome etwa 13 nm weit fortbewegen und wären bei einem mittleren Abstand der Fremdatome von 0.53 nm leicht in der Lage auszuscheiden. Offenbar ist jedoch die Tendenz der Cd-Atome, Ausscheidungen in hexagonaler Struktur im kubisch-flächenzentrierten Al-Wirtsgitter zu bilden, klein gegenüber der Bildung kohärenter Präzipitate oder der Besetzung substitutioneller Gitterplätze durch Schnellabschreckung aus der Kaskade.

### 5.1.3 Quecksilber implantiert in Aluminium

Zur Untersuchung der Gitterplatzbesetzung von Hg in Al wurden keine gesonderten Experimente durchgeführt. Quecksilber-Ionen und Moleküle wurden zur Nachbestrahlung der implantierten AlCd und AlIn Systeme benutzt. Da Hg sowohl räumlich in der Probe, als auch energetisch im Rückstreuungsspektrum gut von den vorher implantierten Cd und In Fremdatomen separiert ist, ist es möglich den substitutionellen Anteil zu bestimmen. Bei  $T_I = 77 \text{ K}$  beträgt  $f_s = 0.79$ . Die Hg-Konzentrationen lagen dabei zwischen 0.05 und 0.1 at.%. Hg. Winkelabhängige Ausbeutekurven konnten aufgrund der niedrigen Hg-Konzentrationen nicht mit befriedigender Statistik aufgenommen werden. Nach dem Aufwärmen auf 293 K wurde  $f_s = -0.12$  gemessen, was auf einen Anteil von Hg-Atomen in Kanalmitte hindeutet. Analog zu den Ergebnissen des AlSb Systems kann auch hier auf eine Hg-Trileerstellen Komplexbildung geschlossen werden.

### 5.1.4 Antimon implantiert in Aluminium

Aluminium und Antimon bilden lediglich eine intermetallische Phase AlSb, deren Existenz umstritten ist, ansonsten ist Sb nur zu 0.25 at.% bei  $660^\circ\text{C}$  in Al löslich /98/. Percy et al. /115/ erhöhten die Löslichkeit durch Laserbestrahlung bei 293 K von  $\approx 0.03 \text{ at.}\%$  auf 0.9 at.%. Thomas und Picraux /116/ implan-

tierten  $\approx 1$  at.% Sb in Al bei 293 K und erhielten einen substitutionellen Anteil von etwa 10%. Der Rest der Sb-Atome befand sich auf nichtsubstitutionellen Gitterplätzen, an Versetzungen und in größeren Komplexen. Präzipitate wurden nicht beobachtet.

Bei einer Temperatur von 77 K wurden 0.45 at.% Sb in Al implantiert. Der substitutionelle Anteil betrug  $f_s = 0.73$  bei gleichen kritischen Winkeln für Al und Sb ( $\psi_{1/2}(\text{Al}, \text{Sb}) = 0.63^\circ$ ). In Abb. 36 sind die winkelabhängigen Ausbeutekurven

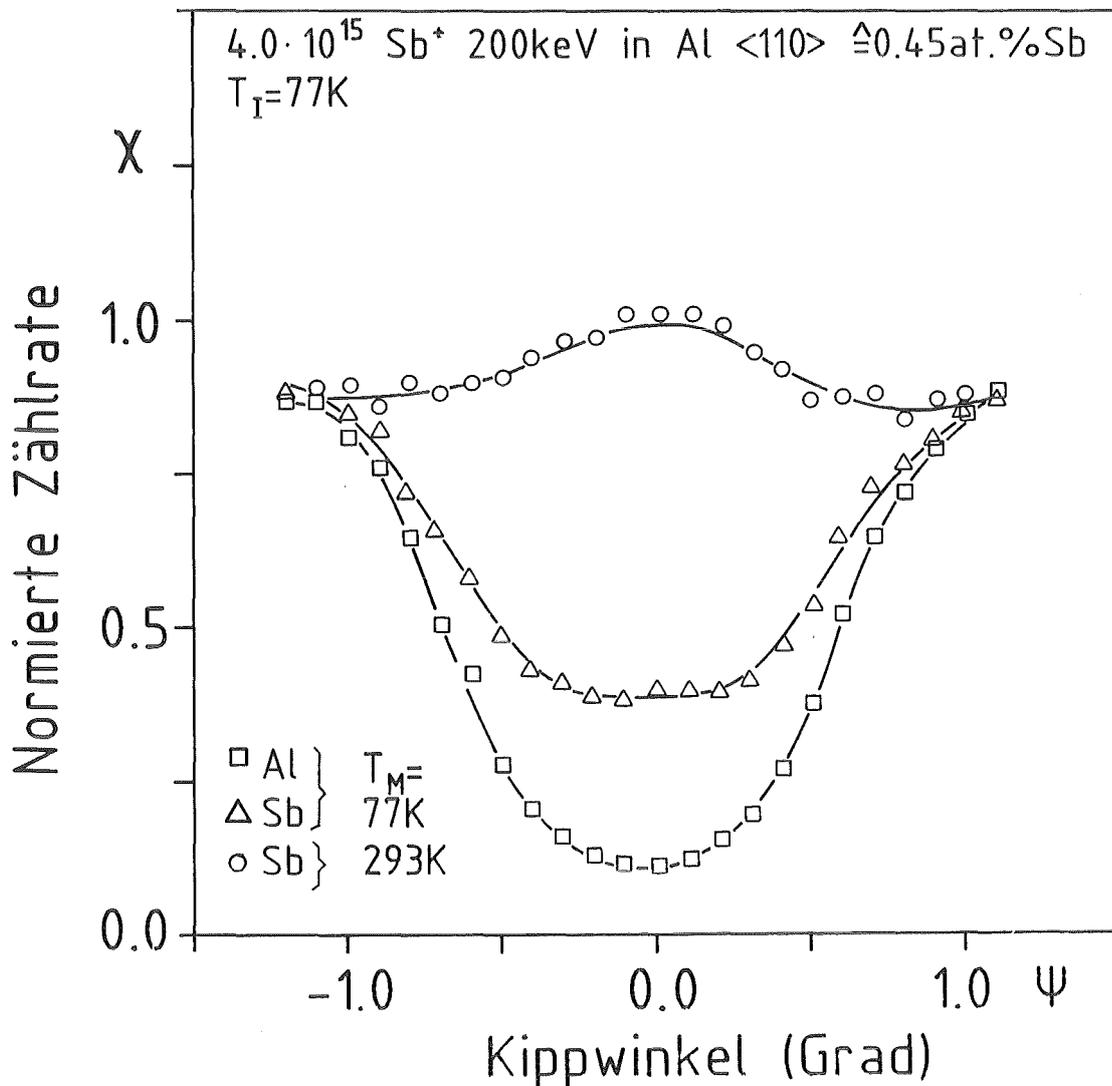


Abb. 36 Winkelabhängige Ausbeutekurven des bei 77 K implantierten ( $\square, \triangle$ ) und auf 293 K aufgewärmten ( $\circ$ ) AlSb Systems.

für  $T_I = T_M = 77$  K dargestellt. Nach dem Aufwärmen auf 293 K sank  $f_S$  auf -0.08 und die winkelabhängige Ausbeutekurve zeigte eine breite Überhöhung (siehe Abb. 36). Bei direkter Implantation von  $4 \cdot 10^{15}$  Sb<sup>+</sup>/cm<sup>2</sup>, 200 keV bei 293 K, was einer Konzentration von 0.51 at.% Sb im Maximum entspricht, ist im Sb-Signal keine Struktur zu beobachten, der substitutionelle Anteil beträgt  $f_S = 0.12$ .

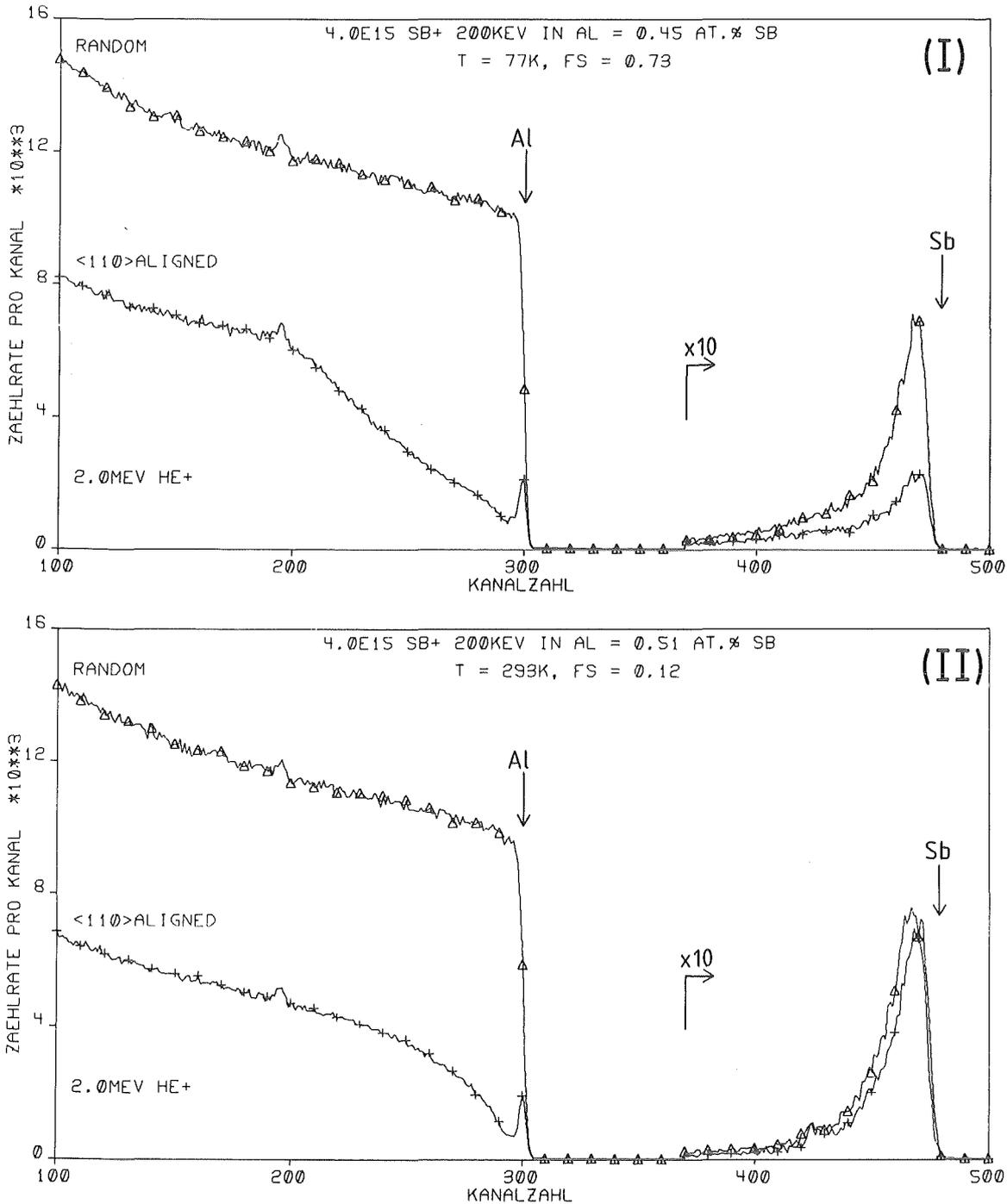


Abb. 37 Rückstreuungsspektren von Al-Einkristallen implantiert mit Sb bei 77 K (I) und 293 K (II).

Die Identität der kritischen Winkel von Al und Sb bei  $T_I = 77$  K zusammen mit  $f_s = 0.73$  muß so gedeutet werden, daß sich der substitutionelle Anteil der Sb Atome ohne Relaxation auf Gitterplätzen des Al-Wirtsgitters befinden. Die übrigen Sb-Atome besetzen Lagen niedriger Symmetrie.

Die ausgeprägte Überhöhung der Ausbeutekurve von Sb nach dem Aufwärmen auf 293 K deutet auf eine bevorzugte Bildung von Sb-Trileerstellen Komplexen hin /60/. Dabei lagert sich eine Dileerstelle, die in Al eine höhere Beweglichkeit als eine Mono-Leerstelle besitzt /97/, an ein Sb-Atom an. Daraufhin relaxiert das Sb-Atom unter Hinterlassung einer weiteren Leerstelle. Bei der Direktimplantation von Sb bei 293 K scheint die Bildung keines speziellen Defektyps bevorzugt zu sein.

#### 5.1.5 Indium implantiert in Aluminium

Das Gleichgewichtsphasendiagramm des Al-In Systems /98/ entspricht dem des Al-Cd Systems. Indium besitzt eine maximale Löslichkeit von 0.04 at.% bei  $636^\circ$  in Al /102/. In Abb. 38 ist das Random und das  $\langle 110 \rangle$ -orientierte Rückstreuspektrum eines bei 77 K mit 0.55 at.% In implantierten Al-Einkristalls gezeigt. Der substitutionelle Anteil beträgt  $f_s = 0.83$ . Die winkelabhängigen Ausbeutekurven für die In-Konzentrationen 0.55 und 1.1 at.% sind in Abb. 39 aufgetragen. Die kritischen Winkel von Al sind aufgrund unterschiedlich gewählter Kipprichtungen aus dem  $\langle 110 \rangle$ -Kanal leicht verschieden. Die jeweiligen kritischen Winkel von Al und In sind nahezu identisch, daraus folgt, daß der Anteil substitutioneller In-Atome nicht mit statischen Verlagerungen behaftet ist. Im unteren Bereich der In-Kurve sind Strukturen sichtbar, die auf die Existenz von In-Trileerstellen Komplexen und anderen größeren In-Leerstellen Komplexen hindeuten.

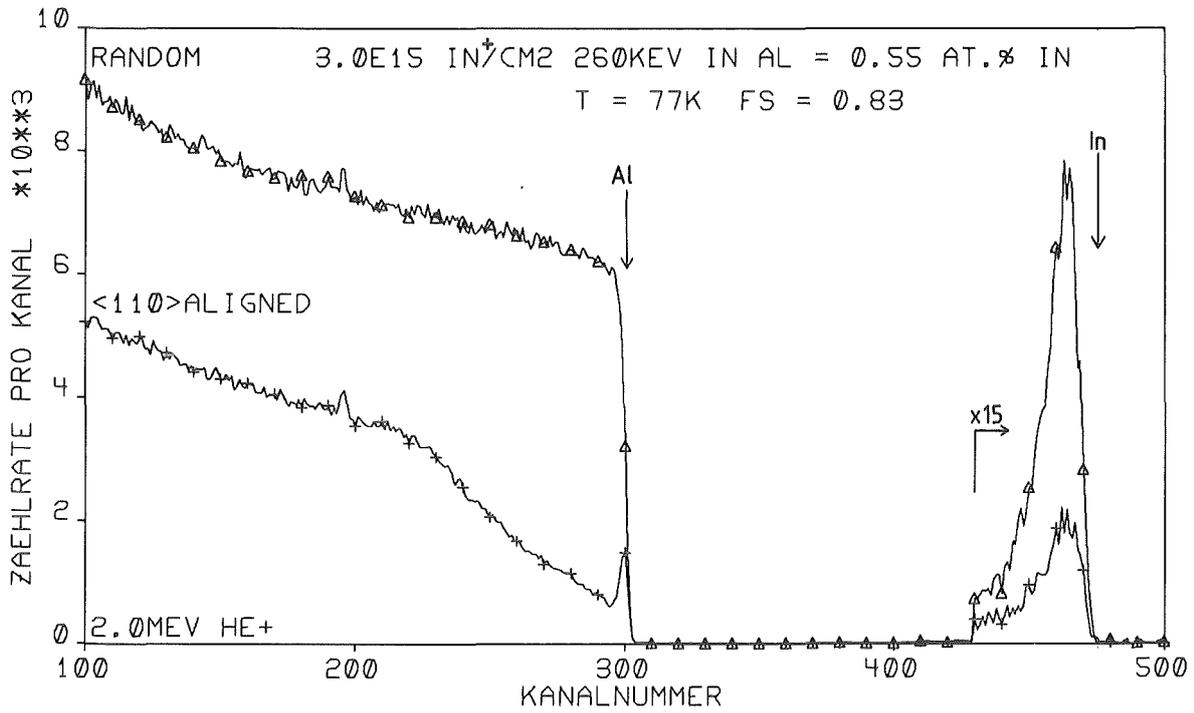


Abb. 38 Rückstreuungsspektren einer implantierten AlIn Probe. Die Temperatur bei Implantation und in situ Analyse betrug 77 K

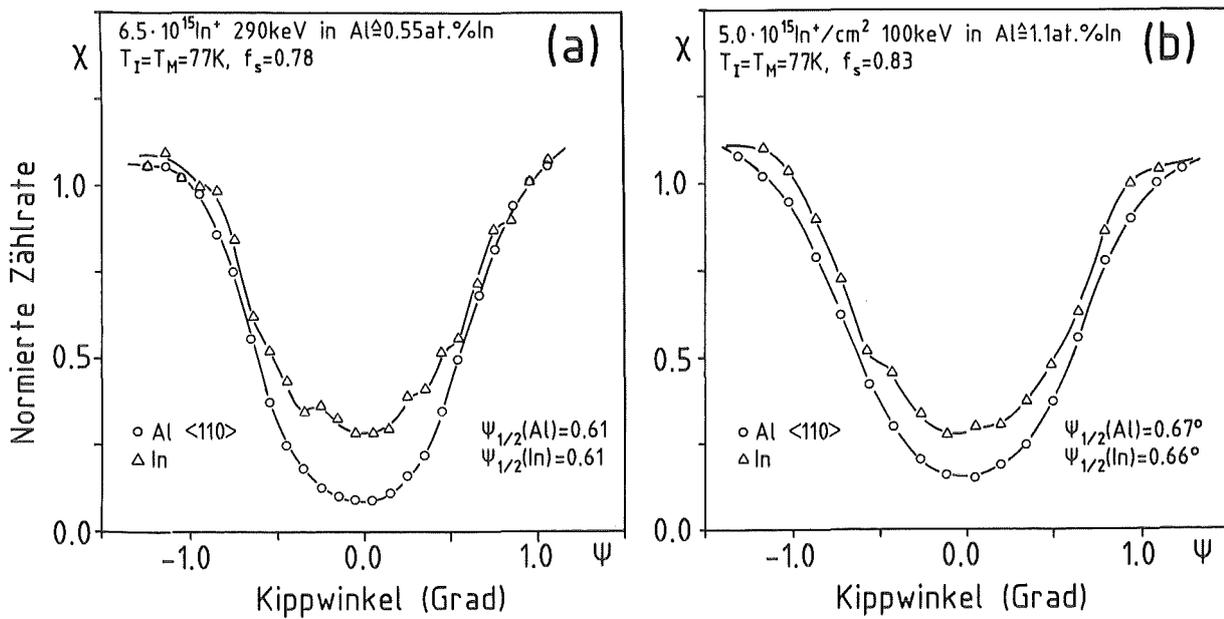


Abb. 39 Bei 0.55 (a) und 1.1 (b) at.% In aufgenommene winkelabhängige Ausbeutekurven.

Im Rahmen einer Zusammenarbeit mit Herrn Dr. F. Pleiter, Universität Groningen (Niederlande) /86/ wurde in Groningen ein Al-Einkristall mit  $1 \cdot 10^{15} \text{ In}^+/\text{cm}^2$ , 120 keV bei 80 K implantiert; das entspricht einer maximalen In-Konzentration von 0.35 at.%. Das zur Implantation verwendete In enthielt einen kleinen Anteil  $^{111}\text{In}$ . Die Probe wurde in situ bei 80 K mit der PAC-Methode auf die entstandenen Defektkonfigurationen hin untersucht. Substitutionell waren  $76 \pm 1 \%$ ,  $8 \pm 2 \%$  bildeten In-Dileerstellen Komplexe,  $4 \pm 2 \%$  In-Trileerstellen Komplexe und 12% der In-Atome waren in größeren In-Leerstellen Komplexen gebunden, deren Struktur nicht aufgelöst werden konnte /85,86/. Indium-cluster oder In-Prezipitate wurden nicht beobachtet.

In Abb. 40 sind die Rückstreuungsspektren eines mit In bei 293 K implantierten und analysierten Al-Einkristalls gezeigt.

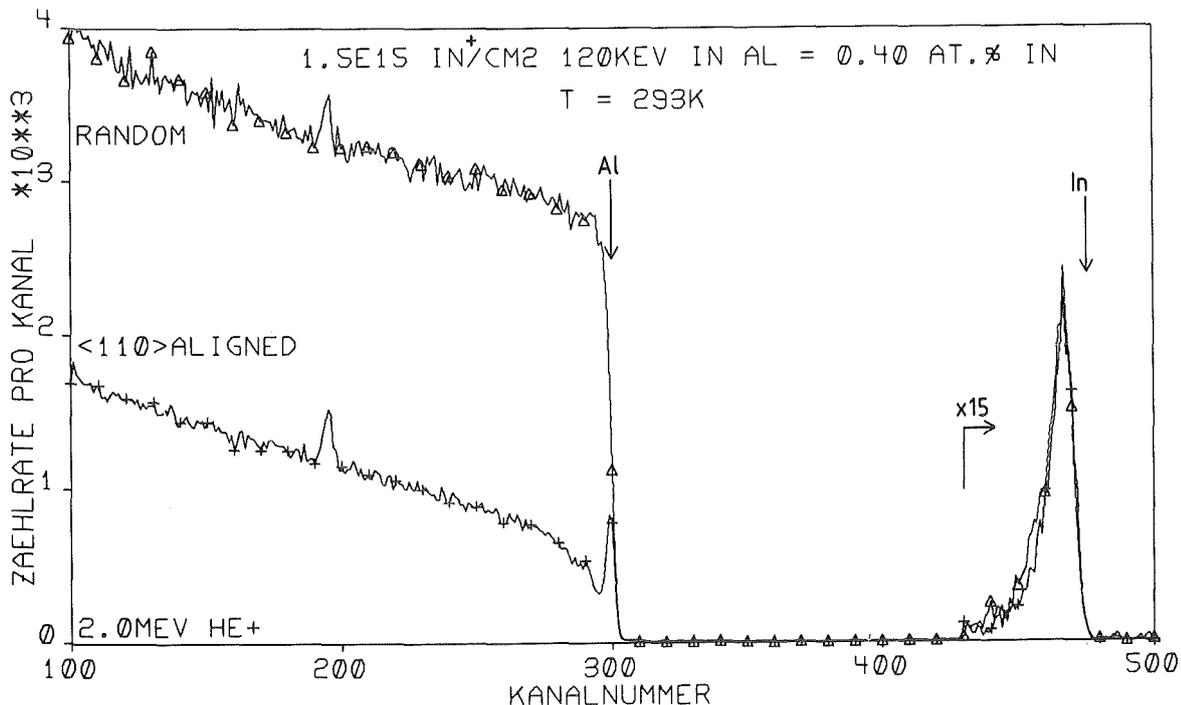


Abb. 40 Indium bei 293 K in Al implantiert.

Der substitutionelle Anteil beträgt  $f_s = 0.07$ . Die dazugehörigen winkelabhängigen Ausbeutekurven sind in Abb. 41 aufgetragen. Ebenfalls in Abb. 41 eingetragen sind die Meßpunkte für das AlIn System implantiert bei 77 K und analysiert bei 293 K.

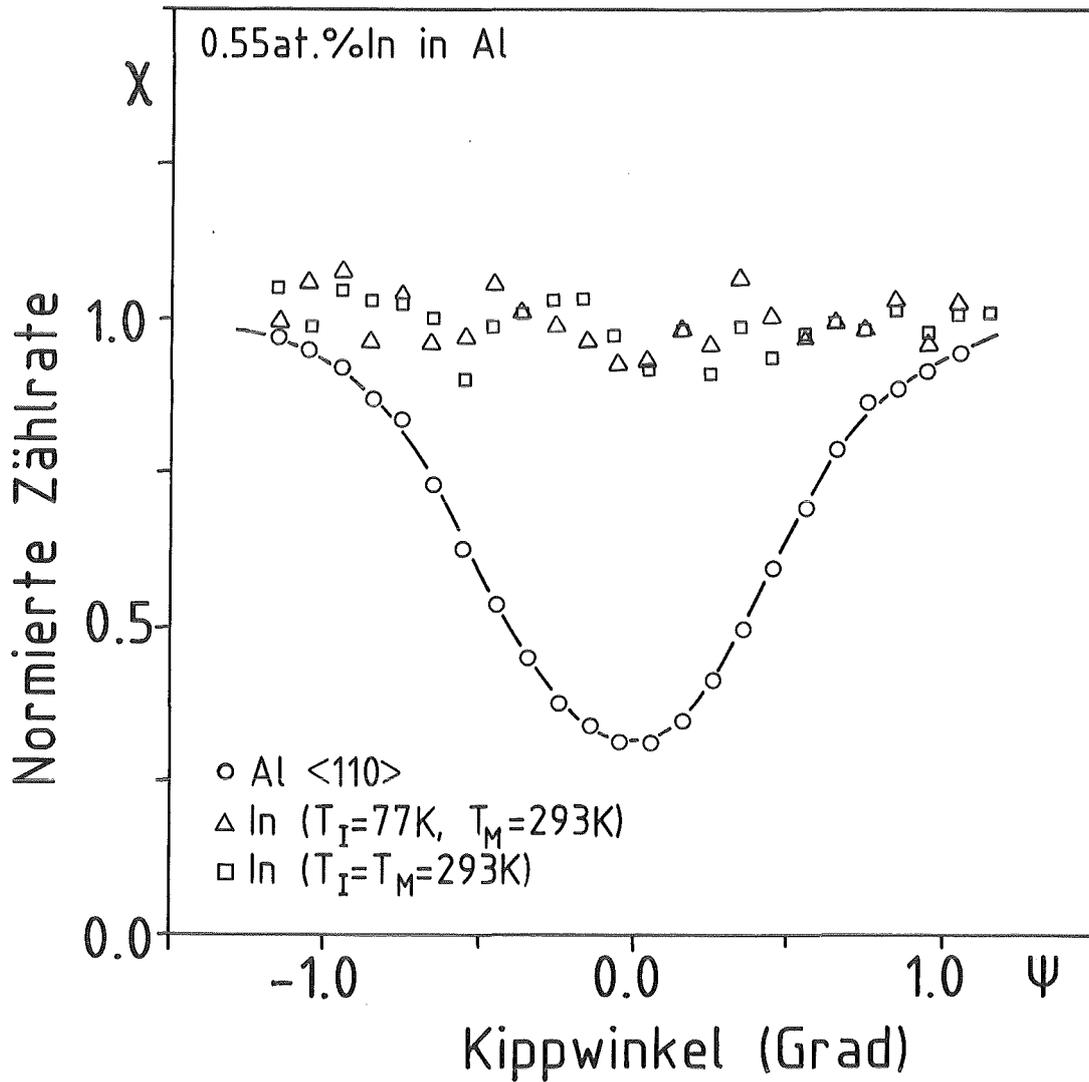


Abb. 41 Winkelabhängige Ausbeutekurven für In implantiert in Al bei 77 K ( $\Delta$ ) und 293 K ( $\square$ ), jeweils bei 293 K gemessen.

In beiden Fällen scheint es, als wären die In-Atome bis auf einen sehr kleinen substitutionellen Anteil auf willkürlichen Plätzen im Gitter lokalisiert.

PAC-Messungen an Al-Einkristallen, implantiert mit  $\approx 0.03$  at.% In bei 293 K, zeigten keine Defektkomponenten mit gut definierten Hyperfein-Wechselwirkungs-Parametern /80/. Nahezu alle In-Atome waren in größeren In-Leerstellen Komplexen gebunden.

Die PAC-Messung der bei 80 K implantierten und auf 300 K aufgewärmten Probe zeigt neben einem substitutionellen Anteil von  $14 \pm 3$  %,  $16 \pm 2$  % Anteile von kleinen In-Clustern und 70% der In-Atome in ausgedehnten Defekten, deren Struktur nicht bestimmt werden konnte /86/. Bestrahlt man diese Probe mit  $\text{He}^+$  Ionen bei 80 K zur Erzeugung von Leerstellen und wärmt sie danach nochmals auf 300 K auf, beträgt der Anteil der ausgedehnten Defekte 100%, sowohl der substitutionelle, als auch der Anteil der In-Cluster ist verschwunden.

In Abb. 42 sind winkelabhängige Ausbeutekurven, die während des Aufwärmens einer bei 77 K implantierten Probe aufgenommen wurden. Deutlich ist zu sehen, daß im Gegensatz zum AlCd System im Anfangsstadium keine Verengung der In-Kurve auftritt, sondern ein gleichmäßiges, strukturiertes Auffüllen des In-Signals stattfindet. Auch dieses Ergebnis zeigt, daß bevorzugt größere Defektkomplexe gebildet werden.

Der energetisch tiefste Zustand von In in Al scheint die Verbindung mit mehreren Leerstellen, nicht der substitutionelle Gitterplatz und nicht der In-Cluster oder ein In-Prezipitat zu sein.

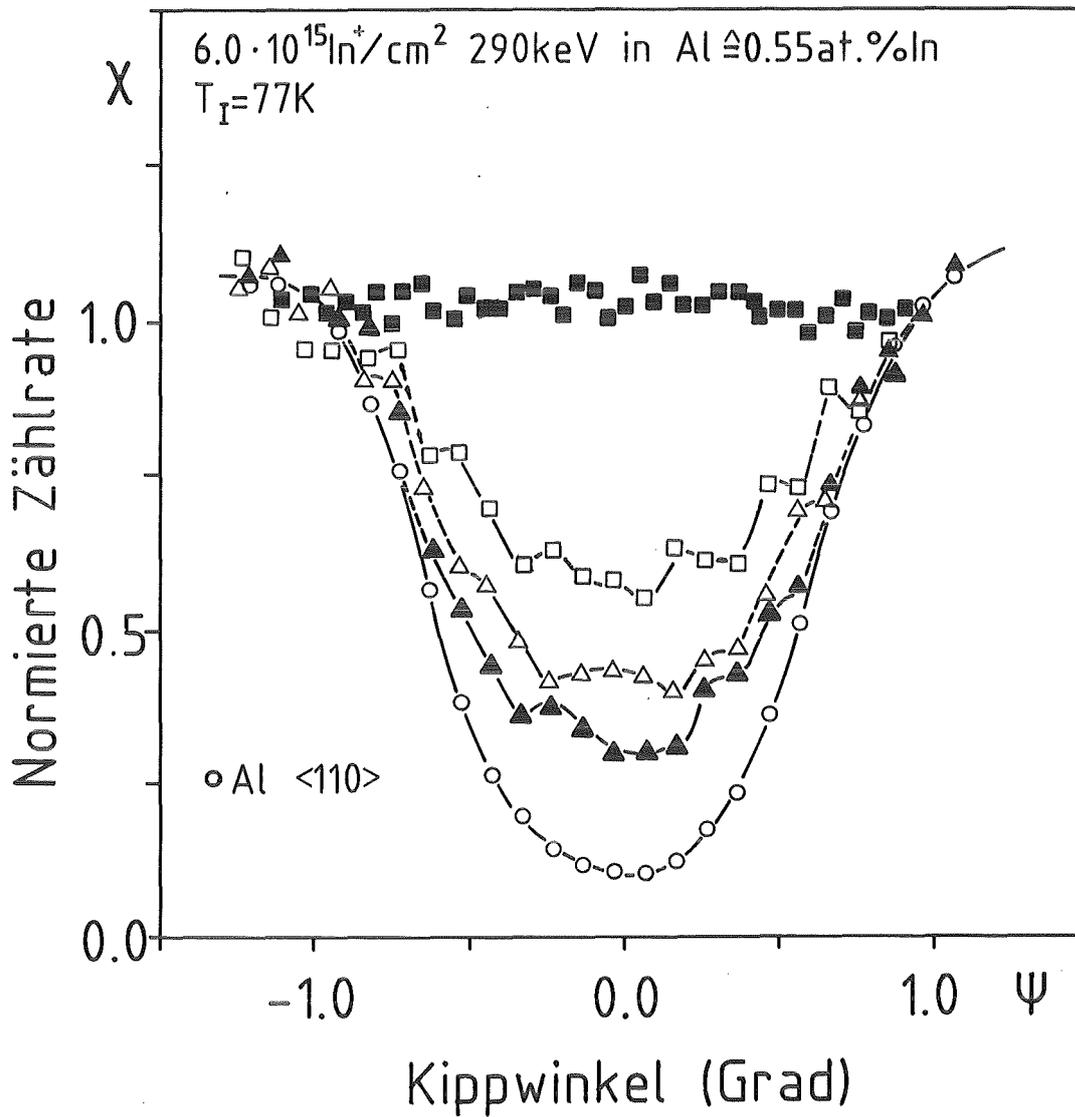


Abb. 42 Winkelabhängige Ausbeutekurven eines Al-Einkristalls implantiert mit 0.55 at.% In bei 77 K. Der Kristall wurde auf 200 K (▲), 220 K (△), 230 K (□) und 293 K (■) aufgewärmt und jeweils bei 77 K analysiert.

