

Kapitel 5

Ladungsverteilungen und Energieverluste im Nichtgleichgewicht

Aus den vorangehenden Kapiteln geht hervor, daß der Energieverlust schwerer Ionen die Basis für die Tiefenprofilbestimmung mit der ERDA-Meßmethode darstellt. Eine hohe Tiefenaufösung erfordert die genaue Kenntnis dieser Größe. Mit dem hochauflösendem Q3D-Spektrographen sind wir in der Lage, Abweichungen des realen Energieverlustes von den theoretisch berechneten Werten, die vor allem nahe der Oberfläche nicht mehr vernachlässigbar klein sind, festzustellen. Neben den teilweise zu ungenauen Tabellenwerten für den spezifischen Energieverlust S trägt auch der Bereich des Nichtgleichgewichtes zu dieser Abweichung bei. Was verstehen wir darunter?

Wie in Kap. 2.2 dargelegt, kann das Abbremsvermögen eines schweren Ions S_{Ion} dadurch berechnet werden, daß man den spezifischen Energieverlust des Protons (S_H) bei gleicher Geschwindigkeit im gleichen Material mit einer effektiven Ladung q_{eff} skaliert:

$$S_{Ion} = S_H \times q_{eff}^2 \quad (5.1)$$

Die effektive Ladung des Ions hängt dabei vom Probenmaterial, dem Projektil und seiner Energie ab (s. Gl. 2.26). Physikalisch stellt sie eine Mittelung über die Gleichgewichtsladungsverteilung der Projektile im Festkörper dar, von der der Energieverlust abhängt, und berücksichtigt somit die mehr oder weniger abgeschirmten Kern-Coulombpotentiale. Sie beschreibt den Energieverlust von Ionen gut in einem Bereich, in dem ein dynamisches Ladungsgleichgewicht herrscht, in dem sich Elektroneneinfang- und Elektronenverlustprozesse die Waage halten und sich die Ladungsverteilung der Projektile im Mittel nur langsam mit der abnehmenden Geschwindigkeit ändert.

Im allgemeinen wird das Projektil mit der Ladung, mit der es aus dem Beschleuniger kommt, in die Probe eingeschossen. In den seltensten Fällen liegt dieser

Ladungszustand nahe bei q_{eff} . Bei den um ein vielfaches kleineren Geschwindigkeiten vor dem Beschleuniger ist die Ausbeute an Teilchen mit $q \approx q_{eff}$, insbesondere bei schweren Projektilen, verschwindend klein, so daß man meist deutlich niedrigere Ladungszustände zum Beschleunigen verwendet. In dem im Kap. 4 beschriebenen Beispiel ergibt Gl. 2.25 für das Kr-Projektile $q_{eff} = 16,84$, während der Beschleuniger Ionen mit der Ladung $q = 9^+$ lieferte. Beim Eintritt in die Probe laden sie sich mit zunehmender Tiefe in den Gleichgewichtszustand um. Dabei konkurrieren viele verschiedene Prozesse untereinander. Das Projektil kann Elektronen einfangen, entweder direkt aus einem gebundenen Zustand des Probenatoms, also ohne Strahlung, oder aus dem Leitungsband, mit Energieabgabe durch Lichtquanten. Es kann seine Elektronen direkt oder nach einer Anregung in eine höhere Schale, durch Ionisation verlieren. In einem angeregten Ion kann dieses aber auch zurück in eine tiefer gelegene Schale fallen, entweder durch einen radiativen oder einen Augerzerfall. All diese Prozesse beeinflussen das Potential des Projektils und somit sein Abbremsvermögen. Folglich weicht der spez. Energieverlust bis zum Erreichen des oben beschriebenen Gleichgewichtszustandes von dem mit q_{eff} berechneten ab. Zuverlässige Abschätzungen, in welcher Probentiefe das Gleichgewicht erreicht wird, gibt es höchstens für Energien oberhalb von 10 MeV/Nukleon, nicht jedoch für unseren Bereich von 1 – 3 MeV/Nukleon. Auch etwaige Abschätzungen, wie groß die Energieabweichungen sind, existierten bisher nicht. Mit dem hochauflösenden Magnetspektrographen sind wir in der Lage, solche Effekte in Abhängigkeit vom Ladungszustand des Projektils zu messen und es lag nahe, sich diesem Problem zuzuwenden.

Wir haben hierfür eine *neue Meßmethode* entwickelt, die es uns ermöglicht, sowohl die **Ladungsverteilungen** als auch die **Energieverluste** schwerer Ionen in dünnen Schichten **in Abhängigkeit vom Ein- und Ausgangsladungszustand** effektiv und genau zu vermessen.

5.1 Eine neue Meßmethode zur Messung von Energieverlusten

Energieverluste in Abhängigkeit vom Eingangsladungszustand im Bereich des Nichtgleichgewichtes wurden schon des öfteren vermessen [Pen94, Oga93, Dol98a]. Dabei handelt es sich um sogenannte 0° -Messungen, bei denen der Projektilstrahl direkt in den Detektor geschossen wird. Die Strahlintensität muß dabei so weit reduziert werden, daß der Detektor die einfallende Zählrate verarbeiten kann, was die Kontrolle der Strahlqualität (Energie- und Positionsstabilität) sehr erschwert. Die Energie der einfallenden Ionen mit der Ladung q_i wird zunächst bestimmt, danach dünne Probenfolien, die für die Projektilen transparent sind, in den Strahl gehalten und die Energieverschiebung durch die Abbremsung in der Folie bestimmt. Aufgrund der minimalen Energieverluste in diesen dünnen Folien ist man auf ei-

ne sehr hohe Energieauflösung angewiesen, die nur mit Magnetspektrometern erreicht werden kann. Das wiederum schränkt die Wahl des Ausgangsladungszustandes q_f auf $q_i = q_f$ ein, denn nur in diesem Fall kann auf die Referenzmessung ohne Folie bezogen werden. Andernfalls ist eine Magnetfeldverstellung notwendig und dadurch verliert man den Referenzpunkt für die Energieverlustmessung, denn nur bei konstantem Magnetfeld können relative Energiedifferenzen mit der nötigen Präzision gemessen werden. Ein weiterer Nachteil dieser Methode ist die zeitaufwendige Variation von q_i . Hierfür benutzt man direkt hinter dem Beschleuniger Umladungsfolien. Die Strahlführung bis zum Experiment (diese kann sehr lang sein und viele ionenoptische Elemente enthalten) kann nur auf einen Ladungszustand eingestellt werden und muß demnach bei jeder q_i -Änderung neu reguliert werden.

Um all diese Probleme zu vermeiden, haben wir eine neue Methode entwickelt. Sie basiert auf der Erzeugung einer Ladungsverteilung in einer Streufolie, einer Separation der Eingangsladungszustände q_i mittels eines Potentials und der Selektion des Ausgangsladungszustandes q_f durch das Magnetfeld des Spektrographen.

Abb. 5.1 veranschaulicht das Prinzip dieser Meßmethode. Der einfallende Strahl, möglichst scharf in seiner Energie, Emitanz und lateraler Ausdehnung, wird zunächst in einer ersten Folie gestreut. Diese erfüllt zwei Aufgaben. Zum einen dient sie dazu, die Intensität des Strahls zu vermindern, da der Fokalebenendetektor keine Zählraten größer $10^4/s$ verarbeiten kann. Die Rutherfordstreuung von Ne-Ionen an Nb-Kernen unter einem Streuwinkel von $\Theta = 8^\circ$, wie von uns verwendet, ergibt eine Reduktion der Strahlintensität um einen Faktor 10^7 . Zum anderen erzeugt die Streufolie mehrere Ladungszustände q_i für die weiteren Untersuchungen in der zweiten Folie. Aus diesem Grunde muß die erste Folie möglichst dünn und homogen in der Zusammensetzung und Massenbelegung sein, um die gute Strahlqualität des ISL zu erhalten. Desweiteren muß sie aus Atomen schwerer Masse bestehen, um die kinematischen Effekte so klein wie möglich zu halten. Die zweite Folie, die als Transmissionsfolie bezeichnet wird, ist die zu untersuchende Probe. Durch Variation ihrer Massenbelegung können die Umladungs- und Energieverlustprozesse im einzelnen in Abhängigkeit von der Eindringtiefe und deren Einfluß auf die relevanten Größen studiert werden.

Einige Projektile werden also in der ersten Folie gestreut und laden sich außerdem dort um. Daraufhin durchdringen sie die zweite Folie, wo sie aufgrund ihrer Abbremsung Energie deponieren, sich teilweise umladen und dann in den Q3D gelangen. Dessen Magnetfeld ist nur auf einen Ladungszustand, in Abb. 5.1 auf $q_f = 8^+$, eingestellt, d.h. nur die Ionen mit der Ladung q_f werden detektiert, bzw. ihre Energie bestimmt. Mit diesem Aufbau alleine wären es möglich, die Energieverluste in Abhängigkeit des Ausgangsladungszustandes zu vermessen, indem die Energie der Ejektile mit und ohne Transmissionsfolie bestimmt wird. In einem Energiespektrum des Fokalebenendetektors wäre eine Linie zu sehen, die alle Ionen beinhaltet, die die zweite Folie mit der Ladung q_f verlassen haben, unabhängig davon welche Ladung sie vorher hatten. Um nun auch die verschie-

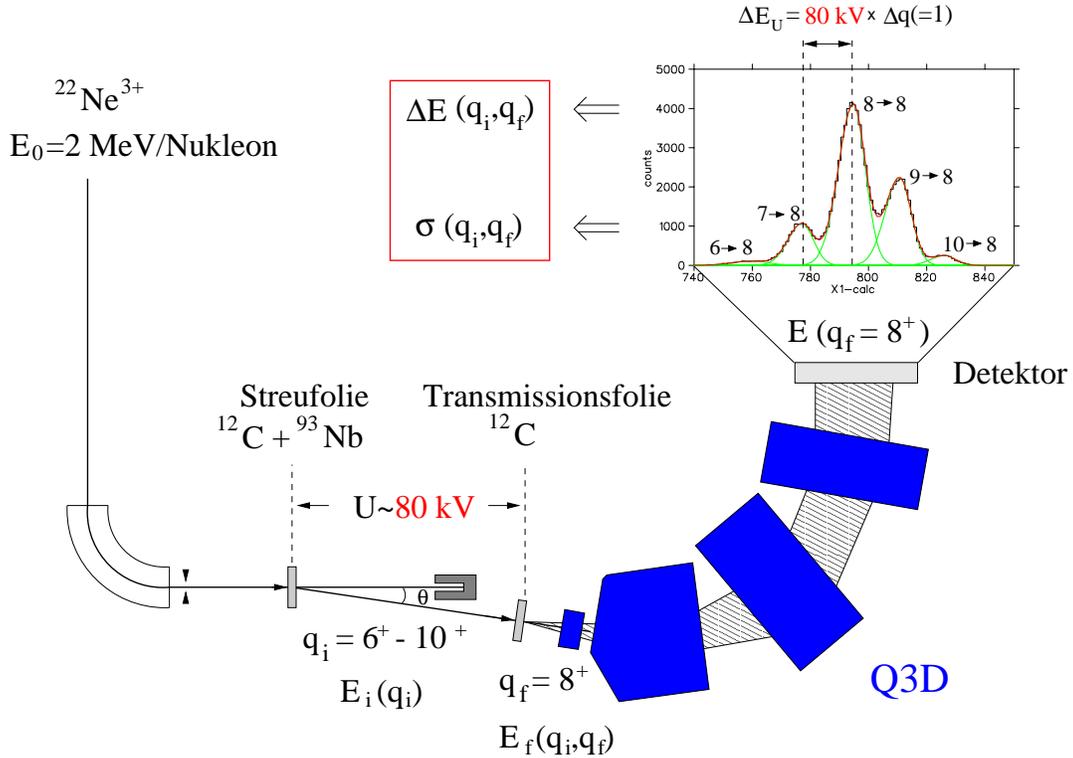


Abbildung 5.1: Prinzip des am Q3D-Spektrographen realisierten Aufbaues zur Messung von Energieverlusten und Umladungsprozessen schwerer Ionen in dünnen Schichten. Die Hochspannung U dient dabei zur Separation der verschiedenen Eingangsladungszustände q_i , der Magnetspektrograph selektiert den Ausgangsladungszustand q_f .

denen Eingangsladungszustände q_i unterscheiden zu können, benutzen wir eine Potentialdifferenz zwischen den Folien. Zum Anlegen einer Hochspannung sind die Streu- und die verschiedenen dicken Transmissionsfolien jeweils in einem glatten, runden Gehäuse mit 1 cm hohen Ein- und Austrittsschlitz für den Strahl untergebracht. Das hat den Vorteil, daß sich die empfindlichen Folien im feldfreien Raum befinden und bei einem Spannungszusammenbruch oder Überschlag nicht beschädigt werden. Ist die Spannung angelegt, so werden die Ionen im Potentialgefälle je nach Ladung mehr oder weniger stark beschleunigt (oder abgebremst), man erhält eine Energiedifferenz $\Delta E_U = U \cdot \Delta q$ für alle Ionen, deren Ein- und Ausgangsladungszustand sich um Δq unterscheidet. Nun registriert der Detektor bei festem q_f für jedes q_i eine separate Linie. In Abb. 5.1 ist ein solches Spektrum für das Beispiel $q_f = 8^+$ dargestellt. Jede Linie ist durch $q_i \rightarrow q_f$ gekennzeichnet. Durch den Vergleich solcher Spektren mit dem entsprechenden Spektrum ohne zweite Folie erhält man die Energieverluste der Ionen in der Folie für alle q_i .

Durch Vermessen aller relevanten Ladungszustände q_f kann je eine Matrix erzeugt werden, die für alle q_i und q_f die Werte für den Energieverlust und für die Umladungswahrscheinlichkeit enthält.

Diese Meßmethode ermöglicht also den Zugang zu zwei wichtigen Größen:

- der Umladungswahrscheinlichkeit $f(q_i \rightarrow q_f)$ für jede Kombination aus q_i und q_f in Abhängigkeit von der Schichtdicke,
- dem Energieverlust $\Delta E(q_i, q_f)$ der Ionen in der Massenbelegung der zweiten Folie als Funktion des Ein- und Ausgangsladungszustandes q_i und q_f .

5.2 Das Experiment: Ne in C

Das hier beschriebene Experiment wurde mit einem ^{22}Ne -Strahl mit einer Energie von 2 MeV/Nukleon durchgeführt, einer Energie, wie sie auch bei ERDA-Experimenten verwendet wird. Die zum Zeitpunkt der Messung maximale anlegbare Spannung von ± 40 kV an den Folien bestimmte diese Wahl. Rechnungen ergaben eine theoretische Energieauflösung der Ionen nach der Streufolie von $\Delta E/E \approx 1 \cdot 10^{-3}$. Um die zu den verschiedenen Eingangsladungszuständen gehörigen Linien separieren zu können, bedarf es einer Energiedifferenz durch die Spannung von mindestens $\Delta E_U > 1,5 \cdot \Delta E$, was die absolute Projektilenergien auf max. 50 MeV beschränkte.

Die Wahl der **Streufolie** erwies sich als problematisch. Wie schon oben diskutiert, soll sie aus Atomen schwerer Masse bestehen und sehr dünn und homogen in Zusammensetzung (isotopenrein) und Massenbelegung sein, damit die Energiebreite des gestreuten Strahls möglichst klein bleibt. Verschiedene schwere Elemente, die nur ein stabiles Isotop haben, wurden auf dünne Kohlenstoffolien aufgedampft und mit Raster- und Transmissionselektronenmikroskopen untersucht. Es stellte sich dabei heraus, daß einige Elemente, wie Gold oder Holmium, beim Aufdampfen Cluster bilden, somit äußerst inhomogen und für unsere Zwecke unbrauchbar waren. Andere Materialien, wie z.B. Wismuth oder Rhenium, kristallisieren strukturiert aus, bilden in einer Richtung basaltartige Säulen, was zu einer unakzeptablen Inhomogenität in der Massenbelegung führt. Letztlich fiel die Entscheidung auf Niob, das sich sehr homogen aufdampfen ließ. Auch hier war eine Kristallbildung zu erkennen, jedoch waren die kristallinen Bereiche klein (5 – 10 nm) und traten nur vereinzelt auf. In Abb. 5.2 ist links eine TEM-Aufnahme einer dünnen Niobschicht auf einer Kohlenstoffolie abgebildet. Die markierten Bereiche zeigen kleine Kristalle, die einzelnen Netzebenen sind deutlich zu erkennen. Im rechten Bild ist das entsprechende Diffraktionsbild dargestellt. Der Kreis weist darauf hin, daß die Kristalle unstrukturiert wachsen, und die Tatsache, daß nur ein schwach

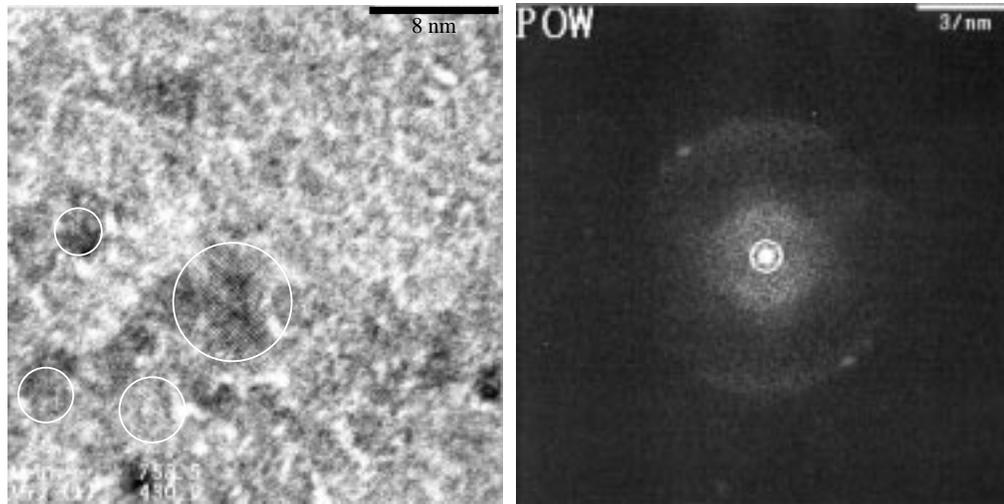


Abbildung 5.2: links: TEM-Aufnahme der mit Niob bedampften C-Schicht. Die Kreise markieren kristalline Bereiche, es sind einzelne Netzebenen erkennbar. rechts: Das dazugehörige Diffraktionsbild, in dem nur ein schwach ausgeprägter Kreis zu erkennen ist, was auf amorphes Material schließen läßt.

ausgeprägter Kreis zu sehen ist, weist darauf hin, daß nur wenige kristalline Bereiche existieren, der größte Teil des aufgedampften Niobs ist amorph.