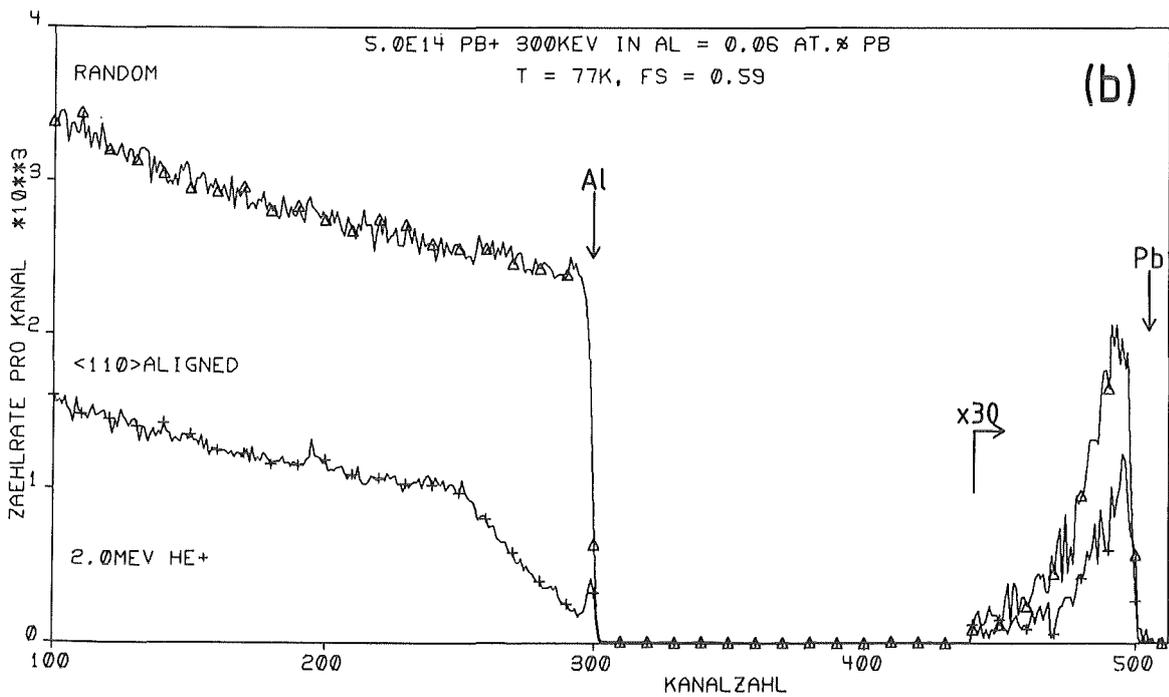
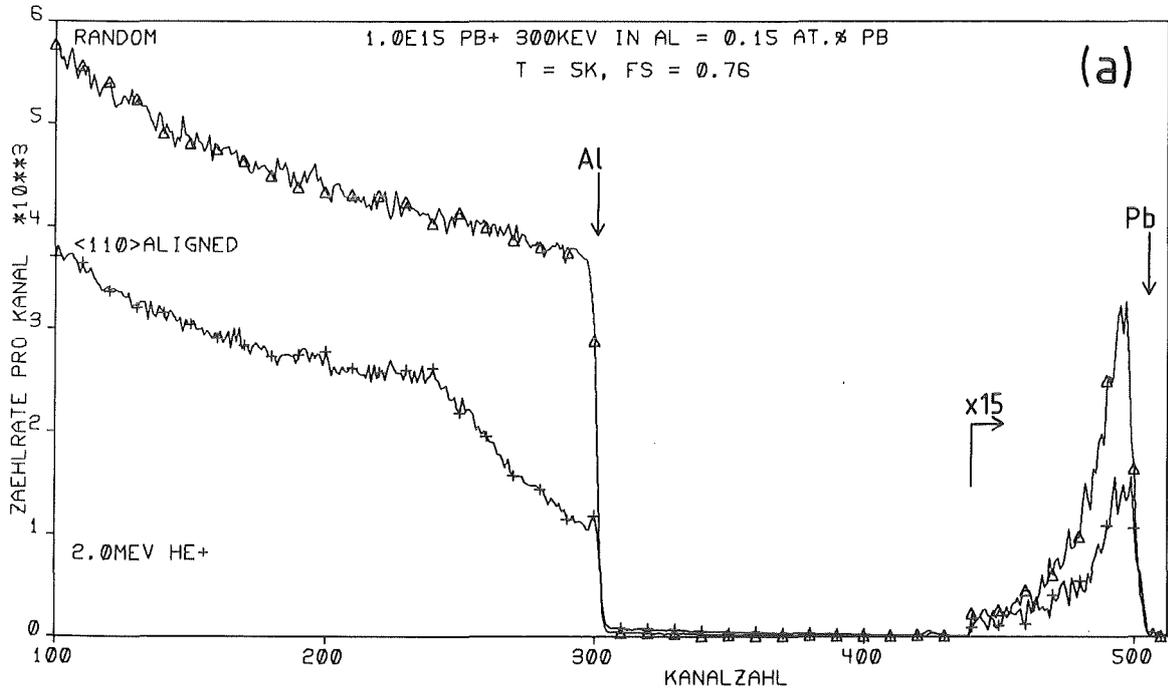
### 5.1.6 Krypton und Xenon implantiert in Aluminium

Die Edelgase Kr und Xe wurden zur Nachbestrahlung des implantierten AlCd Systems verwendet. Die Energie der Ionen wurde so hoch gewählt, daß sie den implantierten Bereich sicher durchdringen. Im Rückstreupektrum sind die Signale von Kr oder Xe energetisch von den anderen Signalen (Al, Cd) gut separiert. Damit ist es möglich den substitutionellen Anteil  $f_s$  zu bestimmen. Bei einer Implantationstemperatur von  $T_I = 5$  K war der substitutionelle Anteil von Kr  $f_s = 0.49$ , bei  $T_I = 77$  K war  $f_s = 0.47$ . Xenon besitzt bei  $T_I = 77$  K einen  $f_s$ -Wert von 0.33. Die implantierten Konzentrationen lagen deutlich unter 0.2 at.% und damit unterhalb der Konzentration, bei der Blasenbildung auftritt /106/. Edelgasatome verbunden mit einer Leerstelle besitzen niedrige Migrationsenthalpien und damit eine hohe Beweglichkeit /67,94/. Dadurch ist eine Beeinflussung des substitutionellen Anteils möglich.

### 5.1.7 Blei implantiert in Aluminium

Aluminium und Blei bilden ein monotektisches System /98/. Falls es gelänge Al(Pb) Legierungen herzustellen, wären sie als Gleitlagerwerkstoffe von technischem Interesse /14/. Um die Separation nicht mischbarer Schmelzen unter verminderter Schwerkraft zu untersuchen, wurden Al und Pb im Rahmen der Experimente der D1-Mission im Space Shuttle aufgeschmolzen und erstarrt /14/. Legierungsbildung wurde auch in schwerelosem Zustand nicht erreicht /14/.

In Abb. 43 sind die Rückstreupektren des implantierten AlPb Systems bei  $T_I = 5, 77$  und 293 K dargestellt. Für  $T_I = 77$  K sind die Spektren für zwei verschiedene Pb-Konzentrationen gezeigt, wobei  $f_s$  konzentrationsunabhängig ist. Mit steigender Implantationstemperatur sinkt  $f_s$  von 0.76 bei 5 K über 0.57 bei 77 K auf -0.02 bei 293 K. Die kritischen



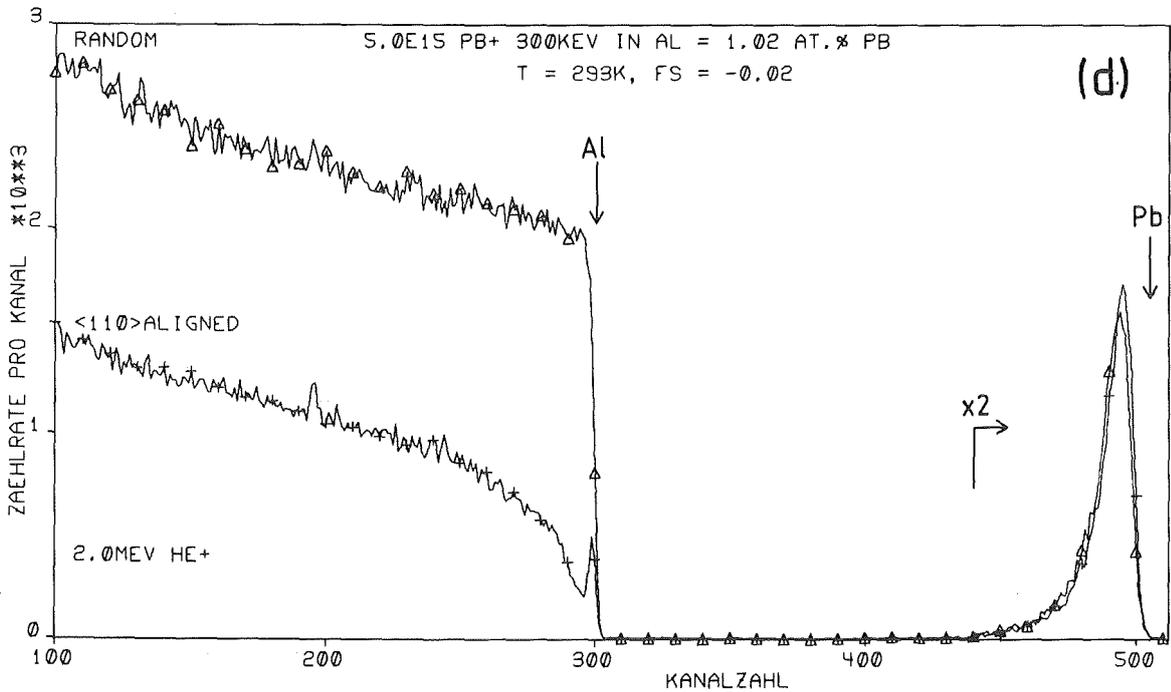
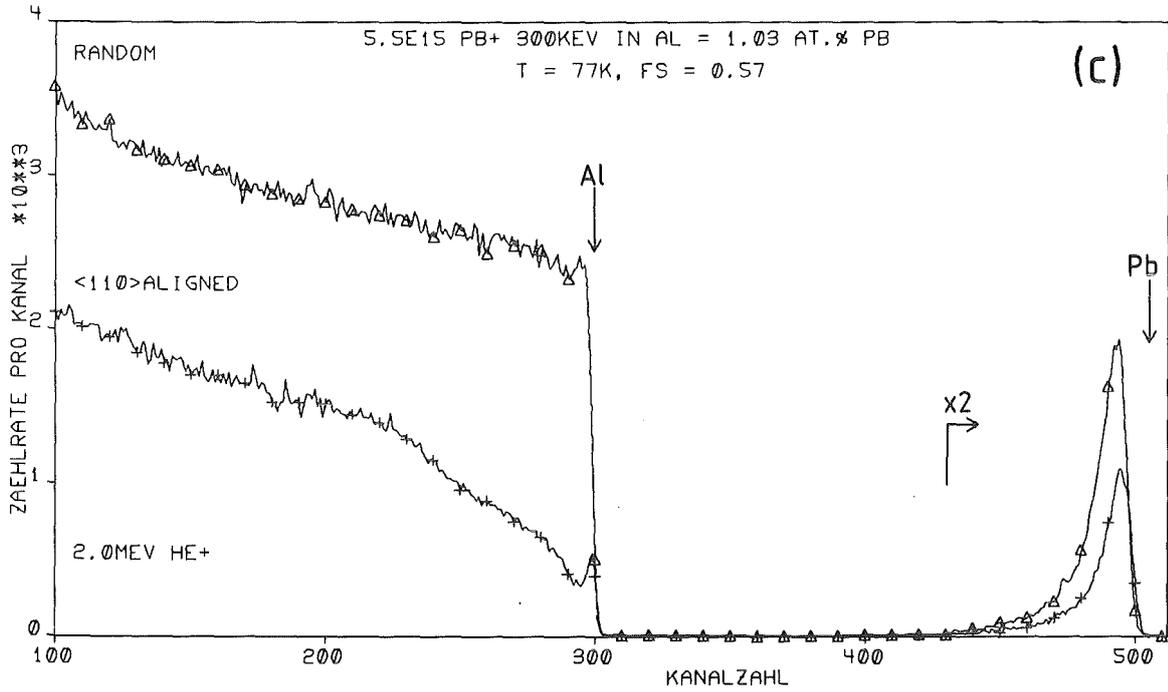


Abb. 43 Rückstreuungsspektren von Al-Einkristallen implantiert mit Pb bei 5 K (a), 77 K (b,c) und 293 K (d).

Winkel der winkelabhängigen Ausbeutekurven für Al und Pb bei  $T_I = 5$  K sind identisch. Für  $T_I = 77$  und 293 K sind die winkelabhängigen Ausbeutekurven in Abb. 44 aufgetragen.

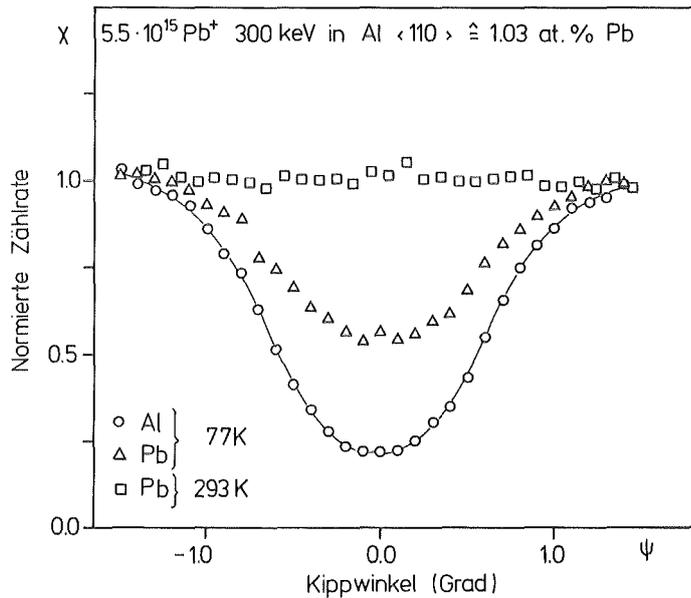


Abb. 44 Winkelabhängige Ausbeutekurven von Al und Pb, implantiert bei 77 und 293 K.

Bei  $T_I = 77$  K ist  $\psi_{1/2}(\text{Al}) = 0.67^\circ$  und  $\psi_{1/2}(\text{Pb}) = 0.65^\circ$ . Bei  $T_I = 293$  K nimmt die Ausbeutekurve von Pb  $\chi$ -Werte  $> 1$  an. Die Form der Kurve deutet auf einen kleinen Anteil von Pb-Trileerstellen Komplexen neben einer großen Zahl ausgehnter Fremdatom-Leerstellen Komplexen hin /94/. Bei  $T_I = 5$  bzw. 77 K implantierte Proben wurden auf  $T_A = 77$  bzw. 293 K aufgewärmt. Dabei wurde kein signifikanter Unterschied in  $f_s$  und der Form der winkelabhängigen Ausbeutekurven zu Proben, die direkt bei  $T_I = 77$  oder 293 K implantiert wurden, festgestellt. Das AlPb System verhält sich analog zum AlCd System mit der Ausnahme einer niedrigeren Substitutionalität. Die Diskussion der Gitterplatzbesetzung kann vom AlCd auf das AlPb System übertragen werden.

### 5.1.8 Cäsium und Rubidium implantiert in Aluminium

Die Alkalimetalle Cäsium und Rubidium zeigen implantiert in Aluminium ähnliches Verhalten. Cäsium implantiert bei  $T_I = 5$  K (siehe Abb. 45) zeigt nur einen kleinen substitutionellen Anteil von  $f_s = 0.03$ . Die winkelabhängige Ausbeutekurve für  $T_I = T_M = 5$  K (siehe Abb. 46) zeigt zusätzlich einen bevorzugten Platz der Cs-Atome nahe der Kanalmitte. Bei  $T_I = 77$  K ist  $f_s = 0.00$  und keine Struktur erkennbar /117/. Bei einer Cs-Konzentration von  $\approx 0.02$  at.% und  $T_I = 293$  K ist  $f_s = 0.13 \pm 0.1$  bei stark verengter winkelabhängiger Ausbeutekurve für Cs /117/. Der Wert für  $f_s$  ist mit einem hohen Meßfehler behaftet. Die äußerst niedrige Implantationskonzentration liegt zudem nahe der Gleichgewichtslöslichkeit. Die starke Verengung im Cs-Signal ist ein Hinweis auf Fremdatom-Leerstellen Komplexbildung selbst bei derart niedrigen Fremdatomkonzentrationen.

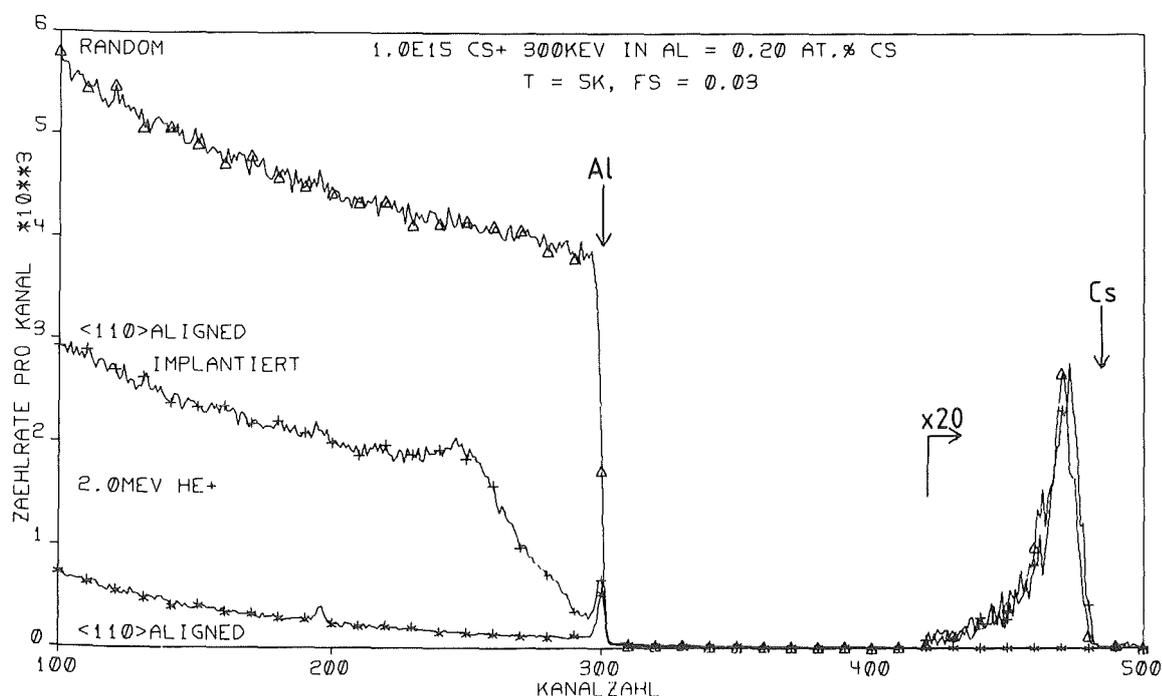


Abb. 45 Rückstreuungsspektrum des ALCs Systems, implantiert bei 5 K.

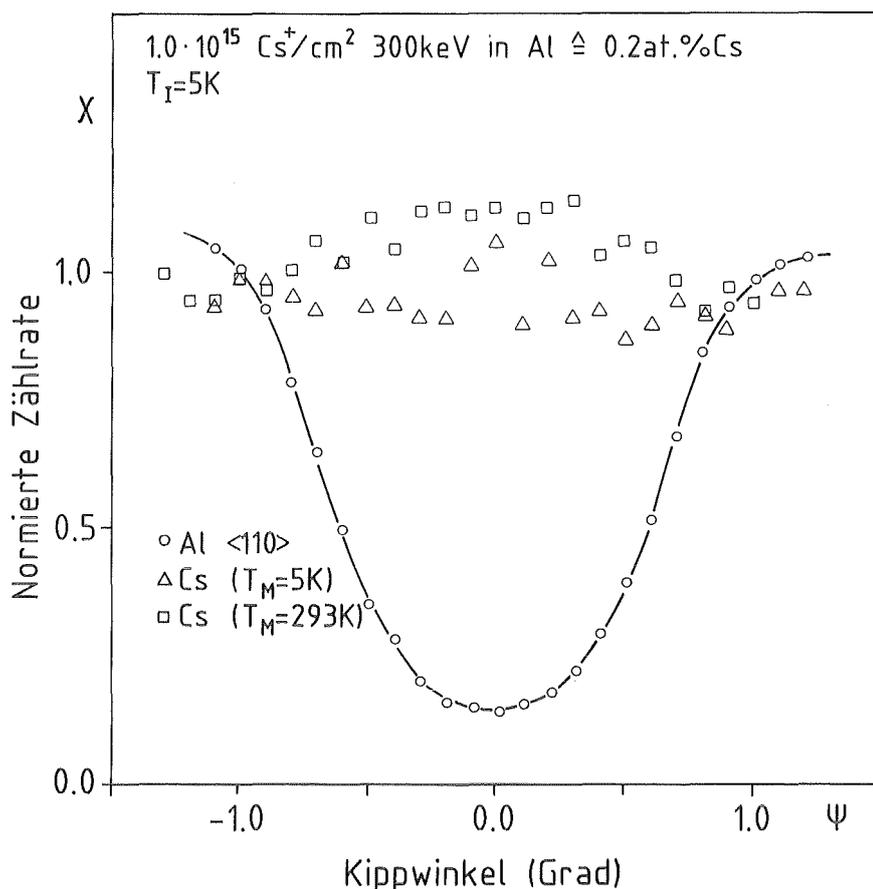


Abb. 46 Cäsium implantiert in Al bei 5 K (△) und aufgewärmt auf 293 K (□).

Die bei T<sub>I</sub> = 5 K implantierte Probe wurde auf T<sub>A</sub> = 293 K aufgewärmt. Die winkelabhängige Ausbeutekurve zeigt eine ausgeprägte Erhöhung mit einem f<sub>s</sub>-Wert von -0.17 (siehe Abb. 46). Hier haben sich beim Aufwärmen bevorzugt Cs-Leerstellen Komplexe gebildet, bei denen das Cs-Atom in den <110>-Kanal einrückt.

Rubidium wurde bei T<sub>I</sub> = 77 K implantiert, es besetzt zu einem kleinen Anteil Gitterplätze höherer Symmetrie, vermutlich Rb-Tetra- und Hexa-Leerstellen Komplexe neben einem großen Anteil von Gitterplätzen niedriger Symmetrie vermutlich in Form ausgedehnter Defekte (siehe Abb. 48). Nach Aufwärmen auf T<sub>A</sub> = 293 K ist f<sub>s</sub> = 0.00, besondere Gitterlagen sind nicht mehr zu beobachten.

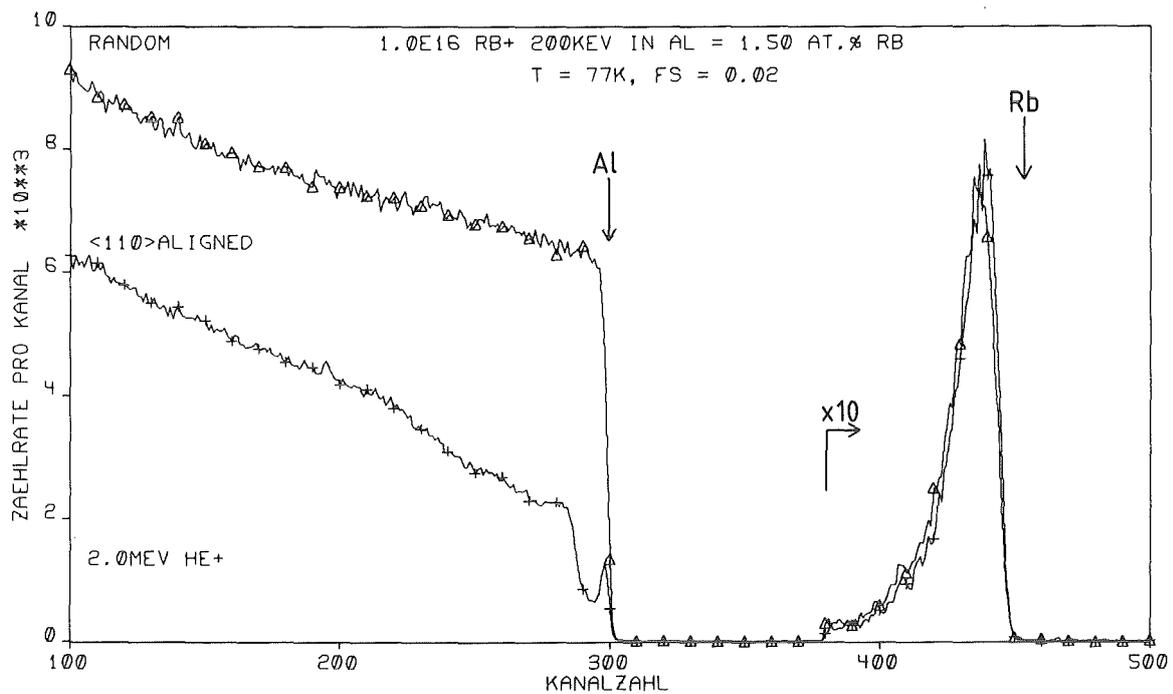


Abb. 47 Rückstreuungsspektren von einem Al-Einkristall implantiert mit Rubidium bei 77 K. Der substitutionelle Anteil beträgt  $f_s = 0.02$ .

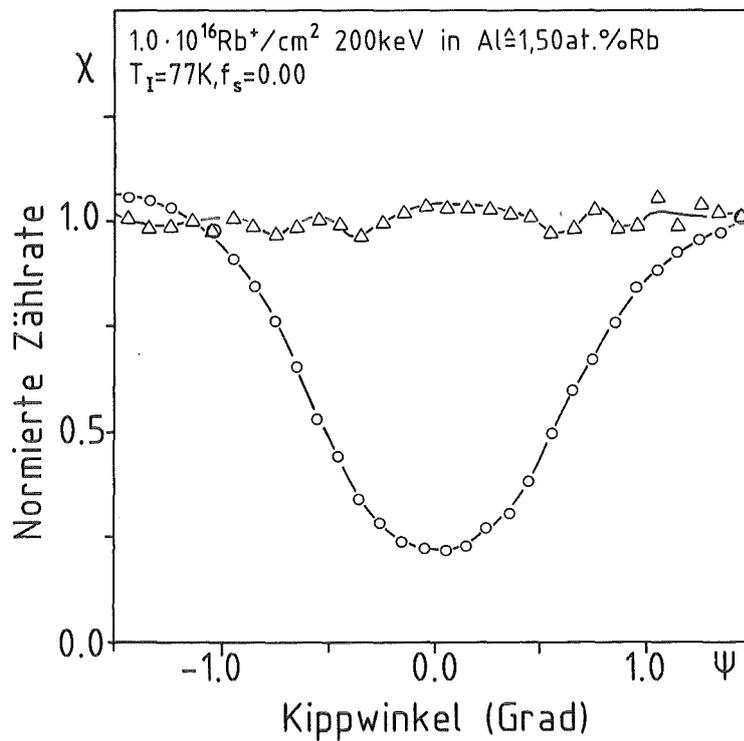


Abb. 48 Winkelabhängige Ausbeutekurven von Al(o) und Rb( $\Delta$ ), implantiert und analysiert *in situ* bei 77 K.

### 5.1.9 Zusammenfassung der Resultate

Die Elemente Ga, Cd, Hg, Sb, Kr, In, Xe, Pb, Rb und Cs wurden in Al-Einkristalle implantiert. Allen diesen Elementen ist gemein, daß sie übergroß sind und einen positiven Wert der Lösungswärme in Al besitzen. Sie bilden, mit Ausnahme von Ga, ein monotektisches Gleichgewichtsphasendiagramm; bis auf eine äußerst geringe Randlöslichkeit sind sie sowohl in der flüssigen, als auch in der festen Phase in Al unlöslich /98/.

Die oben angegebenen Elemente wurden bei verschiedenen Implantationstemperaturen  $T_I = 5, 77$  und  $293$  K in Al-Einkristalle implantiert. Der substitutionelle Anteil  $f_s$  und die Gitterplatzbesetzung wurde mit Hilfe der Ionen-Channeling Methode in situ bestimmt. Ebenfalls wurden Tieftemperatur-implantate ( $T_I = 5$  oder  $77$  K) auf  $T_A = 77$  oder  $293$  K aufgewärmt und  $f_s$  und die Gitterplatzbesetzung analog bestimmt. Üblicherweise wurde der Kristall während der Implantation gedreht, um ein Channeling der Fremdatomionen zu vermeiden. Es wurden auch Fremdatome bewußt gechannelt implantiert, was zwar die Reichweite der Ionen im Kristall erhöhte,  $f_s$  und die Gitterplatzbesetzung jedoch nicht beeinflusste.

In Abb. 49 und Tab. 5 sind die Ergebnisse der Messungen des substitutionellen Anteils in Abhängigkeit von  $T_I$ ,  $T_A$  und  $\Delta H_{sol}$  zusammengefaßt, wobei die Lösungswärme  $\Delta H_{sol}$  die Summe aus dem elektronischen Anteil der Lösungswärme  $\Delta H_{sol,el}$  und der Fehl-anpassungsenergie  $\Delta H_{size}$  ist /7,9/.

Bei Betrachtung der substitutionellen Anteile  $f_s$  sind zwei Grundtendenzen feststellbar. Mit zunehmendem  $\Delta H_{sol}$  nimmt  $f_s$  für alle Implantationstemperaturen ab. Für jeweils ein Element betrachtet nimmt  $f_s$  mit wachsender Implantationstemperatur ab. Der Wert  $f_s = 0.13$  für Cs bei  $T_I = 293$  K wurde bei der für Channeling-Messungen ungewöhnlich niedrigen Maximalkonzentration von  $0.03$  at.% Cs gemessen und besitzt eine große Fehlerbreite ( $\pm 0.1$ ). Zwischen  $T_I = 5$  K und  $T_I = 77$  K besteht, außer

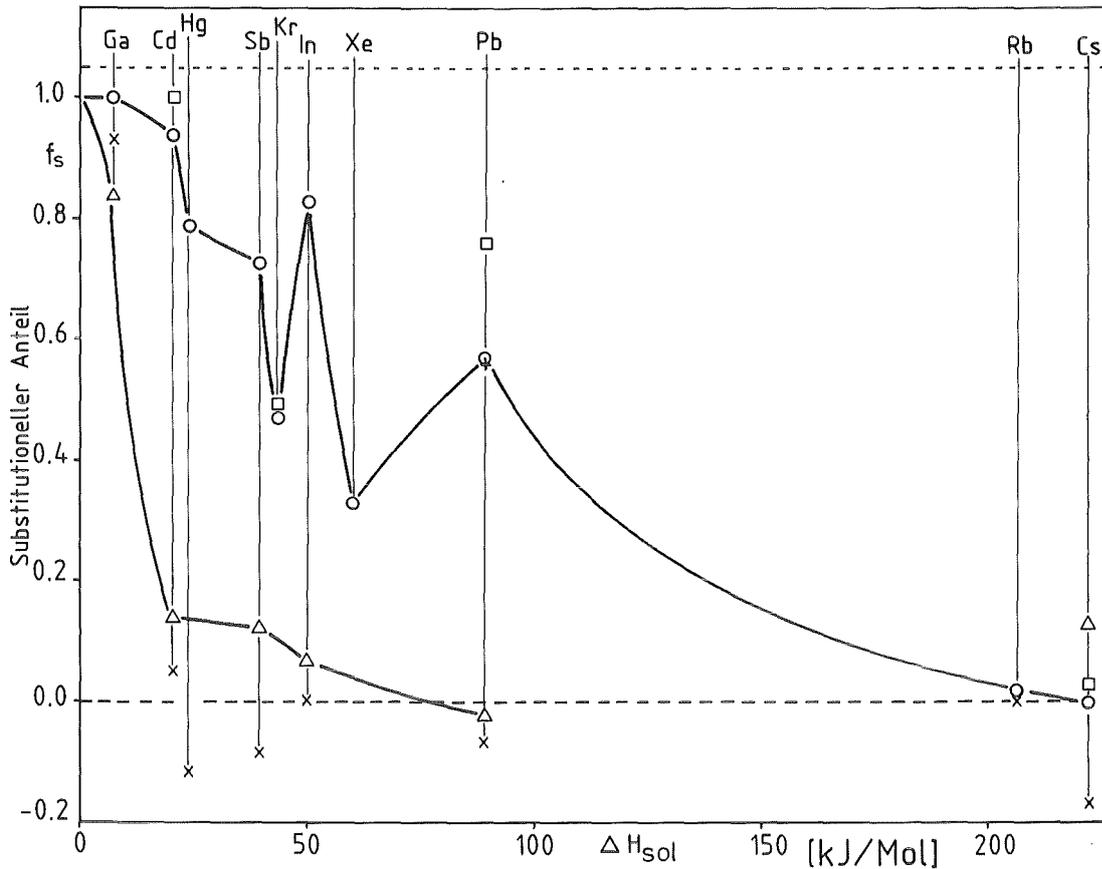


Abb. 49 Auftragung des substitutionellen Anteils  $f_s$  in Al-Einkristalle implantierter Fremdatome in Abhängigkeit von der Lösungswärme  $\Delta H_{sol} = \Delta H_{sol,el} + \Delta H_{size}$  ( $100 \text{ kJ/Mol} \approx 1 \text{ eV/Atom}$ ).  
 $T_I = 5 \text{ K} (\square)$ ,  $77 \text{ K} (o)$ ,  $293 \text{ K} (\Delta)$ .  $T_A = 77 \text{ K} (+)$ ,  $293 \text{ K} (x)$ .

für Pb keine nennenswerte Differenz in  $f_s$ . Dagegen ist  $f_s$  für  $T_I = 293 \text{ K}$  deutlich niedriger. Bei Aufwärmexperimenten findet der drastische Rückgang in  $f_s$  zwischen 200 und 230 K statt, der Temperatur der Stufe III. Die  $f_s$ -Werte der auf  $T_A = 293 \text{ K}$  aufgewärmten Proben sind, mit Ausnahme von Ga, niedriger, als die bei dieser Temperatur direkt implantierten Proben. Die  $f_s$ -Werte für die Edelgase Kr und Xe sind mit Vorsicht zu betrachten. Da Kr und Xe insbesondere verbunden mit einer Leerstelle selbst bei tiefen Temperaturen in Al beweglich sind.

Wirtsgitter: Aluminium

Implan- tiertes Element	Lösungs- wärme [[kJ/Mol]]	El. Anteil Lösungs- wärme [[kJ/Mol]]	Fehlan- passungs- energie [[kJ/Mol]]	Subst. Anteil		Subst. Anteil		Fremdatom- Konzentra- tion [at. %]	
				fs (5 K) impl.	fs (77 K) impl.	fs (293 K) impl.	fs (293 K) getp.		
Ga	6.85	3.70	3.15	---	1.00	---	0.87 0.93	0.75-1.35	
Cd	20.31	14.23	6.08	1.00	0.94	---	0.14 0.05	0.20-11.7	
Hg	23.74	17.04	6.70	---	0.79	---	---	-0.12	0.05-0.10
Sb	39.44	11.08	28.36	---	0.73	---	0.11	-0.08	0.45-0.51
Kr	43.30	36.03	7.27	0.49	0.47	---	---	---	< 0.20
In	50.02	30.32	19.70	---	0.83	---	0.07	0.00	0.10-1.10
Xe	60.11	43.67	16.44	---	0.33	---	---	---	< 0.20
Pb	89.04	48.73	40.31	0.76	0.57	0.56	-0.02	-0.06	0.06-1.03
Rb	206.17	135.12	71.05	---	0.02	---	---	0.00	0.10-1.50
Cs	221.98	153.42	68.56	0.03	0.00	---	0.13	-0.17	0.03-0.20

Tabelle 5 Werte der Lösungswärme  $\Delta H_{sol}$ , des elektronischen Anteils der Lösungswärme  $\Delta H_{sol,el}$  und der Fehlanpassungsenergie  $\Delta H_{size}$  der in Al-Einkristalle implantierten Fremdatome und eine Zusammenstellung der substitutionellen Anteile ( $f_s$ ) bei Direktimplantation (impl.) und beim Aufwärmen der Proben von einer tieferen Implantationstemperatur (getp.). Der Bereich der jeweiligen Implantationskonzentrationen ist ebenfalls angegeben.