Die Streufolie bestand also aus $8 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ Niob auf einer $6 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ dicken Trägerfolie aus Kohlenstoff. Die Energiebestimmung der an dieser Folie unter einem Streuwinkel von $\Theta = 8^\circ$ gestreuten Projektile ergab eine Auflösung von $\Delta E/E = 8 \cdot 10^{-4}$, einen Wert, der sogar besser ausfiel, als die Rechnung voraussagte und mit dem wir sehr gut messen konnten.

Auch die **Transmissionsfolien** mußten sorgfältig ausgewählt werden. Grundvoraussetzung war vor allem eine möglichst hohe Homogenität der Massenbelegung, auch bei den dünnsten Folien. Die ersten Versuche, sie selbst herzustellen, scheiterten genau an dieser Anforderung. Es wurden daraufhin mehrere industriell hergestellte Folien untersucht und bei den von *Atomic Energy of Canada Limited* hergestellten Kohlenstofffilmen die besten Ergebnisse gefunden. Sie zeichneten sich durch eine sehr geringe Oberflächenrauigkeit aus. Folien mit verschiedenen Massenbelegungen wurden auf Aluminiumrahmen mit einem Lochdurchmesser von 8 mm aufgespannt und im Hochspannungsgehäuse angebracht. Ihre genaue Massenbelegung wurde im Anschluß an das Experiment über den sehr gut bekannten Energieverlust von α -Teilchen (100% He^{2+}) aus einer ^{244}Cm -Quelle ($E_\alpha = 5,804$ und $5,761$ MeV) bestimmt. Es ergaben sich folgende Foliendicken:

$$3.85, 6.55, 9.45, 18.4 \text{ und } 63.3 \mu\text{g}/\text{cm}^2$$

mit einem Fehler von $\pm 0,2 \mu\text{g}/\text{cm}^2$.

5.2.1 Durchführung des Experiments

An die Streu- und Transmissionsfolienträger konnte für einen stabilen Betrieb +41 bzw. -41 kV angelegt werden. Dadurch, daß sich die Folien im feldfreien Raum innerhalb ihres HV-Gehäuses befinden, bleibt die Hochspannung für die Umladungseffekte wirkungslos, wie auch eine Überprüfung mit dem Ne-Strahl ergab. Abb. 5.3 zeigt die gemessene Ladungsverteilung nach der Streufolie ohne (Sterne) und mit (Kreise) angelegter Hochspannung an beiden Folienträgern. Wie deutlich zu sehen ist, übt das elektrische Potential keine Wirkung auf die Ladungsverteilung der Projektile aus. Mit Rauten gekennzeichnet ist die Gleichgewichtsladungsverteilung nach Shima [Shi82] dargestellt. Die Abweichung von dieser ist auf die geringe Massenbelegung der Streufolie zurückzuführen, das Gleichgewicht der Ladungsverteilung ist bei dieser Schichtdicke, wie wir später sehen werden, für die Ne-Ionen dieser Energie noch nicht erreicht.

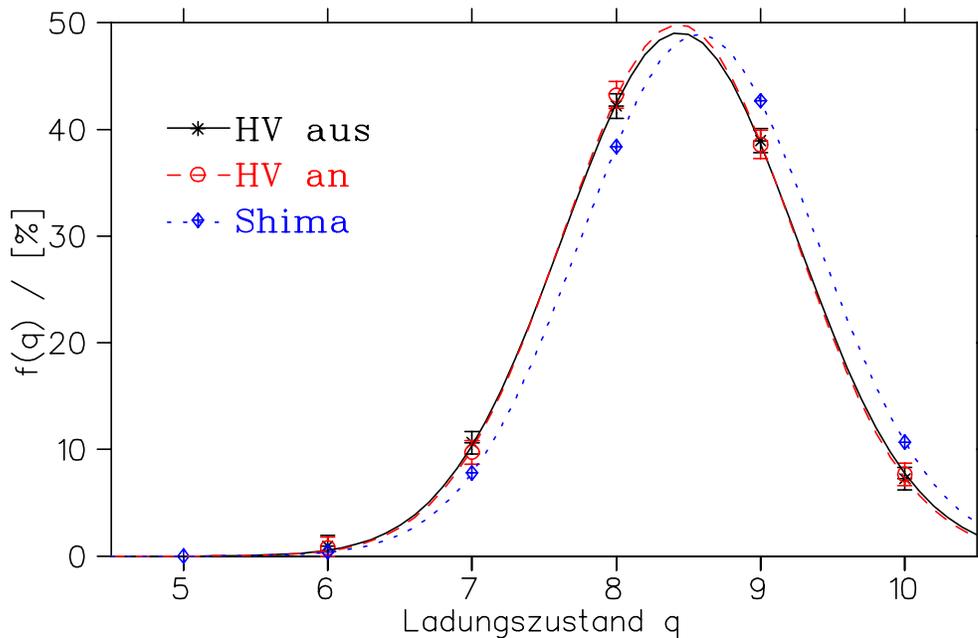


Abbildung 5.3: Ladungsverteilung der Ne-Ionen nach der Streufolie mit und ohne angelegte Hochspannung sowie die berechnete Gleichgewichtsladungsverteilung nach Shima.

Mit angelegter Spannung wurden daraufhin die verschiedenen Transmissionsfolien untersucht. Abb. 5.4 zeigt als Beispiel die aufgenommenen Spektren für den Ausgangsladungszustand $q_f = 7^+$. Die gemessenen Zählraten sind dabei auf gleichen integralen Strahlstrom normiert worden. In einer ersten Messung wurde

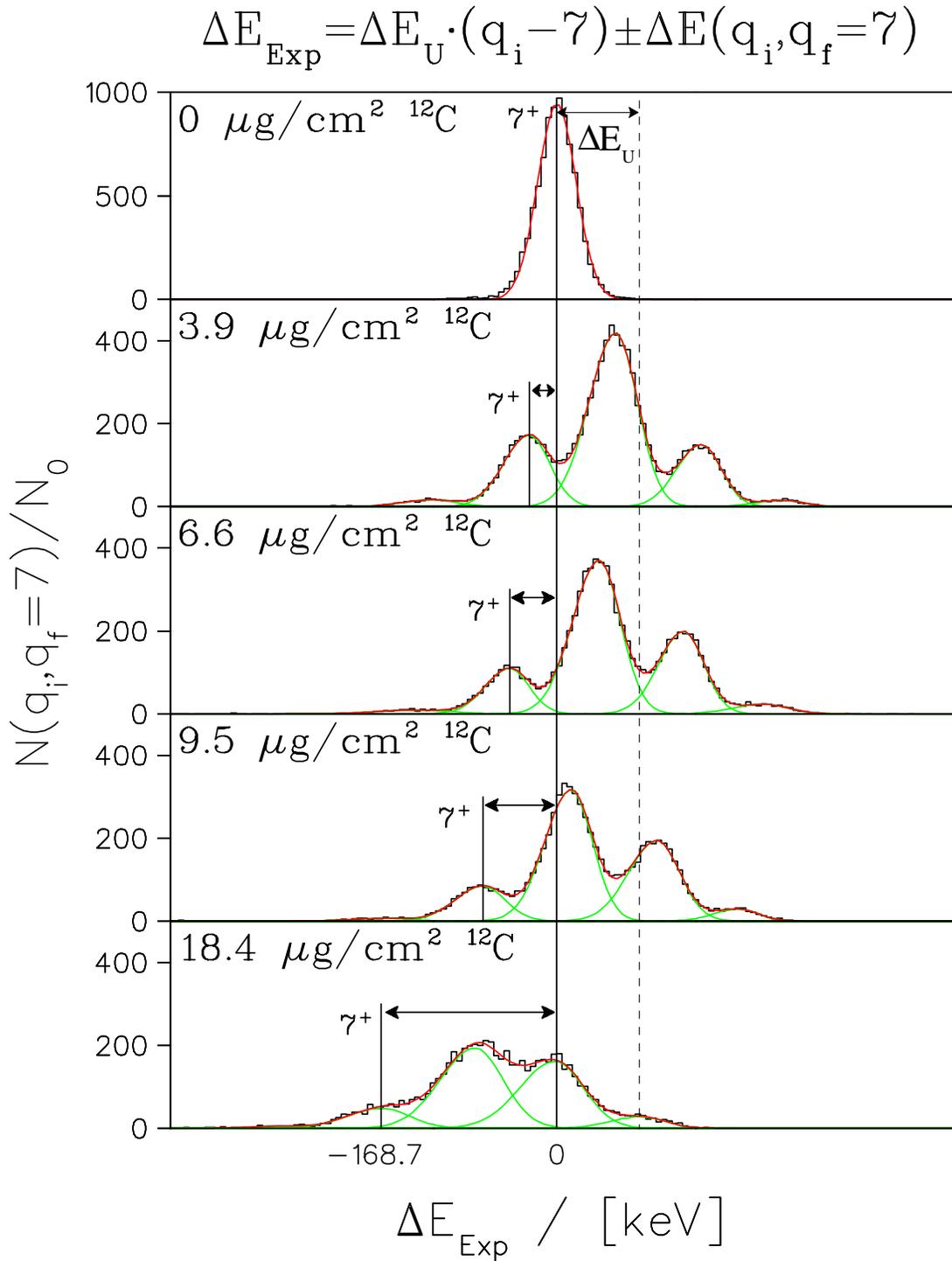


Abbildung 5.4: Satz von Spektren für $q_f = 7^+$ und verschiedene Massenbelegungen der Transmissionsfolie. Durch Pfeile dargestellt ist die Energieverschiebung ΔE_{Exp} der Ionen mit $q_i = q_f = 7^+$ aufgrund des Energieverlustes in der Folie.

zunächst die Referenzenergie mit einem leeren Probenrahmen bestimmt. Da es zu keinen Umladungen kommt, ist folglich im obersten Spektrum nur eine Linie, die die Eingangsenergie E_0 der Projektile festlegt, zu sehen. Diese Linie dient nun als Referenz für die Energieverlustmessungen. Mit den Transmissionsfolien sind in den dazugehörigen Spektren fünf Linien, die zu den Eingangsladungszuständen 6^+ (links) bis 10^+ (rechts) gehören, zu erkennen. Jede Linie beinhaltet demnach diejenigen Ejektile, die vor der Transmissionsfolie die Ladung q_i besaßen, sich in der Folie umgeladen und diese als Ne^{7^+} verlassen haben. Bei geringer Massenbelegung ist die Trennung sehr gut, die Straggling-Effekte sind noch gering. Mit zunehmender Foliendicke jedoch wachsen sie an, die Linien werden immer breiter. Bei der Folie mit $18,4 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ sind sie gerade noch zu separieren, die dickste Folie zeigte keine trennbaren Strukturen mehr. Die fünf Linien wurden daraufhin entfaltet. Als Fitfunktionen haben wir zunächst Gaußfunktionen verwendet. Da jedoch einige Linien Asymmetrien aufweisen, gingen wir zu einer asymmetrischen Gaußfunktion, bestehend aus zwei halben Gaußkurven mit gleichem Scheitel aber verschiedener Breiten, über. Die Ergebnisse der Anpassung an das gemessene Spektrum sind in Abb. 5.4 rot (Summe der grünen Kurven) eingezeichnet. Die Höhe der angepaßten Linien resultiert aus dem Anteil der Ladung q_i der Ladungsverteilung nach der Streufolie (s. Abb. 5.3) und der Umladungswahrscheinlichkeit für den Fall $q_i \rightarrow q_f$ bei der jeweiligen Massenbelegung der Transmissionsfolie. Hieraus lassen sich unter bestimmten Annahmen die Wirkungsquerschnitte für die atomaren Prozesse in der C-Folie bestimmen. Aus der Scheitelposition kann der Energieverlust des Ions für die verschiedenen Eingangsladungszustände q_i extrahiert werden. Die gemessene Energiedifferenz (Abstand des Linien von q_i zur Linie ohne Folie, in Abb. 5.4 durch Pfeile dargestellt) setzt sich dabei aus dem Energiegewinn durch das Potential $\Delta E_U = U \cdot (q_i - 7)$ und dem Energieverlust des Teilchens in der Folie $\Delta E(q_i, q_f)$ zusammen. Sämtliche Spektren für $q_i = 6^+ - 10^+$ sind im Anhang A dargestellt.

Die Ergebnisse der Energieverlustmessung werden in Kap. 5.4.2 diskutiert und sind in Abb. 5.15 abgebildet.

Zur Erzeugung der Ladungsverteilung nach der Transmissionsfolie in Abhängigkeit von einem Eingangsladungszustand q_i benötigt man aus der Analyse der Spektren die Inhalte der einzelnen Linien. Diese werden zunächst mit den gemessenen integrierten Strahlströmen normiert. Setzt man nun für ein q_i die normierten Zählraten der verschiedenen q_f für eine Folie in Relation zueinander, so erhält man die gesuchte Ladungsverteilung $f(q_i, d)$, wenn d die Massenbelegung der Folie kennzeichnet. In Abb. 5.5 sind als Beispiel unsere gemessenen Ladungsverteilungen für $q_f = 7^+$ aufgetragen, wobei die Punkte bei $50 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ nicht in diesem Experiment gemessen worden sind, sondern der Gleichgewichtsladungsverteilung nach Shima [Shi82] entsprechen, die jedoch in einer früheren Messung schon bestätigt worden war.

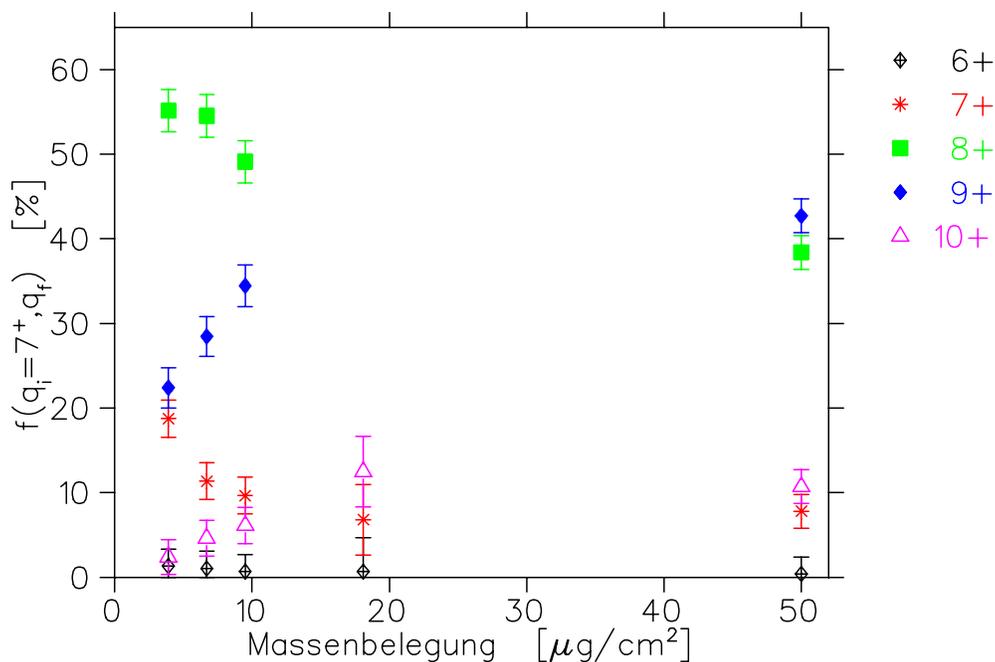


Abbildung 5.5: Gemessene Ladungsverteilungen für $q_i = 7^+$ in Abhängigkeit von der Schichtdicke der Kohlenstoffolie.

Es ist ein schneller Abfall des Anteils an Ionen mit der Ladung 7^+ zu sehen, bei einer Massenbelegung von $3,85 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ nur noch weniger als 20 %, während die höheren Ladungszustände 9^+ und 10^+ deutlich ansteigen. Da der Anteil an Ne^{8+} schon bei der dünnsten Folie sein Maximum erreicht hat und dann wieder abnimmt, muß der Wirkungsquerschnitt für die Ionisation eines Elektrons, wahrscheinlich aus der $2s$ -Schale, sehr groß sein, so daß schon nach wenigen Atomlagen der größte Teil der Ne^{7+} -Projektile ein Elektron verloren und sich zu Ne^{8+} umgeladen hat. Den dominanten Prozeß in diesem Fall stellt demnach die Ionisation dar.

Der nächste Schritt in der Analyse besteht nun darin, aus den Meßdaten die Wirkungsquerschnitte für die atomaren Prozesse zu extrahieren.

5.3 Theoretische Analyse der Ladungsverteilung

5.3.1 Die Ratengleichung

Die Beschreibung der gemessenen Ladungsverteilungen erfordert die Lösung gekoppelter Differentialgleichungen, den sogenannten Ratengleichungen. Sei $Y_i(x)$ der Anteil der Ionen mit der Ladung q_i (mit $\sum_i Y_i(x) = 1$) und x die durchlaufene Schichtdicke. Dann setzt sich die Variation dieses Anteils beim Durchqueren der Probe aus dem Fluß aus den restlichen Kanälen Y_j in den Kanal Y_i und dem Fluß aus Y_i in die anderen Kanäle Y_j zusammen:

$$\frac{dY_i}{dx} = \sum_j Y_j(x) \cdot \sigma_{ji} - Y_i(x) \sum_j \sigma_{ij} \quad (5.2)$$

Hierbei steht σ_{ij} für den Wirkungsquerschnitt des Umladungsprozesses $q_i \rightarrow q_j$. Diese Beschreibung erwies sich jedoch sehr schnell als nicht ausreichend. Man erkannte, daß die Effekte angeregter Ionen bei der Bestimmung des Ladungszustandes in Festkörpern (im Gegensatz zu Gasen, wo der Abstand der Atome um ein Vielfaches größer ist) eine wichtige Rolle spielen. In der Tat steigt z.B. der Querschnitt für die Ionisation eines Elektrons aus einer Schale stark mit deren Hauptquantenzahl n an und führt somit zu höheren effektiven Elektronenverlusten angeregter Ionen im Vergleich zu Projektile im Grundzustand. Es erwies sich als vorteilhafter, Y_i nicht als Anteil der Ionen eines Ladungszustandes q , sondern als Anteil der Ionen mit einer bestimmten Elektronenkonfiguration, bei der die Zahl der Elektronen in jeder Unterschale berücksichtigt wird, zu definieren. Dies führt zu einer enormen Vervielfachung der Zahl der Differentialgleichungen. Während im vorigen Modell für ein H-ähnliches Atom (ein Elektron) nur ein Y genügte, benötigt man nun für jede Unterschale ein Y , bei zwei Elektronen muß man alle möglichen Besetzungskonfigurationen auf alle Unterschalen mit je einem Y belegen. Diese Anzahl kann aber praktisch aufgrund von physikalischen Überlegungen limitiert werden. Die Ionisationsquerschnitte wachsen mit steigender Hauptquantenzahl n an und werden in höheren Schalen so groß, daß die Elektronen mit nahezu 100 %-iger Wahrscheinlichkeit ionisiert werden. Anhold [Anh85] z.B. beschränkte sich bei seinen Untersuchungen mit relativistischen Projektilen nur auf die Unterschalen 1s, 2s und 2p und erhielt damit zufriedenstellende Ergebnisse. Wir benutzten bei unseren Analysen ein Programm, das außerdem auch noch die M-Schale ($n = 3$) mitberücksichtigt.

5.3.2 Die Wirkungsquerschnitte

Zur Lösung der Differentialgleichungen werden die Wirkungsquerschnitte σ_{ij} für alle Prozesse, die zu einer Änderung der Elektronenkonfiguration des Projektils führen, benötigt. Diese wären:

- σ_{NRC} : *nonradiative electron capture*, strahlungsfreier Einfang eines gebundenen Elektrons in einen gebundenen Zustand des Projektils.
- σ_{REC} : *radiative electron capture*, Einfang eines Valenzbandelektrons unter Emission von Strahlung.
- σ_{ION} : *ionisation*, Elektronenverlust durch Ionisation oder Anregung in hohe Schalen mit großen Ionisationsquerschnitten ($n \geq 4$).
- σ_{EX} : *excitation*, Anregung in einen gebundenen Zustand.
- σ_{RAD} : *radiative decay*, Zerfall eines angeregten Elektrons in eine tiefergelegene Schale mit Strahlungsemission.
- σ_{Aug} : *Auger decay*, Augerzerfall.

Alle diese Wirkungsquerschnitte zu messen ist äußerst umständlich. Deshalb sind wir auf die theoretische Berechnung dieser Größen angewiesen. Einen guten Überblick über all die verschiedenen Ansätze zur Beschreibung der relevanten Prozesse findet sich z.B. in [Dew94, Jan85, McD70]. Der folgende Abriß über die theoretische Behandlung von Umladungsprozessen ist diesen Arbeiten entnommen.

Da bei atomaren Stoßprozessen neben den beiden Kernen auch alle gebundenen Elektronen miteinander wechselwirken, stellt dieser Prozeß ein quantenmechanisch nicht lösbares Mehr-Körper-Problem dar. Aus diesem Grund soll zunächst der einfachste Fall, ein 3-Körper-Problem, berechnet werden. Betrachtet wird die Wechselwirkung eines nackten Projektils P mit einem Probenkern T und einem gebundenen Elektron e. Das Projektil bewegt sich dabei auf einer geradlinigen Bahn, die gegenüber der Targetposition durch den Stoßparameter \vec{b} und dessen Geschwindigkeitsvektor \vec{v} beschrieben wird:

$$\vec{R}(t) = \vec{b} + \vec{v}t \quad \text{mit} \quad \vec{b} \cdot \vec{v} = 0 \quad (5.3)$$

Die Definition des Hamiltonoperators im Schwerpunktssystem lautet dann:

$$H = K + V_{Te} + V_{Pe} + V_{PT} \quad (5.4)$$

K symbolisiert den Operator der kinetischen Energie des Systems und V_{xy} die Wechselwirkung zwischen den Teilchen x und y. Das isolierte Targetsystem (T + e) läßt sich mit

$$h_T = -\frac{1}{2}\mu_T \nabla_{\vec{r}_T}^2 + V_{Te} \quad (5.5)$$

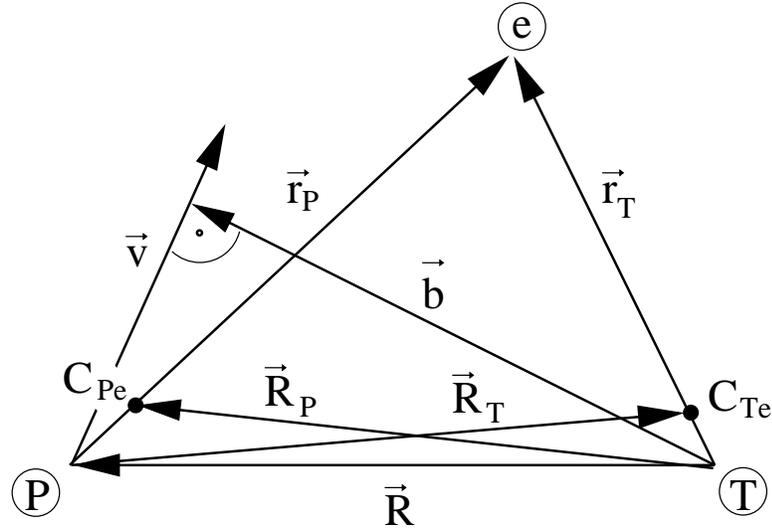


Abbildung 5.6: Variablenbezeichnung für das 3-Körper-Problem.

P : Projektil, T : Targetatom, e : Elektron, $C_{Pe/Te}$: Schwerpunkt von Projektil/Target und Elektron, \vec{v} : Bewegungsrichtung des Projektils, \vec{b} : Stoßparameter

beschreiben. $\mu_T = m_e M_T / (m_e + M_T)$ ist die reduzierte Targetmasse. Die korrespondierende, ungestörte Wellenfunktion $\varphi^T(\vec{r}_T)$ dieses Subsystems genügt der Schrödingergleichung

$$(h_T - \varepsilon^T)\varphi^T(\vec{r}_T) = 0 \quad (5.6)$$

wo ε^T für die Eigenenergie steht. Das Projektil hingegen wird für sich alleine durch seinen kinetischen Operator beschrieben:

$$h_P = -\frac{1}{2}M_P\nabla_{\vec{r}_P}^2 \quad (5.7)$$

Aus diesen zwei Anteilen läßt sich nun der Hamiltonoperator für den (ungestörten) Eingangskanal zusammensetzen:

$$h_i = \lim_{R \rightarrow \infty} H = -\frac{1}{2}\mu_i\nabla_{\vec{R}_T}^2 + h_T \quad (5.8)$$

mit $\mu_i = M_P(m_e + M_T)/(m_e + M_T + M_P)$.

Für den Ausgangskanal kann analog vorgegangen werden. Bei einem Elektroneneinfang ist das Elektron aber im asymptotischen Zustand am Projektil gebunden, deshalb tauschen T und P ihre Plätze. Nun kann auch der totale Hamiltonoperator definiert werden:

$$H = h_i + V_i = h_f + V_f \quad (5.9)$$

wobei $V_i = V_{PT} + V_{Pe}$ die Störung im Eingangskanal und $V_f = V_{PT} + V_{Pe}$ (bei Anregung) bzw. $V_f = V_{PT} + V_{Te}$ (bei Elektroneneinfang) die Störung im Ausgangskanal darstellt. Hierfür lauten die totalen Wellenfunktionen

$$\Phi_i(E) = \exp(i\vec{k}_i^P \vec{R}_P) \varphi_i^T(\vec{r}_T) \quad (5.10)$$

$$\Phi_f(E) = \exp(i\vec{k}_f^T \vec{R}_T) \varphi_f^P(\vec{r}_P) \quad (\text{für e-Einfang}) \quad (5.11)$$

(E : Energie des Systems, \vec{k} : Wellenvektor), die den Schrödingergleichungen

$$(h_i - E)\Phi_i(E) = 0 \quad (5.12)$$

$$(h_f - E)\Phi_f(E) = 0 \quad (5.13)$$

genügen. E ist über den Energieerhaltungssatz je nach Reaktion definiert durch:

$$E = (k_i^P)^2/2\mu_i + \varepsilon_i^T = (k_n^P)^2/2\mu_i + \varepsilon_n^T \quad (\text{Anregung}) \quad (5.14)$$

$$E = (k_i^P)^2/2\mu_i + \varepsilon_i^T = (k_f^P)^2/2\mu_f + \varepsilon_f^P \quad (\text{e-Einfang}) \quad (5.15)$$

Mit den totalen Wellenfunktionen Φ lassen sich nun im Rahmen der Störungsrechnung Übergangswahrscheinlichkeiten T_{if} für die jeweiligen Reaktionen angeben:

$$T_{if}^+ = \langle \Phi_f(E) | H - h_i | \Phi_i(E) \rangle \quad \text{post-Form} \quad (5.16)$$

$$T_{if}^- = \langle \Phi_i(E) | H - h_f | \Phi_f(E) \rangle \quad \text{prior-Form} \quad (5.17)$$

Mathematisch gesehen sind die beiden Formen identisch, solange sie exakt gerechnet werden. Gehen jedoch Näherungen ein, so kann es häufig zu Abweichungen kommen. Es empfiehlt sich stets, die Form zu wählen, bei der die Störung geringer ist. Mit der richtigen Wahl läßt sich letztendlich der gesuchte Wirkungsquerschnitt berechnen:

$$\sigma_{if}(E) = \frac{\mu_i \mu_f}{4\pi^2} \frac{k_f}{k_i} \int |T_{if}|^2 d\Omega \quad (5.18)$$

Im allgemeinen müssen aber viele Elektronen berücksichtigt werden. Dieser Normalfall kann jedoch auf den oben beschriebenen Sonderfall zurückgeführt werden. Dazu bezieht man sich auf das *Aktive-Elektron-Modell*, bei dem nur die Wechselwirkung des an der Reaktion teilnehmenden Elektrons mitgenommen wird und die Restelektronen als *eingefroren* anzusehen sind. Es wird zunächst deren Wechselwirkung mit den drei Reaktionsteilchen vernachlässigt und ihr Einfluß dann durch Korrekturterme für die zur Erzeugung der Wellenfunktionen relevanten Größen berücksichtigt. Diese Effekte werden am Beispiel einer Ionisation eines Projektelektrons durch das Potential eines Probenatoms erläutert. Die an das Targetatom gebundenen Elektronen schirmen dessen Kern zum Teil ab, das aktive Elektron sieht nur eine geringere, effektive Kernladung, was den Ionisierungswirkungsquerschnitt vermindern wird. Dieser Effekt wird Abschirmung oder

'screening' genannt. Andererseits tragen diese Elektronen durch ihre abstoßende Wechselwirkung mit dem aktiven Elektron zur Ionisation bei und vergrößern dadurch σ_{ion} (*antiscreening*). Anhold [Anh85] berücksichtigte diesen Effekt, indem er bei der Berechnung der Wirkungsquerschnitte den Faktor Z_T^2 mit folgender Abschirmfunktion multiplizierte:

$$s(q) = \frac{1}{Z_T^2} \left[\left| Z_T - \sum_i \langle \Psi_i | \exp(i\vec{q}\vec{r}) | \Psi_i \rangle \right|^2 + \left| Z_T - \sum_i \langle \Psi_i | \exp(i\vec{q}\vec{r}) | \Psi_i \rangle \right|^2 \right] \quad (5.19)$$

(Ψ_i :Orbitalwellenfunktion für das i -te Elektron, q :Impulsübertrag)

Der erste Term steht für die effektive, abgeschirmte Ladung des Probenatoms, die das Projektilektron sieht, wobei die Summe den atomaren Formfaktor $F_T(q,Z)$, wie er bei der Berechnung der Comptonstreuung verwendet wird und z.B. in [Hub75] tabelliert ist, darstellt. Der zweite Term beschreibt den Antiscreening-Effekt und kann z.B. mit Hartree-Fock-Wellenfunktionen berechnet werden. Durch diese Abschirmeffekte ändern sich folglich auch die Eigenenergien der einzelnen Schalen und damit auch ihre Wellenfunktionen und müssen angepaßt werden. Die beschriebenen Effekte sind analog auch auf das Projektil anzuwenden.

Zum Schluß muß der mit diesen Korrekturen errechnete Wirkungsquerschnitt, der ja für das Ein-Elektron-System berechnet wurde, proportional zu den Besetzungszahlen der betroffenen Schalen, d.h. zu der Anzahl der zur Verfügung stehenden Elektronen in der Ausgangsschale und den freien Löchern in der Endschale, skaliert werden.

Elektronenverlust: σ_l

Bei den ersten Überlegungen zu den Umladungsprozessen spielten die Orbitalgeschwindigkeiten der Elektronen u in Relation zur Projektilgeschwindigkeit v eine wichtige Rolle. Die ersten Abschätzungen machte Bohr [Boh48] für den Elektronenverlust schneller, leichter Ionen in Gasen leichter Masse. Für den Fall $v \gg u_0$ ($u_0 = e^2/\hbar = 2,128$ cm/s, Bohrsche Geschwindigkeit), benutzte er die *free collision approximation*, bei der die Elektronen als frei angesehen und die Bindungskräfte vernachlässigt werden, und erhielt für den Wirkungsquerschnitt:

$$\sigma_l = 4\pi a_0^2 Z_P^{-2} (Z_T^2 + Z_T) \left(\frac{u_0}{v} \right)^2 \quad (5.20)$$

($a_0 = \hbar^2/m_e e^2 = 0,529 \text{ \AA}$: Bohrscher Radius)

Für mittelschwere Probenatome argumentierte Bohr, daß die fest gebundenen Elektronen nicht mehr unabhängig voneinander mit dem Elektron der Projektils

wechselwirken. Unter Berücksichtigung des Abschirmungseffektes der gebundenen Targetelektronen leitete er für leichte Projektile folgende Näherung ab:

$$\sigma_l \simeq \pi a_0^2 Z_T^{2/3} Z_P^{-1} \frac{u_0}{v} \quad (5.21)$$

Dmitriev und Nikolaev [Dmi63] führten die Abschirmung des Targetkerns auch durch die freien Elektronen im Festkörper und die effektive Ladung Z^* ein und schlugen vor, den Elektronenverlust als Streuung eines freien Elektrons der Geschwindigkeit v an einem Atom des Mediums, verbunden mit einem Energieübertrag, der größer als die Bindungsenergie ist, zu betrachten. Dies führt zu einer deutlichen Reduktion des Bohrschen Wirkungsquerschnitts.

Schwieriger erwies sich die Behandlung schwerer Projektile, die gebundene Elektronen mit Bahngeschwindigkeiten $u > v$ mit sich führen. Eine wichtige und bis heute gebräuchliche Überlegung von Bohr betrifft folgende Argumentation: Einerseits führt eine Kollision schwerer Ionen mit den Probenatomen stets zum Verlust der Elektronen mit $u \lesssim v$, während Ionisation von Elektronen mit $u \gg v$ sehr unwahrscheinlich ist. Andererseits werden Elektronen vorwiegend in Schalen mit $u \gtrsim v$ eingefangen, in Orbitale mit $u \ll v$ dagegen so gut wie gar nicht. Diesen Schlußfolgerungen folgend erhielt er für schwere Projektile in leichten Medien

$$\sigma_l \sim 4\pi a_0^2 Z_P^{1/3} Z_T^2 \left(\frac{u_0}{v}\right)^3 \quad (5.22)$$

1954 entwickelten Bohr und Lindhard [Boh54] eine Näherung für schwere Projektile, um den Elektronenverlust mittels quantenmechanischer Störungstheorie zu rechnen, indem sie diesen Prozeß als Ionisation behandelten. Ein Elektron in der i -ten Schale eines Projektils mit der Ladung q betrachtend, leiteten sie dessen Ionisationsquerschnitt ab:

$$\sigma_{ion}^i = 4\pi a_0^2 q^2 \left(\frac{u_0^2}{uv}\right)^2 \left(1 - \left(\frac{u}{2v}\right)^2\right) \quad (u \leq 2v) \quad (5.23)$$

Den totalen Querschnitt erhält man durch eine Summation über alle Elektronen des Projektils mit Orbitalgeschwindigkeiten $u \leq 2v$. Zur Bestimmung der Geschwindigkeitsverteilung der Elektronen verwendeten sie das Thomas-Fermi-Modell: $dn/dv = A^{1/2}/u_0$ und für q setzten sie die mittlere Ladung im Gleichgewicht $q = Z_T^{1/3} v/u_0$ ein. Damit erhielten sie schließlich:

$$\sigma_{ion} = \pi a_0^2 Z_T^{2/3} Z_P^{4/3} q^{-3} \left(\frac{v}{u_0}\right)^2 \quad (5.24)$$

Mit der Entwicklung der Computer übernahmen die quantenmechanischen Methoden das Feld. So werden heute die Ionisationsquerschnitte vorwiegend mit den verschiedenen Bornschen Näherungen (Born II, PWBA, DWBA, CWBA, etc.) berechnet.