### 5.1.10 Diskussion der Modelle der Gitterplatzbesetzung auf der Basis der experimentellen Ergebnisse

Die empirischen Modelle zur Gitterplatzbesetzung (siehe Kap. 4.3) basieren auf Gleichgewichtsreaktionen zwischen Fremdatom und Wirtsgitteratomen und beinhalten keine Temperaturabhängigkeit. Die Ionenimplantation hingegen ist, besonders bei tiefen Temperaturen angewandt, eine Nichtgleichgewichtsmethode. Somit ist es zunächst sinnvoll, die Ergebnisse der Implantation bei  $T_I = 293$  K mit den Voraussagen der empirischen Modelle zu vergleichen. Die Grenze von substitutionell zu nicht-

substitutionell wird von diesen Modellen bei  $f_s = 0.5$  gezogen. Damit wäre Ga von den untersuchten das einzig substitutionelle Element in Al (siehe Tab. 5).

Gemäß der Darken-Gurry Darstellung (siehe Abb. 17, S. 54) sollten Ga und Cd in Al substitutionelle Lösungen bilden. Da die Darken-Gurry Darstellung /6/ auf den Regeln von Hume-Rothery /71/ beruht, die fordern, daß die Gitterstruktur von Fremdelement und Wirtsgitter übereinstimmen müssen, sollte Cd, das hexagonal kristallisiert, nichtsubstitutionell sein. Diese Forderung wurde jedoch von Darken und Gurry nicht übernommen.

Die modifizierte Darken-Gurry Darstellung /73/ fordert auch für Hg, Sb, In und Pb Substitutionalität in Al. Diese speziell für implantierte Systeme aufgestellte Regel versagt für Al implantiert mit übergroßen Fremdatomen bei 293 K.

Die Koordinaten von Miedema /7,9/ in den von Chelikowsky /10/ und Alonzo und López /11/ vorgeschlagenen Formen angewandt, besitzen den gravierenden Nachteil, daß die Grenze zwischen Substitutionalität und Nichtsubstitutionalität empirisch ermittelt werden muß. Das Gebiet der Substitutionalität ist jedoch zusammenhängend. Wählt man es deutlich kleiner als für andere Wirtsgitter, unter Einschluß von Ga, ist eine vernünftige Vorhersage für Al zu erwarten (siehe Abb. 18, S. 56 u. 19, S. 57).

In der Darstellung von Singh und Zunger /12/ erfolgt ebenfalls eine gute Voraussage, wenn man das Gebiet der Substitutionalität sehr klein wählt. Wendet man die für andere Wirtsgitter vorgeschlagenen Grenzen an, dann wären auch Xe und Sb eingeschlossen, was nicht dem experimentellen Ergebnis entspricht (siehe Abb. 20, S. 59).

Als Fazit kann gezogen werden, daß die empirischen Modelle die Gitterplatzbesetzung bei  $T_I = 293$  K der Systeme übergroßer Fremdatome - Al Wirtsgitter "eher schlecht als recht" beschreiben.

Bei Anwendung der empirischen Modelle auf Implantationstemperaturen  $T_I \leq 77$  K müßten die Elemente Ga, Cd, Hg, Sb, In und Pb in den Bereich der Substitutionalität fallen (siehe Tabelle 5). Die modifizierte Darken-Gurry Darstellung (siehe Abb. 17, S. 54) beschreibt dies im Gegensatz zur Darstellung von Singh und Zunger (siehe Abb. 20, S. 59) hervorragend. Auch unter der Anwendung der Miedema-Koordinaten /7,9/ wird eine gute Trennung von Nichtsubstitutionalität zu Substitutionalität in der Darstellung von Chelikowsky /10/ erreicht (siehe Abb. 18, S. 56). Eine noch klarere Separation wird in der Auftragung nach Alonzo und López /11/ erreicht (siehe Abb. 19, S. 57).

Nach der Überprüfung der empirischen Modelle auf ihre Voraussagegüte soll anhand der experimentellen Ergebnisse diskutiert werden, welche physikalischen Mechanismen die Gitterplatzbesetzung bei der Ionenimplantation bestimmen.

Bei einer Implantationstemperatur von 5 K ist zunächst anzunehmen, daß die Gitterplatzbesetzung implantierter Fremdatome durch rein kinematische Gesetze bestimmt ist. In Abb. 50 sind die theoretische Kurve der Gitterplatzbesetzung durch

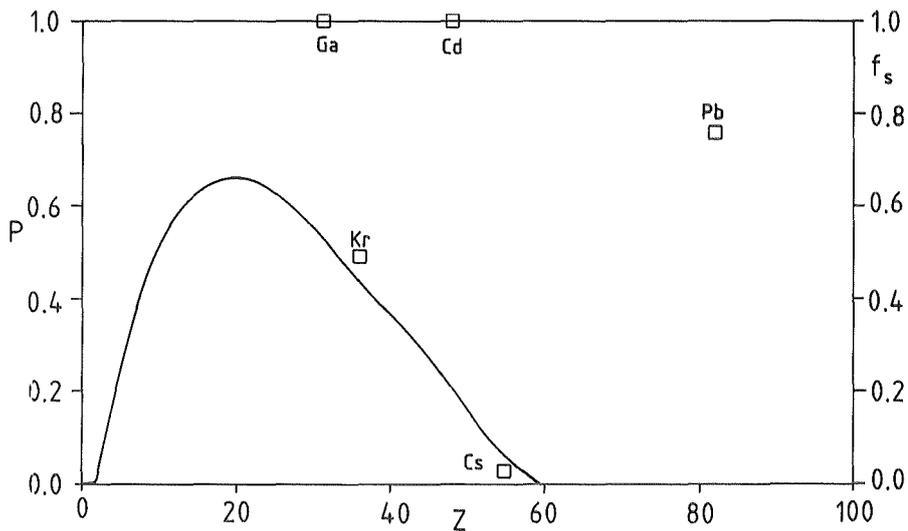


Abb. 50 Wahrscheinlichkeit  $P$  der Gitterplatzbesetzung durch Ersetzungsstöße in Abhängigkeit der Ordnungszahl  $Z$  des Ions. Eingezeichnet sind die experimentellen Ergebnisse für  $T_I = 5$  K.

Ersetzungsstöße abhängig von  $Z$  des Ions und die experimentellen Ergebnisse bei  $T_I = 5$  K aufgetragen. Die Ersetzungsstoßtheorie von Brice /5/ berechnet die Gitterplatzbesetzung auf der Basis binärer Stöße zwischen Ion und Wirtsgitteratomen (siehe Kap. 4.1). Wie Abb. 50 zeigt, ist die Ersetzungsstoßtheorie allein nicht in der Lage, den substitutionellen Anteil implantierter Fremdatome vorauszusagen, da sie von einer ungestörten Umgebung während des Ersetzungsstoßes ausgeht und die Punktdefektbeweglichkeit innerhalb der Kaskade nicht berücksichtigt. Das Ion kommt im Wirtsgitter innerhalb einer Kaskade, die es selbst initiiert hat, zur Ruhe.

Die Schnellabschreckung aus der Kaskade (siehe Kap. 4.2) oder die Rekombination des Fremdatoms mit einer Leerstelle in der Relaxationsphase des "Displacement Spike" (siehe Kap. 3.1.3) bringt das Fremdatom auf einen substitutionellen Gitterplatz. Wenn diese Mechanismen allein wirksam wären, wäre  $f_s$  für nahezu alle Elemente 1.0.

Innerhalb der Kaskade herrscht eine Leerstellenkonzentration von ungefähr 5% /109/ im Vergleich zu  $\ll 10^{-6}$  % /114/ bei 293 K im thermischen Gleichgewicht. Bei einer Leerstellensprungfrequenz von  $\nu \approx 5 \cdot 10^{12}$  [1/s]/26,114/ sind die Leerstellen in einer Kaskade in der Lage, im Durchschnitt 50 Sprünge auszuführen. Die innerhalb einer Kaskade erzeugten Leerstellen können mit den ebenfalls erzeugten Eigenzwischengitteratomen rekombinieren, als Einzelleerstellen die Kaskade überleben oder von Senken wie Leerstellenclustern, Versetzungen oder übergroßen Fremdatomen eingefangen werden. Die Wahrscheinlichkeit, mit der ein Fremdatom nun in der Lage ist, eine oder mehrere Leerstellen einzufangen, wird durch seinen Leerstelleneinfangradius und die Leerstellenverteilung um das Fremdatom innerhalb der Kaskade bestimmt. Der Leerstelleneinfangradius ist direkt mit der Fremdatom-Leerstellen Bindungsenergie korreliert. Diese Bindungsenergie ist nach Doyama /13/ direkt proportional der Lösungswärme nach Miedema /7,9/. Bei Temperaturen unterhalb der Tempera-

tur der Stufe III wird die Gitterplatzbesetzung von implantierten Fremdatomen in Al durch spontane Rekombination des Fremdatoms mit einer Leerstelle in der Relaxationsphase des "Displacement Spike" und durch darauffolgenden Leerstelleneinfang und der Bildung von Fremdatom-Leerstellen Komplexen im "Thermal Spike" während der Lebensdauer der Kaskade bestimmt. Dieser Prozeß findet in jeder individuellen Kaskade statt und erklärt die Unabhängigkeit des substitutionellen Anteils von der implantierten Fremdatom-Konzentration, solange die Wechselwirkung der Fremdatome untereinander von untergeordneter Bedeutung ist.

Bei der Implantationstemperatur  $T_I = 293$  K, einer Temperatur oberhalb der Temperatur der Stufe III, sind Mono- und Dileerstellen frei beweglich. Die Fremdatome sind nun in der Lage, nach Beendigung der Kaskade weitere Leerstellen einzufangen, was zur Vergrößerung und zusätzlicher Bildung von Fremdatom-Leerstellen Komplexen führt. Beim Aufwärmen einer bei  $T_I = 77$  K implantierten Probe auf  $T_A = 293$  K werden die bei der Implantation gebildeten Leerstellencluster aufgelöst. Die freiwerdenden Leerstellen werden wie bei der Implantation bei  $T_I = 293$  K von Fremdatomen eingefangen und damit der substitutionelle Anteil  $f_s$  stark reduziert.

Die meist kleine Differenz der substitutionellen Anteile  $f_s$  zwischen  $T_I = 5$  und  $77$  K wird durch Wechselwirkung der Fremdatom-Leerstellen Komplexe mit Eigenzwischengitteratomen verursacht. Bei  $T_I = 77$  K, oberhalb der Temperatur der Stufe I, sind Eigenzwischengitteratome frei beweglich und wandern rasch zu bevorzugten Senken wie der Oberfläche oder Versetzungen. Bei  $T_I = 5$  K sind sie nicht beweglich und beeinflussen durch "Shallow Trapping" die Gitterlage des Fremdatoms (siehe Kap. 4.4). Nach Aufwärmen von  $5$  auf  $77$  K wird der gleiche  $f_s$ -Wert wie bei Direktimplantation erreicht.

Das vorgestellte Modell zur Gitterplatzbesetzung implantiertener übergroßer Fremdatome in Aluminium /77,94/ ist in der Lage, die experimentellen Resultate qualitativ zu beschreiben.

## 5.2 Erhöhung der substitutionellen Komponente durch Nachbestrahlung

Aus den Untersuchungen der Gitterplatzbesetzung nicht-löslicher, übergroßer Fremdatome in Aluminium (siehe Kap. 5.1) geht hervor, daß der substitutionelle Anteil  $f_s$  bei der Implantationstemperatur  $T_I = 293$  K stets kleiner als der bei  $T_I = 5$  K oder  $T_I = 77$  K ist. Es liegt nun nahe, ein Raumtemperaturimplantat auf tiefe Temperaturen abzukühlen und nachzubestrahlen, um zu versuchen, die substitutionelle Komponente zu beeinflussen. Eine Nachbestrahlung bei 293 K ist wenig sinnvoll, da bei den gewählten Implantationsfluenzen bereits vielfacher Kaskadenüberlapp ( $\approx 100-1000$ ) vorliegt und dies de facto für die zuerst implantierten Ionen eine massive Nachbestrahlung darstellt.

Swanson et al. /89,90/ bestrahlten die Systeme AlIn und AlSn, in denen die Fremdatome in Form von Fremdatom-Leerstellen Komplexen vorlagen, mit 1 MeV  $\text{He}^+$  bei 70 K. Dabei beobachteten sie ein Ansteigen der substitutionellen Komponente. Diesen Anstieg erklärten sie mit dem Ausheilen von Fremdatom-Leerstellen Komplexen durch den Einfang von Eigenzwischengitteratomen, die bei 70 K beweglich sind. Nachbestrahlungsexperimente bei Temperaturen unterhalb der Temperatur der Stufe I, d.h. ohne Punktdefektbeweglichkeit wurden nicht durchgeführt.

Zur Beschreibung der Ergebnisse der Nachbestrahlungsexperimente wird neben dem substitutionellen Anteil  $f_s$  der normierte substitutionelle Anteil  $f_{SN}$  verwendet. Der normierte substitutionelle Anteil beschreibt den Anteil der Fremdatome, der durch Nachbestrahlung beeinflußt werden kann. Die Definition von  $f_{SN}$  ist abhängig von der Nachbestrahlungstemperatur  $T_N$ .

Für  $T_N = 5$  K gilt:

$$f_{SN}(\phi) = (f_s(\phi) - f_s(T_I=293\text{K})) / (f_s(T_I=5\text{K}) - f_s(T_I=293\text{K})) \quad (58)$$

und für  $T_N = 77$  K gilt:

$$f_{SN}(\phi) = (f_S(\phi) - f_S(T_I=293K)) / (f_S(T_I=77K) - f_S(T_I=293K)) \quad (59)$$

Um die Meßergebnisse von Nachbestrahlungsexperimenten mit Ionen verschiedener Masse und Energie miteinander vergleichen zu können, ist es sinnvoll die Fluenz  $\phi$  in eine Skala, die die mittlere Anzahl von Verlagerungen pro Atom ausdrückt, umzuwandeln. Diese "Displacement per Atom" (dpa)-Skala ist durch

$$\text{dpa} = (0.8 \cdot \phi \cdot F_D) / (2 \cdot E_D \cdot N) \quad (60)$$

definiert. Dabei ist  $N$  die atomare Dichte des Wirtsgitters,  $E_D$  die Verlagerungsenergie, für Al wurde ein Wert von 18 eV eingesetzt /42/ und  $F_D$  (siehe Tab. 6) die deponierte Energie in nukleare Stöße oberhalb  $E_D$  pro Einheitstiefe in der Region, in der sich die Fremdatome befinden. Zur Bestimmung von  $F_D$  wurde das TRIM2 Computerprogramm /24/ benutzt.

Ion	Energie [keV]	$F_D$ [eV/nm]
He <sup>+</sup>	2000	0.12
H <sup>+</sup>	100	0.15
He <sup>+</sup>	200	1.5
Ne <sup>+</sup>	300	105
Al <sup>+</sup>	300	225
Ar <sup>+</sup>	300	430
Kr <sup>+</sup>	300	1400
Xe <sup>+</sup>	600	2250
Hg <sup>+</sup>	150	2250

Tabelle 6 Werte des Energieverlustes in nukleare Stöße ( $F_D$ ) oberhalb  $E_D$  in der Tiefe in der sich die Fremdatome befinden.

Die Energie der zur Nachbestrahlung verwendeten Ionen wurde stets so gewählt, daß die Ionen den implantierten Bereich durchdringen und erst in größeren Tiefen im Wirtsgitter zur Ruhe kommen.

### 5.2.1 Nachbestrahlung des implantierten Aluminium-Cadmium Systems

Cadmium wurde bei  $T_I = 293$  K in Al-Einkristalle implantiert. Der substitutionelle Anteil  $f_s$  betrug  $\approx 0.14$  (siehe Kap. 5.1.2). Danach wurden die Proben auf 5 oder 77 K abgekühlt und mit Ionen verschiedener Masse und Energie bestrahlt und in situ mit Hilfe der Channeling-Methode analysiert.

In Abb. 51 sind das "Random" und drei  $\langle 110 \rangle$  orientierte Rückstreuenspektren eines mit  $8 \cdot 10^{15} \text{ Cd}^+/\text{cm}^2$ , 180 keV bei  $T_I =$

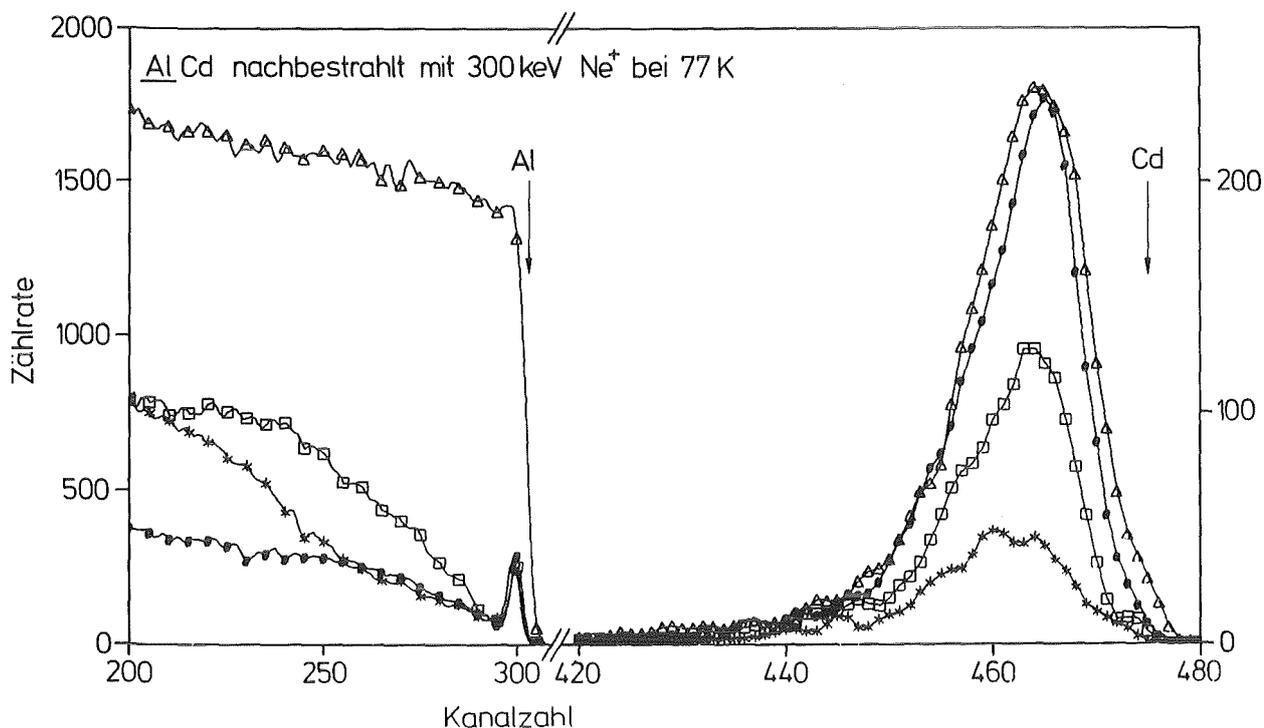


Abb. 51 Random ( $\Delta$ ) und Aligned ( $\bullet$ ) Rückstreuenspektren von einem Al-Einkristall implantiert bei 293 K mit  $8 \cdot 10^{15} \text{ Cd}^+/\text{cm}^2$ , 180 keV. Der Kristall wurde bei 77 K mit 300 keV  $\text{Ne}^+$  nachbestrahlt. Die Aligned Rückstreuenspektren bei  $4 \cdot 10^{14} \text{ Ne}^+/\text{cm}^2$  ( $\hat{=} 0.14$  dpa) ( $\square$ ) und bei  $2 \cdot 10^{16} \text{ Ne}^+/\text{cm}^2$  ( $\hat{=} 7.0$  dpa) (\*) sind ebenfalls eingetragen.

293 K implantierten und bei  $T_N = 77$  K mit 300 keV  $Ne^+$  nachbestrahlten Al-Einkristalls dargestellt. Mit steigender Ne-Fluenz nimmt das Cd-Signal signifikant ab, was eine Erhöhung der substitutionellen Komponente bedeutet. Im Al-Wirtsgitter ist bei kleineren Ne-Fluenzen ( $4 \cdot 10^{14} Ne^+/cm^2 \hat{=} 0.14$  dpa) eine Zunahme der Defektdichte zu beobachten. Bei hohen Ne-Fluenzen ( $2 \cdot 10^{16} Ne^+/cm^2 \hat{=} 7.0$  dpa) beobachtet man ein bestrahlungsinduziertes Ausheilen bis in die Tiefe der Reichweite der Ne-Ionen.

Das implantierte AlCd System wurde bei  $T_N = 5$  K mit 300 keV  $Kr^+$  Ionen nachbestrahlt. In Abb. 51 sind die Rückstreuungsspektren gezeigt. Auch bei  $T_N = 5$  K, bei einer Temperatur,

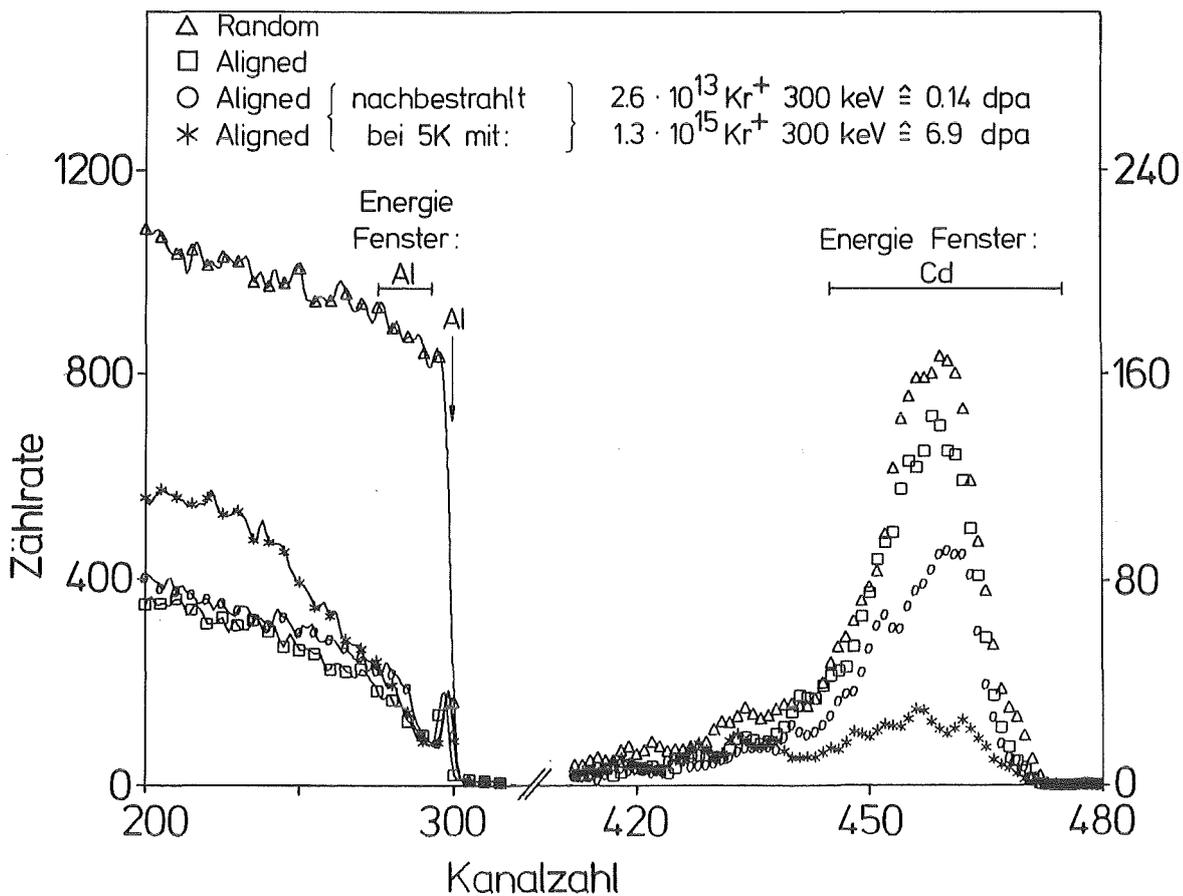


Abb. 52 Nachbestrahlung des AlCd Systems mit  $Kr^+$  Ionen bei 5 K. Der substitutionelle Anteil steigt während der Nachbestrahlung stark an.

die weit unterhalb der Temperatur der Stufe I liegt, findet eine drastische Erhöhung der substitutionellen Komponente unter Bestrahlung statt. Abbildung 53 zeigt ebenfalls die Spektren eines Nachbestrahlungsexperimentes mit 100 keV  $H^+$  Ionen bei  $T_N = 5$  K. Selbst unter Protonenbestrahlung bei 5 K nimmt die substitutionelle Komponente deutlich zu. Die Defektdichte im Wirtsgitter nimmt mit steigender Fluenz zu, ein bestrahlungsinduziertes Ausheilen findet nicht statt, da bei 5 K Punktdefekte nicht beweglich sind.

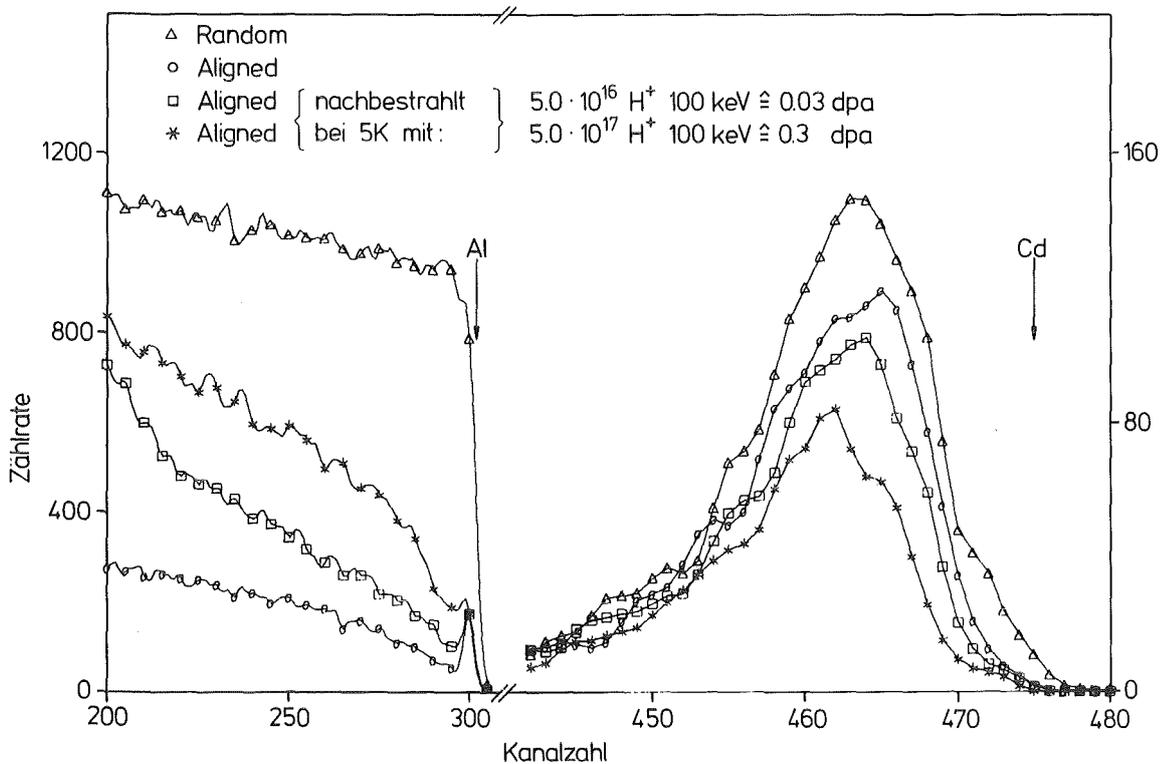


Abb. 53 Nachbestrahlung des AlCd Systems mit 100 keV Protonen bei 5 K.

Anhand der winkelabhängigen Ausbeutekurven in Abb. 54 wird der Einfluß der Nachbestrahlung auf die Gitterplatzbesetzung gezeigt. Zunächst wurden  $8 \cdot 10^{15} \text{ Cd}^+/\text{cm}^2$ , 200 keV bei  $T_I = 293$  K in einen Al-Einkristall implantiert. Die kritischen Winkel betragen für Al ( $\circ$ )  $\psi_{1/2}(\text{Al}) = 0.52^\circ$  und für Cd ( $\times$ )  $\psi_{1/2}(\text{Cd}) = 0.39^\circ$ ;  $f_s = 0.15$ . Außer einem kleinen gestört substitutionellen

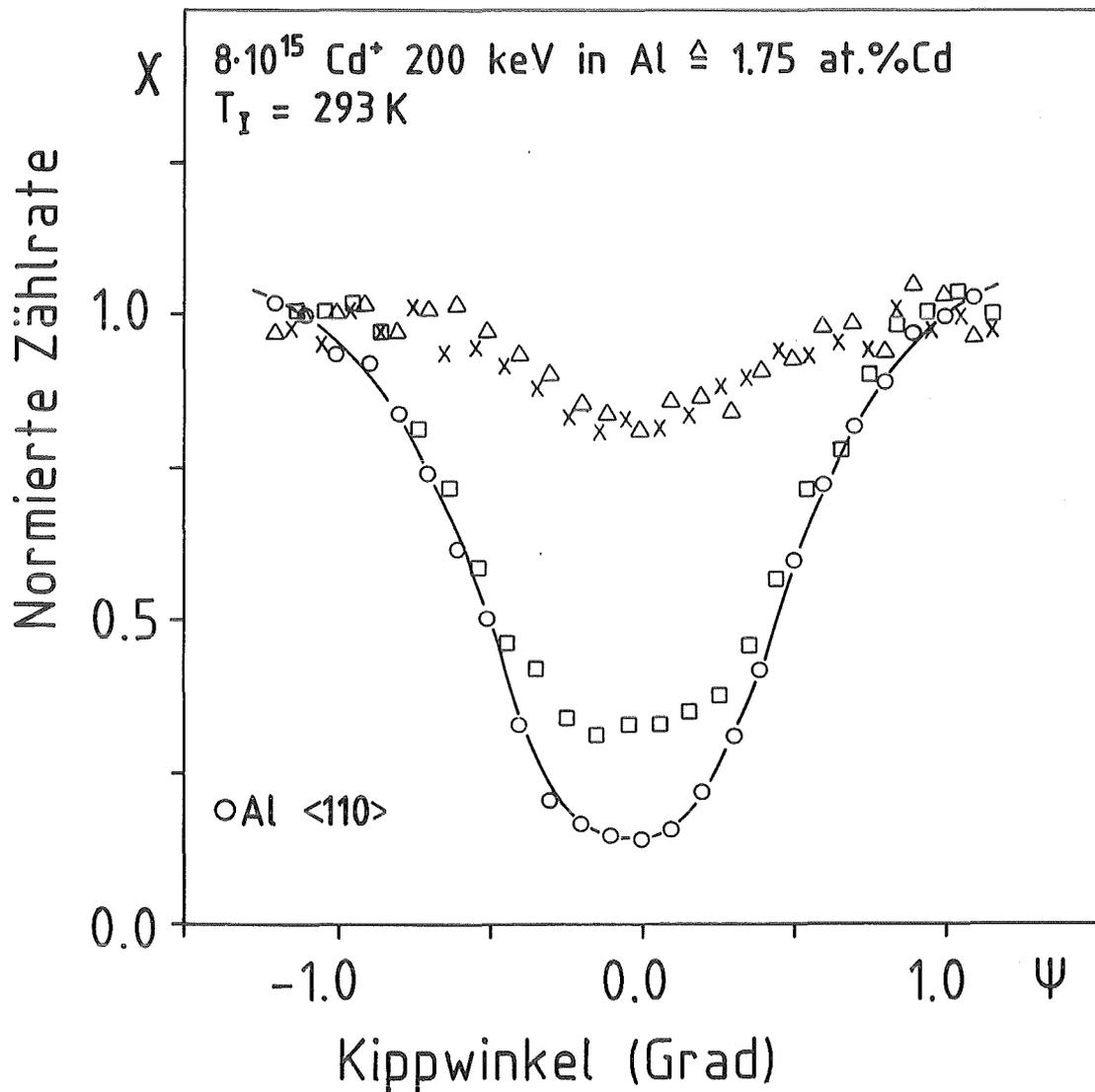


Abb. 54 Winkelabhängige Ausbeutekurven für Al (o) und Cd (x) implantiert bei 293 K, für Cd (□) nachbestrahlt bei 77 K mit  $1 \cdot 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ , 200 keV und für Cd (Δ) nach dem Aufwärmen auf 293 K.

Anteil befinden sich die Cd-Atome auf Gitterplätzen niedriger Symmetrie. Die Probe wurde auf 77 K abgekühlt und bei dieser Temperatur mit  $1 \cdot 10^{17} \text{ He}^+$ , 200 keV nachbestrahlt. Diese Fluenz entspricht 0.55 dpa. Die kritischen Winkel nach der Bestrahlung sind  $\psi_{1/2}(\text{Al}) = 0.625^\circ$  und für Cd (□)  $\psi_{1/2}(\text{Cd}) = 0.56^\circ$ . Der substitutionelle Anteil ist auf  $f_s = 0.81$  angestiegen. Die winkelabhängige Ausbeutekurve von Cd

ist gegenüber der von Al weiterhin verengt, jedoch relativ schwächer als bei 293 K. Durch die Nachbestrahlung ist ein großer Teil der Cd-Atome auf substitutionelle oder leicht gestört substitutionelle Gitterplätze bewegt worden. Etwa 20% der Cd-Atome liegt in Form von Fremdatom-LeerstellenKomplexen vor. Nach Aufwärmen der Probe auf 293 K wird der Zustand, der vor der Nachbestrahlung bestand reversibel wiedereingenommen. Die kritischen Winkel für Al (o) und Cd ( $\Delta$ ),  $\psi_{1/2}(\text{Al}) = 0.52^\circ$  und  $\psi_{1/2}(\text{Cd}) = 0.39^\circ$  und der substitutionelle Anteil  $f_s = 0.16$  sind praktisch identisch mit den Werten vor der Nachbestrahlung. Der starke Rückgang der substitutionellen Komponente beim Aufwärmen wird durch die bei der Bestrahlung erzeugten Leerstellen, die ab der Temperatur der Stufe III beweglich werden und zu Senken, wie der Oberfläche oder Fremdatomen laufen, verursacht.