Elektroneneinfang: σ_c

Für den Elektroneneinfang leichter Projektile machte Bohr folgenden Ansatz:

$$\sigma_c \sim \sigma' f n_e \quad (5.25)$$

Die Größe $\sigma' = 4\pi a_0^2 Z_P^2 u_0^4 / (uv)^2$ kennzeichnet dabei den Wirkungsquerschnitt für eine Kollision, bei der das Projektil eine Energie in der Größenordnung von $m_e v^2/2$ an ein Targetelektron mit der Orbitalgeschwindigkeit u überträgt. Die Wahrscheinlichkeit, daß das herausgestoßene Elektron vom Projektil eingefangen wird, beschreibt der Faktor $f \sim (Z_P u_0/v)^3$ und $n_e = Z_T^{1/3} u/u_0$ gibt die Anzahl der Elektronen im Probenatom mit der Orbitalgeschwindigkeit u an. Für den Fall $v \simeq u$ leitete er folgende Gleichung ab:

$$\sigma_c \sim 4\pi a_0^2 Z_P^5 Z_T^{1/3} \left(\frac{u_0}{v}\right)^6 \quad (5.26)$$

Für schwere Projektile in leichten Medien erhielt er durch Vertauschen von Z_P und Z_T :

$$\sigma_c \sim 4\pi a_0^2 Z_P^{1/3} Z_T^5 \left(\frac{u_0}{v}\right)^6 \quad (5.27)$$

Nikolaev [Nik57] benutzte Bohrs Ansatz, um den Einfangsquerschnitt für N in Ar-Gas zu bestimmen. Unter Berücksichtigung der Abschirmeffekte erhielt er:

$$\sigma_c \approx 4\pi a_0^2 q^3 \left(\frac{u_0}{v}\right)^6 n_e \quad (3u_0 < v < 6u_0) \quad (5.28)$$

$$(n_e = Z_T^{1/3} v/u_0)$$

Oppenheimer, Brinkman und Kramers (OBK) berechneten 1930 [Opp28, Bri30] als erste den Elektroneneinfang auf quantenmechanischem Wege. Ihre Herleitung basiert auf zwei Annahmen:

- Die relative Bewegung der zwei Kerne kann mit ungestörten ebenen Wellen beschrieben werden.
- Die Wechselwirkung der Kerne untereinander kann vernachlässigt werden, $V_{PT} = 0$

Somit lautet Gl. 5.16 in diesem Fall:

$$T_{if}^+ = \left\langle \Phi_f \left| -\frac{Z_T}{r_T} \right| \Phi_i \right\rangle \quad (5.29)$$

Die Integralgleichung für den Wirkungsquerschnitt (Gl. 5.18) läßt sich analytisch lösen. Für den Einfang eines Elektrons aus der Schale n_i des Targetatoms in die Schale n_f des Projektils lautet die Lösung:

$$\sigma_{n_i \rightarrow n_f}^{OBK} = \frac{\pi 2^{18} (Z_P Z_T)^5 v^2}{5n_i^2 n_f^3 \left[v^4 + 2v^3 \left(\frac{Z_T^2}{n_i^2} + \frac{Z_P^2}{n_f^2} \right) + \left(\frac{Z_T^2}{n_i^2} - \frac{Z_P^2}{n_f^2} \right)^2 \right]^5} \quad (5.30)$$

Daneben existieren eine große Anzahl quantenmechanischer Methoden, die sich durch die Wahl der Wellenfunktionen oder die Definition des Störpotentials unterscheiden, so wie DWBA (Distorted Wave Born Approximation), CDWA (Continuum Distorted Wave Approximation), IA (Impuls Approximation), EA (Eikonal Approximation), etc. Näheres zu diesen Verfahren findet sich in den am Anfang des Kapitels zitierten Arbeiten.

Anregung: σ_{ex}

Die Wirkungsquerschnitte für die Anregungsprozesse werden analog zur Ionisation quantenmechanisch berechnet.

Radiativer (σ_{rad}) und Augerzerfall (σ_{Aug}):

Der Auger- bzw. der radiative Zerfall sind schon frühzeitig untersucht worden. Die benötigten Wirkungsquerschnitte können aus der Literatur entnommen werden [Bet57, Kra79].

5.3.3 Das Programm ETACHA

Zur Lösung der Ratengleichungen (Gl. 5.2) und Berechnung der dafür benötigten Wirkungsquerschnitte benützen wir das Programm ETACHA [Roz96]. Es bestimmt die Ladungsverteilung in Abhängigkeit der Schichtdicke von bis zu 28 Elektronen im Projektil, die auf die K, L und M Schale, sowie deren Unterschalen verteilt sind. Das Programm wurde für Projektilenergien von 10 – 80 MeV/Nukleon geschrieben und erfolgreich getestet. Dessen Anwendung auf unseren Fall (2 MeV/Nukleon) stellt einen Test der verwendeten Methoden zur Berechnung der Wirkungsquerschnitte dar, bei dem Abweichungen aufgrund von Näherungen für hohe Energien zu erwarten sind. Es bietet jedoch auch die Möglichkeit, Wirkungsquerschnitte, mit denen die Ratengleichungen gelöst werden, auch extern einzugeben, was uns wiederum von diesen, für unseren Fall nicht gültigen, Abschätzungen unabhängig macht.

Die Bestimmung der Wirkungsquerschnitte erfolgt, wie in Kap. 5.3.2 beschrieben, über die Skalierung der für ein H-ähnliches Atom berechneten Querschnitte σ_{ij} auf die wirkliche Elektronenkonfiguration des Projektils mit der Ladung q . Zu deren Berechnung werden folgende, nicht rechenzeitintensive Verfahren gewählt:

- Der **strahlungsfreie Elektroneneinfang NRC** wird in ETACHA mit einer analytischen Näherung von $\sigma_c(1s \rightarrow 1s)$ aus der Eikonalnäherung mit relativistischen H-Wellenfunktionen [Eic85] berechnet. Dieses Verfahren liefert jedoch zu kleine Querschnitte, um die gemessenen Ladungsverteilungen zufriedenstellend zu beschreiben. Die beste Übereinstimmung mit den

Meßdaten erhielten wir mit Wirkungsquerschnitten, die mit der *continuum distorted wave approximation* (CDWA) berechnet wurden.

- Zur Bestimmung der Wirkungsquerschnitte für den **radiativen Elektreneinfang REC** wird die Bethe-Salpeter Formel [Bet57] mit H-Wellenfunktionen verwendet.
NRC und REC sind nur für vollständig gestrippte Ionen gültig. Hat das Projektil gebundene Elektronen, wird deren Einfluß durch ihre Abschirmung des Kerns ($\rightarrow Z_{eff}$) berücksichtigt. Der erhaltene Querschnitt wird daraufhin mit der Anzahl der Löcher in der betreffenden Schale skaliert (Unabhängiges-Elektron-Modell).
- Der Wirkungsquerschnitt für die **Ionisation** eines Elektrons aus einer Unterschale wird in ETACHA mit Hilfe der *plane wave Born approximation* (PWBA) [Kha69, Cho73] mit abgeschirmten H-Wellenfunktionen unter Berücksichtigung der *screening* und *antiscreening* Effekte durch die Targetelektronen berechnet. Auch hier wird der gefundene Wert mit der Anzahl der Elektronen in der betrachteten Unterschale skaliert.
- Die Behandlung der **Anregung** erfolgt auf gleiche Weise wie bei der Ionisation. Hier ist der Wirkungsquerschnitt jedoch proportional zur Anzahl der Elektronen in der Ausgangsschale und der Löcher in der Endschale. Anregungen in Schalen $n \geq 4$ werden durch eine Skalierung des Wirkungsquerschnitts für $n = 4$ mit einem $1/n^3$ -Faktor bestimmt und zu σ_{ion} hinzugezählt.
- **Radiative und Augerzerfallsraten** wurden aus Tabellen entnommen [Bet57, Kra79].

5.3.4 Analyse der gemessenen Ladungsverteilungen

In Tab. 5.1 sind die einzelnen Wirkungsquerschnitte, wie sie zur Beschreibung unserer Daten verwendet wurden, angegeben. Die erste Spalte beinhaltet die Werte für das H-ähnliche Ne, daneben sind die für den jeweiligen Ladungszustand (Elektronenkonfiguration des Grundzustandes, Werte mit * bezeichnen ein Elektron in einer höheren Schale) skalierten Querschnitte zu finden. σ_{NRC} und σ_{REC} sind zu σ_c zusammengefaßt, der Beitrag von σ_{REC} ist in diesem Fall stets kleiner als 1 %. Die Zerfallsraten für den radiativen und den Augerprozeß wurden aus den mittleren Lebensdauern für ein Lochzustand abgeleitet ($\tau_{rad}(K) = 1,46 \cdot 10^{-13}s$ und $\tau_{Aug}(K) = 2,68 \cdot 10^{-15}s$). Für uns relevant ist höchstens der Zerfall aus der L-Schale bzw. der KLL-Augerprozeß, da die Ionisationsquerschnitte in der M-Schale eindeutig dominieren. Dieser Fall (ein Loch in der K- und ein bzw zwei Elektronen in der L-Schale) führt zu folgenden Wirkungsquerschnitten:

$$\sigma_{rad}(K) = 0,4 \cdot 10^{-20} cm^2 \quad \text{und} \quad \sigma_{Aug}(KLL) = 42 \cdot 10^{-20} cm^2$$

Auch hier ergibt der Vergleich mit den Ionisationsquerschnitten, daß der Anteil dieser Prozesse äußerst gering ausfällt.

| σ | Ne | skaliert für | | | | |
|----------------------------------|---------|----------------|----------------|----------------|----------------|-----------------|
| | H-ähnl. | 6 ⁺ | 7 ⁺ | 8 ⁺ | 9 ⁺ | 10 ⁺ |
| $\sigma_c(1s)$ | 221 | - | - | - | 115 | 221 |
| $\sigma_c(2s)$ | 160 | - | 46.7 | 106 | 135 | 160 |
| $\sigma_c(2p)$ | 298 | 152 | 174 | 197 | 251 | 298 |
| $\sigma_c(3s)$ | 72.0 | 11.0 | 19.1 | 30.5 | 48.8 | 72.0 |
| $\sigma_c(3p)$ | 121 | 18.5 | 32.1 | 51.4 | 81.9 | 121 |
| $\sigma_c(3d)$ | 48.0 | 7.3 | 12.8 | 20.4 | 32.5 | 48.0 |
| $\sigma_{ion}(1s)$ | 50.1 | 143 | 135 | 126 | 50.1 | - |
| $\sigma_{ion}(2s)$ | 757 | 2370 | 1060 | 907* | 757* | - |
| $\sigma_{ion}(2p)$ | 838 | 1370* | 1200* | 1000* | 838* | - |
| $\sigma_{ion}(3s)$ | 2330 | 3150* | 2890* | 2620* | 2330* | - |
| $\sigma_{ion}(3p)$ | 2430 | 3260* | 3000* | 2720* | 2430* | - |
| $\sigma_{ion}(3d)$ | 2450 | 3300* | 2980* | 2700* | 2450* | - |
| $\sigma_{ex}(1s \rightarrow 2s)$ | 6.1 | - | 6.9 | 13.5 | 6.1 | - |
| $\sigma_{ex}(1s \rightarrow 2p)$ | 28.3 | 75.5 | 72.0 | 68.4 | 28.3 | - |
| $\sigma_{ex}(1s \rightarrow 3s)$ | 1.3 | 2.9 | 2.8 | 2.8 | 1.3 | - |
| $\sigma_{ex}(1s \rightarrow 3p)$ | 5.3 | 14.4 | 13.7 | 12.9 | 5.3 | - |
| $\sigma_{ex}(1s \rightarrow 3d)$ | 0.5 | 1.4 | 1.3 | 1.3 | 0.5 | - |
| $\sigma_{ex}(2s \rightarrow 2p)$ | 1030 | 2070 | 1030 | 1030* | 1030* | - |
| $\sigma_{ex}(2s \rightarrow 3s)$ | 56 | 151 | 72 | 66* | 56* | - |
| $\sigma_{ex}(2s \rightarrow 3p)$ | 81 | 206 | 99 | 93* | 81* | - |
| $\sigma_{ex}(2s \rightarrow 3d)$ | 210 | 598 | 279 | 253* | 210* | - |
| $\sigma_{ex}(2p \rightarrow 3s)$ | 26 | 40* | 35* | 30* | 26* | - |
| $\sigma_{ex}(2p \rightarrow 3p)$ | 81 | 92* | 85* | 77* | 81* | - |
| $\sigma_{ex}(2p \rightarrow 3d)$ | 210 | 362* | 343* | 317* | 210* | - |

Tabelle 5.1: Wirkungsquerschnitte für die atomaren Prozesse (in 10^{-20} cm^2) für Ne-Projektile im Grundzustand bzw mit * gekennzeichnet in einem einfach angeregten Zustand.

In den Wirkungsquerschnitten für den Elektroneneinfang und -verlust ist das Bohrsche Geschwindigkeitskriterium zu erkennen. Bei einer Energie von 2 MeV/Nukleon hat das Ne-Ion eine Geschwindigkeit von:

$$v_P = 19,643 \cdot 10^6 \frac{m}{s} = 8,945 \cdot u_0 \quad (5.31)$$

Die Orbitalgeschwindigkeit der gebundenen Elektronen beträgt nach Bohr ($u = Ze^2/n\hbar$)

$$\text{für die K-Schale:} \quad u(K) = 21,8 \cdot 10^6 \text{ m/s} \quad (5.32)$$

$$\text{und die L-Schale:} \quad u(L) = 10,9 \cdot 10^6 \text{ m/s} \quad (5.33)$$

Nach dem Geschwindigkeitskriterium werden Elektronen mit $u < v_P$ abgestreift. Wie aus Tab. 5.1 zu ersehen ist, sind die Wirkungsquerschnitte für die Ionisation der Elektronen aus der 2s oder einer höheren Schale um mehr als eine Größenordnung höher als die der 1s-Schale. Den Einfangprozeß betreffend besagt das Kriterium, daß die Elektronen vorwiegend in Schalen mit $u > v_P$ gebunden werden. Beachtet man die Tatsache, daß die in Tab. 5.1 angegebenen Einfangsquerschnitte stets für eine leere Schale angegeben sind, und betrachtet stattdessen den Wirkungsquerschnitt σ' pro Loch in der Schale, so erkennt man die Gültigkeit von Bohrs Argumentation deutlich:

$$\sigma'(1s) : \sigma'(2s) : \sigma'(2p) : \sigma'(3s) : \sigma'(3p) : \sigma'(3d) = 110 : 80 : 50 : 36 : 20 : 5$$

Mit nur diesem einen Satz von theoretisch berechneten Wirkungsquerschnitten waren wir in der Lage, alle unsere gemessenen Ladungsverteilungen mit zufriedenstellender Übereinstimmung zu beschreiben. Die Abb. 5.7 – 5.9 zeigen die Ergebnisse dieser Rechnungen. In den oberen Bildern sind die berechneten Anteile der jeweiligen Ladungszustände als Linien aufgetragen, die Punkte stellen unsere Meßwerte dar. Aus den unteren Bildern ist zu entnehmen, welchen Anteil eine Elektronenkonfiguration zu einem Ladungszustand beiträgt. Dabei sind nur die wichtigsten Werte von Y_i für $q_f = 8^+ - 10^+$ dargestellt.

In Abb. 5.7 sind die Ladungsverteilung und Elektronenkonfigurationen für $q_i = 6^+$, d.h. einem Ne-Ion mit zwei Elektronen in der 1s-Schale und zwei in der 2s-Schale, abgebildet. Das Projektil befindet sich also vor der Probe in einem niedrigeren als dem mittleren Ladungszustand $\bar{q} = 8,5$. Aufgrund des sehr hohen $\sigma_{ion}(2s)$ ist ein schneller Abfall des Anteils der Ionen mit der Ladung 6^+ zu erkennen, der in einem steilen Anstieg von $q = 7^+$ resultiert. Auch für Ne^{7+} ist der bei weitem größte Wirkungsquerschnitt $\sigma_{ion}(2s)$, was zu einer schnellen Umladung zu Ne^{8+} führt. Nachdem nun binnen einer Massenbelegung von nur 3-4 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ ^{12}C die meisten Projektile ihre zwei 2s-Elektronen verloren haben, befinden sie sich im Grundzustand mit der Ladung 8^+ . Nun haben sie mehrere, nahezu gleich wahrscheinliche Prozesse zur Auswahl. Der größte Querschnitt ist nun $\sigma_c(2p)$, also der Einfang eines Elektrons in die 2p-Schale. Im unteren Bild (Abb. 5.7) ist deutlich

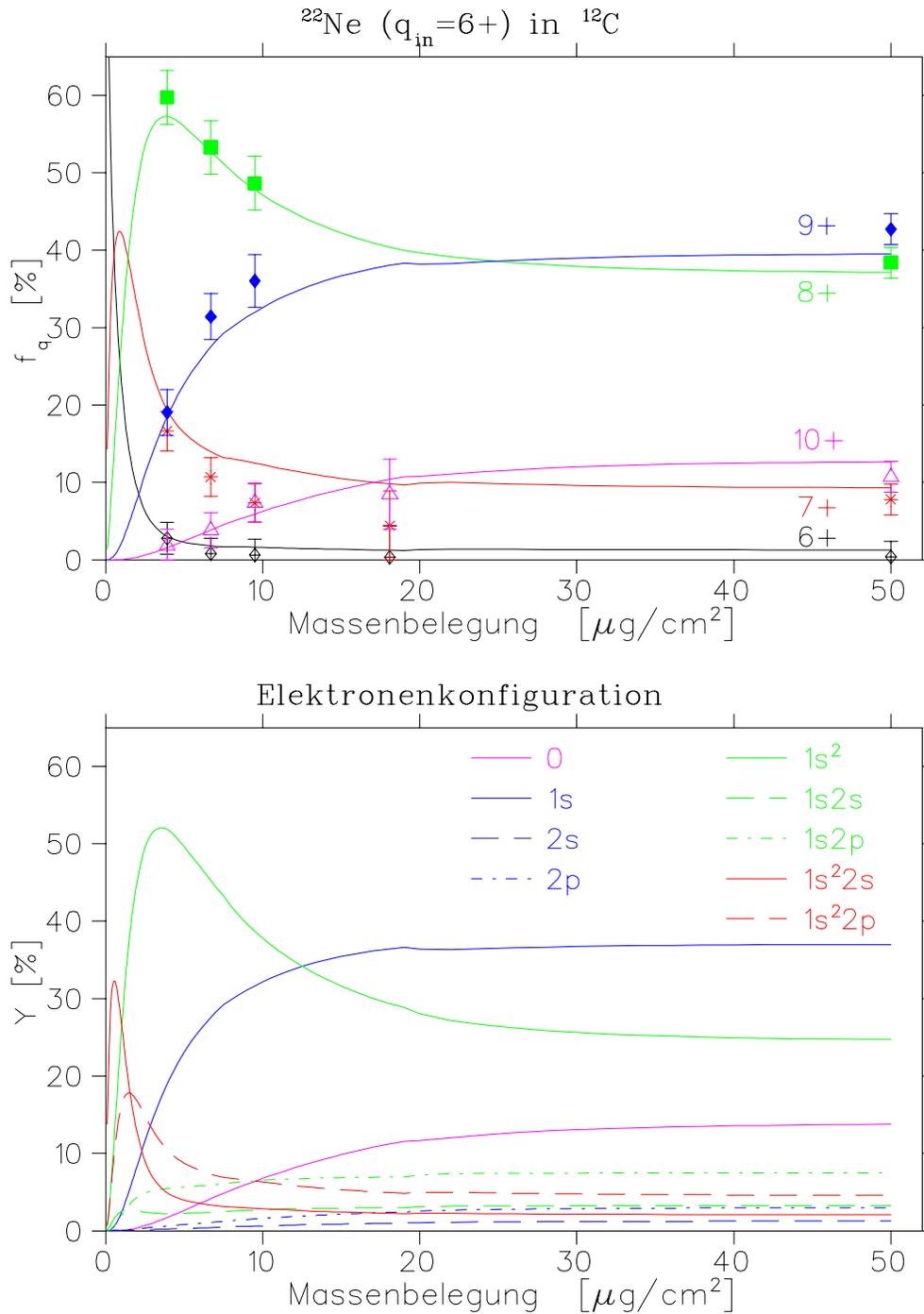


Abbildung 5.7: oben: Ladungsverteilung in Abhängigkeit von der Massenbelegung für $q_i = 6^+$. Die Symbole charakterisieren die experimentellen Resultate für die gemessenen Dicken, die Linien stellen die berechneten Verteilungen dar. unten: Anteile der wichtigsten Elektronenkonfigurationen, die zur Verteilung beitragen.

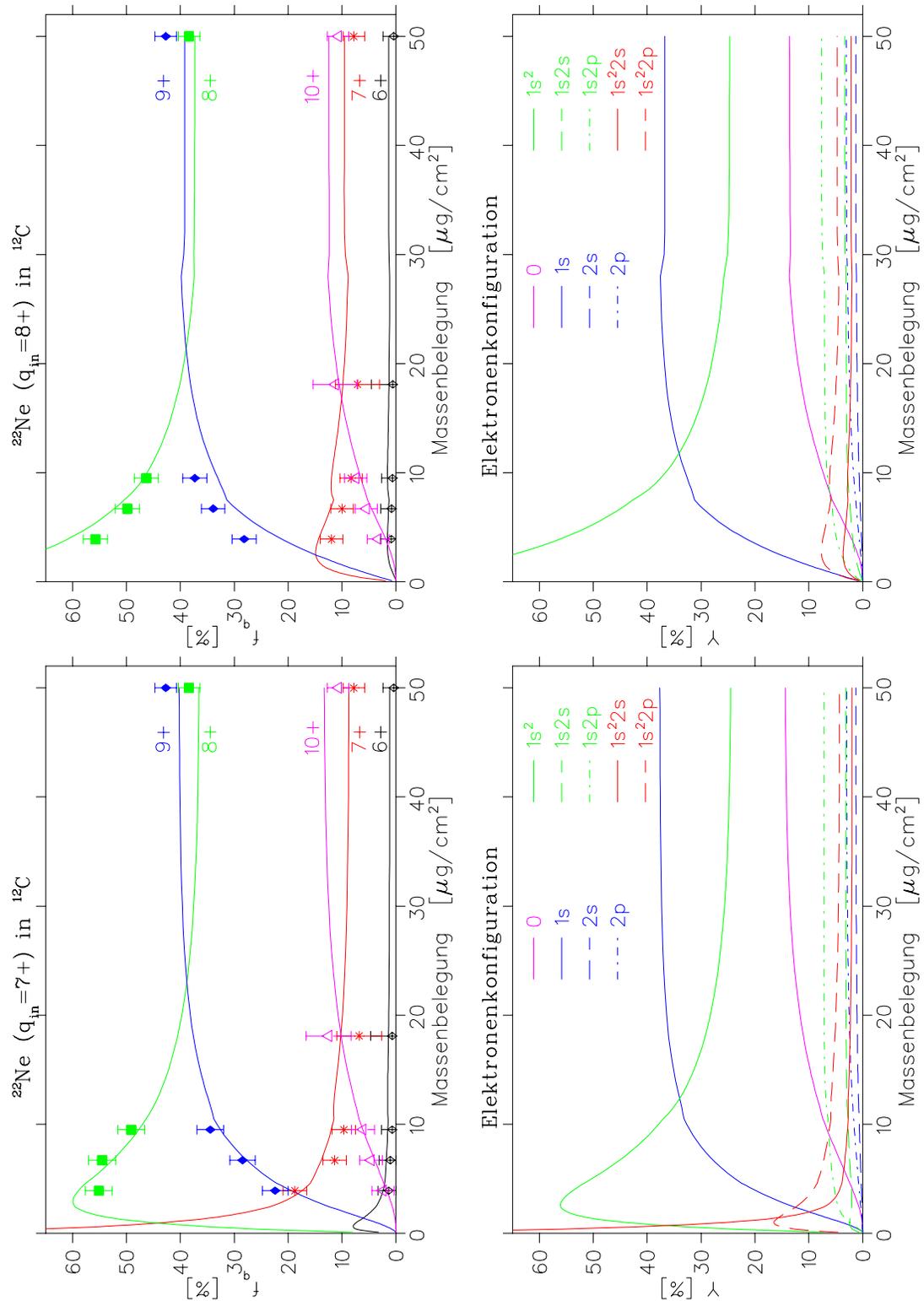


Abbildung 5.8: Ladungsverteilung und Anteile der wichtigsten Elektronenkonfigurationen, die zur Verteilung beitragen, für $q_i = 7^+$ und $q_i = 8^+$, wie in Abb. 5.7.

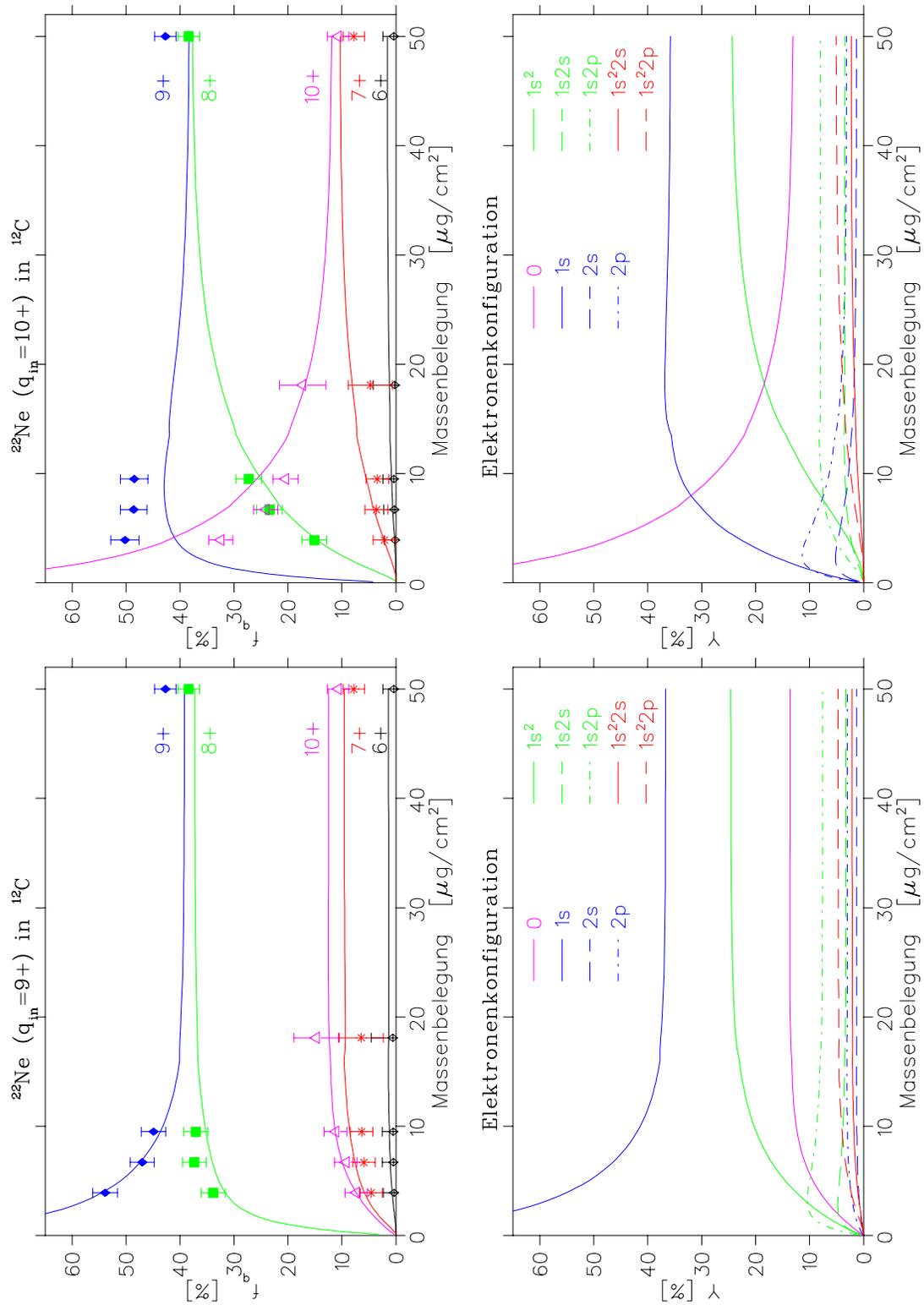


Abbildung 5.9: Ladungsverteilung und Anteile der wichtigsten Elektronenkonfigurationen, die zur Verteilung beitragen, für $q_i = 9^+$ und $q_i = 10^+$, wie in Abb. 5.7.

zu erkennen, daß der Anteil der Ionen mit der Konfiguration $1s^22p$ (rot gestrichelt) korreliert mit derjenigen von $1s^2$ verläuft. Dieser Kanal stellt im weiteren Verlauf den Hauptanteil der Ionen mit der Ladung 7^+ . Aber auch der Ionisationsquerschnitt $\sigma_{ion}(1s)$ zeigt seinen Einfluß im Anstieg von $f(9^+)$. In diesem Fall dominieren nun die Einfangprozesse, so daß die meisten Ne^{9^+} -Ionen sich zu 8^+ zurückumladen. Wie aus den Wirkungsquerschnitten und der Abbildung der Konfigurationsanteile zu ersehen ist, werden nun die $1s2s$ - und $1s2p$ -Konfigurationen besetzt (daß der $1s2s$ - schon vor $1s$ -Zustand ansteigt liegt an der Ionisation eines $1s$ -Elektrons aus dem Ne^{7^+} -Grundzustand $1s^22s$). Letztendlich verliert ein Teil der Ne^{9^+} -Ionen auch das letzte Elektron und wird zum Ne^{10^+} . Fängt es im folgenden ein Elektron in die $2s$ - oder $2p$ -Schale ein, so ist aufgrund des hohen Ionisationsquerschnitts für diese Schalen anzunehmen, daß sich das Ion schnell wieder zum Ne^{10^+} umladen wird. Einen wirklichen Fluß aus diesem Kanal bildet nur der Einfang in die $1s$ -Schale, also zum Grundzustand des Ne^{9^+} .

Aus der Abbildung der Konfigurationsanteile ist zu erkennen, daß für die niedrigeren Ladungszustände (6^+ und 7^+) das Gleichgewicht schon bei einer Massenbelegung von weniger als $10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ Kohlenstoff erreicht wird, die höheren Zustände ($8^+ - 10^+$) benötigen dafür jedoch nahezu $30 \mu\text{g}/\text{cm}^2$.

Bei der Betrachtung der Entwicklung der Ladungsverteilung von Projektilen mit einem hohen Eingangsladungszustand sind Unterschiede zu erkennen. Im Falle von $q_i = 10^+$ tragen zunächst nur die Einfangsquerschnitte zur Umladung bei. Da diese im Vergleich zum Ionisationsprozeß deutlich niedriger sind, verläuft der Abfall von $f(10^+)$ wesentlich langsamer. Folglich wachsen auch die Anteile der niedrigeren Ladungszustände ebenfalls nur langsam an. Auch unter diesen Umständen wird eine Massenbelegung von etwa $30 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ benötigt, um das Gleichgewicht zu erreichen. Etwas anders verhält es sich bei $q_i = 9^+$. Wie aus den Bildern zu ersehen ist, wird die Ladungsverteilung im Gleichgewicht zu 90 % durch die Zustände 8^+ , 9^+ und 10^+ gebildet. Ein Gleichgewichtszustand ist erreicht, wenn die Anteile dieser Ladungen nahezu konstant bleiben. Um von $q = 8^+$ zu $q = 10^+$ zu gelangen, benötigt das Projektil zweimal die Ionisation eines $1s$ -Elektrons, zwei Prozesse mit niedrigem Wirkungsquerschnitt. Auch der Weg von Ne^{10^+} zum Ne^{8^+} wird mit zwei relativ niedrigen Einfangsquerschnitten ($\sigma_c(1s)$) beschrieben. Von $q_i = 9^+$ aus werden jedoch der 8^+ bzw. 10^+ mit jeweils nur einem Prozeß erreicht, die Kanäle können somit schneller gefüllt werden und der Gleichgewichtszustand ist schon nach der halben Strecke, etwa $15 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ erreicht.

Zusammenfassend ist zu erwähnen, daß die Konfigurationen, bei denen angeregte Ionenzustände belegt werden, wegen der hohen Ionisationsquerschnitte eine kurze Lebensdauer haben. Grundzustandskonfigurationen dagegen besitzen deutlich größere freie Weglängen und tragen somit am meisten zum Energieverlust bei.

5.4 Analyse der Energieverluste

5.4.1 $\Delta E(q_i = q_f)$

Analog zur Bestimmung des Energieverlustes $\Delta E(q_i = q_f = 7^+)$ in Abb. 5.4 wurden alle anderen Meßwerte $\Delta E(q_i = q_f)$ bestimmt. In Abb. 5.10 ist für den Fall $q_i = q_f$ der gemessene Energieverlust der Ionen in den verschiedenen dicken Folien aufgetragen. Die Symbole charakterisieren unsere Meßpunkte (die gestrichelte Linie ist nur die Verbindung der Punkte), während die durchgezogene Gerade den Energieverlust darstellt, der mit einem mittleren Abbremsvermögen $S_{eff} = 9,98 \text{ keV}/(\mu\text{g}/\text{cm}^2)$ im Ladungsgleichgewicht berechnet ist. Die horizontale Abweichung der Meßpunkte zu dieser Geraden gibt dabei den Fehler Δx an, den man in diesem Fall bei der Berechnung der Schichtdicke mit S_{eff} machen würde. Für $q_i = q_f = 10^+$ und eine Massenbelegung der Folie von $9,45 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ z.B. ergibt dies eine um $\Delta x = 1,15 (\pm 0,7) \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ($\approx 5 \text{ nm}$) zu dicke Schicht, während im Falle $q_i = q_f = 7^+$ die Dickenangabe um $\Delta x = 1,0 (\pm 0,9) \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ($\approx 4,4 \text{ nm}$) zu niedrig ausfällt.

An den Meßpunkten für $q_i = 10^+$ ist gut zu erkennen, daß die Abweichung zunächst mit steigender Massenbelegung anwächst, dann aber langsam einen kon-

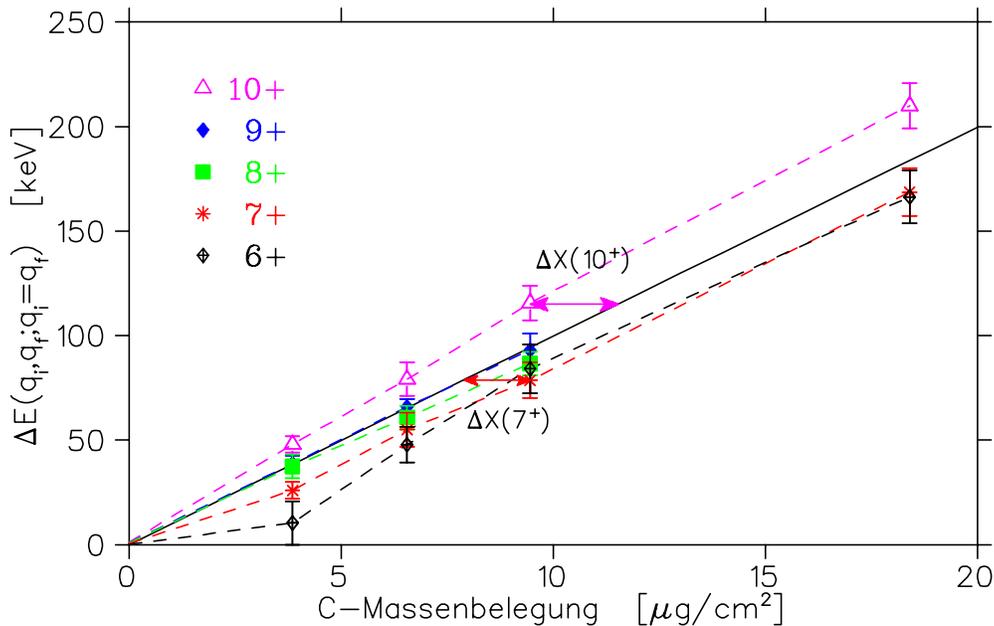


Abbildung 5.10: Energieverlust $\Delta E(q_i = q_f)$. Die durchgezogene Gerade stellt den Gleichgewichtsenergieverlust dar. Die Pfeile symbolisieren den Fehler Δx , den man bei einer Dickenbestimmung mit $S_{eff} = 9,98 \text{ keV}/(\mu\text{g}/\text{cm}^2)$ machen würde.

stanten Wert annimmt. So hat die gestrichelte Linie im Vergleich zur durchgezogenen für die ersten drei Meßpunkte eine deutlich größere Steigung, während die Verbindung der letzten zwei Werte nahezu parallel zur durchgezogenen Geraden verläuft. Dieses Verhalten ist dadurch zu erklären, daß für dünne Schichten der Energieverlust vorrangig alleine durch Ne^{10+} verursacht wird. Mit zunehmender Dicke kommt es immer häufiger zu Umladungen, so daß der Anteil der Ionen, die sich zwischendurch in einem niedrigeren Ladungszustand befunden und dadurch einen etwas geringeren Energieverlust erlitten haben, immer mehr zu $\Delta E(10^+)$ beiträgt und somit die Steigung der gestrichelten Kurve vermindert. Ab einer Massenbelegung, die sich aus der mittleren Schichtdicke für die Umladung von 10^+ zum Gleichgewichtszustand \bar{q} und der mittleren Massenbelegung für die Ionisation von \bar{q} nach 10^+ zusammensetzt, ändert sich die Steigung nicht mehr, da für größere Schichtdicken der Zwischenbereich stets im Gleichgewichtszustand durchquert wird.