Das implantierte AlCd System wurde bei  $T_N = 5$  K mit  $\text{H}^+$  und  $\text{Kr}^+$  Ionen und bei  $T_N = 77$  K mit  $\text{H}^+$ ,  $\text{He}^+$ ,  $\text{Ne}^+$ ,  $\text{Ar}^+$ ,  $\text{Kr}^+$ ,  $\text{Xe}^+$ ,  $\text{Hg}^+$ -Ionen nachbestrahlt. Die Resultate dieser Nachbestrahlungen in Form der Erhöhung des normierten substitutionellen Anteils mit der jeweiligen Fluenz sind in Abb. 55 und Abb. 56 aufgetragen.

Um über den Prozeß der Erhöhung der substitutionellen Komponente durch Nachbestrahlung weitere Aussagen machen zu können, ist es notwendig, die Resultate der Nachbestrahlungen bei  $T_N = 5$  K mit denen bei  $T_N = 77$  K und die Bestrahlungen mit leichten Ionen mit denen mit schweren Ionen zu vergleichen. Der Vergleich der Nachbestrahlungen bei 5 und 77 K ist besonders wichtig, da bei 77 K Eigenzwischengitteratome beweglich, Leerstellen dagegen nicht beweglich sind, bei 5 K sind Punktdefekte unbeweglich. In der Literatur /89,90/ wird die Auffassung vertreten, daß Fremdatom-Leerstellen Komplexe durch bewegliche Zwischengitteratome bei der Nachbestrahlung bei Temperaturen oberhalb der Temperatur der Stufe I aufgelöst werden und dadurch der Anstieg der substitutionellen Komponente verursacht wird. Gemäß dieser Vorstellung dürfte bei  $T_N = 5$  K keine nennenswerte Komplexauflösung stattfinden und damit der substitutionelle Anteil sich nicht ändern.

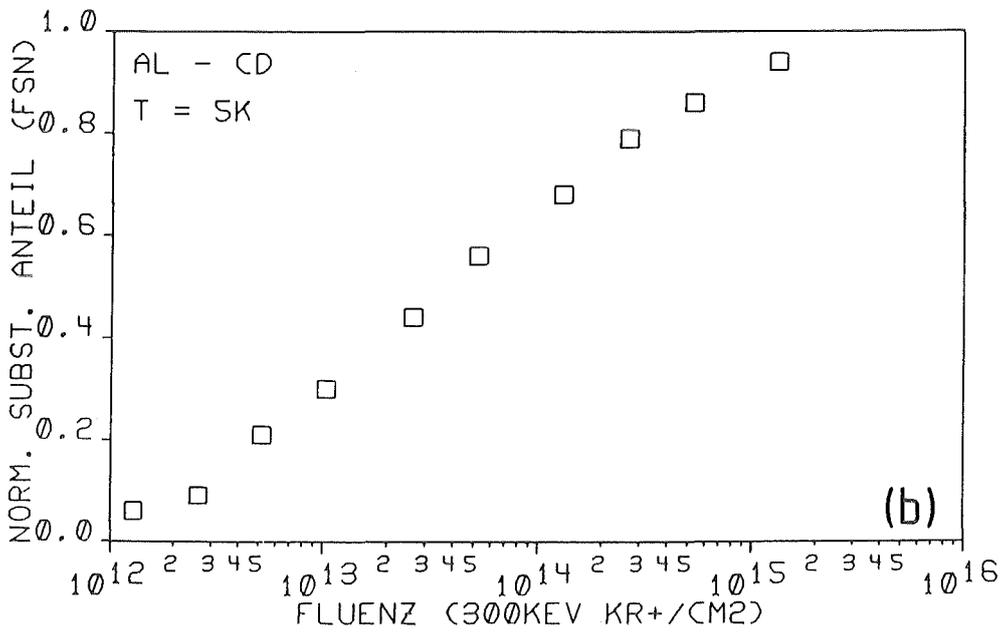
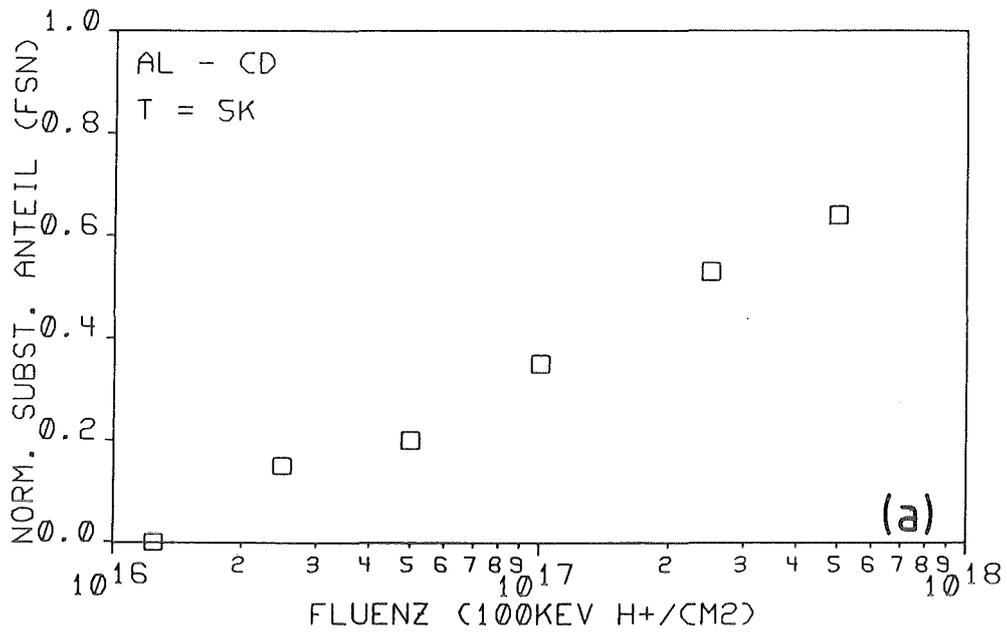
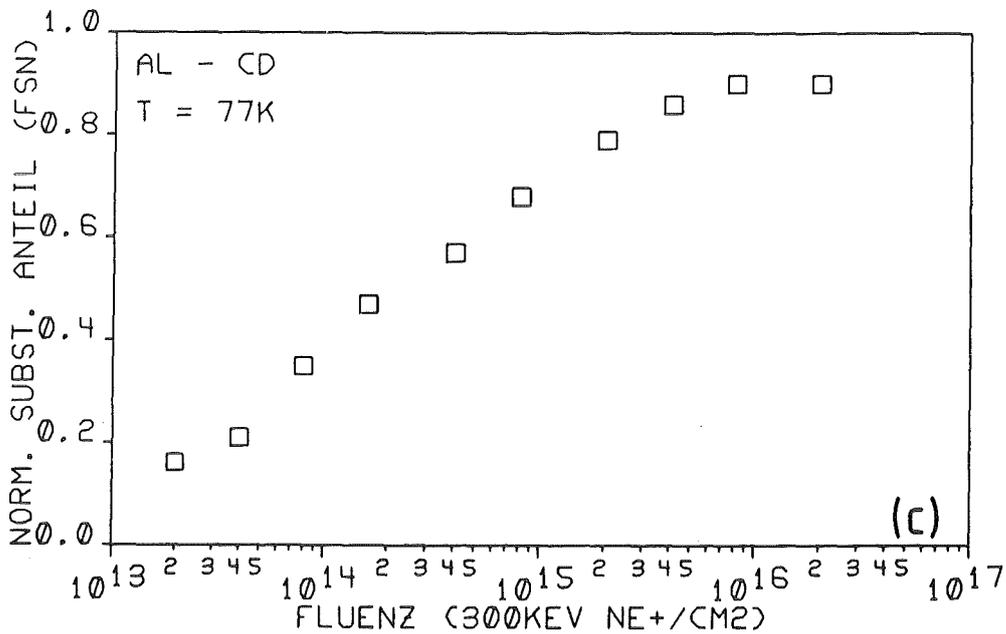
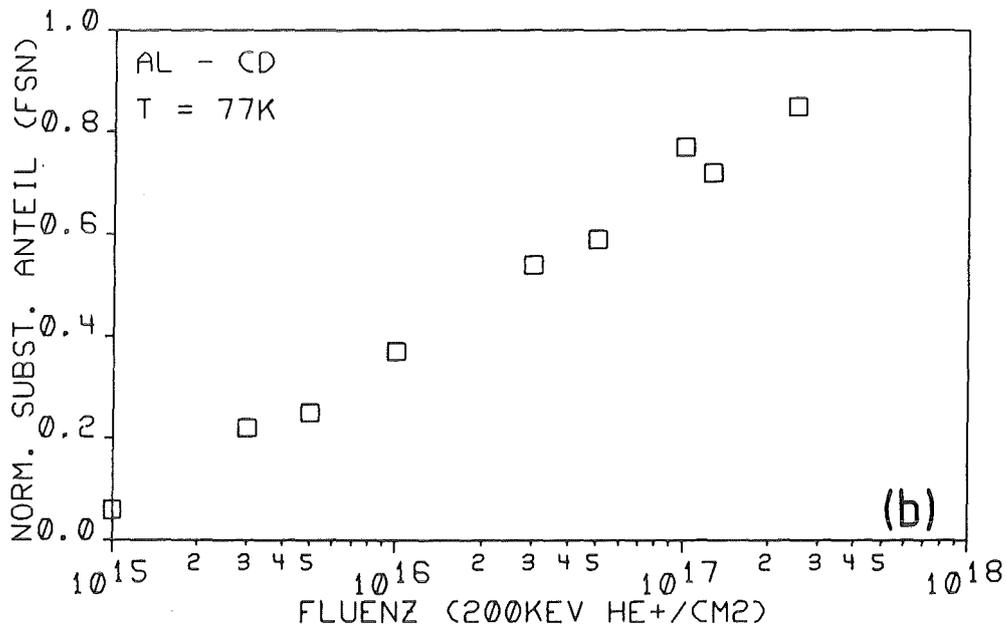
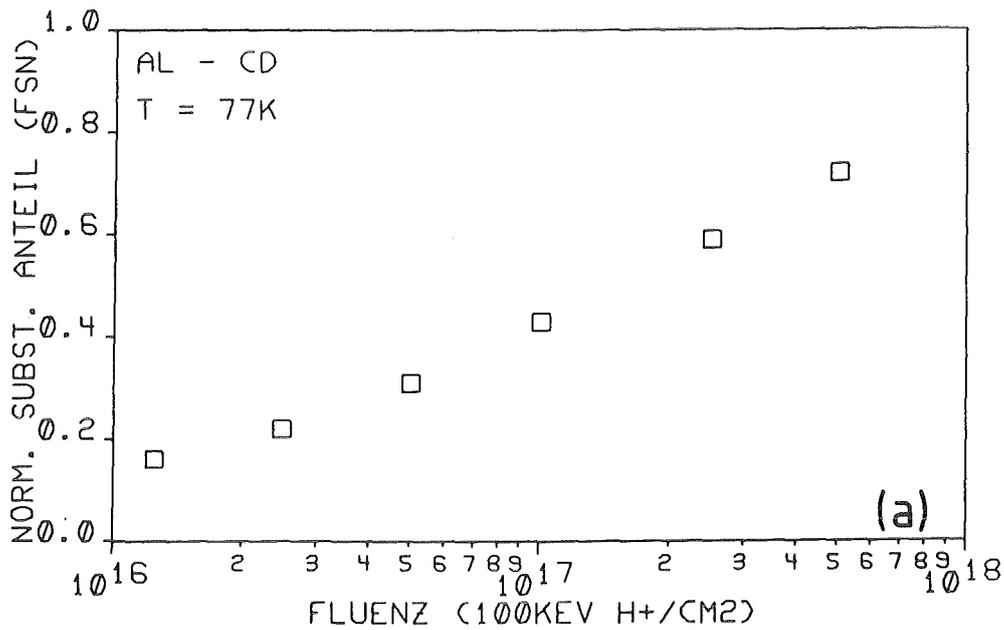
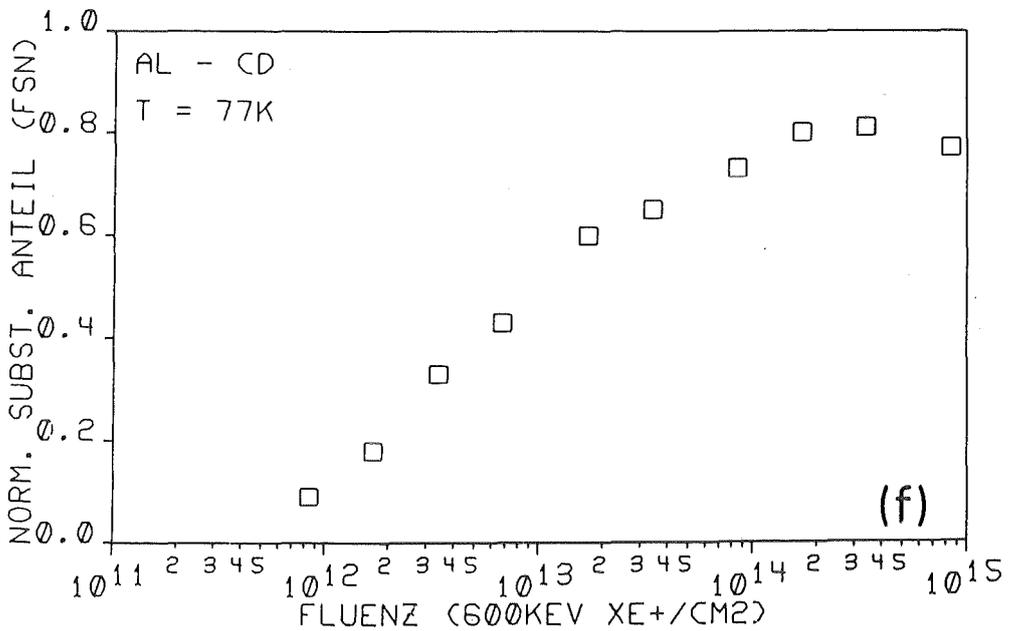
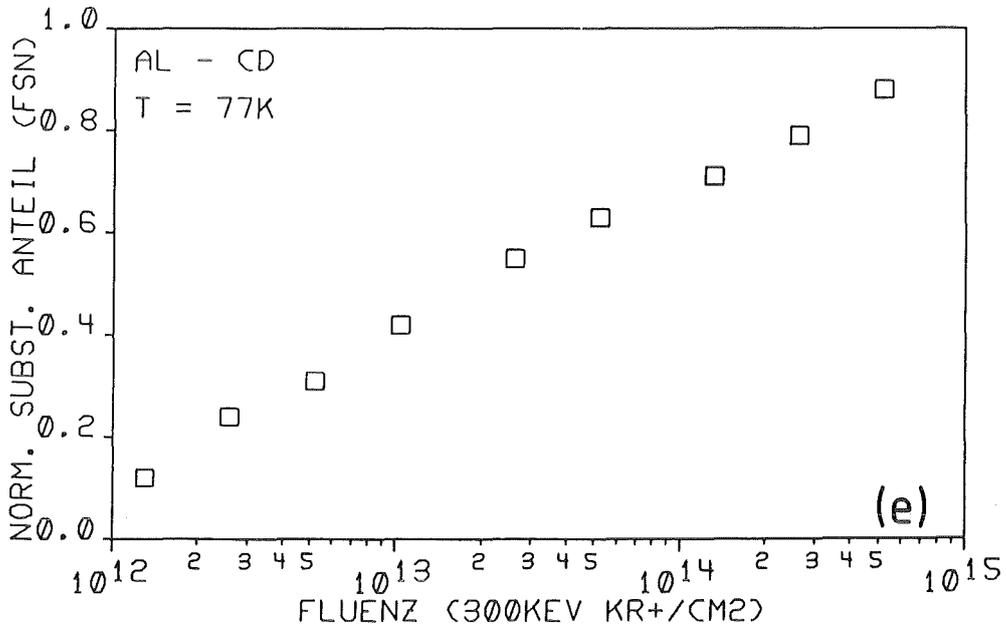
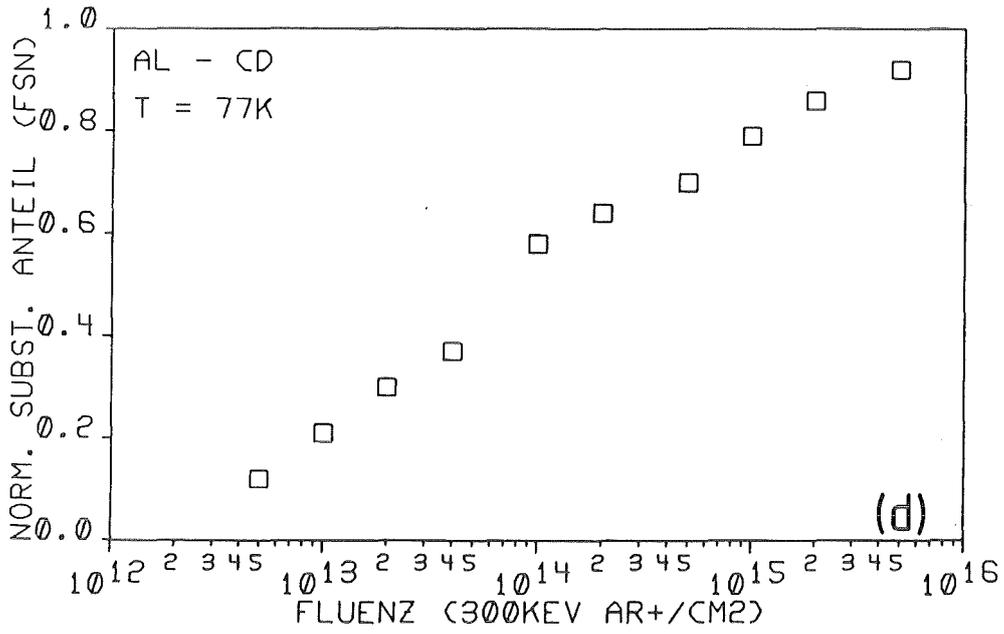


Abb. 55 Anstieg der normierten substitutionellen Komponente  $\delta_{SN}$  aufgetragen über der Nachbestrahlungsfluenz  $\phi$  bei Nachbestrahlungen mit H<sup>+</sup> (a) und Kr<sup>+</sup> (b) Ionen bei 5 K.





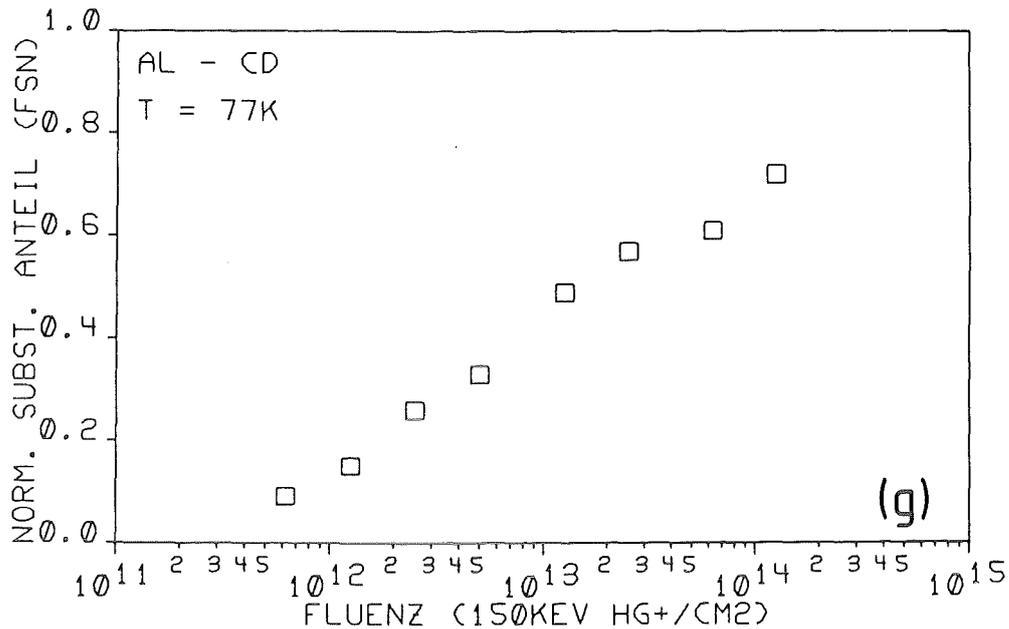


Abb. 56 Anstieg der normierten substitutionellen Komponente  $f_{SN}$  aufgetragen über der Nachbestrahlungsfluenz  $\phi$  bei Nachbestrahlungen mit  $H^+$  (a),  $He^+$  (b),  $Ne^+$  (c),  $Ar^+$  (d),  $Kr^+$  (e),  $Xe^+$  (f) und  $Hg^+$  (g) Ionen bei 77 K.

In Abb. 57 ist der substitutionelle Anteil  $f_s$  in Abhängigkeit von der Fluenz für  $H^+$  (a) und  $Kr^+$  (b) Nachbestrahlung aufgetragen. Für  $T_N = 5$  K ( $\Delta$ ) und  $T_N = 77$  K (o) besteht kein signifikanter Unterschied. Dieses Resultat ist sehr überraschend und zeigt, daß der Einfang von beweglichen Zwischen-gitteratomen zur Komplexausheilung und damit zur Erhöhung des substitutionellen Anteils in implantierten Systemen allenfalls ein untergeordneter Prozess sein kann.

Um die Resultate der Nachbestrahlungen mit leichten und schweren Ionen miteinander vergleichen zu können, muß die Fluenz in eine dpa-Skala (siehe Kap. 5.2) umgewandelt werden. Der substitutionelle Anteil  $f_s$  und der normierte substitutionelle Anteil  $f_{SN}$ , jeweils über einer dpa-Skala aufgetragen, für Nachbestrahlungen mit leichten und schweren Ionen bei 5 und 77 K sind in Abb. 58 und Abb. 59 dargestellt.

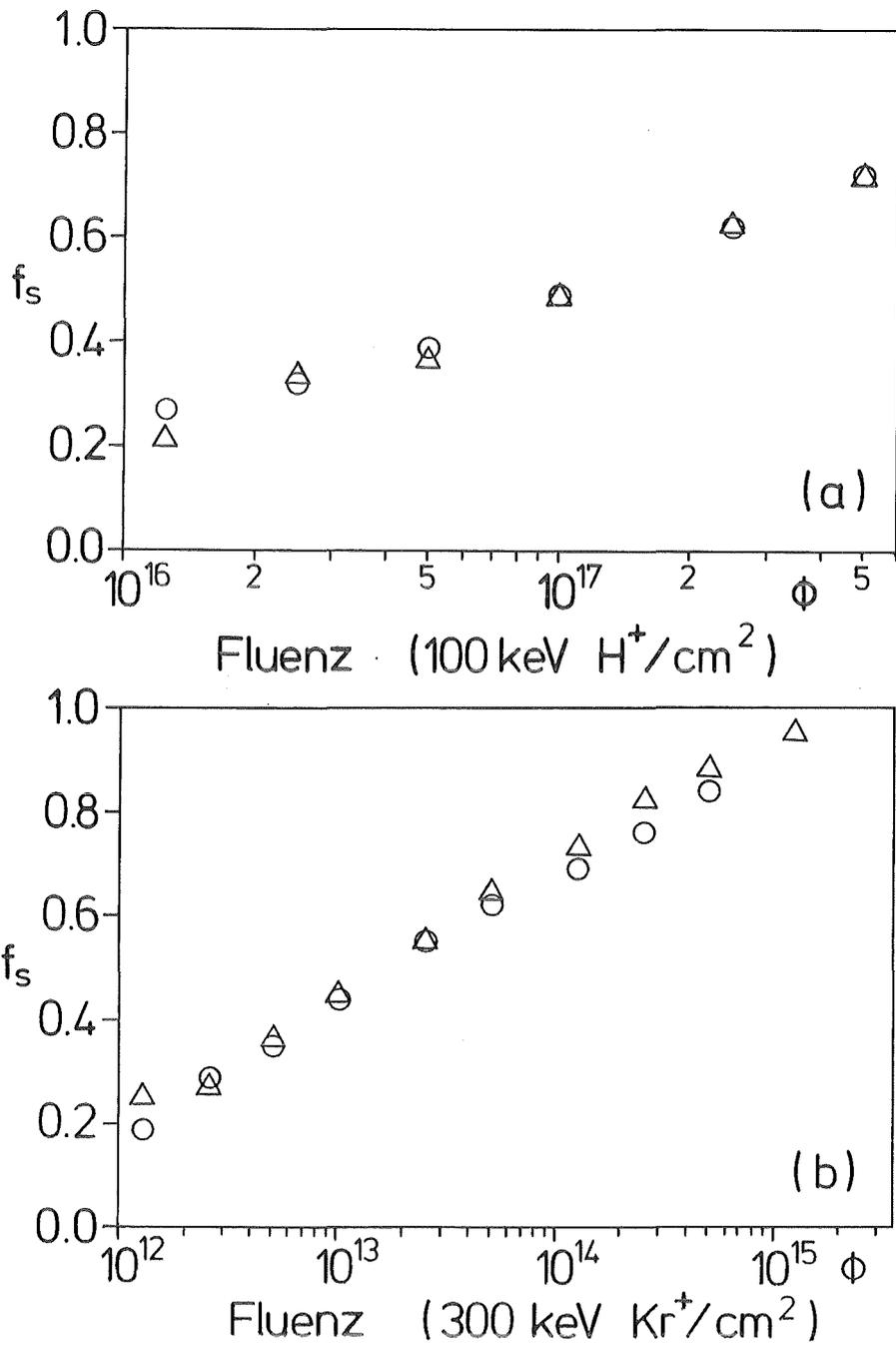


Abb. 57 Anstieg des substitutionellen Anteils unter Nachbestrahlung mit  $\text{H}^+$  und  $\text{Kr}^+$  Ionen bei 5 K ( $\Delta$ ) und bei 77 K ( $\circ$ ).

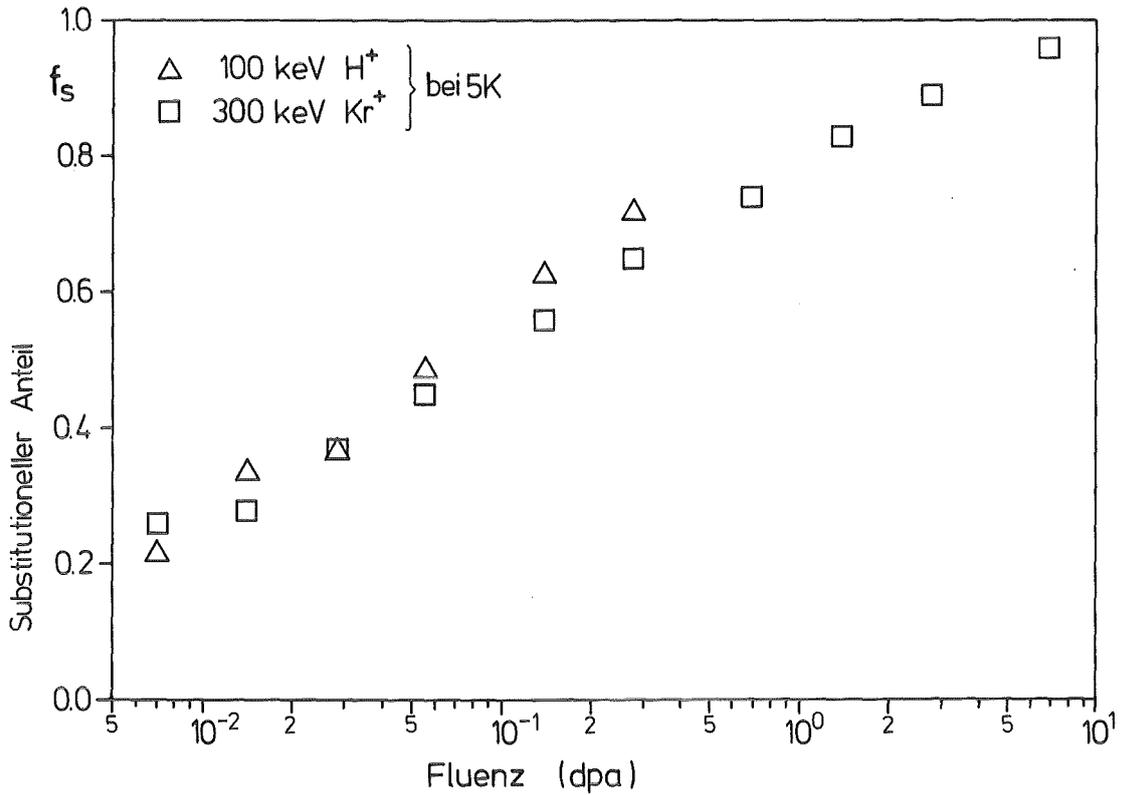


Abb. 58 Der substitutionelle Anteil von Cd in Al-Einkristallen in Abhängigkeit von der Nachbestrahlungsfluenz bei 5 K.

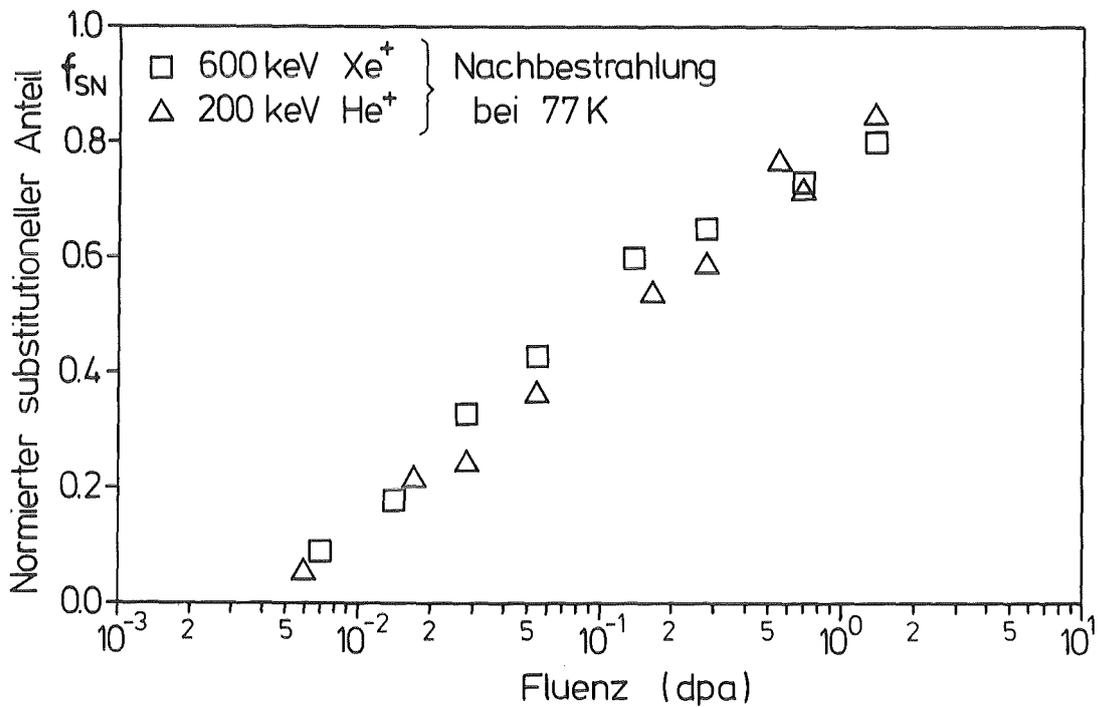


Abb. 59 Der normierte substitutionelle Anteil von Cd in Al in Abhängigkeit der Fluenz bei Nachbestrahlungen mit  $He^+$  und  $Xe^+$  Ionen bei 77 K.

Das überraschende Ergebnis dabei ist, daß sowohl für schwere, als auch für leichte Ionen nahezu die gleiche Effektivität resultiert. Auch dieses Verhalten läßt sich nicht mit der Komplexauflösung durch Einfang von beweglichen Eigenzwischen-gitteratomen erklären, da  $H^+$ ,  $He^+$ ,  $Kr^+$  und  $Xe^+$ -Ionen mit sehr unterschiedlichen Effektivitäten freie Punktdefekte erzeugen /21,118,119,120/.

Während der Nachbestrahlung mit  $He^+$  und  $Ar^+$  aufgenommene winkelabhängige Ausbeutekurven in  $\langle 100 \rangle$ - (siehe Abb. 60) und  $\langle 110 \rangle$ - (siehe Abb. 61) Orientierung zeigen, daß die Majorität der Cd-Atome unter Nachbestrahlung bei tiefen Temperaturen zunächst gestört substitutionelle Gitterplätze einnimmt.

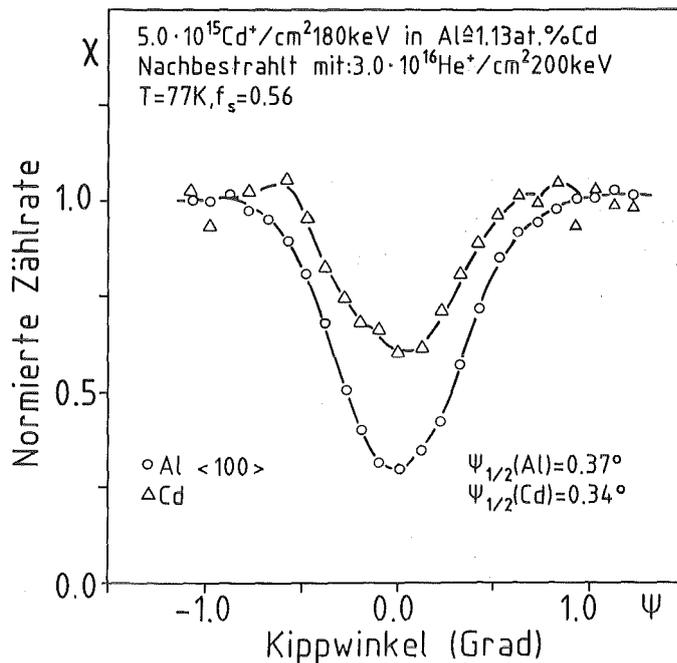


Abb. 60 Winkelabhängige Ausbeutekurven des AlCd Systems, nachbestrahlt mit  $3 \cdot 10^{16} He^+ / cm^2$ , 200 keV bei 77 K gemessen in  $\langle 100 \rangle$ -Orientierung.

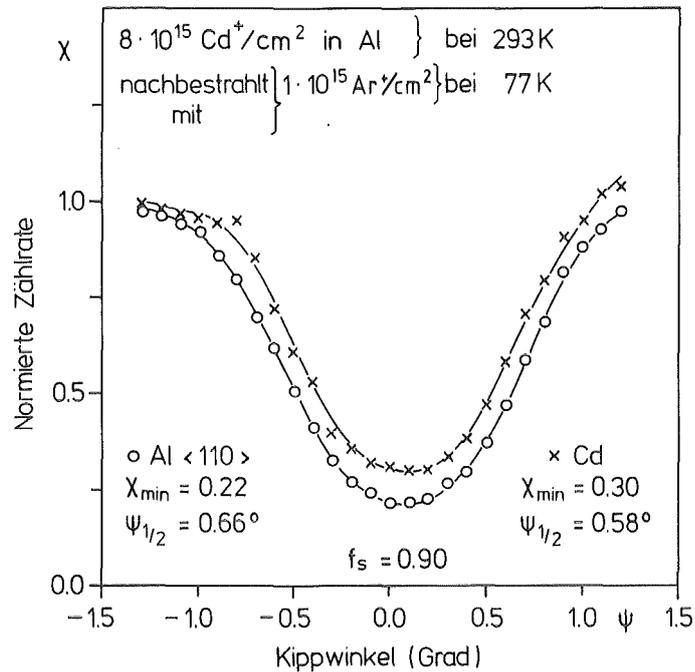


Abb. 61 Winkelabhängige Ausbeutekurven für Al und Cd, nachbestrahlt mit  $1 \cdot 10^{15} \text{ Ar}^+/\text{cm}^2$ , 300 keV bei 77 K, gemessen in  $\langle 110 \rangle$ -Orientierung.

Obwohl aus den Ergebnissen aus Kap. 5.1 mit größter Sicherheit ausgeschlossen werden kann, daß sich bei den gewählten Implantationsbedingungen größere Fremdatompräzipitate bilden, soll überprüft werden, ob es sich bei dem Prozess der Erhöhung der substitutionellen Komponente durch Nachbestrahlung um das Auflösen von Fremdatom-Leerstellen Komplexen oder um die Auflösung von angenommenen Präzipitaten unter Bestrahlung handelt. Falls bei der Implantation von Cd in Al Präzipitatbildung stattfindet, muß die Größe der Präzipitate von der Implantationsdosis abhängen.

Nelson et al. /111/ behaupteten, daß sich Präzipitate unter Bestrahlung nicht auflösen lassen, es stellt sich durch Teilauflösung und Neubildung bei hohen Fluenzen eine einheitliche Präzipitátgröße von  $r_p \approx 10 \text{ nm}$  ein. Chou und Ghoniem /110/ zeigen hingegen, daß Präzipitate, die kleiner als  $r_p \approx 0.5 \text{ nm}$  sind, durch

Bestrahlung vollständig aufgelöst werden können, größere Präzipitate können auch durch sehr dichte Kaskaden nicht aufgelöst werden. Demnach sollte der Anstieg der substitutionellen Komponente unter Bestrahlung abhängig von der Cd-Konzentration sein.

Um den Einfluß der Implantationsdosis zu prüfen, wurden Al-Einkristalle implantiert mit 0.2, 0.56 und 1.4 at.% Cd mit gleichen  $Kr^+$  Fluenzen bei 77 K nachbestrahlt (siehe Abb. 62).

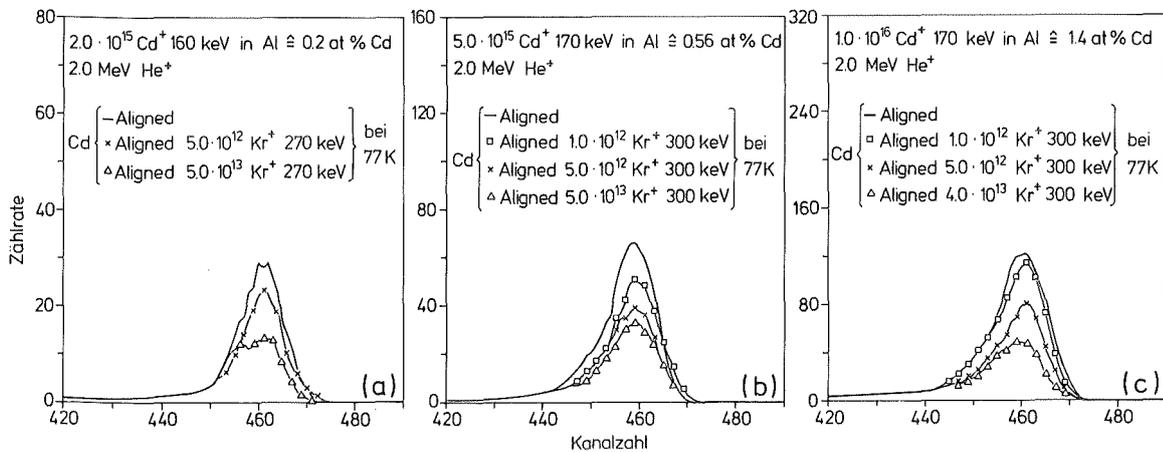


Abb. 62 Nachbestrahlung des AlCd Systems mit  $Kr^+$  Ionen bei maximalen Cd-Konzentrationen von 0.2 (a), 0.56 (b) und 1.4 (c) at.% Cd. Gezeigt ist jeweils nur das Cd-Signal.

Den maximalen Cd-Konzentrationen von 0.2, 0.56 und 1.4 at.% entsprechen mittlere Distanzen der Cd-Atome von 2.03, 1.44 und 1.06 nm. Nach Auswertung ergibt sich, daß der Anstieg der substitutionellen Komponente unabhängig von der Cd-Konzentration ist.

Um zu prüfen, ob bei hohen Cd-Konzentrationen Präzipitate gebildet werden, wurde ein Al-Einkristall mit  $6 \cdot 10^{16} Cd^+/cm^2$ , 300 keV bei 77 K implantiert, was einer Spitzenkonzentration von 10.2 at.% Cd und einem mittleren Abstand der Cd-Atome von

0.55 nm entspricht. Nach dem Aufwärmen von 77 auf 293 K sank  $f_s$  von 0.94 auf 0.48. Durch anschließende Nachbestrahlung mit  $1 \cdot 10^{17} \text{ He}^+$ , 200 keV ( $\hat{=}$  0.55 dpa) bei 77 K konnte  $f_s = 0.94$  wieder erreicht werden (siehe Abb. 33d, S. 78 und 63). Dieses Ergebnis zeigt, daß selbst bei solch hohen Fremdatomkonzentrationen mindestens die Hälfte der Fremdatome nicht in Form von Präzipitaten vorliegen kann.

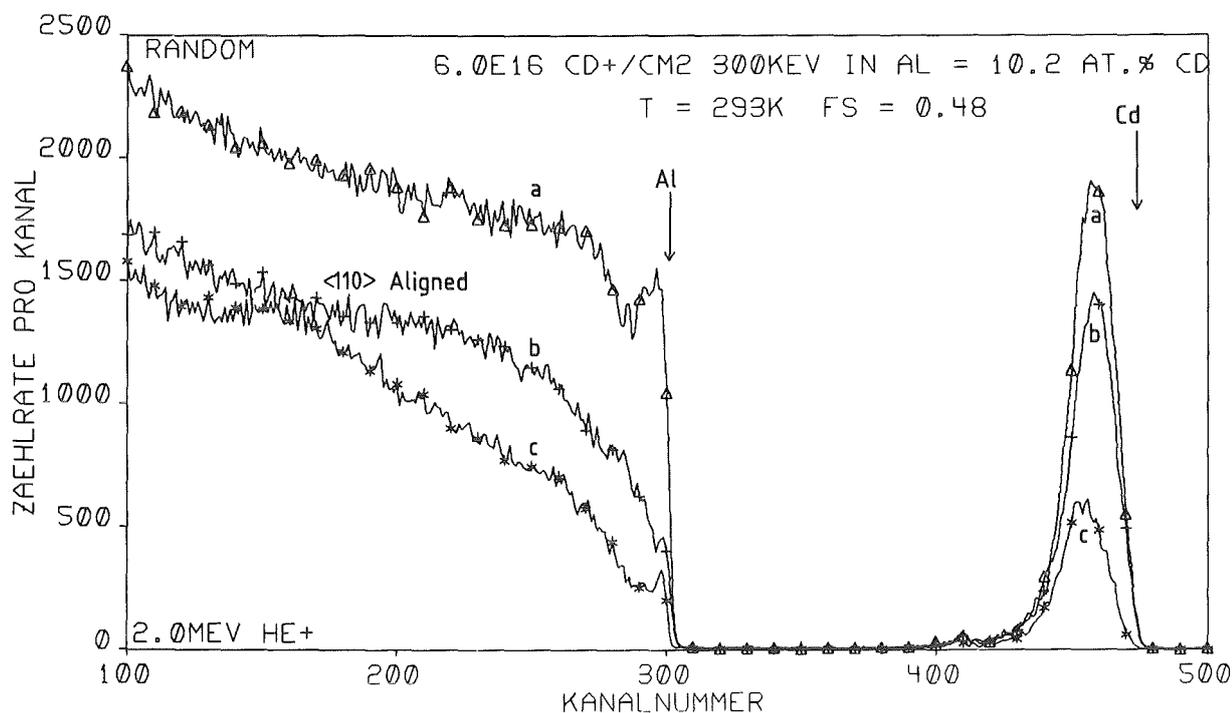


Abb. 63 Random (a) und Aligned (b) Rückstreuungsspektren der auf 293 K aufgewärmten Probe aus Abb. 33d. Aligned-Spektrum (c) nach der Nachbestrahlung mit  $1 \cdot 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ , 200 keV bei 77 K.

Unglücklicherweise konnte die Nachbestrahlung der auf 670 K getemperten Probe (siehe Kap. 5.1.2.2) mit Cd-Ausscheidung an der Oberfläche und Cd-Leerstellen Komplexen im Inneren aus zeitlichen Gründen vor der Fertigstellung dieser Arbeit nicht mehr durchgeführt werden.

### 5.2.2 Nachbestrahlung des implantierten Aluminium-Antimon Systems

Das System AlSb besitzt mit  $\Delta H_{\text{sol,el}} = 11.1 \text{ kJ/mol}$  im Vergleich zum AlCd System ( $\Delta H_{\text{sol,el}} = 14.2 \text{ kJ/mol}$ ) einen kleineren Wert der Lösungswärme /9/. Die Fehlanpassungsenergie  $\Delta H_{\text{size}}$  ist jedoch deutlich größer (AlSb:  $28.4 \text{ kJ/mol}$ , AlCd:  $6.1 \text{ kJ/mol}$ ). Eine bei  $T_I = 293 \text{ K}$  implantierte AlSb Probe wurde bei  $T_N = 77 \text{ K}$  mit  $300 \text{ keV Kr}^+$  Ionen nachbestrahlt. Der Anstieg von  $f_{\text{SN}}$  mit der Fluenz ist in Abb. 64 gezeigt. Im Bereich niedriger Fluenzen ist das Verhalten vergleichbar mit der  $\text{Kr}^+$  Nachbestrahlung des AlCd Systems. Die höhere Fehlanpassungsenergie beeinträchtigt das Auflösungsverhalten unter Bestrahlung nicht. Bei höheren Fluenzen erfolgt eine stärkere Auflösung. Dies ist vermutlich der niedrigeren Lösungswärme zuzuschreiben.

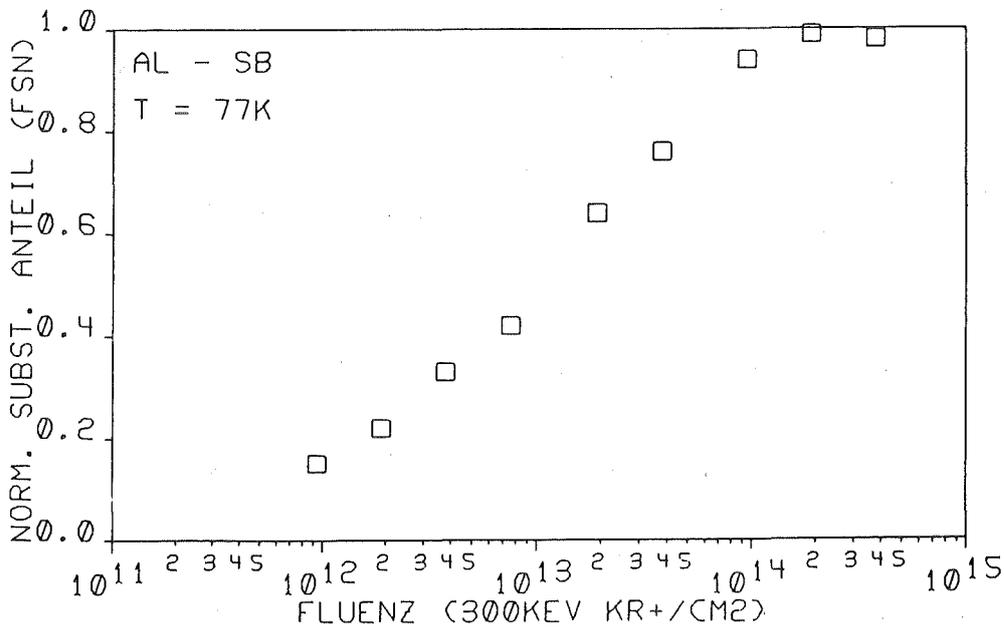


Abb. 64 Anstieg des normierten substitutionellen Anteils  $f_{\text{SN}}$  mit der  $\text{Kr}^+$  Nachbestrahlungsfluenz im implantierten AlSb System.

### 5.2.3 Nachbestrahlung des implantierten Aluminium-Indium Systems

In einen Al-Einkristall wurden bei 77 K 0.55 at.% In implantiert. Nach dem Aufwärmen auf 293 K fiel  $f_s$  von 0.83 auf einen niedrigen Wert. Danach wurde die Probe bei 77 K mit 100 keV  $H^+$ -Ionen nachbestrahlt. Die winkelabhängigen Ausbeutekurven bei einer Fluenz von  $5.0 \times 10^{17} H^+ \hat{=} 0.28 \text{ dpa}$  sind in Abb. 65 aufgetragen.

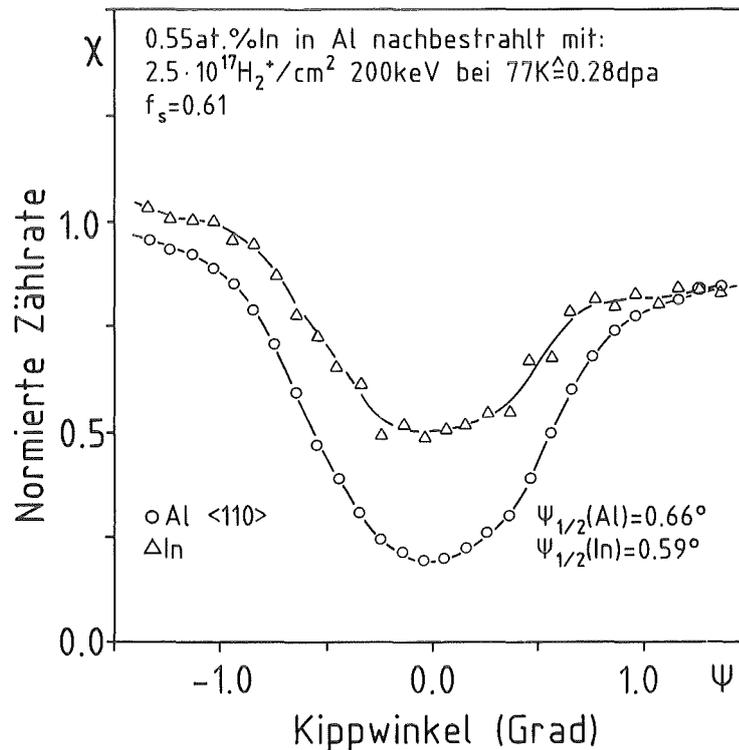


Abb. 65 Winkelabhängige Ausbeutekurven des implantierten und mit Protonen nachbestrahlten AlIn-Systems.

Die Unsymmetrie ist durch eine schlecht gewählte Kippebene bedingt. Die kritischen Winkel  $\psi_{1/2}(Al) = 0.66^\circ$  und  $\psi_{1/2}(In) = 0.59^\circ$  zusammen mit  $f_s = 0.61$  lassen auf einen substitutionellen und einen gestört substitutionellen Anteil von 61% schließen, der Rest

der In-Atome liegt in Form größerer Fremdatom-Leerstellen Komplexe vor. Der Anstieg von  $f_{SN}$  über  $\emptyset$  ist in Abb. 66 aufgetragen.

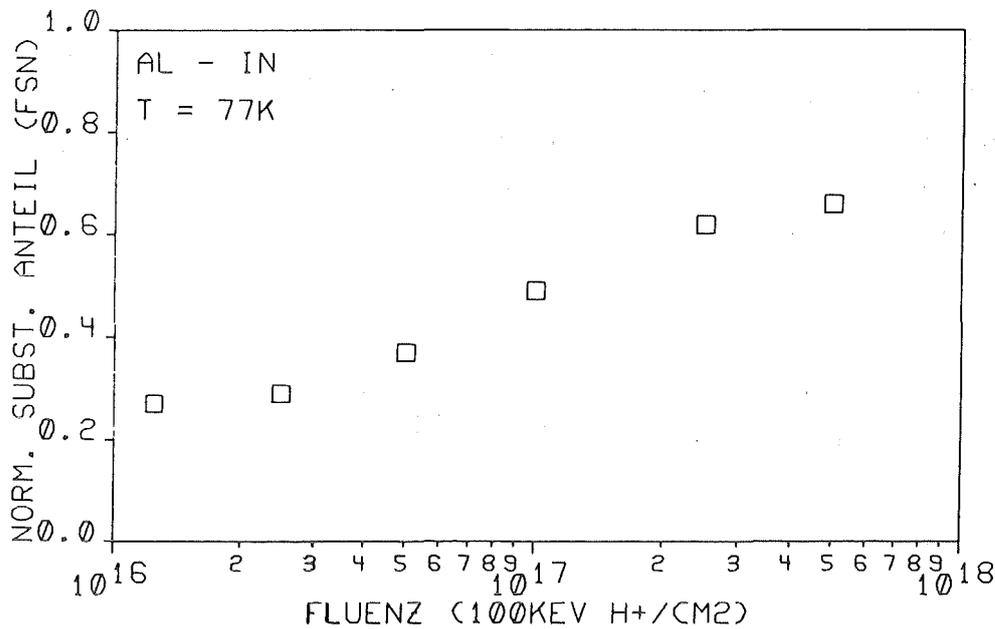


Abb. 66: Anstieg des normierten substitutionellen Anteils  $f_{SN}$  mit der Protonenfluenz im implantierten AlIn System

Ein nahezu gleiches Experiment wurde von Pleiter und Weigi /85,86/ unter Benutzung der PAC-Analysemethode durchgeführt. Die Resultate dieses Experimentes wurden bereits in Kap. 5.1.5 berichtet. An dieser Stelle sei nun auf das Ergebnis der Nachbestrahlung eingegangen. Die AlIn Probe wurde mit  $5 \times 10^{16} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ , 120 keV  $\cong$  0.5 dpa bei 80 K nachbestrahlt. Danach befanden sich  $50 \pm 2\%$  der In-Atome auf perfekt substitutionellen Gitterplätzen,  $6 \pm 1\%$  auf gestört substitutionellen Gitterplätzen und 44% in ausgedehnte Defekten. Insbesondere wurden keine Anzeichen für In-In Wechselwirkung gefunden, In-Cluster oder In-Prezipitate traten nicht auf. Die Übereinstimmung der Channeling-mit den PAC-Messungen ist überraschend gut.

5.2.4 Nachbestrahlung des implantierten Aluminium-Blei Systems

Das implantierte AlPb System wurde bei 77 K mit  $\text{He}^+$  und  $\text{Kr}^+$  Ionen nachbestrahlt. Auch in diesem System konnte die substitutionelle Komponente durch Nachbestrahlung nahezu auf den Wert von  $f_s = 0.57$ , der bei Direktimplantation bei  $T_I = 77$  K erreicht wird, gebracht werden. In Abb. 67 sind die normierten substitutionellen Anteile für  $\text{He}^+$  und  $\text{Kr}^+$  Bestrahlung aufgetragen.

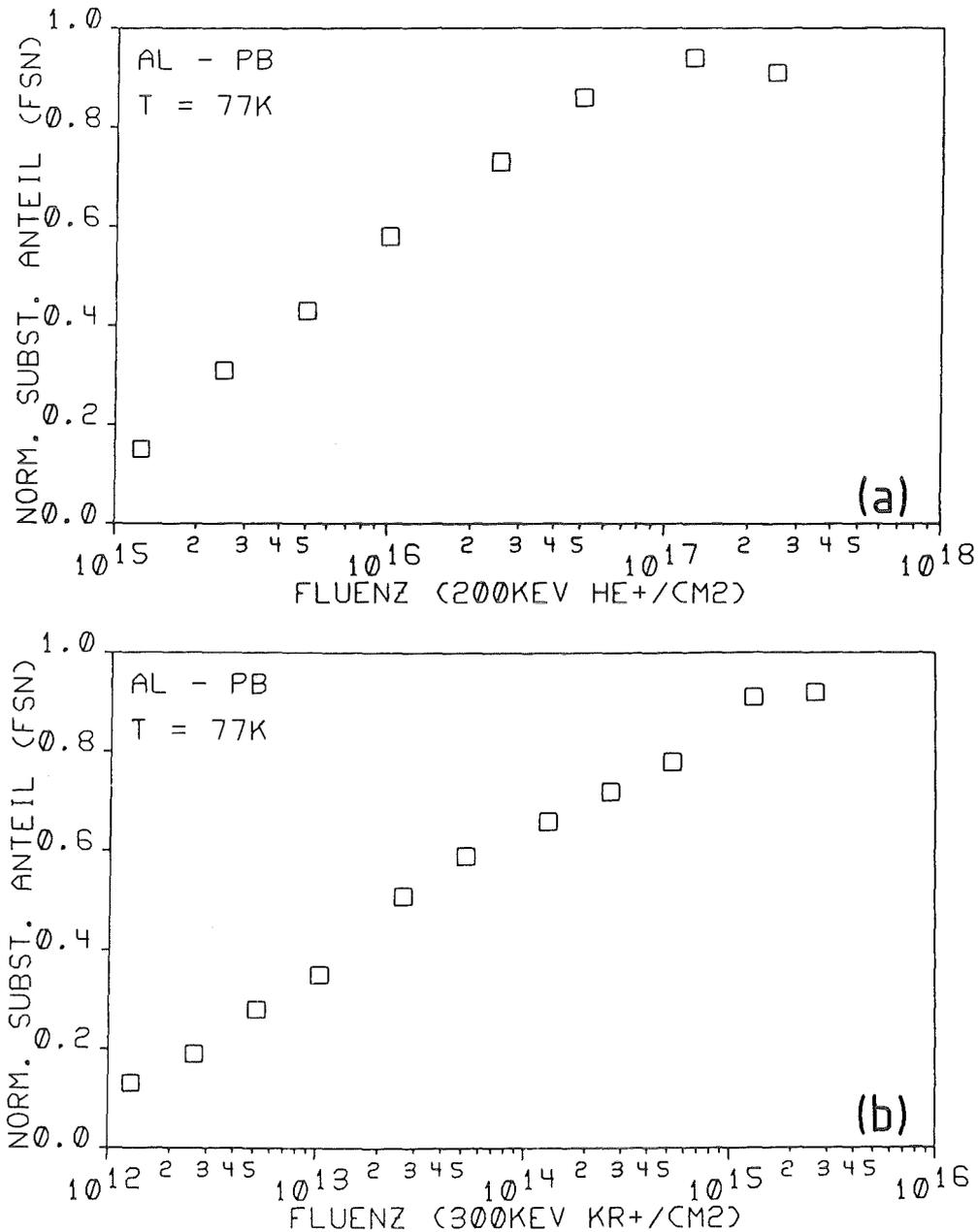


Abb. 67 Der normierte substitutionelle Anteil  $f_{SN}$  aufgetragen über der  $\text{He}^+$  (a) und  $\text{Kr}^+$  (b) Nachbestrahlungsfluenz.

Gegenüber dem AlCd System besitzt AlPb sowohl eine höhere positive Lösungswärme, als auch eine höhere Fehlanpassungsenergie (siehe Tabelle 5). In Abb. 68 sind die  $Kr^+$ -Nachbestrahlungen bei 77 K von AlCd und AlPb zusammen aufgetragen.

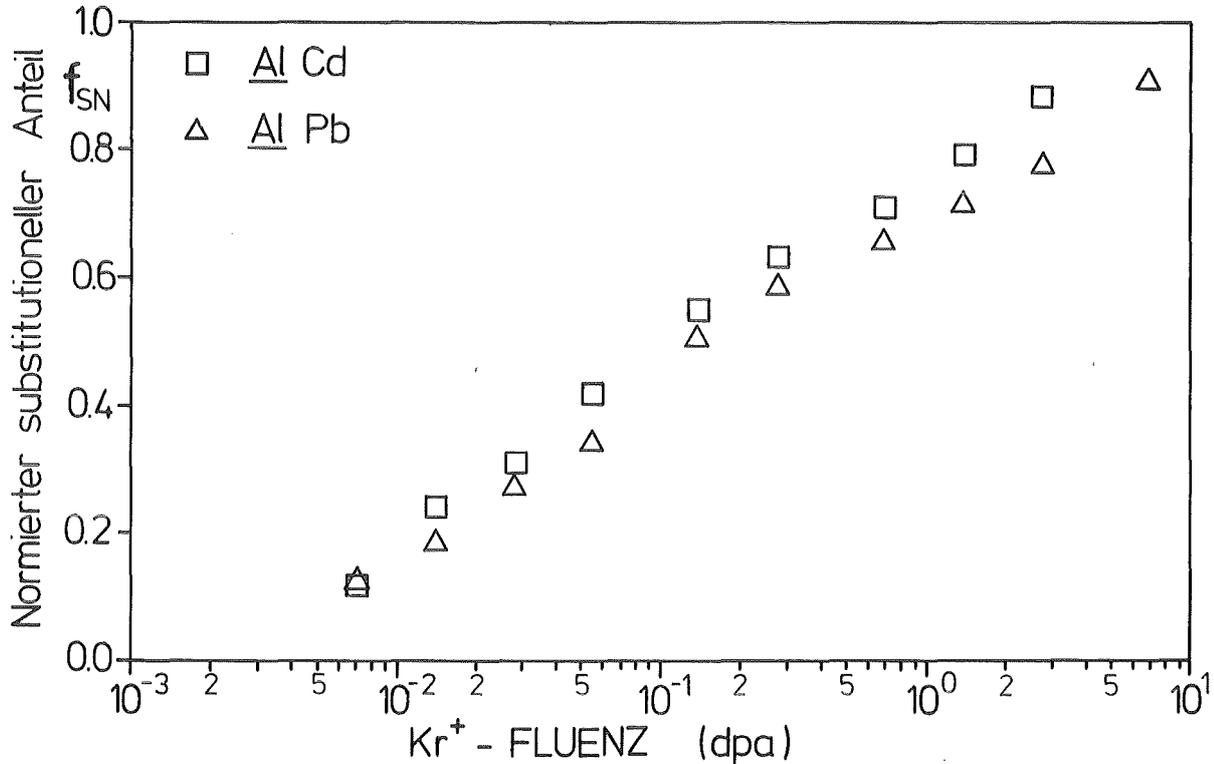


Abb. 68: Abhängigkeit des normierten substitutionellen Anteils  $f_{SN}$  von der  $Kr^+$  Nachbestrahlungsfluenz in den implantierten AlCd und AlPb Systemen.

Die Übereinstimmung ist recht gut, erst bei hohen Fluenzen laufen die Datenpunkte auseinander. Zusammen mit den Ergebnissen aus den  $Kr^+$ -Nachbestrahlungen der AlCd und AlSb Systeme kann geschlossen werden, daß die Fehlanpassungsenergie  $\Delta H_{size}$  keinen Einfluß auf den Anstieg der substitutionellen Komponente hat, dagegen die Lösungswärmen  $\Delta H_{sol,el}$  den Anstieg bei hohen Fluenzen beeinflusst.

#### 5.2.5 Effekte verursacht durch den Analysestrahl

Alle Channeling-Messungen dieser Arbeit wurden mit einem 2.0 MeV  $He^+$ -Strahl durchgeführt. Dieser Strahl seinerseits erzeugt einen Strahlenschaden im zu untersuchenden Material /56/. Inwie-

weit eine Beeinflussung der gemessenen Gitterplatzbesetzung und des gemessenen substitutionellen Anteils auftritt, ist zu prüfen.

Der Analysestrahl erzeugt Eigenzwischengitteratome und Leerstellen im Kristall, die meisten jedoch im Bereich des höchsten nuklearen Energieverlusts, der am Ende der Trajektorie ist, einige  $\mu\text{m}$  unterhalb der Kristalloberfläche und damit weit von der zu untersuchenden Region entfernt. Zur Abschätzung des durch den Analysestrahls erzeugten Strahlenschäden werden die in Kap.3.1 aufgeführten Gleichungen, die die Wechselwirkung von Strahl und Materie beschreiben, verwendet. Der Wirkungsquerschnitt für die Übertragung einer Energie  $>E_D$  an ein Al-Wirtsgitteratom ist  $\sigma \leq 2 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ . Mit dem modifizierten Kinchin-Pease Formalismus /44/ ergibt sich ein Verlagerungswirkungsquerschnitt von  $\sigma_v \leq 1 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$ . Dieser Wert liegt mehr als Faktor 5000 unter dem Verlagerungswirkungsquerschnitt von 300 keV  $\text{Kr}^+$ .

Eine bei 293 K implantierte AlCd Probe wurde bei  $T_N=77 \text{ K}$  mit dem Analysestrahl nachbestrahlt. In dem extrem empfindlichen Anfangsbereich der Erhöhung der substitutionellen Komponente wurde ab etwa 2000 LE (1 Ladungseinheit (LE) =  $5 \times 10^{-8} \text{ Cb/mm}^2$ ) eine Beeinflussung von  $f_s$  festgestellt. Dies entspricht einem Wert von  $8 \times 10^{-3} \text{ dpa}$ . Bis zu 20 000 LE wurde der Versuch fortgesetzt und dabei festgestellt, daß der Anstieg von  $f_s$  durch Bestrahlung mit 2.0 MeV  $\text{He}^+$ , skaliert über dpa, genau dem aller anderen Nachbarstrahlungsexperimenten entspricht. Die Aufnahme eines Random- oder Aligned-Spektrums mit typisch je 250 LE stört somit nicht. Dagegen sollte vermieden werden, im empfindlichen Anfangsbereich eine winkelabhängige Ausbeutekurve mit typischerweise  $25 \times 200 \text{ LE}$  aufzunehmen.

#### 5.2.6 Nachbestrahlung mit Molekülionen

Beim Beschuß eines Festkörpers mit Molekülionen wird vermutet, daß sich die Kaskaden, die von den Atomen des Moleküls erzeugt werden, zeitlich überlappen. Einige, meist experimentelle Arbeiten, berichten von nichtlinearen Effekten /49,119,121,122, 123,124/ andere, theoretische Arbeiten, schließen signifikante nicht-

lineare Effekte aus /125,126/.

Zwei jeweils bei 293 K mit  $5 \times 10^{15} \text{ Cd}^+/\text{cm}^2$ , 80 keV implantierte Al-Einkristalle wurden mit 150 keV  $\text{Hg}^+$  und 300 keV  $\text{Hg}_2^+$ -Ionen nachbestrahlt (siehe Abb. 69).

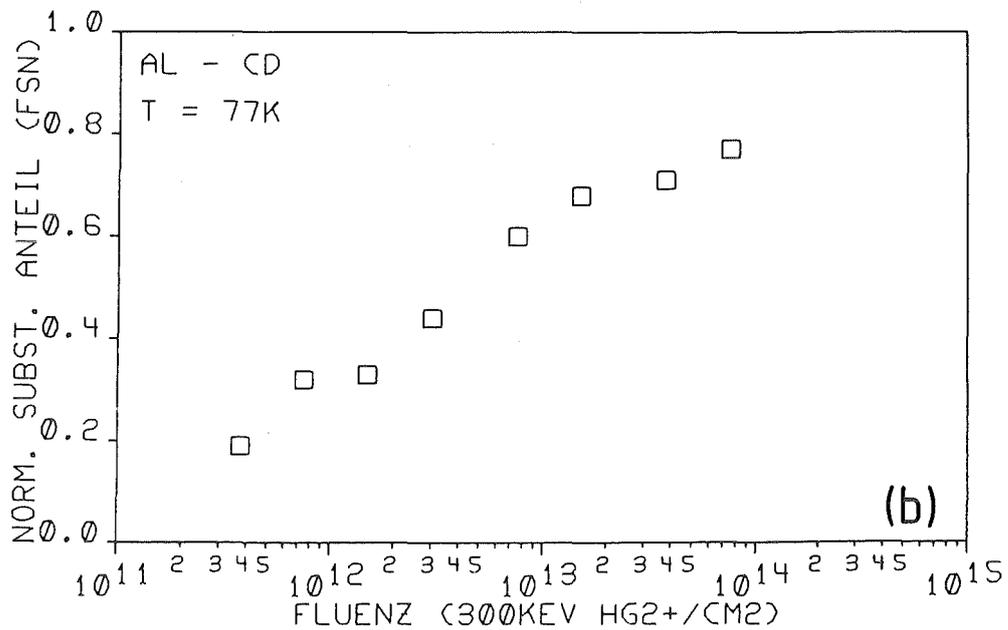
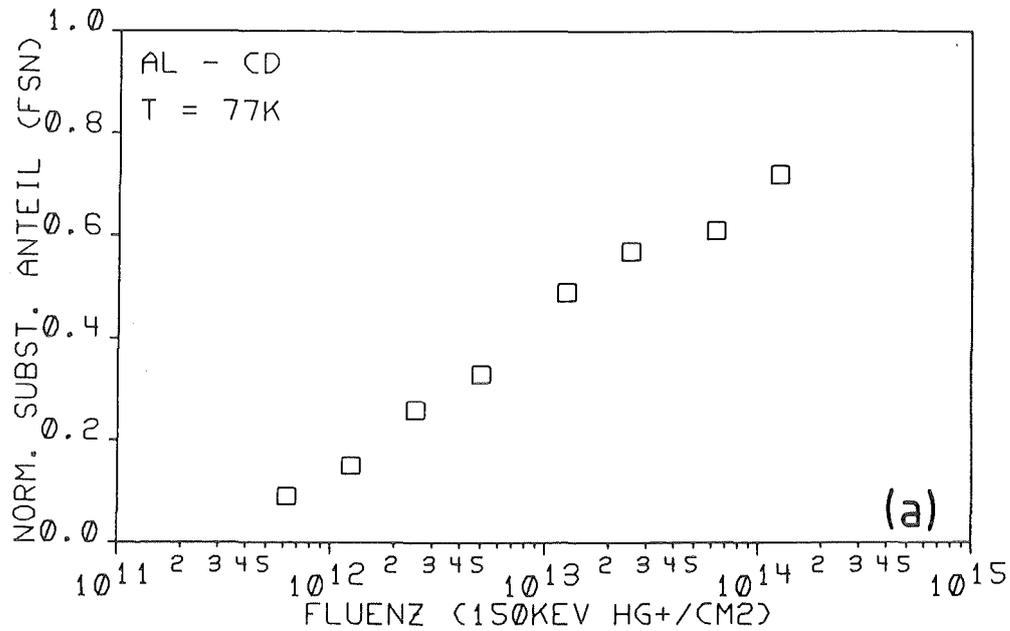


Abb. 69: Anstieg des normierten substitutionellen Anteils durch Nachbestrahlung des implantierten AlCd Systems mit Hg-Ionen (a) und Hg-Molekülen (b).