Da der Gleichgewichtszustand zu mehr als 80 % von den Ladungen 8^+ und 9^+ gebildet wird, weicht deren Energieverlust am wenigsten von der Gleichgewichtsgeraden ab. Für den Fall $q_i = 7^+$ erkennt man anfangs eine geringere Steigung, die sich aber schnell an die Gleichgewichtsgerade anpaßt. Auch dieser Effekt kann anhand des Ladungsverteilungsbildes in Abb. 5.8 erklärt werden. Es ist darin aufgrund der hohen Ionisationsquerschnitte ein sehr schnelles Umladen zu Ne^{8^+} (binnen $3 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) zu erkennen. Ionen mit $q_i = 7^+$ verweilen also nur kurz in ihrem Ladungszustand und machen somit nur auf einem kleinen Stück ihres Weges einen geringeren Energieverlust, bevor sie sich zu Ne^{8^+} umladen. Auch beim Austritt aus der Folie fangen sie erst kurz vor dem Verlassen der Folie ein Elektron ein. Je dicker also die Schicht, um so geringer wird der Beitrag des geringeren Energieverlustes durch Ne^{7^+} und um so mehr kommt er dem von Ne^{8^+} näher. Die Meßwerte für $q_i = 6^+$ sind durch den sehr kleinen Anteil in der Ladungsverteilung (kleiner 3 %), den dadurch geringeren Zählraten in den Spektren und folglich der großen Unsicherheit bei der Positionsbestimmung der Linie mit großen Fehlern behaftet. Innerhalb dieser ist ein ähnliches Verhalten wie für $q_i = 7^+$ zu erkennen. Um nun beurteilen zu können, inwieweit die Meßwerte wirklich jeweils den Energieverlust eines einzelnen Ladungszustandes q darstellen, und wie sehr er durch Umladungsfluktuationen auch Beiträge von anderen Ladungen beinhaltet, werden die mittleren freien Weglängen $\lambda(q)$ der einzelnen Zustände betrachtet. Sie sind als die Schichtdicke, nach der die Anfangsintensität I_0 auf I_0/e abgefallen ist, definiert:

$$I(\lambda) = I_0 \exp\left(-\sum_i \sigma_i \cdot \lambda\right) \quad (5.34)$$

$$\Rightarrow \lambda = \frac{1}{\sum_i \sigma_i} \quad (5.35)$$

σ_i : Wirkungsquerschnitt, der zu einer Umladung führt.

Dies ergibt für die Grundzustandskonfigurationen unter Betrachtung der Einfang- und Ionisationsquerschnitte folgende Werte:

$$\begin{aligned}\lambda(10^+) &= 2,17 \mu\text{g}/\text{cm}^2 \\ \lambda(9^+) &= 2,79 \mu\text{g}/\text{cm}^2 \\ \lambda(8^+) &= 3,75 \mu\text{g}/\text{cm}^2 \\ \lambda(7^+) &= 1,35 \mu\text{g}/\text{cm}^2 \\ \lambda(6^+) &= 0,74 \mu\text{g}/\text{cm}^2\end{aligned}$$

Diese mittleren freien Weglängen können als eine Obergrenze angesehen werden, da die Anregungsprozesse, die zu einer Erhöhung der Ionisationswahrscheinlichkeit führen, nicht mitberücksichtigt worden sind. Da sie alle geringer als die Massenbelegung der dünnsten Folie sind, ist daraus zu schließen, daß in allen Meßpunkten Beimischungen von anderen Ladungszuständen zu finden sind, insbesondere bei $q_i = 6^+$ und 7^+ . Um eine Abschätzung über die Größe dieser Beiträge zu gewinnen, ist in Tab. 5.2 für jeweils ein festes q_i der gemessene Anteil I_{Exp} des Ladungszustandes $q_f = q_i$ der Ladungsverteilung, die sich nach Durchgang durch die Schicht gebildet hat, aufgeführt. Er wird verglichen mit dem berechneten Anteil $I(x)$ der Ionen, die die Folie im Eingangsladungszustand q_i , also ohne zwischenzeitliche Umladungen (*frozen charge state*), durchquert haben. $I(x)$ kann durch folgende Gleichung bestimmt werden:

$$I(x) = I_0 \exp \left(- \sum_i \sigma_i \cdot x \right) \quad (5.36)$$

Es wird dabei über alle Wirkungsquerschnitte σ_i , die zu einer Änderung des Ladungszustandes führen, summiert. Die Differenz der zwei Werte ergibt den Beitrag der Ionen, die sich zwei oder mehrmals umgeladen haben und wieder im Ladungszustand q_i gelandet sind. Man erkennt, daß im Falle einer Ladung von $q_i = 10^+$ bis 8^+ zumindest bei der dünnsten Folie der Energieverlust zu einem Anteil $I(x)/I_{Exp}$ von etwa 50 % ohne Umladung gebildet wird, während bei den niedrigeren Ladungen 7^+ und 6^+ , dieser Anteil deutlich niedriger ausfällt (29 % und 18 %). Mit zunehmender Massenbelegung wird der Beitrag zum Energieverlust durch andere Ladungszustände immer dominanter, so daß hier eigentlich nicht mehr von $\Delta E(q_i)$ gesprochen werden kann.

Aus dem Programm ETACHA ist *nicht* zu entnehmen, wie groß der Fluß aus einem Kanal heraus und der Rückfluß hinein ist. Aus diesem Grunde habe ich ein Monte-Carlo-Simulationsprogramm geschrieben, mit dem die Umladungsprozesse der Ionen beim Durchgang durch Materie genauer untersucht werden können. Dafür wird die Probe in mehrere dünne Schichten unterteilt; bei den hier durchgeführten Rechnungen wurde eine Massenbelegung von $0,1 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ verwendet. Eingeschossen wird ein Ion mit der Ladung q_i in der Grundzustandskonfiguration.

Für dieses Projektil werden zunächst mit den gleichen Routinen wie in ETACHA die Wirkungsquerschnitte für alle beitragenden Prozesse berechnet. Über eine Zufallszahl wird im nächsten Schritt bestimmt, ob und falls ja, welcher Prozeß (Elektroneneinfang, Ionisation, Anregung oder Zerfall) ausgelöst wird. Hat eine Reaktion stattgefunden, wird die Schalenbelegung des Projektils dem Prozeß entsprechend geändert und die Wirkungsquerschnitte für die neue Konfiguration berechnet, bevor für die nächste Schicht neu gewürfelt wird. Die Simulationen wurden mit 1 000 000 Teilchen durchgeführt. Als Test für die Richtigkeit der Simulation dient der Vergleich der so erhaltenen und der mit ETACHA berechneten Ladungsverteilung. Es ergaben sich Abweichungen um max. 1 %, die auf statistische Schwankungen zurückzuführen sind.

Ein Baumdiagramm, wie in Abb. 5.11 für den Fall $q_i = 10^+$ dargestellt, ist das Ergebnis einer solchen Rechnung. Ausgehend von der Zahl der Ionen auf der linken Seite einer Verzweigung, steht hinter einem waagrechten Zweig die Anzahl der Ionen, die die Folie ohne weitere Umladung verlassen ($q \rightarrow q$), ein Zweig nach oben gibt an, wieviele Ionen ein weiteres Elektron eingefangen ($q \rightarrow q-1$) haben, und ein Zweig nach unten weist auf die Anzahl der Projektile, die ein Elektron verloren haben ($q \rightarrow q+1$), hin. Die letzte Spalte des Diagramms beinhaltet die Zahl der Ionen, die sechs oder mehr Umladungsprozesse durchgemacht haben. In den eckigen Klammern sind die Ladungszustände q_f , mit denen das Projektil die Probe verläßt, angegeben. Nun können die Beiträge der anderen Ladungszustände durch Umladungsfluktuationen zum Energieverlust $\Delta E(q_i = q_f)$ in erster Näherung bestimmt werden. Für den abgebildeten Fall $q_i = q_f = 10^+$ haben von den 1 000 000 eingeschossenen Ne^{10^+} -Ionen 183 302 die Probe passiert, ohne sich umzuladen. Zieht man in Betracht, daß 42,4 % aller Teilchen die Folie mit $q_f = 10^+$ verlassen (s. Rechnung in Abb. 5.9), so stellen diese 183 302 Projektile 43,3 % der Gesamtintensität dar. 38 % (161 056 Teilchen) der Ionen mit $q_f = 10^+$ haben auf ihrem Weg durch die Probe ein Elektron eingefangen und es wieder verloren

| $q_i = q_f$ | $3,85 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ | | $6,55 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ | | $9,45 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ | |
|-------------|--------------------------------|------------|--------------------------------|------------|--------------------------------|------------|
| | I_{Exp} [%] | $I(x)$ [%] | I_{Exp} [%] | $I(x)$ [%] | I_{Exp} [%] | $I(x)$ [%] |
| 10^+ | 32,5 | 16,5 | 24,1 | 4,8 | 20,4 | 1,2 |
| 9^+ | 53,9 | 24,7 | 47,0 | 9,4 | 44,9 | 3,3 |
| 8^+ | 55,8 | 35,4 | 49,8 | 17,2 | 46,3 | 8,0 |
| 7^+ | 18,7 | 5,5 | 11,3 | 0,7 | 9,6 | 0,0 |
| 6^+ | 2,8 | 0,5 | 0,8 | 0,0 | 0,6 | 0,0 |

Tabelle 5.2: Vergleich der ohne Umladung transmittierten Ionen $I(x)$ mit der durch Umladungsfluktuationen erhöhten, totalen, gemessenen Ausbeute eines Ladungszustandes I_{Exp} .

($10^+ \rightarrow 9^+ \rightarrow 10^+$), 7,8 % haben die Umladungen $10^+ \rightarrow 9^+ \rightarrow 8^+ \rightarrow 9^+ \rightarrow 10^+$ gemacht und 7,8 % haben auf ihrem Weg die Ladungszustände $10^+ \rightarrow 9^+ \rightarrow 10^+ \rightarrow 9^+ \rightarrow 10^+$ durchlaufen. Die restlichen 4,7 % haben sechs oder mehr Umladungen gemacht.

Tab. 5.3 stellt für die dünnste Folie ($3,85 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) diese Anteile (in %), aus denen sich die Gesamtintensität der Projektile mit $q_i = q_f$ zusammensetzt, dar. Die erste Spalte beschreibt die Prozesse, die die Ionen durchlaufen haben, um schließlich mit der Ladung q_f die Probe zu verlassen. Der Eintrag 'keine' bedeutet dabei, daß die Projektile in ihrem Eingangsladungszustand q_i die gesamte Probe passiert haben, sich also nicht umgeladen haben. Ein 'c' steht für den Elektroneneinfang und ein 'l' für den Elektronenverlust.

| Prozesse | 10^+ [%] | 9^+ [%] | 8^+ [%] | 7^+ [%] | 6^+ [%] |
|------------|------------|-----------|-----------|-----------|-----------|
| keine | 43,3 | 46,5 | 52,9 | 13,5 | 2,9 |
| c-l | 38,0 | 34,4 | 29,3 | 12,7 | 3,5 |
| l-c | - | 2,8 | 5,5 | 40,2 | 30,5 |
| c-c-l-l | 7,0 | 5,1 | 3,1 | 1,5 | 0,4 |
| c-l-c-l | 7,8 | 6,2 | 4,4 | 3,4 | 1,1 |
| c-l-l-c | - | 0,8 | 1,1 | 6,0 | 4,5 |
| l-c-c-l | - | 0,5 | 0,8 | 5,3 | 4,6 |
| l-c-l-c | - | 0,5 | 0,8 | 8,0 | 12,1 |
| l-l-c-c | - | - | 0,1 | 2,2 | 21,0 |
| 6 und mehr | 3,9 | 3,2 | 2,0 | 7,2 | 19,5 |

Tabelle 5.3: Zusammensetzung der Gesamtintensität der Projektile mit $q_i = q_f$. Ein c steht für einen Elektroneneinfang (capture), ein l für den Elektronenverlust (loss).

Analog zur Tab. 5.2 ist auch hier erkennbar, daß der gemessene Energieverlust für die Ladungen $q_i = q_f = 10^+$ bis 8^+ zu etwa 50 % direkt und ohne Umladungen vom Ladungszustand gebildet wird. Zusätzlich kann aus dieser Tabelle geschlossen werden, daß der Hauptbeitrag zum Energieverlust durch andere Ladungszustände vom benachbarten Zustand $q_i - 1$, der durch einen Elektroneneinfang erreicht wird, stammt. Diese zwei Anteile bilden zusammen jeweils über 80 % der Gesamtintensität.

Für $q_i = 7^+$ und $q_i = 6^+$ ist der Elektronenverlust der dominante Prozeß. So wird $\Delta E(7^+)$ vorwiegend durch Ionen mit der Ladung 8^+ ($40,2\% + 8,0\%$) und $\Delta E(6^+)$ durch Ionen mit der Ladung 7^+ ($30,5\% + 12,1\%$) und 8^+ ($21,0\%$) gebildet.

Aus der Simulation können noch weitere Informationen extrahiert werden, z.B. in welche Schalen die Elektronen eingefangen werden. Wieder wird der Fall

$q_i = q_f = 10^+$ und darin der Anteil von 38 % der Ionen, die zuerst ein Elektron eingefangen und es anschließend wieder verloren haben (c-1), betrachtet. Angesichts der verschiedenen hohen Ionisationsquerschnitte für die verschiedenen Schalen von Ne^{9+} (s. Tab. 5.1) ist dies für den Energieverlust von Bedeutung. Wie erwartet, verteilen sich die eingefangenen Elektronen proportional zum Einfangsquerschnitt auf die Schalen. In Tab. 5.4 sind die Besetzungswahrscheinlichkeit der Orbitale und die mittlere freie Weglänge des Ions in dieser Konfiguration nach Gl. 5.34 für $q_i = q_f = 10^+$ angegeben. Aus dieser Aufstellung abgeleitet werden,

| Elektroneneinfang in Schale | Besetzungswahrscheinlichkeit [%] | mittl. freie Weglänge [$\mu\text{g}/\text{cm}^2$] |
|--------------------------------|-------------------------------------|--|
| 1s | 24,0 | 23,1 |
| 2s | 17,4 | 0,9 |
| 2p | 32,4 | 1,7 |
| 3s | 7,8 | 0,9 |
| 3p | 3,2 | 0,8 |
| 3d | 5,2 | 0,8 |

Tabelle 5.4: *Besetzungswahrscheinlichkeiten für den Elektroneneinfang in die Orbitale von Ne^{10+} und mittlere freie Weglänge des Ions in dieser Konfiguration*

daß die Ionen, die ein Elektron in eine M-Unterschale (3s, 3p, 3d) einfangen, dieses auch sehr schnell wieder verlieren ($\lambda < 1 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) und somit den Energieverlust $\Delta E(q_i = 10^+)$ nicht sehr beeinflussen. Auch Ionen, die das Elektron in die L-Schale (2s, 2p) einbauen, verweilen durchschnittlich weniger als die halbe Schichtdicke im Ladungszustand 9^+ , so daß zur Abweichung des gemessenen Energieverlustes der Ionen mit der Ladung 10^+ vorwiegend nur die 24 % der Projektile, bei denen das Elektron in die K-Schale eingebaut wird, beitragen.

Berücksichtigt man all die bisher aufgeführten Aspekte — 43,3 % des Energieverlustes für $q_i = q_f = 10^+$ werden von Ne^{10+} -Ionen, die sich nicht umladen, gemacht, von den restlichen 56,7 % hält sich nur etwa ein Viertel länger im Ladungszustand 9^+ auf, der Rest lädt sich sehr schnell wieder zu Ne^{10+} um — und nimmt an, daß der spezifische Energieverlust S mit q^2 skaliert (s. Gl. 2.19 oder 5.38), so kann man folgende Abschätzung für den gemessenen Energieverlust $\Delta E_{Exp}(10^+)$ der Ionen mit $q_i = q_f = 10^+$ (mit Beiträgen durch Umladungsfluktuationen) in Relation zum Energieverlust $\Delta E(10^+)$ von Ne^{10+} ohne Umladungen machen:

$$\begin{aligned} \Delta E_{Exp}(10^+) &= [43,3 \% \cdot 10^2 + 56,7 \% \cdot (30 \% \cdot 9^2 + 70 \% \cdot 10^2)] \cdot \frac{\Delta E(10^+)}{10^2} \\ &= 96,77 \% \cdot \Delta E(10^+) \end{aligned} \quad (5.37)$$

Der gemessener Wert $\Delta E_{Exp}(10^+, 3,85 \mu\text{g}/\text{cm}^2)$ ist aufgrund der Umladungsfluktuationen um etwa 5 % tiefer als der entsprechende Energieverlust $\Delta E(10^+)$

ohne die zwischenzeitliche Umladung in 9^+ und wird deshalb entsprechend korrigiert.

Ähnlich kann auch für die Energieverluste von $q_i = 8^+$ und 9^+ argumentiert werden. Elektroneneinfang in höhere Schalen ändert nicht viel am Energieverlust des Ions, da die Lebensdauer aufgrund der hohen Ionisationsquerschnitte nur gering ist. Nur wenn Elektronen in eine Grundzustandskonfiguration eingefangen werden, können die Ionen lange genug in diesem Ladungszustand verweilen, um eine merkliche Abweichung des Energieverlustes gegenüber dem der Ionen ohne Umladung zu hinterlassen, bevor sie sich wieder nach q_i umladen. Die Abweichung zum Energieverlust des reinen Ladungszustandes fällt sogar geringer aus, da sich die Beiträge durch die tieferen und die höheren Ladungszustände zum Teil kompensieren.

Mit Hilfe der Simulation kann man nun versuchen, den Beitrag durch Umladungsprozesse auch quantitativ zu erfassen. Hierfür wird ein spezifischer Energieverlust für einen konstanten Ladungszustand des Projektils benötigt. Bohr und Bethe beschrieben den elektronischen Energieverlust bei hohen Energien (vollständig ionisiertes Projektil) als Impulsübertrag Δp eines im Abstand b vorbeifliegenden Projektils mit der Ladung $q = Z_P e$ auf ein freies, ruhendes Elektron:

$$\Delta p = \int_{-\infty}^{\infty} F_C dt = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{Z_P e^2}{(x^2 + b^2)} dt = \frac{2Z_P e^2}{vb} \quad (5.38)$$

(F_C : Coulombkraft, x : Ort des Projektils, b : Stoßparameter,
 v : Projektilgeschwindigkeit)

Dann beträgt der klassische kinetische Energieverlust in Abhängigkeit vom Stoßparameter:

$$\Delta E_b = \frac{(\Delta p)^2}{2m_e} = \frac{2Z_P^2 e^4}{m_e v^2 b^2} \quad (5.39)$$

(m_e : Elektronenmasse)

Es ist darin eine Proportionalität des Energieverlustes zum Quadrat der Projektilladung zu erkennen, die auch nach der Integration über den Stoßparameter b bestehen bleibt (s. Gl. 2.19). Diese Abhängigkeit benutzen wir als Ansatz für den gesuchten ladungsabhängigen spezifischen Energieverlust $S(q)$:

$$S(q) \sim q^2 \quad (5.40)$$

Im weiteren Verlauf wird der Quotient $S(q)/q^2$ als **reduzierter spezifischer Energieverlust** S_r bezeichnet und dafür folgender Ansatz geprüft:

$$S_r = \frac{S(q)}{q^2} = konst. \quad (5.41)$$

Aus Gl. 2.24 für die Gleichgewichtssituation kann man $S_r = S_{Ion}/q_{eff}^2$ ableiten. Der spezifische Energieverlust $S_{Ion}(v)$ kann aus Tabellen wie z.B [Nor70] entnommen werden und beträgt für Ne-Ionen mit einer Energie von 2 MeV/Nukleon in Kohlenstoff $S(Ne) = 9,98 \text{ keV}/(\mu\text{g}/\text{cm}^2)$. Dabei wurde q_{eff} gemäß Gl. 2.25 berechnet und ergibt $q_{eff} = 8,3$. Daraus resultiert $S_r = 0,145 \text{ keV}/(\mu\text{g}/\text{cm}^2)$.