Der qualitative Verlauf der Datenpunkte ist identisch, jedoch liegen die Meßpunkte für die Hg-Moleküle deutlich höher. Die sichere Schlußfolgerung, daß auch bei dem Effekt der Erhöhung der substitutionellen Komponente durch Nachbestrahlung mit Molekülonen nichtlineare Effekte beobachtet werden können, kann nicht gezogen werden, da beim Experiment Unsicherheiten der Strommessung und Sekundärelektronenunterdrückung auftraten.

#### 5.2.7 Vergleich der Ergebnisse der Nachbestrahlungsexperimente mit theoretischen Modellen

Bei der Erhöhung der substitutionellen Komponente implantierter Systeme durch Nachbestrahlung bei Temperaturen unterhalb der Temperatur der Stufe I handelt es sich um einen physikalischen Effekt, über den außer in unseren Arbeiten /105,127,128/ bisher in der Literatur nicht berichtet wurde. Zur Beschreibung dieses Effektes existiert bislang kein physikalisches Modell. Im folgenden wird versucht, mit bekannten Modellen, die verwandte Effekte wie Keimbildung, Amorphisierung oder Transformationen beschreiben, die Meßergebnisse der Erhöhung der substitutionellen Komponente durch Nachbestrahlung zu interpretieren.

Zum Vergleich mit den Aussagen dieser Modelle wurde aus der Vielzahl der untersuchten Kombinationen von implantiertem System und verwendetem Ion zur Nachbestrahlung das System AlCd, nachbestrahlt mit  $Kr^+$ -Ionen, ausgewählt. Das implantierte AlCd System wurde am intensivsten untersucht und mit Ionen verschiedenster Masse von  $H^+$  bis  $Hg_2^+$  bestrahlt. In diesem Spektrum verwendeter Ionen stellt  $Kr^+$  ein Ion mittlerer Masse dar. In einem weiten Bereich der Fluenz von  $1.3 \times 10^{12}$  bis  $5.2 \times 10^{14} Kr^+/cm^2$  ( $\hat{=}$  0.007 bis 2.76 dpa) und bei Nachbestrahlungstemperaturen von 5 und 77 K wurde der substitutionelle Anteil der Cd-Atome mit guter Statistik gemessen. Zudem ist  $Kr^+$  das einzige Ion, mit dem sowohl das AlCd als auch die Systeme AlSb und AlPb nachbestrahlt wurden, somit sind Vergleiche möglich. In Diskussion und Darstellung der Resultate wird der substitutionelle Anteil  $f_s$  durch den normierten substitutionellen Anteil  $f_{SN}$  ersetzt, der den tatsächlichen Anteil der Fremdatome, die durch Nachbestrahlung auf substitutionelle Gitterplätze gebracht werden kann, wiedergibt.

### 5.2.7.1 Einfache Volumensättigung

Vor der Nachbestrahlung befinden sich nahezu alle der implantierten Fremdatome im Aluminium-Einkristall auf Gitterplätzen niedriger Symmetrie. In der Channeling-Messung ergeben sich daraus  $f_s$ -Werte nahe Null. Das Gesamtvolumen, in dem sich die Fremdatome befinden, und das auch nachbestrahlt wird, sei  $V_o$ . Das Modell der einfachen Volumensättigung nimmt an, daß jedes einfallende Ion bei der Nachbestrahlung ein Volumen  $V_K$  innerhalb  $V_o$  beeinflusst. In jedem Volumen  $V_K$  transformieren die Fremdatome von nichtsubstitutionellen auf substitutionelle Gitterplätze. Der substitutionelle Anteil ist  $f_{SN} = V_{TR}/V_o$ , dabei ist  $V_{TR}$  das transformierte Volumen. Wird ein bereits transformiertes Volumen erneut ganz oder teilweise getroffen, findet in dem bereits transformierten Volumen keine weitere Änderung statt. In Abhängigkeit von der Anzahl eingeschossener Ionen  $N$  ist das transformierte Volumen:

$$\begin{aligned}
 V_{TR}(0) &= 0 \\
 V_{TR}(1) &= V_K \\
 V_{TR}(2) &= V_K + V_K \left(1 - \frac{V_{TR}(1)}{V_o}\right) = -\frac{V_K^2}{V_o} + 2 V_K \\
 V_{TR}(3) &= \frac{V_K^3}{V_o^2} - 3 \frac{V_K^2}{V_o} + 3 V_K \\
 &\cdot \\
 &\cdot \\
 &\cdot
 \end{aligned}
 \tag{61}$$

Der Ausdruck für  $V_K$  ist ein unvollständiges Binom, das sich nach Ergänzung in folgender Form schreiben läßt,

$$V_{TR}(N) = (-V_o) \cdot \sum_{j=1}^N \binom{N}{j} \left(\frac{-V_K}{V_o}\right)^j
 \tag{62}$$

oder anschaulicher,

$$V_{TR}(N) = V_o - V_o \left(1 - \frac{V_K}{V_o}\right)^N
 \tag{63}$$

für  $V_K \ll V_o$  läßt sich  $\left(1 - \frac{V_K}{V_o}\right)^N$  durch  $e^{-N \frac{V_K}{V_o}}$  ersetzen /129/.  
 Daraus ergibt sich

$$f_{SN} = \frac{V_{TR}}{V_0} = 1 - e^{-N \frac{V_K}{V_0}} \quad (64)$$

Gleichung (64) beschreibt ein einfaches exponentielles Sättigungsverhalten. Der daraus abgeleitete Wirkungsquerschnitt für die Transformation von Fremdatomen von nichtsubstitutionellen auf substitutionelle Gitterplätze im Aluminium-Wirtsgitter ergibt sich nach der Ersetzung von N durch die Fluenz  $\phi$  zu:

$$\sigma_{TR} = \frac{1}{V_0} \cdot \left. \frac{dV_{TR}}{d\phi} \right|_{V_{TR}=0} = \left. \frac{df_{SN}}{d\phi} \right|_{f_{SN}=0} \quad (65)$$

Der Wirkungsquerschnitt in obiger Form ist gültig für eine Schicht begrenzter Dicke, unter den Randbedingungen, daß der nukleare Energieverlust  $F_D$  der Ionen und die Konzentration der Fremdatome in diesem Intervall konstant ist. Der Wirkungsquerschnitt ist unabhängig von der Absolutkonzentration der Fremdatome, solange diese einige at.% nicht übersteigt.

Der freie Parameter  $\frac{V_K}{V_0}$ , gleichbedeutend mit dem Transformationswirkungsquerschnitt  $\sigma_{TR}$  in Gleichung (64), wird mit einem Computer-Fitprogramm /130/ an die Meßwerte angepaßt. In Abb. 70 sind sowohl die Meßpunkte, als auch die berechnete Funktion (64) mit  $\sigma_{TR} = 5.9 \times 10^{-14} \text{ [cm}^2\text{]}$  dargestellt. Bis zu einer Fluenz von etwa  $1 \times 10^{13} \text{ Kr/cm}^2$ , wo ungefähr der Kaskadenüberlapp beginnt, werden die Meßpunkte durch die theoretische Kurve gut wiedergegeben, oberhalb dieser Fluenz ergibt sich eine deutliche Diskrepanz. Die Meßwerte steigen schwächer an, als es das Modell der einfachen Volumensättigung voraussagt. Der Anstieg bei hohen Fluenzen ist langsamer als exponentiell.

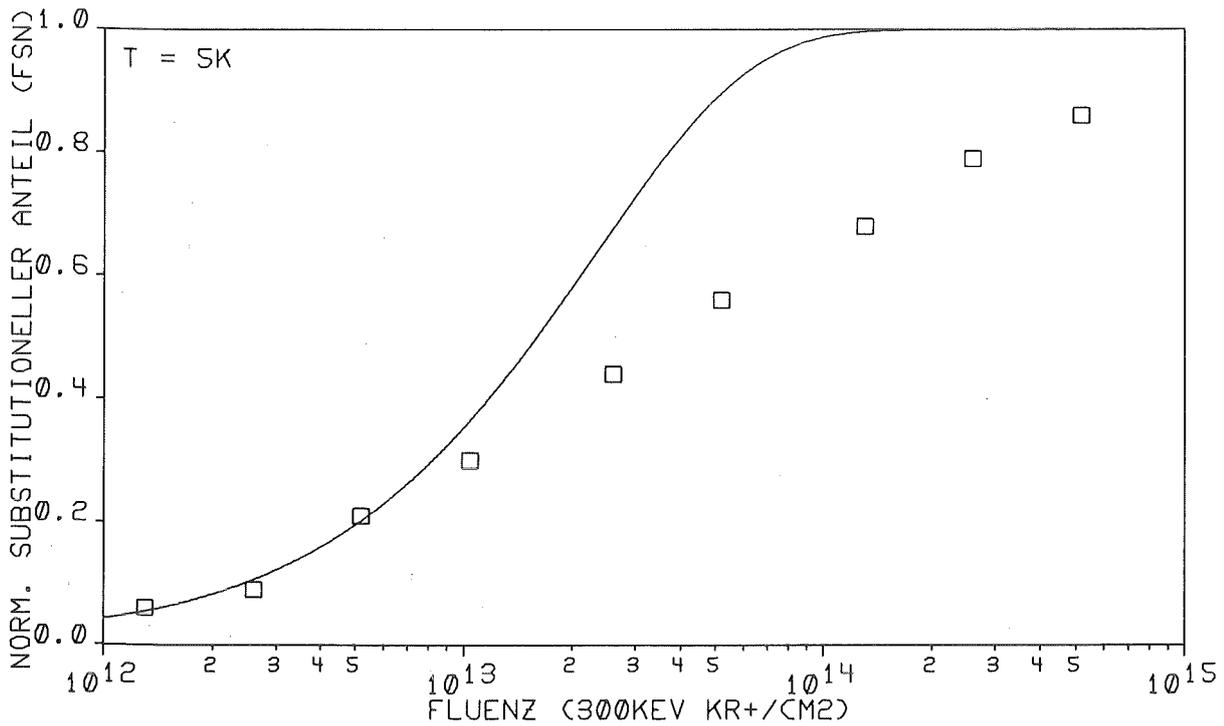


Abb. 70: Meßpunkte der Erhöhung des substitutionellen Anteils durch 300 keV Kr<sup>+</sup> Bestrahlung des implantierten AlCd Systems bei 5 K zusammen mit der nach Gleichung (64) berechneten Exponentialfunktion (einfache Volumensättigung).

### 5.2.7.2 Modell von Gibbons

Das Modell von Gibbons /131/ basiert auf dem Modell der einfachen Volumensättigung und ist besonders geeignet zur Beschreibung von Amorphisierungsprozessen durch Ionenbestrahlung /132/. Im Gegensatz zum Modell der einfachen Volumensättigung verlangt das Modell von Gibbons, daß ein Volumenelement n mal von Ionen getroffen werden muß, bevor es transformiert. Zur Transformation muß n-1 facher Überlapp vorliegen. Das transformierte Volumen nach Gibbons ist:

$$f_{SN}(N) = \frac{V_{TR}}{V_0} = 1 - \sum_{i=0}^{n-1} \frac{\left(\frac{V_K}{V_0} \cdot N\right)^i}{i!} \cdot e^{-\frac{V_K}{V_0} \cdot N} \quad (66)$$

N ist die Anzahl der eingeschossenen Teilchen und V<sub>0</sub>, V<sub>K</sub> und V<sub>TR</sub> haben die gleiche Bedeutung wie in Kap. 5.2.7.1. Für n=1 geht (66) in (64) über.

Unter Verwendung des Modells von Gibbons mit  $n=3$  gelang es Drigo et al. /132/, die Amorphisierung von  $Ni_3B$  durch Bestrahlung mit  $B^+$ - und  $Kr^+$ -Ionen quantitativ zu beschreiben.

In Abb. 71 sind zu den experimentellen Daten für  $T_N = 5\text{ K}$  berechnete Kurven für  $n=1$  (a),  $n=2$  (b) und  $n=3$  (c) eingezeichnet.

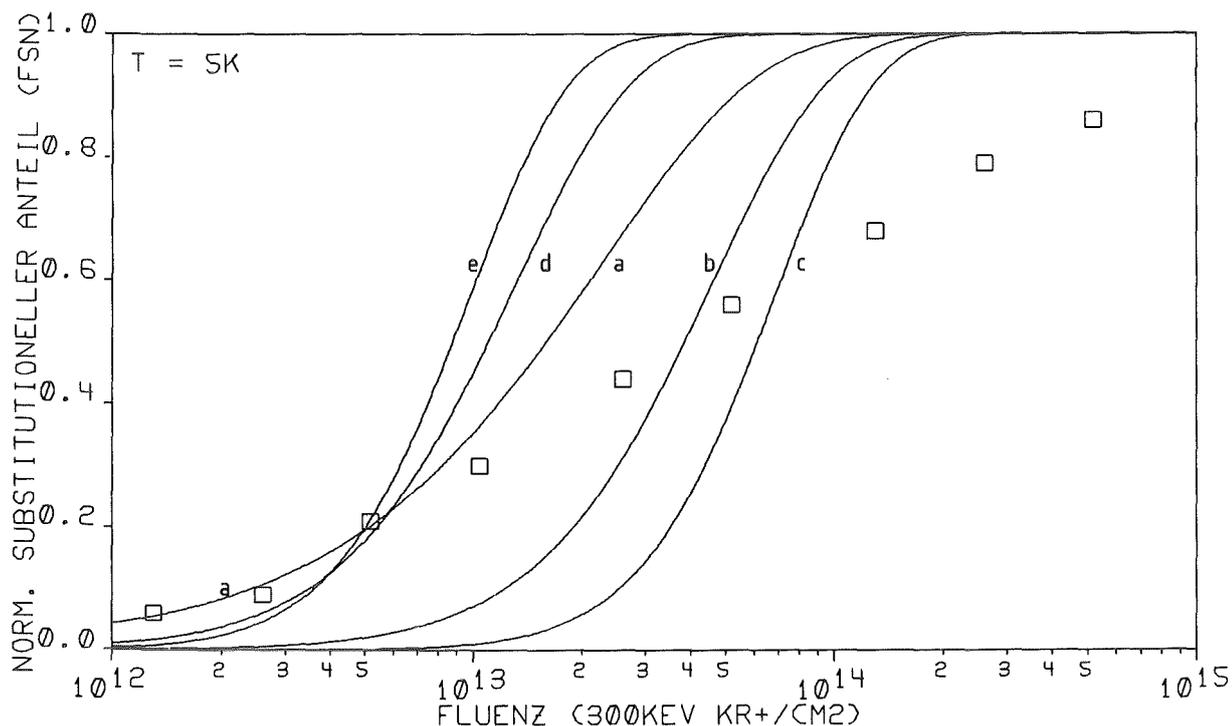


Abb. 71: Meßpunkte für  $T_N = 5\text{ K}$  zusammen mit den nach dem Modell von Gibbons berechneten Kurven (a,b,c,d,e, siehe Text).

Für  $\sigma_{TR}$  wurde jeweils der für  $n=1$  aus dem Modell der einfachen Volumensättigung ermittelte Werte von  $5.9 \times 10^{-14} [\text{cm}^2]$  eingesetzt. Für ansteigendes  $n$  wird die Kurve zu höheren Fluenzen hin verschoben, da bevor die Transformation stattfinden kann, das Volumen zunächst statistisch  $(n-1)$  mal mit Kaskadendurchsetzt sein muß. Mit steigendem  $n$  nimmt außerdem die Steigung der Kurven zu /131/. Dieses Verhalten ändert sich auch dann nicht, wenn für

$n=2$  und  $n=3$  die Wirkungsquerschnitte so angepaßt werden, daß die Datenpunkte bei niedriger Fluenz gut wiedergegeben werden. Kurve (d) stellt  $n=2$  mit  $\sigma = 3.5 \cdot \sigma_{TR}$  und Kurve (e)  $n=3$  mit  $\sigma = 7.0 \cdot \sigma_{TR}$  dar. Aus Abb. 71 ist deutlich ersichtlich, daß das Modell von Gibbons nicht in der Lage ist, die experimentellen Daten zu beschreiben.

### 5.2.7.3 Auflösung verschiedener Komplextypen

In Abb. 72 sind die experimentellen Daten der Erhöhung der substitutionellen Komponente des implantierten  $AlCd$  Systems durch Nachbestrahlung bei  $T_N = 5$  und  $77$  K mit  $Kr^+$ -Ionen dargestellt. Aufgetragen wurde in gleicher Weise, wie es auch zur Ermittlung radioaktiver Halbwertszeiten üblich ist /133/. Auf der Abszisse ist die Fluenz  $\phi$ , die gleich Fluß multipliziert mit Zeit ist  $\phi = \dot{\phi} \cdot t$ , auf der Ordinate ist der natürliche Logarithmus der Differenz  $(1-f_{SN})$  aufgetragen. Im Falle der Transformation der Fremdatome unter Bestrahlung auf substitutionelle Gitterplätze mit konstantem Wirkungsquerschnitt, ergäbe sich in dieser Darstellung eine Gerade, die dem Modell der einfachen Volumensättigung entsprechen würde. Die Datenpunkte beschreiben jedoch näherungsweise eine Parabel. Zu deren Beschreibung müßten viele mit zunehmender Fluenz abnehmende Wirkungsquerschnitte vorausgesetzt werden. Zur Verdeutlichung wurden die Datenpunkte in zwei Bereichen durch Geraden approximiert. Für jede Gerade wird  $\sigma_{TR}$ , das Verhältnis  $\frac{V_K}{V_O}$  und hieraus  $r_K$  bestimmt.  $V_O$  ist das bestrahlte Gesamtvolumen,  $V_K$  das individuelle Kaskadenvolumen und  $r_K$  der Kaskadenradius bei Annahme kugelförmiger Kaskaden. In Tabelle 7 sind die ermittelten Werte zusammen mit dem konventionell berechneten Verlagerungswirkungsquerschnitt  $\sigma_V / 24,42,44/$  angegeben. Der Auflösungsprozeß der Fremdatom-Leerstellen-Komplexe unter Bestrahlung beginnt bei niedrigen Fluenzen mit einem wohldefinierten Wirkungsquerschnitt, der für  $T_N = 5$  K ( $8.5 \cdot \sigma_V$ ) und für  $T_N = 77$  K ( $11.35 \cdot \sigma_V$ ) beträgt. Der weitere Anstieg ist langsamer als exponentiell und geht in  $\sigma_V$  über, für  $T_N = 5$  K wird  $\sigma_{TR}$  sogar etwas kleiner als  $\sigma_V$ .

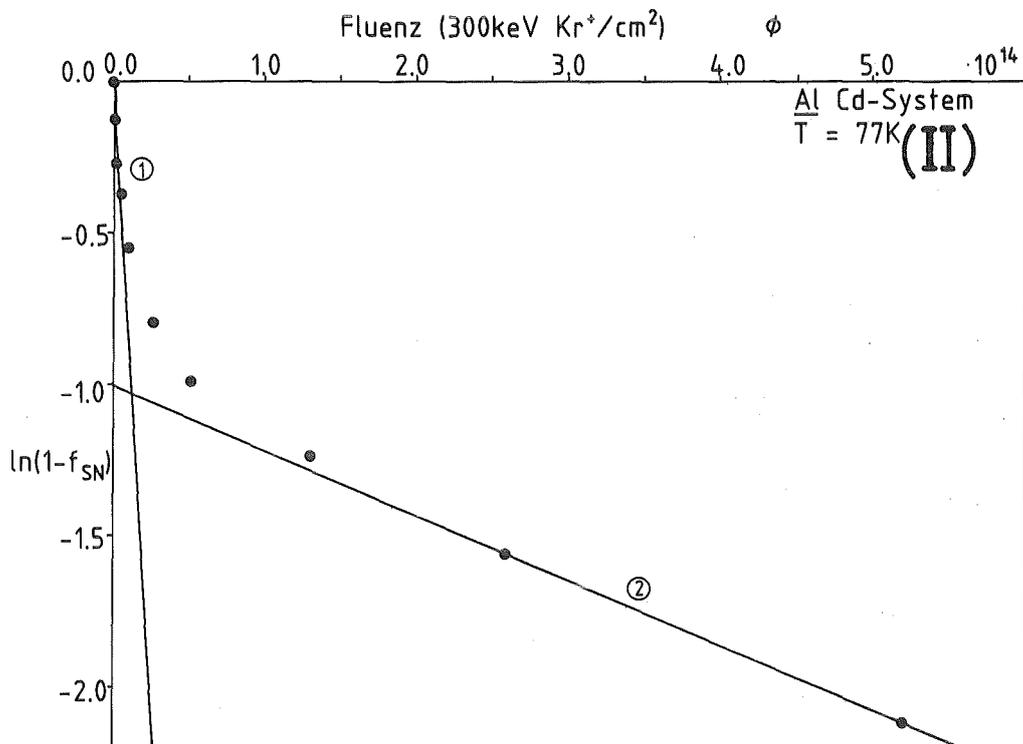
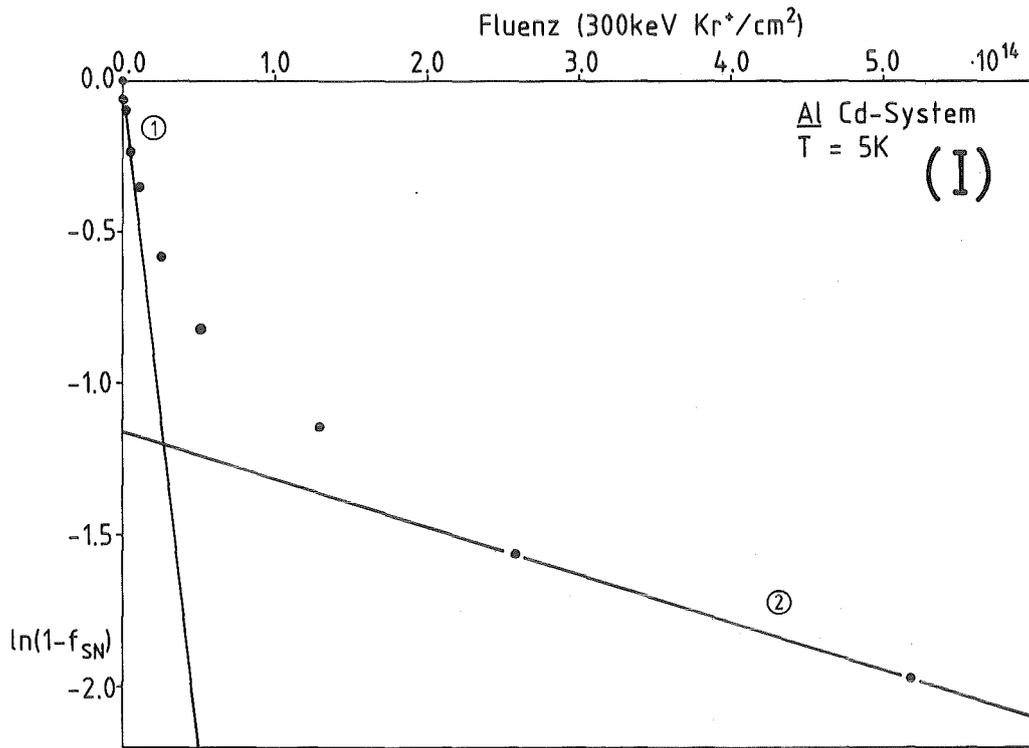


Abb. 72: Der natürliche Logarithmus von  $(1-f_{SN})$  aufgetragen über der  $\text{Kr}^+$ -Fluenz bei  $T_N = 5$  K (I) und  $T_N = 77$  K (II).

Bereich	$\sigma_{TR} (\text{cm}^2)$	$r_K (\text{nm})$	Anteil (%)
$T_N = 5 \text{ K}$			
①	$4.4 \cdot 10^{-14}$	4.00	38
②	$1.4 \cdot 10^{-15}$	1.25	-
$T_N = 77 \text{ K}$			
①	$5.9 \cdot 10^{-14}$	4.40	39
②	$4.7 \cdot 10^{-15}$	1.90	-
Verlagerungswirkungsquerschnitt nach /24,42,44/			
	$5.2 \cdot 10^{-15}$	1.95	-

Tabelle 7: Angegeben sind die berechneten Wirkungsquerschnitte für den Fremdatom-Leerstellen Komplexauflösungsprozeß, die daraus berechneten mittleren Kaskadenradien und der konventionell berechnete Verlagerungswirkungsquerschnitt; zu Abbildung 72.

Das Phänomen einer nichtexponentiellen Relaxation wurde bereits an anderen Systemen beobachtet, beispielsweise an Spingläsern. Eine Relaxation, die langsamer als exponentiell abläuft, tritt immer dann ein, wenn eine große Zahl stationärer, metastabiler Zustände relaxiert. Auf die Erhöhung der substitutionellen Komponente durch Nachbestrahlung angewandt bedeutet dies, daß verschiedene Fremdatom-Leerstellen Konfigurationen mit verschiedenen Wirkungsquerschnitten unter Bestrahlung sich ineinander umwandeln und auflösen. Da innerhalb der Kaskade 90% der Atome, die bewegt werden, sich nur einen Gitterabstand fortbewegen /134/, lösen sich zuerst hauptsächlich die einfachen Komplexe auf und geben damit ein direktes Maß für die Anzahl bewegter Atome innerhalb der Kaskade. Der Anteil der Komplexe, der in Bereich 1 aufgelöst wird, ist für  $T_N = 5$  und 77 K identisch (siehe Tab. 7). Das zeigt, daß die Komplexkonfigurationen zu Beginn der Bestrahlung identisch sind. Die Unterschiede bei hohen Fluenzen (Bereich 2) deuten auf unterschiedliche Komplexumformungen unter Bestrahlung bei  $T_N = 5$  und 77 K hin.

Die exponentielle Anfangssteigung und das Ausbleiben einer "Inkubationsfluenz" bestätigen dieses Modell qualitativ.

#### 5.2.7.4 Exponentialfunktion mit gebrochenem Exponenten

Aufgrund des parabelförmigen Verlaufs der Datenpunkte in der Auftragung  $\ln(1-f_{SN})$  über  $\phi$  (siehe Abb. 72) liegt es nahe, die Lage der Meßpunkte durch eine Funktion der Form:

$$f_{SN}(\phi) = 1 - e^{-\sigma \cdot \phi^m} \quad (67)$$

zu beschreiben. Ein physikalischer Prozeß, der das Auflösen von Fremdatom-Leerstellenkomplexen gemäß Gleichung (67) bewirkt, müßte folgende Beschaffenheit haben: Eine Kaskade mit Radius  $r_K$  löst eine Wolke von Eigenzwischengitteratomen aus, die sich im Raum ausbreitet und dabei verdünnt. Durchdringt diese Wolke einen Komplex, so wird er durch Einfang von einem oder mehreren Eigenzwischengitteratomen aufgelöst.

Mit einem Computer-Fitprogramm /130/ wurden die Parameter  $\sigma$  und  $m$  angepaßt.

$$\begin{array}{lll} T = 5 \text{ K} & \sigma = 1.70 \times 10^{-6} \text{ [cm}^2\text{]} & m = 0.41 \\ T = 77 \text{ K} & \sigma = 1.06 \times 10^{-5} \text{ [cm}^2\text{]} & m = 0.36 \end{array}$$

Zum Vergleich mit den Meßpunkten sind die berechneten Kurven für  $T_N = 5 \text{ K}$  in Abb. 73 (Kurve c) und für  $T_N = 77 \text{ K}$  in Abb. 74 (Kurve d) eingezeichnet. Die Kurven beschreiben den Bereich höherer Fluenz recht gut, bei kleinen Fluenzen ergeben sich Abweichungen. Das ist nicht überraschend, da für  $\phi = 0$  und  $m < 1$  die Steigung der Kurve unendlich wird, was physikalisch nicht sinnvoll ist.

Aus  $\sigma$  lassen sich die Kaskadenvolumina, und daraus die Kaskadenradien berechnen. Für  $T_N = 5 \text{ K}$  wird  $r_K = 1345 \text{ nm}$  und für  $T_N = 77 \text{ K}$  wäre  $r_K = 2476 \text{ nm}$ . Diese Kaskadengrößen sind bei einer tatsächlichen Dicke der implantierten Schicht von  $60 \text{ nm}$  unsinnig. Gleichung (67) scheint somit zur Beschreibung der Erhöhung der substitutionellen Komponente durch Nachbestrahlung wenig geeignet zu sein.

#### 5.2.7.5 Modell von Bansal und Ardell

Das Modell von Bansal und Ardell /135/ beschreibt mathematisch den Zusammenhang vom mittleren Abstand  $\langle \ell_r \rangle$  gleichmäßig im Raum verteilter Partikel des Radius  $r$  bei gegebenem Volumenerfüllungsgrad  $\Omega$ .

$$\frac{\langle \ell_r \rangle}{r} = \frac{e^{8\Omega}}{3\Omega^{1/3}} \cdot \Gamma\left(\frac{1}{3}, 8\Omega\right) \quad (68)$$

$\Gamma\left(\frac{1}{3}, 8\Omega\right)$  bezeichnet die unvollständige Gammafunktion. Das Modell setzt voraus, daß die Partikel sich gegenseitig nicht durchdringen sondern höchstens berühren. Für eine willkürliche Füllung des Raumes mit Kugeln einheitlicher Größe (total amorpher Zustand) beträgt der Raumerfüllungsgrad  $0.64$ . Die dichteste Kugelpackung,

die im kubisch-flächenzentrierten Kristall realisiert werden kann, besitzt dagegen einen Raumerfüllungsgrad von 0.7405. Das Modell von Bansal und Ardell ist deshalb nur für einen kleinen Raumerfüllungsgrad anwendbar.

Im Bereich der Raumerfüllung  $\Omega$  von 0.1 bis 0.5 und damit für  $\frac{\langle l_r \rangle}{r}$ -Werte zwischen 0.08 und 0.5 läßt sich Gleichung (68) durch

$$\frac{\langle l_r \rangle}{r} = 0.86 \cdot e^{-\frac{\Omega}{0.215}} \quad (69)$$

approximieren. Der Raumerfüllungsgrad  $\Omega$  wird durch den normierten substitutionellen Anteil  $f_{SN}(N)$ , der das Verhältnis von transformiertem zu gesamtem, bestrahltem Volumen  $\frac{V_{TR}}{V_0}$  ausdrückt, ersetzt.

$$\Omega = \frac{V_{TR}}{V_0} = f_{SN}(N) \quad (70)$$

$N$  ist die Anzahl der in das Volumen  $V_0$  eingestrahlteten Teilchen.  $\langle l_r \rangle$  wird durch

$$\langle l_r \rangle = \sqrt[3]{\frac{V_0}{N}} \cdot x(r) \quad (71)$$

ersetzt.

Die Funktion  $x(r)$  berücksichtigt die endliche Größe der transformierten Volumina. Für den durch Gleichung (69) approximierten Bereich kann  $x(r)$  Werte zwischen 0.2 und 0.04 annehmen.

Nach Ersetzung und Umformung ergibt sich:

$$N = \frac{V_0 \cdot x(r)^3}{0.86^3 \cdot r^3} \cdot e^{13.95 \cdot f_{SN}(N)} \quad (72)$$

An die Meßpunkte, die in Abb. 73 dargestellt sind, wurde mit einem Computer-Fitprogramm /130/ eine Gleichung der Form

$$\phi = a \cdot e^{b \cdot f_{SN}(\phi)} \quad (73)$$

angepaßt. Die beste Übereinstimmung wurde mit den Parametern  $a = 1.07 \times 10^{12}$  und  $b = 7.23$  erzielt. Die mit diesen Parametern

berechnete Funktion ist in Abb. 73 eingetragen (Ib). Durch Vergleich von Gleichung (72) mit Gleichung (73) läßt sich  $r$  berechnen.  $r$  ist der Radius der durch die Bestrahlung gebildeten transformierten Volumina.

$$N = \frac{V_0 \cdot x(r)^3 \cdot e^{6.72}}{0.64 \cdot r^3} \cdot e^{7.23 \cdot f_{SN}(N)} \quad (74)$$

$$\phi = 1.07 \times 10^{12} \cdot e^{7.23 \cdot f_{SN}(\phi)} \quad (75)$$

Nach Einsetzen und Ausrechnen ergibt sich mit  $V_0 = 6 \times 10^{18} \text{ \AA}^3$  als Produkt von bestrahlter Einheitsfläche  $\times$  Dicke der mit Fremdatomen implantierten Schicht:

$$r = 1.94 \times 10^3 \cdot x(r)$$

Der Wert  $x(r) \Big|_{\Omega=0.5} = 0.04$  wird eingesetzt.

$$r = 7.75 \text{ nm.}$$

Das Modell von Bansal und Ardell auf den Effekt der Erhöhung der substitutionellen Komponente im AlCd System durch Nachbestrahlung bei 5 K mit 300 keV  $\text{Kr}^+$  Ionen angewandt ergibt nach Einsetzen der experimentellen Daten einen Wert von 7.8 nm für den Radius der transformierten Volumina. Dieser kann in erster Näherung mit dem Radius der Kaskade gleichgesetzt werden.

Dieses Ergebnis ist mit Vorbehalt zu betrachten. Das Modell erlaubt die gegenseitige Durchdringung transformierter Volumina nicht, reale Kaskaden überlappen jedoch ab Fluenzen  $\gtrsim 10^{13}$  [Teilchen/cm<sup>2</sup>] /38/. Die in Gleichung (69) vorgenommene Approximation ist nur für einen kleinen Bereich der Raumerfüllung gültig. Das Verhältnis von mittlerem Abstand der transformierten

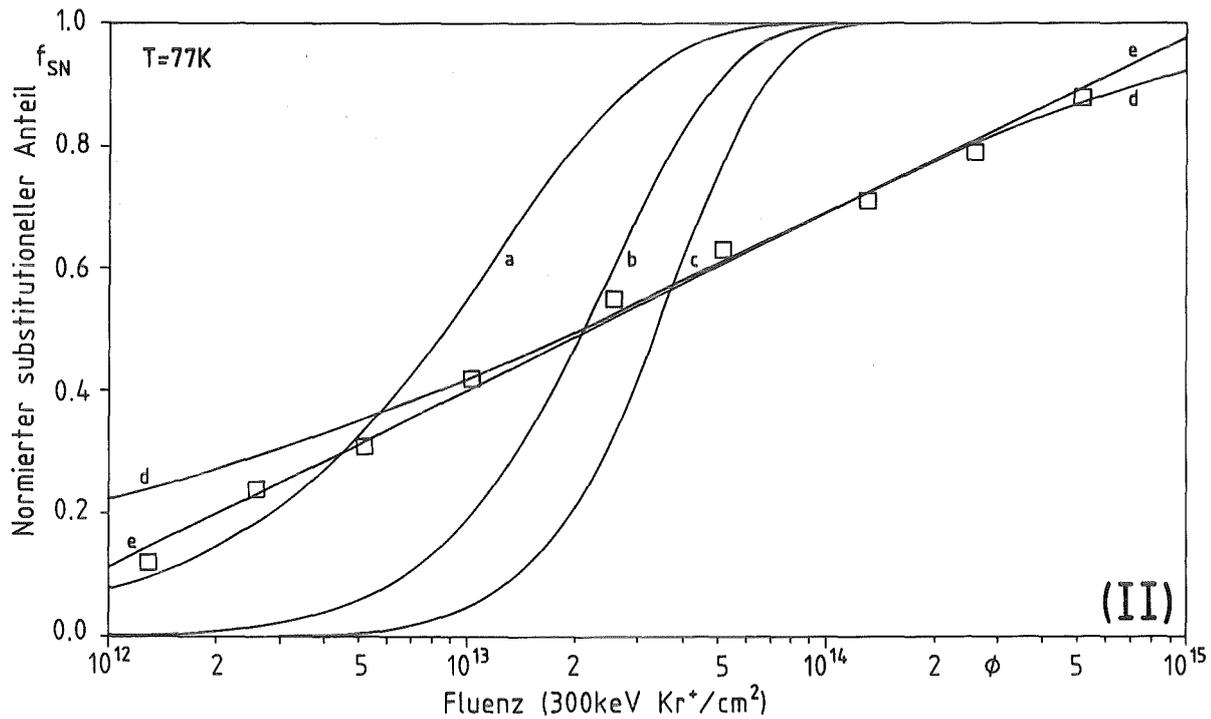
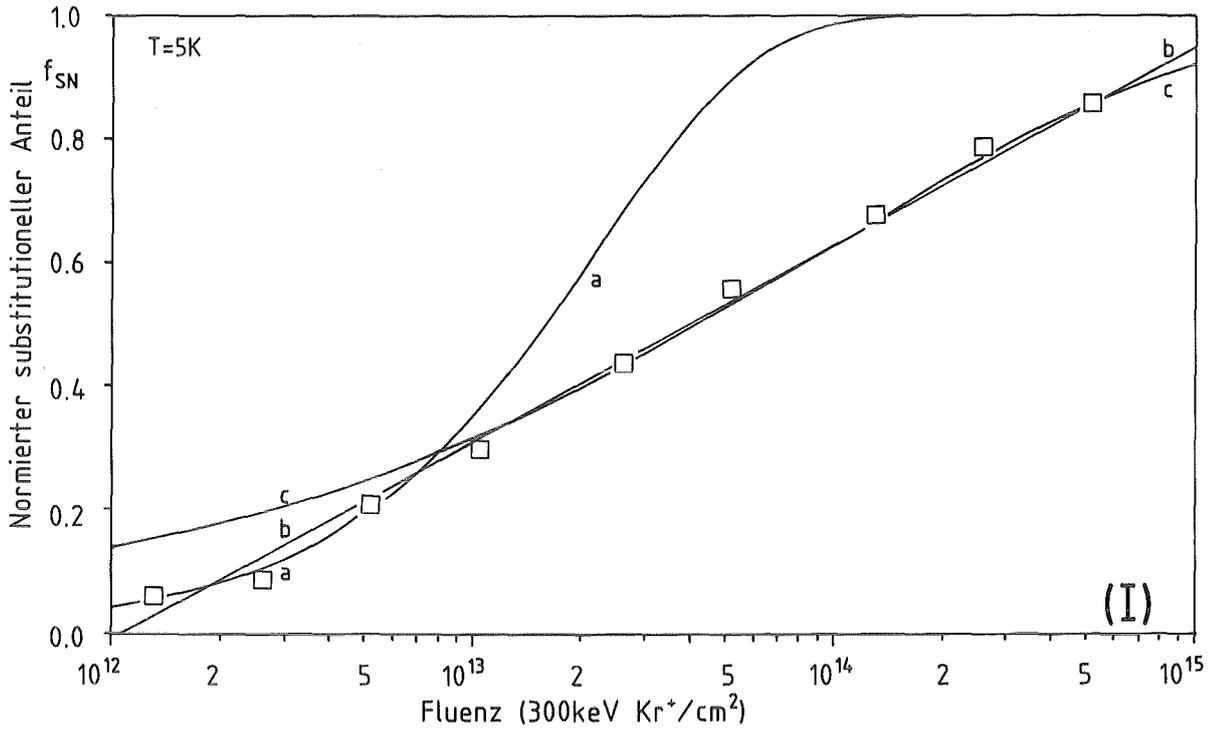


Abb. 73: Experimentelle Daten des Anstiegs des normierten substitutionellen Anteils mit der  $Kr^+$  Nachbestrahlungsfluenz bei  $T_N=5$  K (I) und  $T_N=77$  K (II) zusammen mit den Kurven theoretischer Modelle.  
 I) a: einfach Volumensättigung; b: Fit an die Datenpunkte mit  $\ln$ -Funktion; c: Exponentialfunktion mit gebrochenem Exponenten.  
 II) a: einfache Volumensättigung; b und c: Modell von Gibbons; d: Exponentialfunktion mit gebrochenem Exponenten; e: Fit an die Datenpunkte mit  $\ln$ -Funktion.

Volumina zu deren Radien, das durch das Modell von Bansal und Ardell beschrieben werden kann, ist sehr begrenzt.

#### 5.2.7.6 Komplexauflösung durch Einfang von frei beweglichen Eigenzwischengitteratomen

Fremdatom-Leerstellen Komplexe lassen sich durch Einfang von frei beweglichen Eigenzwischengitteratomen auflösen. Swanson et al. /84,90/ haben die Systeme AlIn und AlSn bei 70 K mit  $\text{He}^+$  und  $\text{Kr}^+$  Ionen bestrahlt. Bei dieser Temperatur sind in Al die Eigenzwischengitteratome beweglich, die Leerstellen nicht. Die beweglichen Eigenzwischengitteratome wandern zu Senken, wie Versetzungen oder der Kristalloberfläche. Danach wurde der Kristall aufgewärmt, die Leerstellen werden ab der Temperatur der Stufe III (200-200 K) beweglich und können von den Fremdatomen eingefangen werden. Fremdatom-Leerstellen Komplexe werden gebildet. Nach erneutem Abkühlen der Probe auf 70 K werden diese Komplexe durch Bestrahlung mit  $\text{He}^+$ -Ionen über den Einfang beweglicher Eigenzwischengitteratome aufgelöst /89,90/. Die Rate der Komplexauflösung ist dabei gleich der Produktionsrate von Eigenzwischengitteratomen.

Der Auflösungsprozeß von Fremdatom-Leerstellen Komplexen durch den Einfang von beweglichen Eigenzwischengitteratomen wird durch vier Faktoren bestimmt:

1. Bei konstanter Eigenzwischengitteratomproduktionsrate ist die Auflösungsrate umgekehrt proportional zur Konzentration der Defektkomplexe.
2. Die Auflösungsrate ist abhängig von der Spezies des Fremdatoms. Fremdatome mit hoher positiver Lösungswärme haben hohe Fremdatom-Leerstellen Bindungsenergien und somit kleine Einfangradien für Eigenzwischengitteratome.
3. Die Auflösungsrate ist direkt proportional zur Effektivität der Erzeugung freier Eigenzwischengitteratome.

4. Bei Bestrahlung bei Temperaturen unterhalb der Temperatur der Stufe I findet keine Auflösung statt.

Von Messungen der Komplexauflösungsrate in Abhängigkeit von der Konzentration der Defektkomplexe wird in der Literatur nicht berichtet. Untersucht wurden im Bereich positiver Lösungswärme nur die Systeme AlIn und AlSn /90/ mit Werten der Lösungswärme von 30 und 19 kJ/Mol /9/. Die Effektivität der Erzeugung freier Eigenzwischengitteratome ist abhängig von der Dichte der Kaskade und der Subkaskaden und damit von den Massen des Ions und der Targetatome /21,118,119,120/. Verantwortlich dafür ist der "Thermal Spike", der in dichten Kaskaden für eine erhöhte Rekombination von Frenkelpaaren sorgt /21/. In 1 keV Kaskaden bleiben 50% der erzeugten Eigenzwischengitteratome als freie Einzeleigenzwischengitteratome bestehen, für höhere Energien sinkt dieser Anteil schnell auf 14% und bleibt konstant /136/. Die Effektivität der Defektproduktion in Al, bestimmt durch die Messung der Änderung des spezifischen Widerstands unter Bestrahlung ist 0.92 für  $H^+$ -Bestrahlung und sinkt für  $Ar^+$ -Bestrahlung bereits auf 0.6 /21/. Für höhere übertragene mittlere Energien wird ein Sättigungswert zwischen 0.4 und 0.5 erreicht. Swanson et al. bestrahlten das System AlSn, wobei sich die Sn-Atome vor der Bestrahlung zu 85% auf substitutionellen Gitterplätzen befanden, mit  $1.3 \times 10^{15} He^+$ , 1 MeV bei 35 K /137/ und mit  $1.0 \times 10^{13} Kr^+$ , 1 MeV bei 30 K /84/, der substitutionelle Anteil ( $f_g$ ) änderte sich dabei praktisch nicht. Über Nachbestrahlungen von Fremdatom-Leerstellen Komplexen bei Temperaturen unterhalb der Temperatur der Stufe I wurde, außer in unseren Arbeiten /92,105,127,128/, in der Literatur bislang nichts berichtet.

Die Erhöhung der substitutionellen Komponente durch Nachbestrahlung, über die in dieser Arbeit berichtet wird, kann mit dem Modell der Komplexauflösung durch Einfang von beweglichen Eigenzwischengitteratomen nicht erklärt werden. Im Gegensatz zu den Aussagen des Modells ist der beobachtete Auflösungsprozeß unabhängig von der Konzentration der Defektkomplexe, unabhängig von der Effektivität der Defektproduktion und findet auch unterhalb der Temperatur der Stufe I statt /105,127/.

### 5.2.7.7. Molekulardynamische Rechnungen

Über molekulardynamische Rechnungen der Kaskadenentwicklung und der postkaskaden Defektkonfiguration wird in der Literatur berichtet /25,26,52,125,134/. Entsprechende Computersimulationen, die Fremdatome und deren Gitterplatzbesetzung vor, innerhalb und nach der Einwirkung der Kaskade miteinschließen, existieren jedoch nicht. So ist es lediglich möglich zu versuchen, aus dem Vorhandenen analoge Schlüsse zu ziehen.

Die Kaskadenentwicklung ist durch drei aufeinanderfolgende Prozesse charakterisiert /25,26/:

- |                      |   |                      |
|----------------------|---|----------------------|
| I. Kollisionsphase   | } | "Displacement Spike" |
| II. Relaxationsphase |   |                      |
| III. Abkühlphase     | } | "Thermal Spike"      |

Die Beschreibung der einzelnen Phasen ist in Kap. 3.1.3 gegeben.

Es kann mit Sicherheit davon ausgegangen werden, daß Fremdatome in kleiner Konzentration sich in der Kollisionsphase ( $2 \times 10^{-13}$  s), in der die Atome verlagert werden, analog zu den Wirtsgitteratomen verhalten. Die Anzahl der verlagerten Fremdatome entspricht somit ihrer atomaren Konzentration im Wirtsgitter. In der Relaxationsphase ( $5 \times 10^{-13}$  s) findet ein ultraschneller Wiederaufbau der Kristallstruktur statt. Instabile Defekte rekombinieren. Aufgrund der extrem hohen "Abschreckgeschwindigkeit" bleibt den Fremdatomen in Metallen kaum eine andere Wahl, als einen substitutionellen Gitterplatz im kubischen Gitter einzunehmen.

In der Abkühlphase ( $2 \times 10^{-12}$  s) ist die kinetische Energie der Atome soweit abgesunken, daß Stöße, die zur Verlagerung eines Atoms führen, nicht mehr möglich sind. Dagegen ist diese Phase durch eine hohe Defektbeweglichkeit charakterisiert. Fremdatome auf substitutionellen Gitterplätzen, die aufgrund ihrer Größe das Gitter verspannen, sind in der Lage, diese mobilen Punktdefekte

einzufangen und stabile Fremdatom-Punktdefekt Komplexe zu bilden. Die aus den molekulardynamischen Rechnungen ermittelten Leerstellensprungraten innerhalb der Kaskade sind um eine Größenordnung höher als die thermodynamisch berechneten/26/.

Am Ende der Relaxationsphase entspricht die Anzahl der noch existenten Frenkelpaare dem modifizierten Kinchin-Pease Modell /17,44/. Die Anzahl der tatsächlich in der Kollisionsphase erzeugten Frenkelpaare ist 4 bis 10 mal höher /25,26,52/. In jeder individuellen Kaskade werden 4 bis 10 mal mehr Atome bewegt als konventionell berechnet.

Die geschilderte Kaskadenentwicklung mit allen Folgeprozessen gilt für jede individuelle Kaskade oder Subkaskade, die Spikeeffekte sind selbst in Kaskaden, die weniger als 10 Frenkelpaare erzeugen, wohlausgebildet /47/.

Die Erhöhung der substitutionellen Komponente durch Nachbestrahlung bei 5 K und damit die Auflösung von Fremdatom-Leerstellen Komplexen ist streng mit der Anzahl der innerhalb der Kaskade bewegten Atome verbunden. Der gegenüber dem konventionell berechneten Verlagerungswirkungsquerschnitt 8.5 mal größere gemessene Wirkungsquerschnitt des Auflösungsprozesses (s. Kap. 5.2.7.3.) korrespondiert sehr gut mit der um 4 bis 10 mal erhöhten Anzahl verlagerter Atome.

### 5.2.8. Diskussion der Ergebnisse

Es wurde gezeigt, daß der substitutionelle Anteil  $f_s$  von Fremdatomen, implantiert bei 293 K in Aluminiemeinkristalle, durch Nachbestrahlung bei  $T_N \leq 77$  K erhöht werden kann. Notwendige Voraussetzung dafür ist ein höherer Wert von  $f_s$  bei direkter Tieftemperaturimplantation im Vergleich zur Raumtemperaturimplantation (siehe Tabelle 3). Bei 293 K sind die implantierten Fremdatome mit Leerstellen assoziiert (siehe Kap. 5.1), so daß der Anstieg von  $f_s$  ein "Auflösen" von Fremdatom-Leerstellen Komplexen unter Bestrahlung beschreibt.

#### Zusammenfassung der Resultate

Die Effektivität des Prozesses der Erhöhung der substitutionellen Komponente durch Nachbestrahlung ist unabhängig von der Wahl des Ions bei gleichen implantierten Fremdatomen (siehe Abb. 58, 59 und 74). Die Unabhängigkeit von der Ionensorte impliziert eine Unabhängigkeit von der mittleren übertragenen Energie und von der Effektivität der Defektproduktion (Kaskadeneffektivitätsfaktor). Bei der Bestrahlung mit schweren Ionen werden freie Frenkelpaare mit deutlich geringerer Effektivität erzeugt, als bei Bestrahlung mit leichten Ionen /21, 118, 120/. Die Unabhängigkeit von der Effektivität der Defektproduktion schließt somit ein Ausheilen der Komplexe durch bewegliche Eigenzwischengitteratome als Hauptprozeß aus.

Auch unterschwellige Stöße sind als Ursache für den Auflösungsprozeß ausgeschlossen. Das Verhältnis der Energie deponiert in Verlagerungen zu der Energie, die in unterschweligen Stößen deponiert wird, ist 2.2 für  $H^+$ - und 130 für  $Kr^+$ -Bestrahlung /24/. Demzufolge würde man für Protonenbestrahlung eine deutlich größere Effektivität erwarten. Beobachtet wird ein Verhalten, das linear in  $F_D$  (Energiedeposition in Verlagerungen pro Einheits-tiefe) skaliert.

Der Anstieg von  $f_s$  unter Bestrahlung ist bei 5 und 77 K vergleichbar (siehe Abb. 57 und 74). Diese Beobachtung schließt das Auflösen der Fremdatom-Leerstellenkomplexe durch frei bewegliche Eigenzwischengitteratome als alleinigen Prozeß aus, da Eigenzwischengitteratome bei 5 K nicht beweglich sind.

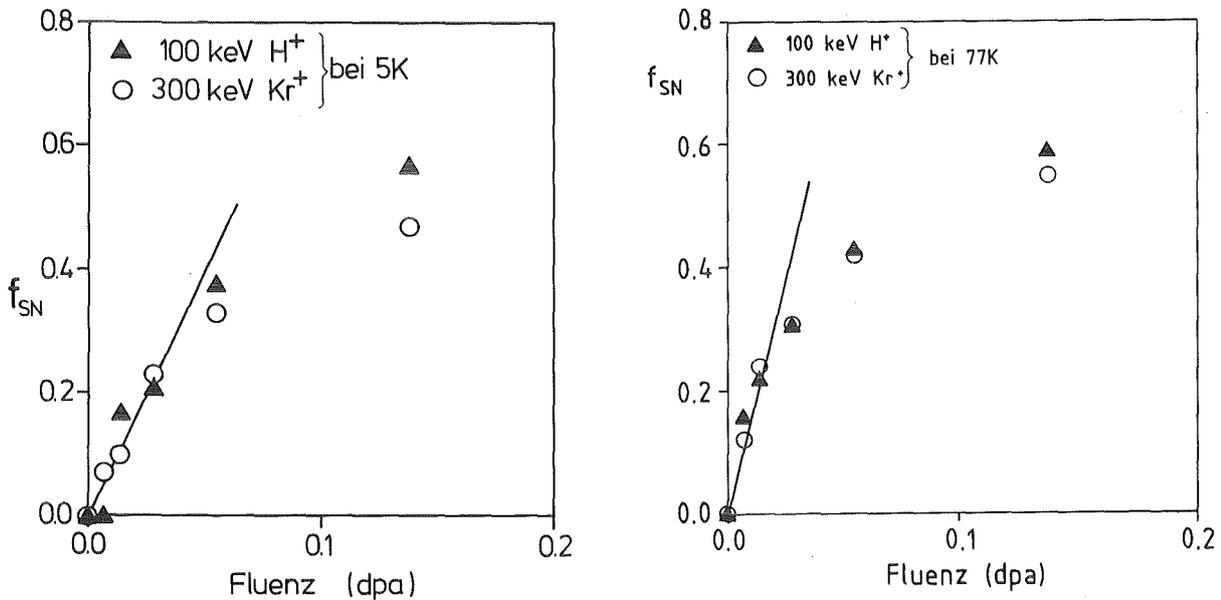


Abb. 74: Anstieg des normierten substitutionellen Anteils  $f_{SN}$  mit der H<sup>+</sup>- und Kr<sup>+</sup>-Bestrahlungsfluenz bei 5 und 77 K. Die Anfangssteigungen sind 8.5 (T=5 K) und 11.3 (T=77 K).

Der Anstieg von  $f_s$  ist auch unabhängig von der Konzentration der Fremdatome, solange deren gegenseitige Wechselwirkung vernachlässigt werden kann (s. Abb. 62). Damit ist das Ausheilen der Komplexe durch bewegliche Eigenzwischengitteratome ausgeschlossen, da zum Ausheilen einer größeren Anzahl von Komplexen mehr Eigenzwischengitteratome benötigt würden und sich damit eine Fremdkonzentrationsabhängigkeit des Ausheilprozesses ergeben müßte. Der Anstieg des normierten substitutionellen Anteils bei der Bestrahlung verschiedener implantierter Systeme ist ebenfalls identisch (s. Abb. 68, S. 126). Die Erhöhung des substitutionellen Anteils unter Bestrahlung scheint somit ein reiner Kaskadeneffekt zu sein.

Die Unabhängigkeit des Auflösungsprozesses von der implantierten Fremdatomkonzentration erlaubt es, einen Ausheil- bzw. Transformationswirkungsquerschnitt anzugeben. Das Verhältnis von Transformations- zu Verlagerungswirkungsquerschnitt entspricht den Steigungen der in Abb. 74 eingezeichneten Geraden. Für  $T_N = 5 \text{ K}$  ist  $\sigma_{TR} = 8.5 \cdot \sigma_V$  und für  $T_N = 77 \text{ K}$  ist  $\sigma_{TR} = 11.3 \cdot \sigma_V$ . Der erhöhte Transformationswirkungsquerschnitt bei 77 K wird vermutlich durch den zusätzlichen Einfang von Eigenzwischengitteratomen, die bei 77 K beweglich sind, verursacht. Daß die Effektivität der Defekterzeugung bei 77 K keine signifikante Rolle spielt, liegt an der großen Zahl zusätzlicher Senken, wie Leerstellencluster, die bei der Implantation erzeugt wurden.

Durch die Nachbestrahlung bei 5 bzw. 77 K lassen sich die gleichen  $f_s$ -Werte, die auch bei der Direktimplantation bei 5 bzw. 77 K erzielt wurden, erreichen. Es existieren somit keine rücktreibenden Prozesse.

#### Modell des Auflösungsprozesses

Angenommen wird, daß eine Kaskade ein Gebiet, in dem sich ein oder mehrere Fremdatome befinden, durchsetzt. In der Relaxationsphase des Displacement Spike verhalten sich die Fremdatome wie die Wirtsgitteratome (siehe Kap. 3.1.3 und 5.2.7.7.). Es findet eine athermische, ultraschnelle Rekombination der Fremdatome mit jeweils einer benachbarten Leerstelle statt. In diesem spontanen Prozeß stellt der substitutionelle Gitterplatz für die in hoher Verdünnung vorliegenden Fremdatome ein lokales Energieminimum dar. In dem darauffolgenden Thermal Spike haben die jetzt substitutionellen Fremdatome die Gelegenheit, Punktdefekte einzufangen. Dies geschieht analog dem Prozeß der Gitterplatzbesetzung implantierter Fremdatome (siehe Kap. 5.1.10.). Damit erklärt sich zwangsläufig, daß der substitutionelle Anteil erzielt durch Nachbestrahlung maximal den  $f_s$ -Wert der Direktimplantation bei der entsprechenden Temperatur erreichen kann. Innerhalb jeder Kaskade oder Subkaskade werden 90% der Atome lediglich um

einen Gitterabstand verlagert /134/. Diese Verlagerung ist ausreichend für ein Fremdatom, um von einem Gitterplatz niedriger Symmetrie auf einen substitutionellen Gitterplatz zu gelangen. Demnach ist die Anzahl der innerhalb der Kaskade verlagerten Atome das Maß, das den Anstieg der substitutionellen Komponente unter Bestrahlung bestimmt. Molekulardynamische Rechnungen /25,26,52/ zeigen, daß die Anzahl der im Displacement Spike verlagerten Atome 4 bis 10 mal größer als konventionell berechnet /17,44/ ist. Die Nachbestrahlungsexperimente ergeben einen Faktor 8.5 zwischen konventionell berechnetem Verlagerungswirkungsquerschnitt und experimentell bestimmtem Transformationswirkungsquerschnitt. Dieses Ergebnis untermauert erstmals experimentell die Resultate der molekulardynamischen Rechnungen /127/.

## 6. ZUSAMMENFASSENDE DISKUSSION

Zahlreiche übergroße und in Aluminium unlösliche Fremdatome wurden bei verschiedenen Temperaturen in Aluminiumeinkristalle implantiert. Der substitutionelle Anteil und die Gitterplatzbesetzung wurde in Abhängigkeit von der Temperatur und der Lösungswärme mit der Ionen-Channeling Methode bestimmt.

Der in situ gemessene substitutionelle Anteil ist stark von der Implantationstemperatur abhängig. Unterhalb der Temperatur der Stufe III ist der substitutionelle Anteil signifikant größer als bei Temperaturen darüber. Mit steigender Lösungswärme sinkt der substitutionelle Anteil für alle Implantationstemperaturen. Die nichtsubstitutionelle Komponente besteht aus Fremdatom-Leerstellen Komplexen verschiedener Konfiguration. Fremdatompräzipitate wurden nicht beobachtet.

Die ultraschnelle Abschreckung aus der Kaskade in Form der Rekombination des Fremdatoms mit einer virtuellen Leerstelle in der Relaxationsphase des Displacement Spike bringt das Fremdatom auf einen substitutionellen Gitterplatz. Im darauffolgenden Thermal Spike herrscht eine hohe Defektbeweglichkeit. Die Wahrscheinlichkeit, mit der ein Fremdatom in der Lage ist, eine oder mehrere Leerstellen einzufangen, wird durch seinen Leerstelleneinfangradius und die Leerstellenverteilung um das Fremdatom innerhalb der Kaskade, die es selbst initiiert hat, bestimmt. Der Leerstelleneinfangradius ist mit der Fremdatom-Leerstellen Bindungsenergie korreliert, die proportional der Lösungswärme ist. Der substitutionelle Anteil implantierter, übergroßer Fremdatome wird bei Implantationstemperaturen unterhalb der Temperatur der Stufe III durch spontane Rekombination des Fremdatoms mit einer virtuellen Leerstelle in der Relaxationsphase der Kaskade und durch darauffolgenden Leerstelleneinfang während der Lebensdauer der Kaskade bestimmt. Dieser Prozeß findet in jeder individuellen Kaskade statt und erklärt die Unabhängigkeit des substitutionellen Anteils

von der implantierten Fremdatomkonzentration. Bei Implantationstemperaturen oberhalb der Temperatur der Stufe III sind Leerstellen frei beweglich. Die Fremdatome sind in der Lage, nach Beendigung der Kaskade weitere Leerstellen einzufangen. Dabei werden mehr und größere Fremdatom-Leerstellen Komplexe gebildet, was zu seiner starken Absenkung des substitutionellen Anteils führt.

In implantierten Systemen wurde die Erhöhung des substitutionellen Anteils durch Nachbestrahlung bei tiefen Temperaturen untersucht. Der Anteil der Fremdatom-Leerstellen Komplexe, der erst bei Temperaturen oberhalb der Temperatur der Stufe III zusätzlich gebildet wird, kann durch Nachbestrahlung bei tiefen Temperaturen, selbst bei 5 K, mit Ionen verschiedener Masse vollständig ausgeheilt werden. Die Erhöhung der substitutionellen Komponente durch Nachbestrahlung ist unabhängig von der Fremdatomkonzentration, der Kaskadendichte, der mittleren übertragenen Energie und der Effektivität der Defekterzeugung.

Durchsetzt eine Kaskade ein Gebiet, in dem sich Fremdatome befinden, rekombinieren die Fremdatome in der Relaxationsphase des Displacement Spike mit einer virtuellen Leerstelle athermisch. Für die Fremdatome bildet der substitutionelle Gitterplatz in dieser Phase ein lokales Energieminimum. Im darauffolgenden Thermal Spike haben die Fremdatome die Gelegenheit, Punktdefekte einzufangen. Dies geschieht analog dem geschilderten Prozeß der Gitterplatzbesetzung. Um von einem Gitterplatz niedriger Symmetrie auf einen substitutionellen Gitterplatz zu gelangen, muß das Fremdatom verlagert werden. Demnach ist die Anzahl der innerhalb der Kaskade verlagerten Atome das Maß, das den Anstieg der substitutionellen Komponente bestimmt. Die quantitativen Resultate stimmen gut mit molekulardynamischen Rechnungen überein, die besagen, daß 4 bis 10 mal mehr Atome in einer Kaskade verlagert werden, als konventionell berechnet.

ANHANG

Ionenstrahlinduziertes Mischen (Ion-Beam-Mixing)

Die Methode des Ionenstrahlinduzierten Mischens (IBM) steht an der Schwelle der technischen Anwendung. Bei der Fertigung von integrierten Schaltungen wird die Haftung von metallischen Kontakten auf Silizium durch IBM verbessert, und in der Raumfahrt wird die Außenwand von Raumstationen durch IBM passiviert /138/. Zahlreiche grundlegende Arbeiten über IBM wurden veröffentlicht /139,140,141/.

Im Rahmen dieser Arbeit stellte sich die Frage, ob die Methode des Ionenstrahlinduzierten Mischens in der Lage ist, Aussagen über grundlegende Prozesse innerhalb der Kaskade zu machen. Dazu wird die bestrahlungsinduzierte Verbreiterung eines dünnen Markers in einem Wirtsmedium beobachtet.

Bei den Markerexperimenten wurde die Probe in situ bei  $T=5, 77$  oder  $293$  K mit Edelgasionen bestrahlt und mit Hilfe der Rutherford-Rückstreuung die Verbreiterung des Markers gemessen. Die Herstellung der Proben ist in Kap. 2.2.2. beschrieben. Die Rückstreuanalyse wurde zur Verbesserung der Tiefenauflösung unter einem Winkel von  $38^\circ$  zur Probennormale durchgeführt. An das Signal des Markers wurde vor der Bestrahlung und nach jedem Bestrahlungsschritt eine Gaußfunktion mit einem Computerfitprogramm /130/ angepaßt (siehe Abb. 75).

Zur Parametrisierung des bestrahlungsinduzierten Mischungsvorgangs wird der Anstieg der Varianz mit der Bestrahlungsfluenz gewählt. Die Varianz ist das Quadrat der Standardabweichung einer Gaußkurve.

$$\Delta\Omega^2 = \Omega_{\text{irr}}^2 - \Omega_{\text{vir}}^2 \quad (\text{in keV}^2) \quad (76)$$

$$\sigma^2 = \frac{\Delta\Omega^2}{N \cdot [S]} \quad (\text{in nm}^2) \quad (77)$$

$$d = \sqrt{2(\ln 2)} \cdot \sigma \quad (\text{in nm}) \quad (78)$$

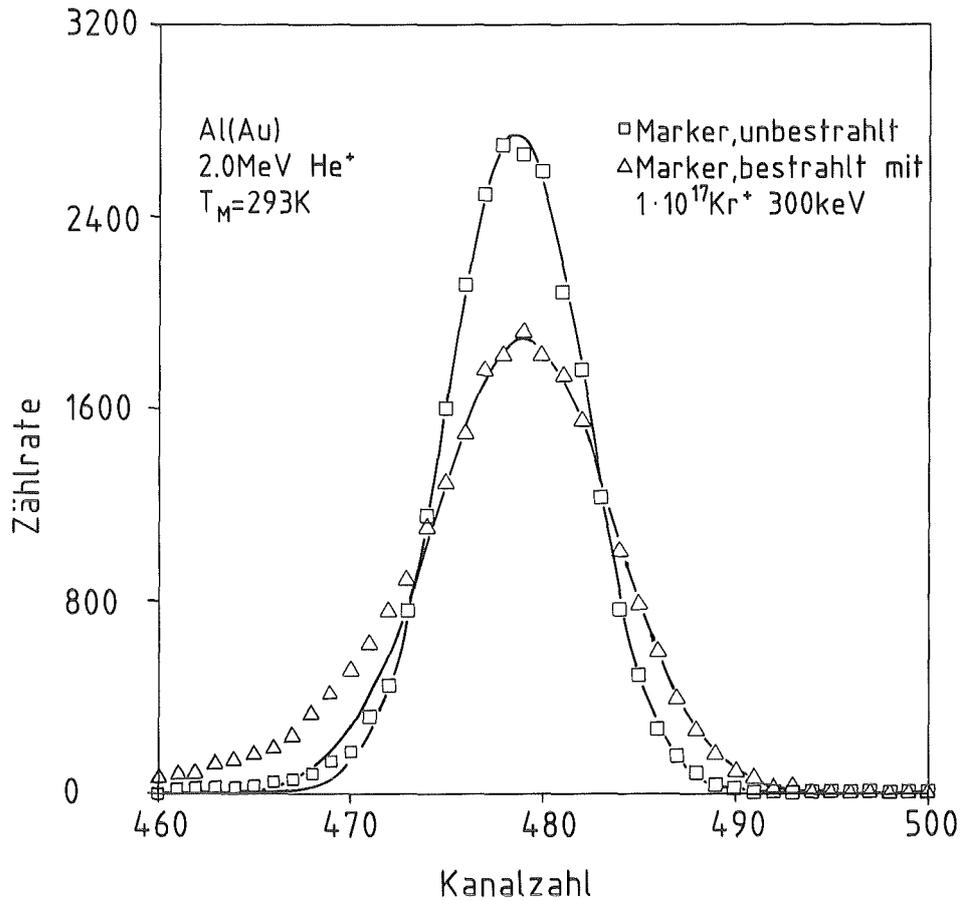


Abb. 75: Gold-Markersignal im Rückstreuungsspektrum vor und nach der Bestrahlung. Angefittet sind Gaußkurven.

Dabei ist  $\Omega_{vir}^2$  die Varianz des Markers vor der Bestrahlung und  $\Omega_{irr}^2$  die Varianz nach der Bestrahlung.  $N$  ist die atomare Dichte und  $[S]$  der Stopping-Koeffizient. Die jeweilige Halbwertsbreite des Markers ist  $d$ . Zum gegenseitigen Vergleich der Mixing-Experimente wird der Mixing-Parameter  $M$  eingeführt.

$$M = \frac{D \cdot t}{\phi \cdot F_D} \quad (79)$$

Dabei ist  $D \cdot t = \Delta\Omega^2/2$ . Zur Bestimmung der Anzahl der Markeratom-sprünge pro dpa Bestrahlungsfluenz, ausgedrückt durch den Faktor  $\alpha$ , wird Gleichung (80) verwendet /139/:

$$\frac{D \cdot t}{\phi \cdot F_D} = 0.067 \frac{\alpha \cdot \lambda^2}{N \cdot E_D} \quad (80)$$

mit der mittleren Sprungdistanz  $\lambda$ , üblicherweise ein Gitterabstand.

Um das ionenstrahlinduzierte Mischen zur Untersuchung grundlegender Prozesse innerhalb der Kaskade nutzen zu können, ist die wichtigste Voraussetzung, daß chemische Wechselwirkungen zwischen Medium und Marker den Mischungsvorgang nicht beeinflussen. Dazu wurden die Systeme V(Ta), V(W) und V(Au) bestrahlt. Im Gleichgewichtsphasendiagramm sind diese Systeme voll mischbar und bilden keine intermetallischen Phasen. Zur Beurteilung der Ergebnisse wurde das System Al(Au) bestrahlt, für dieses System sind Werte des Mixing-Parameters bekannt /142/.