Mit diesem Ansatz kann nun der Energieverlust $\Delta E(q_i, q_f)$ der Ionen in einer Probe simuliert werden. Für ein Teilchen setzt er sich folgendermaßen zusammen:

$$\Delta E(q_i, q_f) = \sum_i S(q_i) \Delta x = \sum_i S_r q(i)^2 \Delta x \quad (5.42)$$

Δx steht für die Schrittweite der Summation ($0,1 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) und $q(i)$ kennzeichnet den Ladungszustand des Ions im i -ten Schritt. Abb. 5.12 zeigt die Energieverteilung der Ionen nach Durchgang durch die $3,85 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ dicke C-Folie für $q_i = q_f$. Die Einschußenergie betrug 44 MeV. In dem Spektrum für $q_i = q_f = 10^+$ ist bei der niedrigsten Energie eine scharfe Linie zu erkennen. Sie beinhaltet die 43,3 % (s.Tab. 5.3) der Ne^{10+} -Ionen, die keiner Umladung unterworfen waren (Y-Achse logarithmisch). Deren Energieverlust ist stets gleich, da keine Stragglingeffekte berücksichtigt worden sind. Die exponentiell abfallende Schulter rechts von der Linie beinhaltet Ionen, die durch Umladungen zwischenzeitlich in einem niedri-

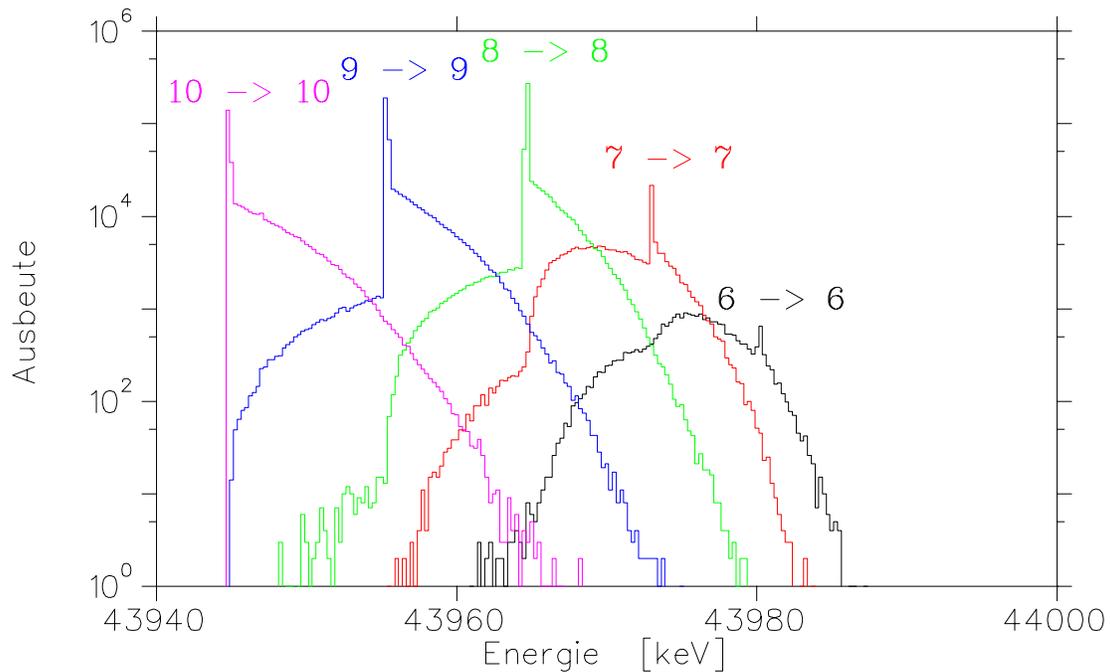


Abbildung 5.12: Simulation der Energieverteilung von Ne-Ionen nach Durchgang durch eine $3,85 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ dicke C-Folie für $q_i = q_f$.

geren Ladungszustand waren und dadurch weniger Energie verloren haben. Eine scharfe Linie erkennt man auch für die anderen Ladungszustände. Sie resultiert ebenso aus den beiden Bedingungen $q_i = q_f$ und keine zwischenzeitliche Umladungen beim Durchgang durch die Schicht. Für den Fall $q_i = q_f = 9^+$ erkennt man neben der Schulter rechts von der Linie, die durch Umladung zu niedrigeren Ladungszuständen zustande kommt, auch links eine Schulter. Diese beinhaltet die Ionen, die sich zwischendurch im Ladungszustand 10^+ aufgehalten und dadurch mehr Energie verloren haben. In den Spektren von $q_i = 8^+$ und 7^+ sind links von der scharfen Linie sogar zwei Schultern zu erkennen, die durch Umladungen nach $q_i + 1$ und $q_i + 2$ zustande kommen.

Aus der Lage der scharfen Linie kann man den Energieverlust $\Delta E_{mc}(q)$ der Ionen ohne Umladungen bestimmen. Für den Vergleich mit unseren gemessenen Energieverlusten wurden die Spektren der Simulation mit der experimentellen Auflösung in Form einer Gaußkurve mit einer Halbwertsbreite von 41 keV gefaltet und die Positionen der gefalteten Spektren bestimmt. Die hieraus erhaltene Differenz zur Einschubenergie ergibt den theoretischen Energieverlust $\Delta E_{mc-f}(q)$, den man messen würde, wenn die Annahme über die Ladungszustandsabhängigkeit des spez. Energieverlustes aus Gl. 5.41 zutreffen würde. Aus der Differenz $\delta E_{\Delta q} = \Delta E_{mc} - \Delta E_{mc-falt}$ von Linien-Energie zum Zentrum des gefalteten Spektrums kann abgelesen werden, um wieviel der Beitrag durch die Umladungsfluktuationen den Energieverlust ΔE_{mc} verschiebt.

In Tab. 5.5 sind die besprochenen Energieverluste im Vergleich zu den gemessenen Werten ΔE_{Exp} aufgeführt. Wiederum ist zu erkennen, daß die Abweichungen $\delta E_{\Delta q}$

| q | ΔE_{Exp} [keV] | ΔE_{mc} [keV] | ΔE_{mc-f} [keV] | $\delta E_{\Delta q}$ [keV] |
|--------|------------------------|-----------------------|-------------------------|-----------------------------|
| 10^+ | 48,0 ($\pm 3,9$) | 55,3 | 53,2 | +2,1 |
| 9^+ | 38,7 ($\pm 3,9$) | 44,7 | 43,4 | +1,3 |
| 8^+ | 37,4 ($\pm 5,7$) | 35,3 | 34,7 | +0,6 |
| 7^+ | 26,9 ($\pm 4,0$) | 27,0 | 29,3 | -2,3 |
| 6^+ | 10,4 ($\pm 9,4$) | 19,8 | 24,5 | -4,7 |

Tabelle 5.5: Energieverluste von Ne^{q^+} in $3,85 \mu g/cm^2 C$.

ΔE_{Exp} : Experimentelle Werte, ΔE_{mc} : Simulation ohne Umladungsfluktuationen, $\Delta E_{mc-falt}$: Simulation mit Umladungsfluktuationen, $\delta E_{\Delta q}$: Differenz durch den Beitrag der Umladungsfluktuationen.

für $q_i = 8^+$ bis 10^+ kleiner als 5 % sind. Die $\delta E_{\Delta q}$ -Werte wurden dann benutzt, um den Einfluß der Ladungsfluktuationen, die in den Meßwerten (Abb. 5.10) enthalten sind, herauszukorrigieren. Dadurch verschieben sich die Punkte für $q_i = 8^+$ bis 10^+ etwas nach oben, für $q_i = 6^+$ und 7^+ deutlich nach unten. Durch Bestimmung der Steigung der Ausgleichsgeraden durch die korrigierten Werte bei

verschiedenen Dicken erhält man nun bessere ladungszustandsabhängige spezifische Energieverluste $S(q)$. Mit diesen können erneut Energieverlustspektren (wie in Abb. 5.12) simuliert und daraus genauere Korrekturen $\delta E_{\Delta q}$ extrahiert werden, die wiederum zu exakteren $S(q)$ führen. Es zeigte sich, daß die $S(q)$ -Werte der dritten Iteration sich nur unwesentlich (kleiner 1 %) von denen der zweiten unterscheiden, so daß sich in Anbetracht der Fehlerbalken der Meßpunkte weitere Iterationen erübrigen. Es gelang damit, den Einfluß der Umladungsfluktuationen auf die Meßwerte zu eliminieren. Die korrigierten Energieverluste für drei Folien-dicken sind in Tab. 5.6 angegeben.

| $q_i = q_f$ | $3,85 \frac{\mu q}{cm^2}$ | $6,55 \frac{\mu q}{cm^2}$ | $9,45 \frac{\mu q}{cm^2}$ |
|-------------|---------------------------|---------------------------|---------------------------|
| 10^+ | 50,02 ($\pm 3,86$) | 83,67 ($\pm 8,04$) | 122,0 ($\pm 8,33$) |
| 9^+ | 39,32 ($\pm 3,85$) | 67,56 ($\pm 3,85$) | 96,85 ($\pm 7,99$) |
| 8^+ | 38,19 ($\pm 5,68$) | 62,30 ($\pm 5,65$) | 88,52 ($\pm 5,66$) |
| 7^+ | 23,55 ($\pm 4,03$) | 47,73 ($\pm 8,23$) | 70,75 ($\pm 8,53$) |
| 6^+ | 8,16 ($\pm 10,42$) | 33,43 ($\pm 8,48$) | 58,44 ($\pm 11,72$) |

Tabelle 5.6: Korrigierte Energieverluste für $q_i = q_f$ und drei Schichtdicken.

Das Ergebnis sind reine spezifische Energieverluste $S(q)$ von Ionen, die in einem 'eingefrorenen' Ladungszustand die Probe durchqueren. Abb. 5.13 zeigt diese korrigierten Energieverluste von Ne-Ionen mit $q_i = q_f$ in Kohlenstoff. Die Steigungen der Ausgleichsgeraden ergeben $S(q)$, die Werte sind in der Abbildung angegeben.

Will man den spezifischen Energieverlust auf quantenmechanischem Weg bestimmen, so sind die Prozesse der Ionisation und Anregung der Probenelektronen und der damit verbundene Impulsübertrag des Projektils auf das Elektron zu berechnen. Hierbei wird das Potential des Projektils $V_P \sim q_P$ als Störung angesehen. Wir erhalten als Wirkungsquerschnitt für den Prozeß (s. Gl. 5.18):

$$\sigma \sim |\langle \Psi_f | V_P | \Psi_i \rangle|^2 \sim q_P^2. \quad (5.43)$$

Der spez. Energieverlust $S(q)$ ist demnach proportional zu q^2 (s. auch Gl. 2.19 oder Gl. 2.24). Diese Abhängigkeit ist in Abb. 5.14, in der die experimentell bestimmten ladungsabhängigen spezifischen Energieverlustes $S(q)$ gegen das Quadrat der Ladung q^2 aufgetragen sind, als durchgezogene Gerade dargestellt. Wie aus der Abbildung zu entnehmen ist, stimmt dieser Zusammenhang für die mittleren Ladungszustände ($q \leq 8^+$) gut mit den Meßwerten überein. Abweichungen zu niedrigeren Abbremsvermögen treten bei den hohen Ladungszuständen ($q = 9^+$ und 10^+) auf. Dieses Verhalten kann auf folgenden Effekt zurückgeführt werden. Die Störungsrechnung liefert gute Ergebnisse unter der Voraussetzung, daß

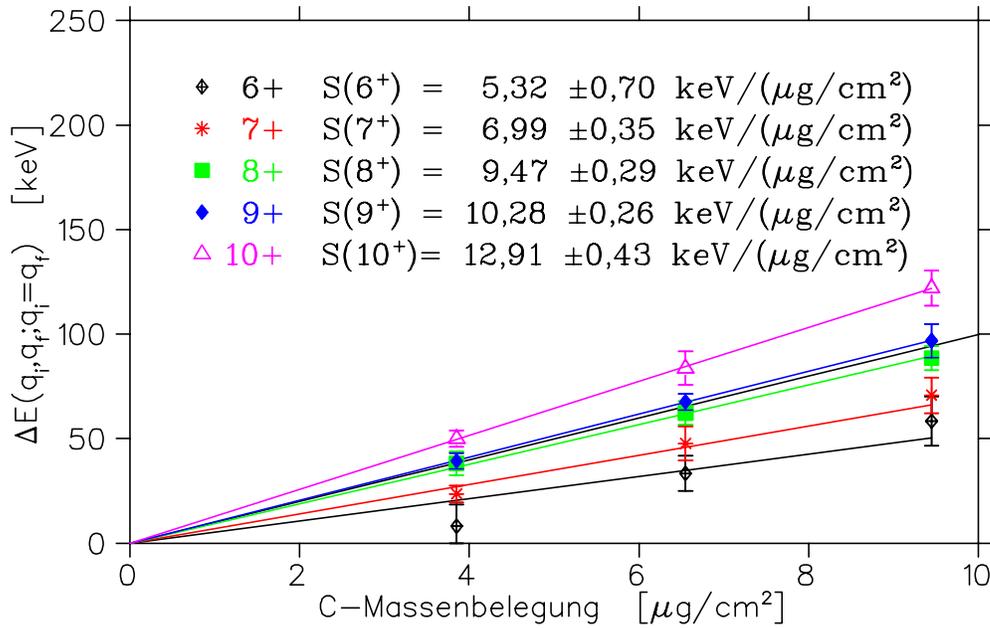


Abbildung 5.13: Korrigierte Energieverluste von Ne-Ionen mit $q_i = q_f$ (nach Elimination der Beiträge durch Umladungsfluktuationen).

das Störungspotential klein gegenüber den Eigenenergien der Zustände ist. Die Ionisations- und Anregungswahrscheinlichkeiten sind dann klein und proportional zu q^2 . Durch Erhöhung des Störungspotential mit dem Ladungszustand des Projektils kann die Stärke so groß werden, daß die Übergangsamplitude nicht mehr linear ansteigt, sondern durch Effekte höherer Ordnung, wie z.B. Mehrfachionisation, gedämpft wird. Die Störungsrechnung überschätzt somit die Wirkungsquerschnitte und liefert zu hohe spezifische Energieverluste. Ein ähnliches Verhalten wurde bereits von Xiao und Schiwietz [Xia96] für 5 MeV/Nukleon schnelle Xe-Ionen in Kohlenstoff festgestellt. Auch hier ist eine Abnahme des Abbremsvermögens mit steigendem Ladungszustand des Projektils zu erkennen.

Ein qualitativ realistischer Verlauf des Abbremsvermögens von Ne-Ionen in Kohlenstoff ist als gestrichelte Kurve in Abb. 5.14 dargestellt. Die Abweichung von der Geraden bei kleinen Ladungen ist auf Abschirmeffekte zurückzuführen. Je niedriger der Ladungszustand des Projektils, umso größer ist der Radius der Valenzelektronorbitale. Dies führt zu größeren Intervallen an Stoßparametern, die kleiner sind als der Schalenradius. Diese Elektronen sehen ein nicht vollständig abgeschirmtes Potential und können gestreut werden, bzw. Energie aufnehmen und damit das Projektil abbremsen. So hat auch ein neutrales Ion ($q = 0$) ein Abbremsvermögen $S(0) \neq 0$, gegen das die Energieverlustkurve für $q \rightarrow 0$ strebt.

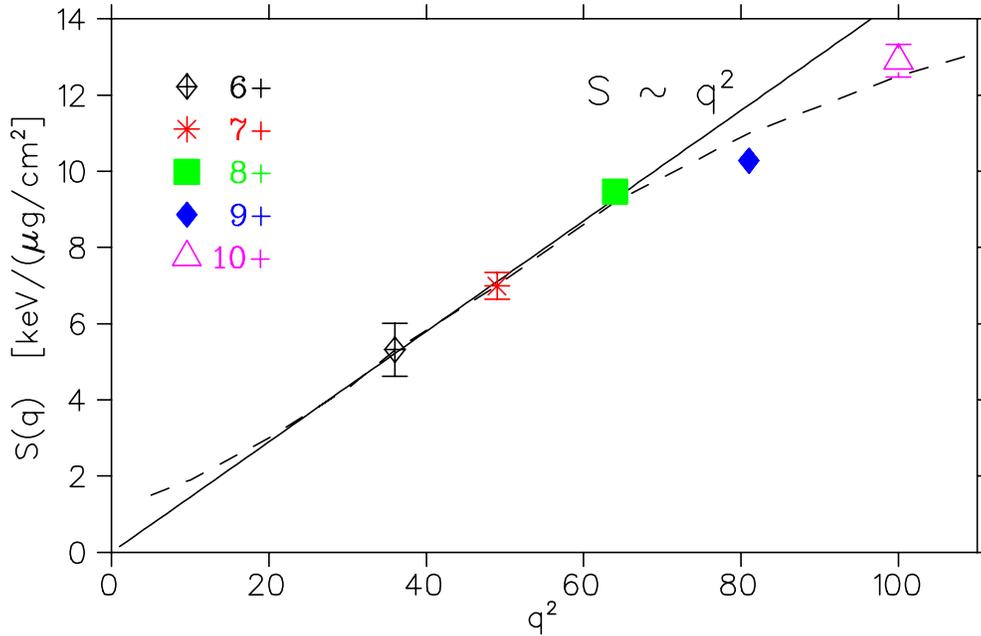


Abbildung 5.14: Ladungsabhängige spezifische Energieverluste $S(q)$ von Ne-Ionen (ohne Umladungsfuktuationen) mit $q = q_i = q_f$ als Funktion von q^2 . Die Fehlerbalken sind zum Teil kleiner als die Symbolgröße.