### I. Mixingparameter verschiedener Marker (Ta,W,Au) in Vanadium

Falls das ionenstrahlinduzierte Mischen bei 5 K ein reiner Kollisionsprozeß wäre, müßten für die Systeme V(Ta), V(W) und V(Au) nahezu die gleichen Mixing-Parameter resultieren. Dies basiert auf der vollständigen Mischbarkeit im Gleichgewicht und auf den ähnlichen Massen von Ta, W und Au. Für das System V(W) sind die Rückstreuungsspektren einer unbestrahlten und einer mit  $5 \times 10^{16} \text{ Xe}^+/\text{cm}^2$  bestrahlten Probe in Abb. 76 gezeigt.

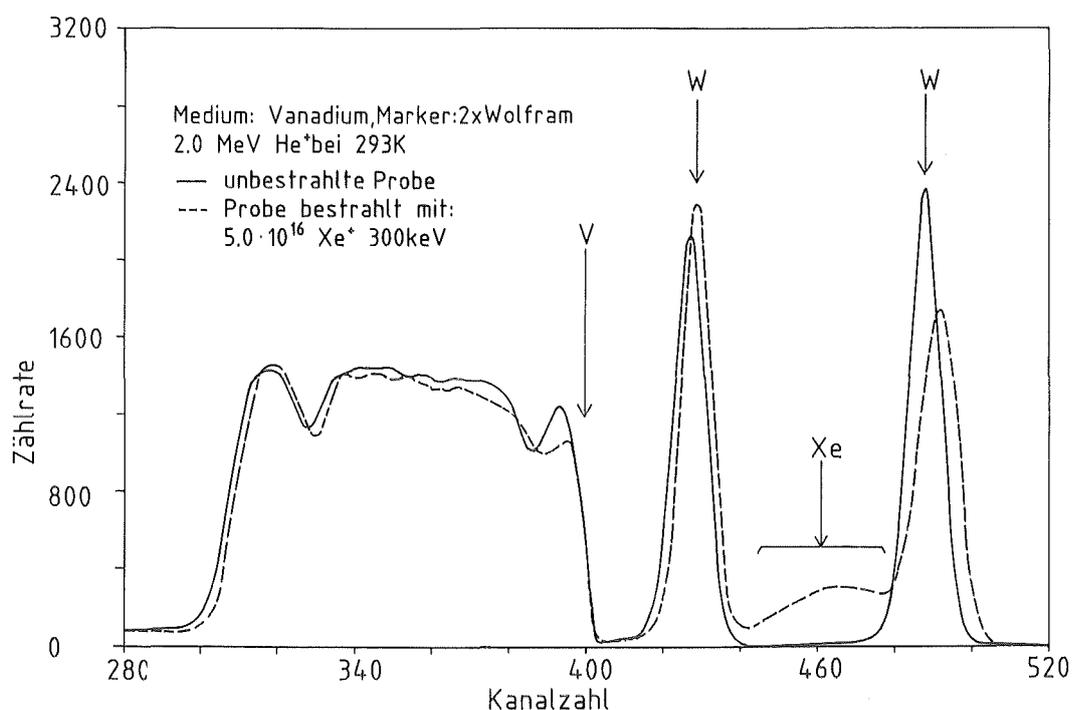


Abb. 76: Rückstreuungsspektren einer V(W)-Probe mit Referenzmarker in großer Tiefe.

In Abb. 77 ist die Änderung der Differenz der Varianz mit der Bestrahlungsfluenz aufgetragen.

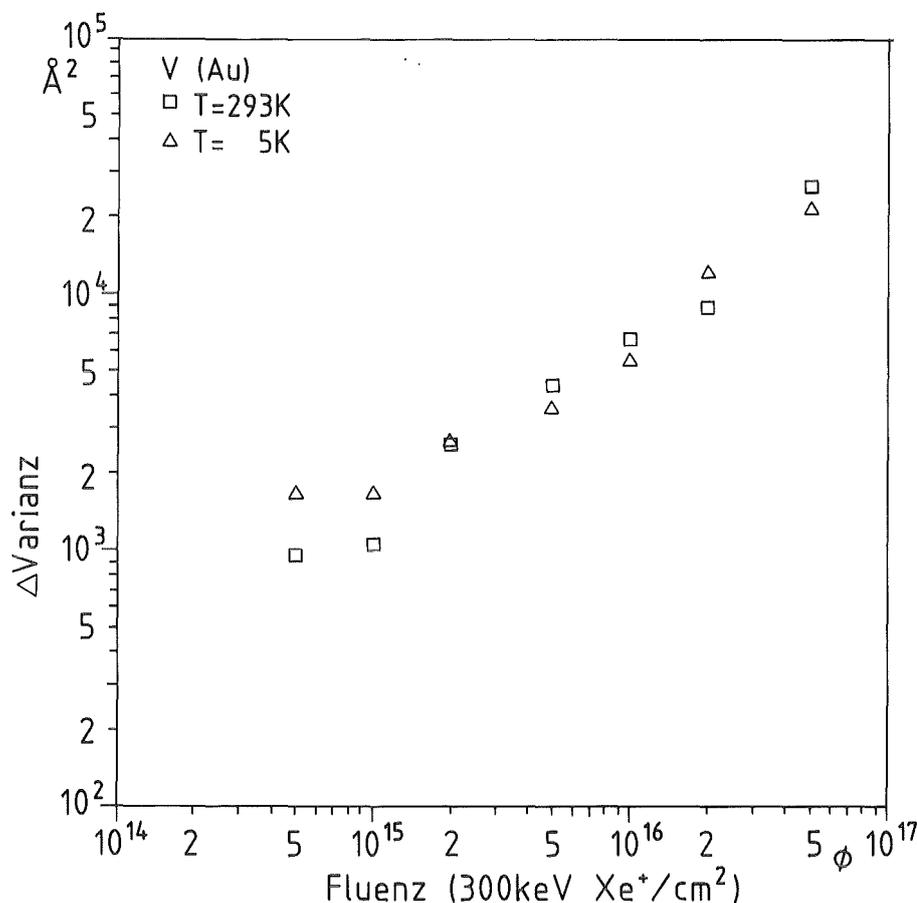


Abb. 77: Auftragung der Differenz der Varianz über der Bestrahlungsfluenz beim Ionenstrahlinduzierten Mischen des V(Au)-Systems.

V(Au) zeigt das übliche Mixingverhalten  $\propto \phi^{1/2}$ . Die Änderung der Halbwertsbreite des Markers in Abhängigkeit von der Fluenz ist für die Systeme V(Au) und V(W) in Abb. 78 aufgetragen.

Das System V(W) zeigt bis zu Fluenzen von  $1 \times 10^{16} \text{ Xe}^+/\text{cm}^2$  eine Kontraktion des Markers, während sich das System V(Au) normal verhält. Die Mixing-Parameter sind bei 5, 77 und 293 K im Rahmen der Meßgenauigkeit gleich. Die Werte der Mixing-Parameter der V(Ta), V(W) und V(Au)-Systeme sind in Tabelle 8 aufgeführt.

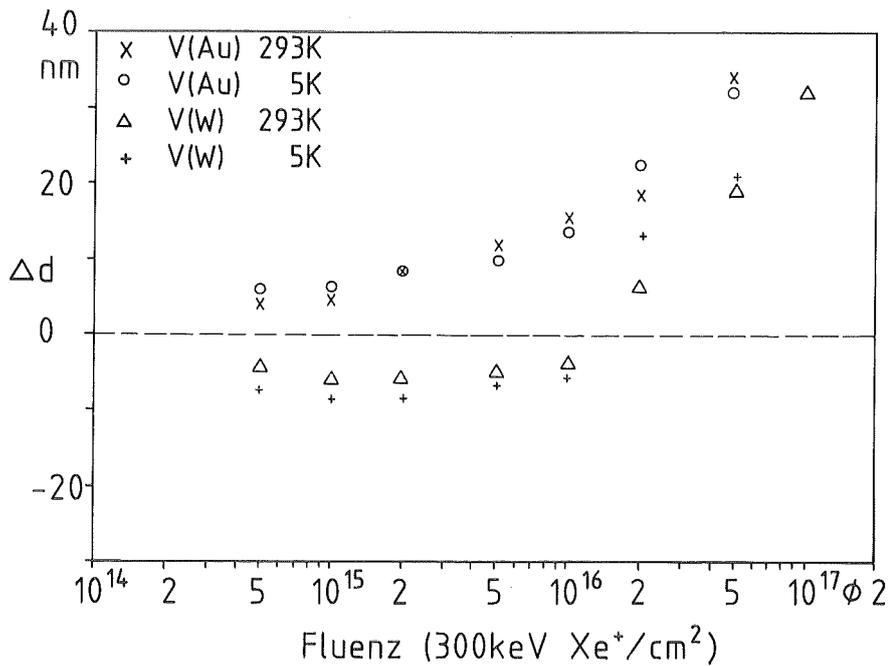


Abb. 78: Änderung der Halbwertsbreite des Markers mit der Bestrahlungsfluenz.

II. Bestrahlungsinduziertes Mischen im Aluminium(Gold) System

Mantl et al. /142/ mischten neben anderen Systemen auch Al(Au) mit 300 keV Ar<sup>+</sup>-Ionen bei 17, 85 und 300 K. Für Al(Au) erhielten sie einen nahezu temperaturunabhängigen Mixing-Parameter von 60 Å<sup>5</sup>/eV.

Peak und Averbach /143/ entwickelten ein theoretisches Modell zur Beschreibung des IBM. In diesem Modell wird angenommen, daß das IBM durch den Thermal Spike verursacht wird. Für Al als Medium werden bei T=300 K doppelt so hohe Mixing-Parameter wie bei T =5 K vorausgesagt /143/.

Das System Al(Au) wurde bei 5 und 293 K mit 300 keV Kr<sup>+</sup> Ionen und Fluenzen von 5 x 10<sup>14</sup> bis 1 x 10<sup>17</sup> Kr<sup>+</sup>/cm<sup>2</sup> bestrahlt. In Abb. 79 ist die Änderung der Differenz der Varianzen mit der Fluenz bei 5 und 293 K aufgetragen.

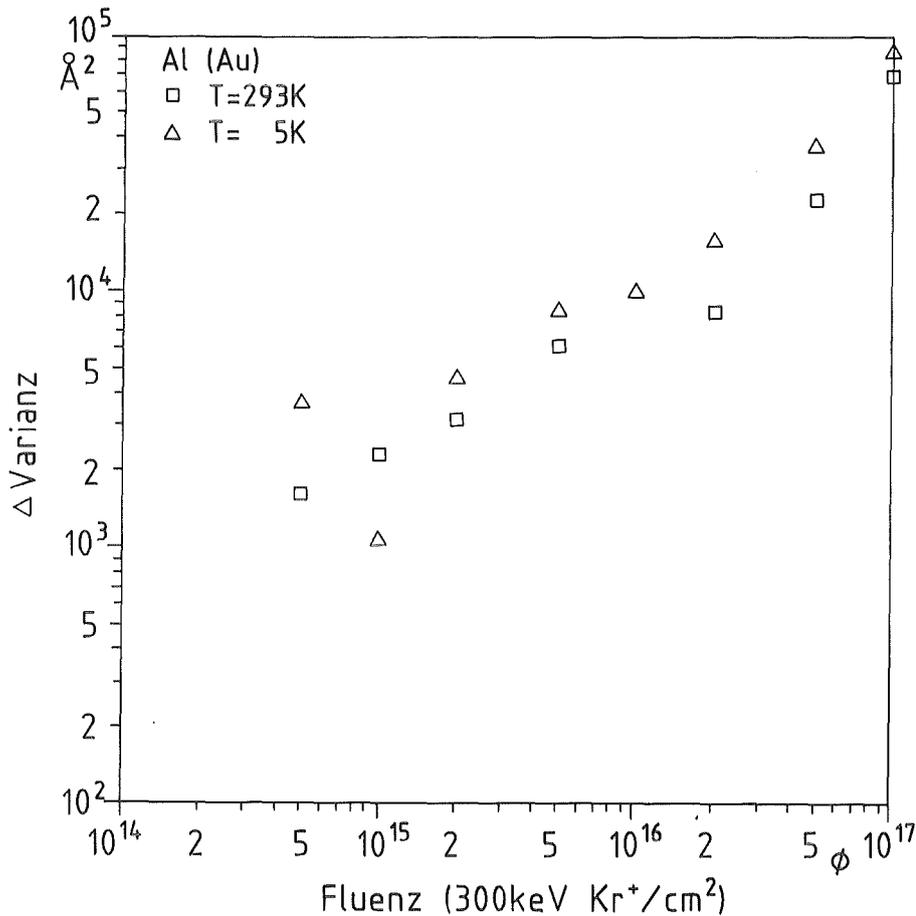


Abb. 79: Auftragung der Differenz der Varianz über der Bestrahlungsfluenz beim ionenstrahlinduzierten Mischen des Al(Au)-Systems.

Entgegen der Voraussage des Modells /143/ ist der Mixing-Parameter bei 5 K ( $47 \text{ \AA}^5/\text{eV}$ ) gegenüber dem bei 293 K ( $40 \text{ \AA}^5/\text{eV}$ ) leicht erhöht. Innerhalb der Fehlergrenzen, die bei IBM-Experimenten recht groß sind, stimmen die Werte mit Angaben aus der Literatur /142/ überein.

### III. Zusammenfassung und Diskussion der Ergebnisse

Die Ergebnisse der IBM-Experimente sind in Tabelle 8 zusammengefaßt /144/. Die Werte der Mixing-Parameter und die Anzahl der Sprünge pro dpa sind jeweils für zwei Bereiche angegeben. In I sind die Mittelwerte der Ergebnisse im gesamten benutzten Bestrahlungsfluenzbereich angegeben. In II sind lediglich die Meßwerte bei hohen Fluenzen und somit stark verdünnten Markeratomen angegeben. Außerdem ist die Lösungswärme /9/ der zu mischenden

Medium (Marker)	Ion	F D [eV/A]	Temp. [K]	Mix.-Par. I [A**5/eV]	Mix.-Par. II [A**5/eV]	Spr./ dpa I	Spr./ dpa II	Loesungs- waerme [kJ/Mol]	Mix.-Par. /145/ [A**5/eV]
V(Ta)	Xe	400	5	6	6	31	31	-1	0.20
			77	5	5	24	24		
			293	5	5	28	28		
V(W)	Xe	400	5	0	5	0	26	-1	0.20
			293	0	4	0	20		
V(Au)	Xe	400	5	12	7	65	36	-19	0.19
			293	11	7	58	39		
Al(Au)	Kr	140	5	47	31	162	107	-25	0.19
			293	40	18	138	61		

Tabelle 8 Berechnete Mixing-Parameter und Werte der Sprünge pro dpa für verschiedene bestrahlte Medium (Marker)-Systeme.

Systeme und der nach dem theoretischen Modell des Kaskadenmischens berechnete Mixing-Parameter /145/ aufgeführt.

Signifikante Unterschiede im Mixing-Parameter bei verschiedenen Temperaturen wurden nicht festgestellt. Als wichtigstes Resultat stellt man fest, daß der Mixing-Parameter mit der Lösungswärme korreliert ist. Erst in starker Verdünnung II gleichen sich die Werte für Vanadium als Medium an. Um in hoher Verdünnung messen zu können, sind entweder sehr hohe Bestrahlungsfluenzen notwendig, oder extrem dünne Marker ( $\approx 1$  Monolage). Bei hohen Bestrahlungsdosen tritt jedoch Blasenbildung bei Edelgasbestrahlung oder "Swelling" bei Bestrahlung mit Eigenionen auf. Die Verbreiterungen sehr dünner Marker sind durch die begrenzte Energieauflösung des Meßsystems und Energie-Straggeling Effekte schwer zu beobachten. Zudem ist selbst in hoher Verdünnung der Mixing-Parameter stark vom gewählten Medium bei gleichem Marker abhängig (V(Au)-Al(Au)).

Die Methode des Ionenstrahlinduzierten Mischens ist aufgrund chemischer Effekte zwischen Medium und Marker /146/ und der benötigten hohen Bestrahlungsfluenzen, selbst bei einer Bestrahlungs- und Analysetemperatur von 5 K nicht in der Lage, verlässliche quantitative Aussagen über grundlegende Prozesse innerhalb der Kaskade zu machen.

LITERATURVERZEICHNIS

- /1/ J. Gyulai, private Mitteilung.
- /2/ P. Sioshansi, Vortrag auf der Konferenz, "Ion Beam Modification of Materials '86" in Catania, Italien, 9. bis 12. Juni 1986.
- /3/ D.K. Sood und G. Dearnaley, in Applications of Ion Beams to Materials, Hrsg. G. Carter, J.S. Colligon und W.A. Grant, Inst. Phys. Conf. Ser. No. 28(1976)196.
- /4/ S.T. Picraux, in New Uses of Ion Accelerators, Hrsg. J.F. Ziegler (Plenum Press, New York 1975) S. 229.
- /5/ D.K. Brice, in Applications of Ion Beams to Materials, Hrsg. G. Carter, J.S. Colligon und W.A. Grant, Inst. Phys. Conf. Ser. No. 28(1976)334.
- /6/ L.S. Darken und R.W. Gurry, Physical Chemistry of Metals (McGraw-Hill, New York 1953).
- /7/ A.R. Miedema, P.F. de Châtel und F.R. de Boer, Physica 100B(1980)1.
- /8/ A.R. Miedema, F.R. de Boer und P.F. de Châtel, J. Phys. F : Met. Phys. 3(1973)1558.
- /9/ A.K. Niessen, F.R. de Boer, R. Boom, P.F. de Châtel, W.C.M. Mattens und A.R. Miedema, Calphad 7(1983)51.
- /10/ J.R. Chelikowsky, Phys. Rev. B19(1979)686.
- /11/ J.A. Alonzo und J.M. López, Phil. Mag. A45(1982)713.
- /12/ V.A. Singh und A. Zunger, Phys. Rev. B25(1982)907.
- /13/ M. Doyama, J. Nucl. Mat. 69/70(1978)350.
- /14/ H. Ahlborn und K. Löhberg, Naturwissenschaften 73(1986)378.
- /15/ J.A. Brinkman, J. Appl. Phys. 25(1954)961.
- /16/ J.A. Brinkman, Am. J. Phys. 24(1955)246.

- /17/ G.H. Kinchin und R.S. Pease,  
Reports on Progress in Physics 18(1955)2.
- /18/ F. Seitz und J.S. Koehler,  
Solid State Physics 2(1956)307.
- /19/ G.H. Vineyard, in Radiation Effects in Inorganic  
Solids (The Aberdeen University Press Ltd. 1962)  
(Discussions of the Faraday Society No.31) S. 7.
- /20/ G.H. Vineyard, Rad. Eff. 29(1976)245.
- /21/ R.S. Averback, J. Nucl. Mat. 108/109(1982)33.
- /22/ M. Guinan, J. Nucl. Mat. 53(1974)171.
- /23/ M.T. Robinson und J.M. Torrens,  
Phys. Rev. B9(1974)5008.
- /24/ J.P. Biersack und L.G. Haggmark,  
Nucl. Instr. Meth. 174(1980)257.
- /25/ W.E. King und R. Benedek,  
J. Nucl. Mat. 117(1983)26.
- /26/ M.W. Guinan und J.H. Kinney,  
J. Nucl. Mat. 103/104(1981)1319.
- /27/ P. Ziemann, KfK - Bericht 2562 (1978).
- /28/ K.G. Langguth, KfK - Bericht 2476 (1977).
- /29/ R. Kaufmann, KfK - Bericht 3205 (1981).
- /30/ R. Kaufmann, J. Geerk und F. Ratzel,  
Nucl. Instr. Meth. 205(1983)293.
- /31/ M.K. Kloska, Diplomarbeit  
Universität Karlsruhe (1982).
- /32/ G. Carter und J.S. Colligon, Ion Bombardment  
of Solids (Heinemann Educational  
Books Ltd., London 1968).
- /33/ G. Dearnaley, J.H. Freeman, R.S. Nelson  
und J. Stephen, Ion Implantation (North-Holland,  
Amsterdam 1973) (Defects in Crystalline Solids;  
Vol. 8).
- /34/ P. Sigmund, Rev. Roum. Phys. 17(1972)823.

- /35/ H. Bethe, in Handbuch der Physik Bd. 24,2  
(Springer-Verlag, Berlin 1933).
- /36/ J.F. Ziegler und W.K. Chu, Energy Loss and  
Backscattering of  $^4\text{He}$  Ions in Matter (IBM Research,  
RC 4288, Yorktown Heights 1973).
- /37/ J. Lindhard, V. Nielsen und M. Scharff,  
Mat. Fys. Medd. Dan. Vid.  
Selsk. 36(1968) No. 10.
- /38/ J.A. Davies, in Surface Modification and  
Alloying by Laser, Ion, and Electron Beams,  
Hrsg. J.M. Poate, G. Foti und D.C. Jacobson  
(Plenum Press, New York 1983) (NATO Conf.  
Ser:6, Vol. 8) S. 189.
- /39/ M.W. Thompson, Defects and Radiation Damage  
in Metals (Cambridge University Press 1969).
- /40/ P. Jung, J. Nucl. Mat. 117(1983)70.
- /41/ P. Vajda, Rev. Mod. Phys. 49(1977)481.
- /42/ H.H. Neely und W. Bauer, Phys. Rev. 149(1966)535.
- /43/ K.B. Winterbon, Range-Energy Data for  
keV Ions in Amorphous Materials  
(AECL-3194, Chalk River 1968).
- /44/ M.J. Norgett, M.T. Robinson und J.M. Torrens,  
Nucl. Eng. Des. 33(1975)50.
- /45/ C. Lehmann, Interaction of Radiation with Solids  
and Elementary Defect Production (North-Holland,  
Amsterdam 1977) (Defects in Crystalline Solids;  
Vol. 8).
- /46/ R.S. Walker und D.A. Thompson,  
Rad. Eff. 37(1978)113.
- /47/ K.L. Merkle, W.E. King, A.C. Baily, K. Haga  
und M. Meshii, J. Nucl. Mat. 117(1983)4.
- /48/ K. Haga, W.E. King, K.L. Merkle und M. Meshii,  
Nucl. Instr. Meth. B16(1986)134.
- /49/ D. Pramanik und D.N. Seidmann,  
J. Appl. Phys. 54(1983)6352.

- /50/ G. Burger, K. Isebeck, J. Völkl, W. Schilling und H. Wenzl, Z. angew. Phys. 22(1967)452.
- /51/ H. Metzner, R. Sielemann, R. Butt und S. Klaumünzer, Phys. Rev. Lett. 53(1984)290.
- /52/ V.I. Protasov und V.G. Chudinov, Rad. Eff. 83(1984)185.
- /53/ W.K. Chu, J.W. Mayer und M.A. Nicolet, Backscattering Spectrometry (Academic Press, New York 1978).
- /54/ Ion Beam Handbook for Material Analysis, Hrsg. J.W. Mayer und E. Rimini (Academic Press, New York 1977).
- /55/ J. Stark, Z. Phys. 13(1912)973.
- /56/ L.C. Feldman, J.W. Mayer und S.T. Picraux, Materials Analysis by Ion Channeling, (Academic Press, New York 1982).
- /57/ O. Meyer, KfK - Bericht 3794 (1984).
- /58/ M.L. Swanson, in Advanced Techniques for Characterizing Microstructures, Hrsg. F.W. Wiffen und J.A. Spitznagel (Metallurgical Society of AIME, Warrendale, Pa 198) S. 305.
- /59/ D.E. Gemmell, Rev. Mod. Phys. 45(1974)129.
- /60/ M.L. Swanson und L.M. Howe, Nucl. Instr. Meth. 218(1983)613.
- /61/ J.A. Davies, Phys. Script. 28(1983)294.
- /62/ W. Brandt, Sci. Am. 218(1968)90.
- /63/ J. Thilges, Diplomarbeit Universität Karlsruhe (1985).
- /64/ J. Lindhard, Mat. Fys. Medd. 34(1965) No.14.
- /65/ J.H. Barrett, Phys. Rev. B3(1971)1527.
- /66/ A. Azzam und O. Meyer, Phys. Rev. B 33(1986)3499.
- /67/ A. Azzam, KfK - Bericht 4066 (1986).
- /68/ J.M. Poate, J.A. Borders, A.G. Cullis und J.K. Hirvonen, Appl. Phys. Lett. 30(1977)365.

- /69/ M. Holz, P. Ziemann und W. Buckel,  
Phys. Rev. Lett. 51(1983)1584.
- /70/ G. Linker, Mat. Sci. Eng. 69(1985)105.
- /71/ W. Hume-Rothery, R.E. Smallman und C.W. Haworth,  
The Structure of Metals and Alloys  
(Inst. of Metals, London 1969).
- /72/ L. Pauling, The Nature of Chemical Bond  
(Cornell University Press, New York 1960).  
H.-J. Yuan, Hua-Hsueh-Tung-Pao 6(1980)375.
- /73/ D.K. Sood, Phys. Lett. 68A(1978)469.
- /74/ J.M. Poate und A.G. Cullis, in Treatise on  
Materials Science and Technology, Vol. 18  
Ion Implantation, Hrsg. J.K. Hirvonen  
(Academic Press, New York 1980) S. 85.
- /75/ D.J. Eshelby, Solid State Physics 3(1956)79.
- /76/ A. Zunger, Phys. Rev. B22(1980)5839.
- /77/ A. Turos, A. Azzam, M.K. Kloska und O. Meyer,  
Nucl. Instr. Meth.(1987),  
zur Veröffentlichung angenommen.
- /78/ F. Pleiter und C. Hohenemser,  
Phys. Rev. B 25(1982)106.
- /79/ E. Recknagel, G. Schatz und Th. Wichert, in  
Hyperfine Interactions of Radioactive Nuclei,  
Hrsg. J. Christiansen (Springer, Berlin 1983)  
(Topics in Current Physics, Vol. 31) S. 133.
- /80/ F. Pleiter und K.G. Prasad, Hyp. Int. 20(1984)221.
- /81/ R. Sielemann, H.G. Müller, W. Semmler, R. Butt  
und H. Metzner, in Point Defects and Defect  
Interactions in Metals, Hrsg. J.-I. Takamura,  
M. Doyama und M. Kiritani (North-Holland,  
Amsterdam 1982) S. 403.
- /82/ Th. Wichert und M.L. Swanson, Hyp. Int. 23(1985)231.
- /83/ M.L. Swanson, T. Wichert, L.M. Howe,  
A.F. Quenneville und O.M. Westcott,  
Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol. 41(1985)35.

- /84/ M.L. Swanson, L.M. Howe, J.A. Moore und  
A.F. Quenneville, Nucl. Instr. Meth.  
209/210(1983)1029.
- /85/ F. Pleiter, private Mitteilung.
- /86/ F. Pleiter, S. Weigi, M.K. Kloska und O. Meyer,  
zur Veröffentlichung vorgesehen.
- /87/ T. Wichert, M.L. Swanson, L.M. Howe,  
A.F. Quenneville und O.M. Westcott,  
Chalk River Laboratories, Annual Report 1984, S. 10.
- /88/ P.S. Ho und R. Benedek,  
J. Nucl. Mat. 69/70(1978)730.
- /89/ M.L. Swanson und L.M. Howe, in Point Defects and  
Defect Interactions in Metals, Hrsg. J.-I. Takamura,  
M. Doyama und M. Kiritani (North-Holland,  
Amsterdam 1982) S. 364.
- /90/ M.L. Swanson, L.M. Howe, J.A. Moore und  
A.F. Quenneville, Can. J. Phys. 62(1984)826.
- /91/ E.N. Kaufman, R. Vianden, J.R. Chelikowsky und  
J.C. Phillips, Phys. Rev. Lett. 39(1977)167.
- /92/ O. Meyer, A. Azzam, M.K. Kloska und A. Turos,  
Mat. Sci. Forum (1986),  
zur Veröffentlichung angenommen.
- /93/ A. Azzam und O. Meyer,  
Nucl. Instr. Meth. B7/8(1985)113.
- /94/ M.K. Kloska und O. Meyer, Nucl. Instr. Meth.(1987),  
zur Veröffentlichung angenommen.
- /95/ G. Lindner, K. Bendel, M. Deicher, R. Minde,  
E. Recknagel und T. Wichert,  
Nucl. Instr. Meth. 194(1982)193.
- /96/ U. Gonser, in Vacancies and Interstitials  
in Metals, Hrsg. A. Seeger, D. Schumacher,  
W. Schilling und J. Diehl (North-Holland,  
Amsterdam 1970) S. 649.
- /97/ M.J. Fluss, S. Berko, B. Chakraborty,  
P. Lippel und R.W. Siegel,  
J. Phys. F : Met. Phys. 14(1984)2855.

- /98/ W.G. Moffat, Binary Phase Diagrams Handbook  
(General Electric, Schenectady, Vol. 1, 1976 ff).
- /99/ T. Hussain und G. Linker,  
Nucl. Instr. Meth. 168(1980)317.
- /100/ J. Geerk und O. Meyer, Rad. Eff. 63(1982)133.
- /101/ T. Hussain, J. Geerk, F. Ratzel und G. Linker,  
Appl. Phys. Lett. 37(1980)298.
- /102/ H.K. Hardy, J. Inst. Met. 80(1951)431.
- /103/ G. Battaglin, A. Carnera, G. Della Mea,  
P. Mazzoldi, A.K. Jain, V.N. Kulkarni und  
D.K. Sood, in Laser and Electron-Beam Solid  
Interactions and Materials Processing,  
Hrsg. J.F. Gibbons, L.D. Hess und T.W. Sigmon  
(North-Holland, New York 1981) S. 615.
- /104/ O. Meyer, unveröffentlicht.
- /105/ M.K. Kloska und O. Meyer,  
Nucl. Instr. Meth. B14(1986)268.
- /106/ R.C. Birtcher und W. Jäger,  
Nucl. Instr. Meth. B15(1986)435.
- /107/ O. Meyer und A. Azzam,  
Phys. Rev. Lett. 52(1984)1629.
- /108/ A. Azzam und O. Meyer,  
Nucl. Instr. Meth. B12(1985)369.
- /109/ R. Benedek, J. Appl. Phys. 52(1981)5557.
- /110/ P. Chou und N.M. Ghoniem,  
J. Nucl. Mat. 117(1983)55.
- /111/ R.S. Nelson, J.A. Hudson und D.J. Mazey,  
J. Nucl. Mat. 44(1972)318.
- /112/ P. Siegmund, Appl. Phys. Lett. 25(1974)169.
- /113/ K.B. Winterbon, in Ion-Implantation Dense  
Cascade Data (Chalk River Nuclear Laboratories,  
AECL-8054, 1983) S. 24.
- /114/ A. Seeger und H. Mehrer, in Vacancies and  
Interstitials in Metals, Hrsg. A. Seeger,  
D. Schumacher, W. Schilling und J. Diehl  
(North-Holland, Amsterdam 1970) S. 1.

- /115/ P.S. Peercy, D.M. Follstaedt, S.T. Picraux und W.R. Wampler, in Laser and Electron Beam Interactions with Solids, Hrsg. B.R. Appleton und G.K. Celler (North Holland, New York 1982) S. 401.
- /116/ G.J. Thomas und S.T. Picraux, in Applications of Ion Beams to Metals, Hrsg. S.T. Picraux, E.P. EerNisse und F.L. Vook (Plenum Press, New York 1974) S. 257.
- /117/ A. Azzam, unveröffentlicht.
- /118/ H. Wiedersich, Nucl. Instr. Meth. B7/8(1985)1.
- /119/ D.A. Thompson, Rad. Eff. 56(1981)105.
- /120/ R.S. Averback, R. Benedek und K.L. Merkle, J. Nucl. Mat. 69/70(1978)786.
- /121/ J. Bøttiger, S.K. Nielsen und P.T. Thorsen, Nucl. Instr. Meth. B7/8(1985)707.
- /122/ D.A. Thompson und R.S. Walker, Rad. Eff. 36(1978)91.
- /123/ M.M. Jakas und D.E. Harrison Jr., Phys. Rev. Lett. 55(1985)1782.
- /124/ Z.Y. Al-Tamini, W.A. Grant, G. Carter, D.V. Stevanovic und D.A. Thompson, Nucl. Instr. Meth. B7/8(1985)124.
- /125/ R.P. Webb, D.E. Harrison Jr. und M.M. Jakas, Nucl. Instr. Meth. B15(1986)1.
- /126/ M. Hou, Nucl. Instr. Meth. B2(1984)715.
- /127/ M.K. Kloska und O. Meyer, Phys. Rev. Lett. 57(1986)2540.
- /128/ A. Azzam, M.K. Kloska, O. Meyer und A. Turos, in Solid State Reactions after Ion Implantation Detected by Nuclear Methods, Hrsg. K.P. Lieb und M. Uhrmacher, Workshop 10. bis 12. März 1986, II. Physikalisches Institut, Universität Göttingen.
- /129/ I.N. Bronstein und K.A. Semendjajew, Taschenbuch der Mathematik, 15. Aufl. (Harri Deutsch, Zürich 1975).

- /130/ L. Reuschenbach, Diplomarbeit  
Universität Karlsruhe (1985).
- /131/ J.F. Gibbons, Proc. IEEE 60(1972)1062.
- /132/ A.V. Drigo, M. Berti, A. Benyagoub, H. Bernas,  
J.C. Pivin, F. Pons, L. Thomé und C. Cohen,  
Nucl. Instr. Meth. (1987).
- /133/ T. Mayer-Kuckuk, Physik der Atomkerne,  
2. überarb. Aufl. (B.G. Teubner, Stuttgart 1974).
- /134/ R.P. Webb und D.E. Harrison, Jr.,  
Nucl. Instr. Meth. 218(1983)697.
- /135/ P.P. Bansal und A.J. Ardell,  
Metallography 5(1972)97.
- /136/ H.L. Heinisch, J. Nucl. Mat. 117(1983)46.
- /137/ M.L. Swanson, L.M. Howe und A.F. Quenneville,  
Phys. Rev. B22(1980)2213.
- /138/ R. Carlisle und M. Nolan,  
Aerospace America (Sep.1986)49.
- /139/ B.M. Paine und R.S. Averback,  
Nucl. Instr. Meth. B7/8(1985)666.
- /140/ R.S. Averback, Nucl. Instr. Meth. B15(1986)675.
- /141/ Z.L. Wang, Nucl. Instr. Meth. B2(1984)784.
- /142/ S. Mantl, L.E. Rehn, R.S. Averback und  
L.J. Thompson Jr., Nucl. Instr. Meth. B7/8(1985)622.
- /143/ D. Peak und R.S. Averback,  
Nucl. Instr. Meth. B7/8(1985)561.
- /144/ M.K. Kloska und O. Meyer,  
zur Veröffentlichung vorgesehen.
- /145/ P. Sigmund und A. Gras-Marti,  
Nucl. Instr. Meth. 182/183(1981)25.
- /146/ Y.T. Cheng, M. Van Rossum, M.A. Nicolet und  
W.L. Johnson, Appl. Phys. Lett. 45(1984)185.