5.4.2 $\Delta E(q_i, q_f)$

Abb. 5.15 zeigt den vollständigen Satz der gemessenen Energieverluste

$$\Delta E_{Exp}(q_i, q_f) = \Delta E_U \cdot (q_i - q_f) \pm \Delta E(q_i, q_f) \quad (5.44)$$

($\Delta E_U = 82 \text{ keV}$: Energiedifferenz durch angelegte Spannung zwischen Streu- und Transmissionsfolie.)

für alle Kombinationen aus q_i und q_f (außer $q_i = 6 / q_f = 10$ und $q_i = 10 / q_f = 6$, die zwar gemessen, aber aus Platzgründen nicht dargestellt sind). Die Symbole kennzeichnen den Ausgangsladungszustand q_f , der Eingangsladungszustand q_i kann mit der Gleichung oberhalb der durchgezogenen Geraden berechnet werden. Die Gerade stellt wieder den Energieverlust dar, wie er sich mit S_{eff} aus dem Ladungsgleichgewicht ergibt, und ist modulo der Energiedifferenz durch die angelegte Spannung $\Delta E_U = 82 \text{ KeV}$ aufgetragen (s. Kap. 5.1). Anhand der Daten ist gut zu erkennen, daß große Abweichungen zur Geraden (berechneter Energieverlust mit $S_{eff} = 9,98 \text{ keV}/(\mu\text{g}/\text{cm}^2)$) immer dann auftreten, wenn q_i oder $q_f = 10^+$ ist. Die kleinsten Abweichungen treten für $q_f = 9^+$ auf (außer in Kombination mit $q_i = 10^+$), selbst mit $q_i = 6^+$ liegen die Punkte nahezu auf der Geraden.

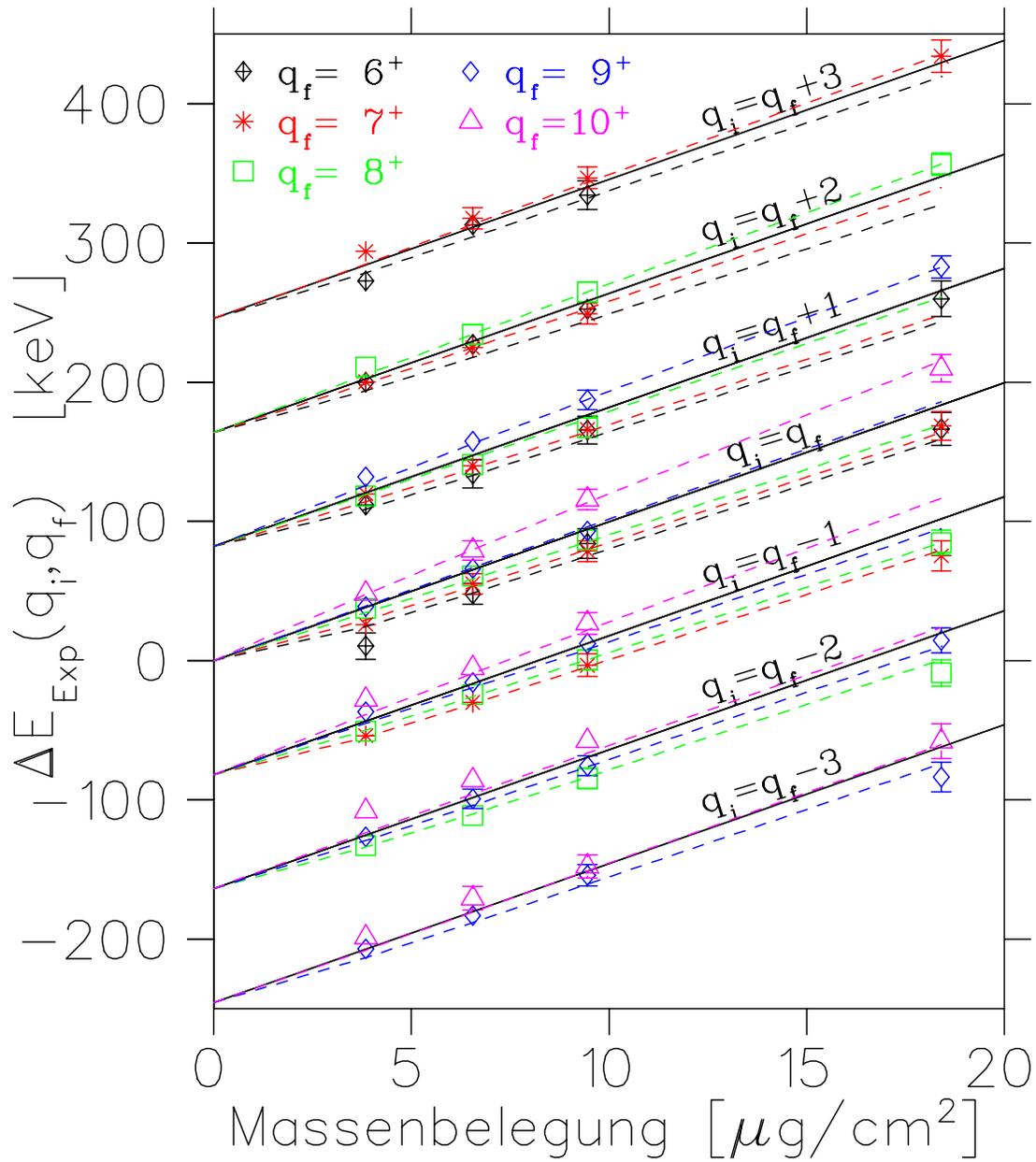


Abbildung 5.15: Der vollständige Satz gemessener Energieverluste $\Delta E(q_i, q_f)$, (siehe Text für weitere Erläuterungen).

Mit den $S(q)$ -Werten aus Abb. 5.13 wurden auch für diese gemessenen ΔE -Werte Simulationsrechnungen durchgeführt. Es sei hier noch einmal betont, daß in diesen Rechnungen Umladungen in der Probe mikroskopisch, d.h. mit den Wirkungsquerschnitten für Elektroneneinfang, -verlust, Anregung und Zerfall und für unterschiedliche Elektronenkonfigurationen, berechnet werden. Die Ergebnisse sind in Abb. 5.15 gestrichelt dargestellt. Wie zu erkennen ist, sind wir mit der Monte-Carlo-Simulation in Kombination mit dem Programm ETACHA in der Lage, die Energieverluste auch bei größeren Massenbelegungen, also mit vielen Umladungen, für beliebiges q_i und q_f zu berechnen. Leichte Uneinstimmigkeiten treten nur bei den dünnsten Folien für den Fall $q_i = 6^+ - 9^+$ und $q_f = 10^+$ auf.

5.5 Energiestreuung durch Umladungsprozesse

Die Simulation ermöglicht den Zugang zu einer weiteren wichtigen Größe, der Energieverbreiterung durch Umladungsprozesse. In Abb. 5.12 wurden die simulierten Energiespektren für den Fall $q_i = q_f$ dargestellt. Betrachtet man das Spektrum ganz links ($q_i = q_f = 10^+$), so ist, wie schon diskutiert, die scharfe Linie derjenigen Ne^{10+} -Ionen, die ohne Umladungen die Folie passiert und somit den gleichen Energieverlust erlitten haben, zu erkennen. Rechts von der Linie taucht eine Schulter auf, die die Ionen enthält, die sich zwischenzeitlich in einem niedrigeren Ladungszustand aufgehalten haben. Ihr Energieverlust ist dann niedriger (s. Kap. 5.4.1), die beobachtete Energiebreite entsteht dadurch, daß die Ionen unterschiedliche Wegstrecken in der Probe im niedrigeren Ladungszustand zurücklegen, bevor sie sich wieder zu $q_f = 10^+$ umladen. Die Ionen mit $q_i \leq 9^+$ haben zwei Schultern, da sie sich zwischenzeitlich in einem höheren oder niedrigeren Ladungszustand aufhalten können. Abb. 5.16 zeigt als weiteres Beispiel die Energiespektren der Ne-Ionen mit $q_i = 9^+$ und verschiedenen q_f nach Durchgang durch die $3,85 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ dicke C-Folie. Der Nullpunkt der Energieskala (X-Achse) entspricht 43950 keV in Abb. 5.12, das zweite Bild ($9 \rightarrow 9$) zeigt dasselbe Spektrum wie in Abb. 5.12, nur mit einer linearen Y-Skala.

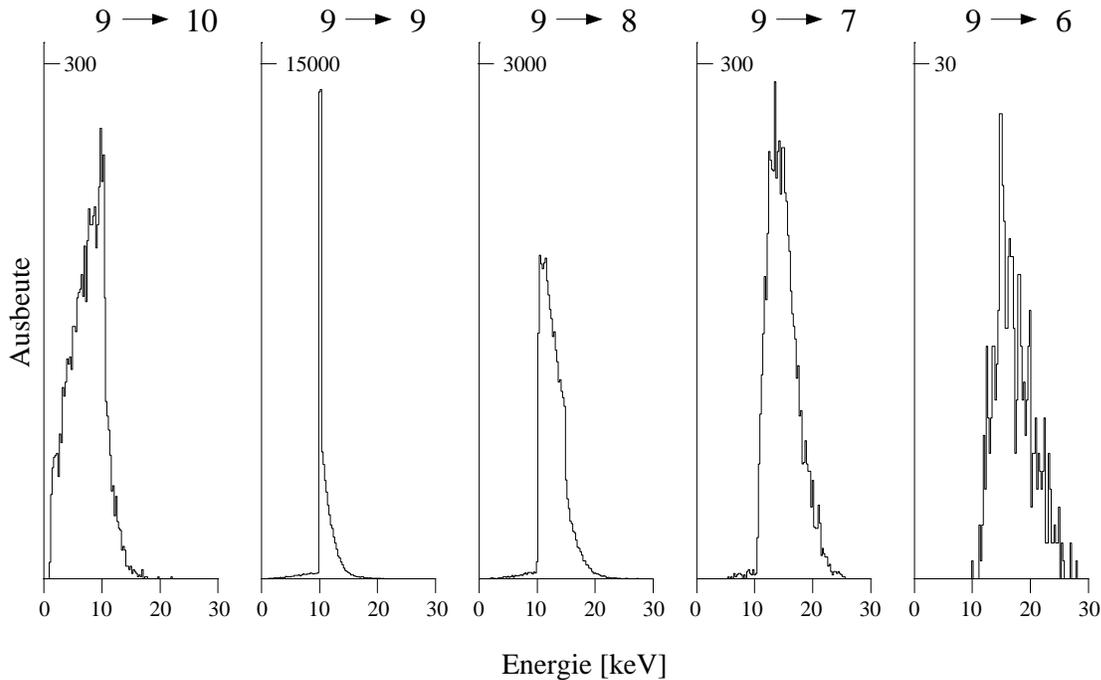


Abbildung 5.16: Simulierte Energiespektren für Ne-Ionen mit $q_i = 9^+$ und verschiedenen q_f nach Durchgang durch eine $3,85 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ dicke C-Folie.

Es sei hier noch einmal darauf hingewiesen, daß die Energiebreite dieser Spektren allein auf den Umladungsfluktuationen und dem unterschiedlichen Abbremsvermögen der Ionen in Abhängigkeit von ihrer Ladung q basiert. Es ist deutlich zu erkennen, daß die Form der Energiespektren von q_f abhängt und asymmetrisch ist. Um aus solchen Spektren die **Umladungsenergiestreuung** $\Delta E_{dq}(q_i, q_f)$ zu extrahieren, wurden die Spektren zunächst mit einer Glättungsfunktion (Gaußkurve mit einer Halbwertsbreite von 2 keV) gefaltet. Das gefaltete Spektrum wurde dann mit einer asymmetrischen Gaußfunktion angepaßt und daraus die Halbwertsbreite FWHM für $\Delta E_{dq}(q_i, q_f)$ gewonnen. In Tab. 5.7 sind diese Werte für alle gemessenen q_i , q_f und drei Schichtdicken aufgeführt. Zum Vergleich dazu sei die Energieverluststreuung ΔE_{es} nach Bohr (Gl. 4.8) angegeben:

$$\begin{aligned}\Delta E_{es}(3,85\mu g/cm^2) &= 9,985 \text{ keV} \\ \Delta E_{es}(6,55\mu g/cm^2) &= 13,075 \text{ keV} \\ \Delta E_{es}(9,45\mu g/cm^2) &= 15,705 \text{ keV}\end{aligned}$$

Aus der Tabelle ist zu entnehmen, daß die Umladungsenergiestreuung ΔE_{dq} von Ne-Ionen mit einer Energie von 2 MeV/Nukleon in Kohlenstoff in etwa gleich oder geringfügig kleiner als die Energieverluststreuung ΔE_{es} ausfällt. Für

| q_i | d | q_f | | | | |
|-----------------|------|-----------------|----------------|----------------|----------------|----------------|
| | | 10 ⁺ | 9 ⁺ | 8 ⁺ | 7 ⁺ | 6 ⁺ |
| 10 ⁺ | 3.85 | 3.92 | 8.48 | 8.56 | 8.81 | 9.81 |
| | 6.55 | 8.68 | 16.60 | 14.43 | 14.56 | 15.21 |
| | 9.45 | 15.07 | 22.50 | 19.92 | 20.36 | 22.03 |
| 9 ⁺ | 3.85 | 7.38 | 2.84 | 4.66 | 6.13 | 7.73 |
| | 6.55 | 11.00 | 4.40 | 7.94 | 9.63 | 10.50 |
| | 9.45 | 16.53 | 7.43 | 11.92 | 13.35 | 15.01 |
| 8 ⁺ | 3.85 | 7.23 | 4.59 | 2.89 | 5.51 | 6.74 |
| | 6.55 | 11.64 | 7.99 | 4.91 | 7.72 | 9.07 |
| | 9.45 | 16.28 | 11.73 | 8.51 | 10.54 | 12.00 |
| 7 ⁺ | 3.85 | 8.42 | 6.45 | 6.11 | 8.06 | 7.72 |
| | 6.55 | 12.59 | 9.74 | 8.47 | 10.52 | 11.51 |
| | 9.45 | 17.17 | 13.22 | 11.39 | 12.72 | 13.33 |
| 6 ⁺ | 3.85 | 9.15 | 7.48 | 7.37 | 8.09 | 7.95 |
| | 6.55 | 13.27 | 10.78 | 9.99 | 11.75 | 12.48 |
| | 9.45 | 18.19 | 14.02 | 12.60 | 13.60 | 14.37 |

Tabelle 5.7: Halbwertsbreiten der Umladungsenergiestreuung $\Delta E_{dq}(q_i, q_f)$ in keV als Ergebnis der Monte-Carlo-Simulation für verschiedene q_i , q_f und Massenbelegungen d (in $\mu g/cm^2$) der C-Folie.

$q_i = 8^+, 9^+, 10^+$ findet man die kleinsten Werte für $q_i = q_f$, da hier ein relativ großer Prozentsatz der Ionen, insbesondere bei der dünnsten C-Folie, ohne Umladung die Schicht durchquert und dadurch den gleichen Energieverlust erleidet. Ionen mit $q_i = 7^+, 6^+$ zeigen dagegen die kleinste Energieverbreiterung, wenn $q_f = 8^+$ gewählt wird. Dieses Verhalten ist anhand der hohen Ionisationsquerschnitte für $q=7^+$ und 6^+ erklärbar. Der Anteil der Ionen, die die Probe ohne Umladungen passieren, ist in diesem Fall sehr klein, so daß nahezu alle Projektile, unabhängig von q_f , sehr schnell den Ladungszustand 8^+ einnehmen und im Mittel in diesem Zustand am längsten verweilen. Wird $q_f = 8^+$ gewählt, so durchlaufen sie die wenigsten Umladungsprozesse, was zugleich die kleinste Umladungsenergiestreuung zur Folge hat.

5.6 Ausblick

Die von uns gemessenen Ladungsverteilungen $f(q_i, q_f)$ können auf der Basis von theoretisch berechneten Wirkungsquerschnitten für Elektroneneinfang, -verlust, Anregung und Zerfall zufriedenstellend beschrieben werden. Die Routinen, die die Ionisations- und die Anregungswirkungsquerschnitte berechnen, liefern gute Ergebnisse. Schwierigkeiten machte die Berechnung der Einfangsquerschnitte. Mit der *Continuum Distorted Wave Approximation* (CDWA) haben wir eine Methode gefunden, die zufriedenstellende Werte liefert. Sie soll anhand verschiedener Projektile und Energien weiter getestet werden. Den besten Test für die Wirkungsquerschnitte stellt der Bereich dar, in dem sich die Ladungsverteilungen schnell ändern ($0 - 5 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ in den Abb. 5.7-5.9). Um ihn zu erfassen, werden wir in den nächsten Experimenten dünnere Folien benutzen und die Projektilenergie etwas erhöhen, um diesen Bereich zu vergrößern. Das impliziert jedoch auch eine höhere Spannung, die angelegt werden muß, um eine gute Trennung der einzelnen Ladungszustände weiterhin gewährleisten zu können. Die Hochspannungsdurchführungen und Isolatoren, an denen die Gehäuse mit den Folien angebracht sind, müssen entsprechend modifiziert werden.

In Hinsicht auf die Energieverluste kann die Genauigkeit der Meßpunkte erhöht werden. In dem beschriebenen Experiment kommt die größte Unsicherheit von Energieschwankungen des Strahls, hier sind weitere Verbesserungen möglich. Auch die Referenzposition für die Energieverlustmessung, d.h. eine Messung ohne Transmissionsfolie, wird bei zukünftigen Experimenten vor und nach jeder Messung kontrolliert werden. So können auch geringste Änderungen der Einschußenergie ($\sim 5 \text{ keV}$) schon während des Experiments festgestellt werden. Die Verwendung von dünneren Folien und höherer Einschußenergie wird die Beiträge durch Umladungsfluktuationen vermindern, so daß $S(q)$ direkter bestimmt werden kann. Durch Variation der Projektile erhoffen wir uns, eine Gesetzmäßigkeit der ladungsabhängigen spezifischen Energieverluste $S(q)$ extrahieren zu können.

