

Aus dem Institut für Angewandte Physik der Universität Hamburg

Über die Winkelabhängigkeit und ihre Unsymmetrie von Energieverlusten an Si und Ge

Von

M. CREUZBURG

Mit 13 Figuren im Text

(Eingegangen am 7. März 1963)

In Silicon and Germanium one finds three types of characteristic energy losses: the plasma loss at 17 eV in transmission of electrons through thin films, the 10 eV loss in reflection at cleavage surfaces, and the 5 eV loss in transmission through extremely thin films. The present paper is concerned with the 5 eV loss.

It is found that the intensity of the 5 eV loss does not depend on variation of thickness of the foils. Thus, it is concluded that the 5 eV loss is due to surface plasma oscillations. In fact, measuring the angular distribution, there is found a dependence of $\sim \theta^{-3}$ in good agreement with that given by the theory.

In the case of non-normally incident electrons it is found that the intensity of this loss is not symmetric about the direction of the incident electrons. This is in agreement with the theoretical considerations of STERN and FERRELL, and represents a further typical feature of surface plasma losses.

1. Einleitung

Bei der Elektronenstreuung an Festkörpern geschehen nicht nur elastische sondern auch unelastische Stöße, deren Energieübertragung man durch Analyse der gestreuten Elektronen untersuchen kann. Die theoretische Behandlung der kollektiven Elektronenbewegung ergibt eine Anregungsenergie $\hbar\omega_p$, wobei $\omega_p = \sqrt{\frac{e^2 \cdot n}{\epsilon_0 \cdot m}}$ die sog. Plasmafrequenz ist. An vielen Substanzen, unter ihnen auch Silizium und Germanium, stimmt der beobachtete Energieverlust gut mit der Energie $\hbar\omega_p$ überein; man spricht deshalb von Plasmaverlusten. Sie liegen bei Silizium und Germanium bei etwa 17 eV.

Nach der Theorie^{1, 2} gibt es eine weitere Anregung des Festkörpers, die an dessen Oberfläche geschieht und die Energie

$$\hbar\omega_o = \hbar\omega_p \cdot \frac{1}{\sqrt{1 + \epsilon}} \quad (1)$$

besitzt. Bei Messungen in streifender Inzidenz an Silizium- und Germanium-Spaltflächen beobachtet man einen Energieverlust von etwa

¹ RITCHIE, R.H.: Phys. Rev. **106**, 874 (1957).

² STERN, E.A., and R.A. FERRELL: Phys. Rev. **120**, 130 (1960).

10 eV, der sich unter der Annahme, daß das an die Oberfläche angrenzende Medium Vakuum ist ($\varepsilon = 1$), und auf Grund seiner übrigen Eigenschaften gut als solcher Oberflächen-Plasmaverlust deuten läßt³.

Durchstrahlt man sehr dünne Schichten ($\sim 100 \text{ \AA}$) von Silizium und Germanium, so beobachtet man schließlich einen dritten Energieverlust von etwa 5 eV⁴. Die im folgenden beschriebenen Untersuchungen ergaben, daß die Intensität des 5 eV-Verlustes bei Vergrößerung der Schichtdicke nicht ansteigt und daß sich ihre Winkelverteilung, insbesondere auch bei nichtsenkrechter Inzidenz, in guter Übereinstimmung mit den theoretischen Vorstellungen² befindet. Damit wird gezeigt, daß der 5 eV-Energieverlust als Oberflächenplasmaverlust anzusehen ist.

2. Meßmethode

Es wurde eine Apparatur verwendet, die es gestattet, das differentielle Energiespektrum der durch das Präparat um einen Winkel ϑ gestreuten Elektronen (50 oder 15 keV) aufzunehmen. Sie stellt eine sog. Gegenfeldanlage dar, mit nachfolgendem Zylinderkondensator als Energieanalysator, und wurde bereits in⁵ beschrieben.

Für die Untersuchungen wird ein genügend feiner Elektronenstrahl durch Ausblenden mit zwei kreisförmigen Lochblenden (Durchmesser 20 und 30 μ , gegenseitiger Abstand 160 mm) hergestellt. Nach der Streuung am Objekt werden diejenigen Elektronen in ihrer Energie analysiert, die durch eine Meßblende (Durchmesser 50 μ , Abstand vom Objekt 660 mm) treten.

Das Winkelauflösungsvermögen der Apparatur wird definiert als die Halbwertsbreite des Faltungintegrals

$$I(\vec{\vartheta}) = \int \sigma(\vec{\Theta}) g(\vec{\Theta} - \vec{\vartheta}) d^2\Theta, \quad (2)$$

das wir als Auflösungsfunktion bezeichnen. Darin ist $\sigma(\vec{\Theta})$ die Winkelverteilung des durch die ersten beiden Blenden begrenzten Strahles in der Ebene der Meßblende. Durch g wird die endliche Ausdehnung der Meßblende beschrieben; g ist konstant für alle Winkel innerhalb der Meßblende und sonst Null.

In (2) kann man ϑ als den Winkel auffassen, um den die Meßblende um das Objekt geschwenkt wird. Bei der Messung der Intensität hinter der Meßblende erhält man also durch Variation von ϑ die Auflösungsfunktion. Sie besaß bei den vorliegenden Messungen eine Halbwertsbreite von $2 \cdot 10^{-4}$ rad. Bei einigen Messungen konnte sie dadurch auf $1 \cdot 10^{-4}$ rad verkleinert werden, daß man mit der als Folienträger verwendeten Kreisblende eine weitere Ausblendung des Elektronenstrahles

³ CREUZBURG, M., u. H. RAETHER: Z. Physik **171**, 436 (1963).

⁴ CREUZBURG, M.: Z. Naturforsch. **18a**, 101 (1963).

⁵ KUNZ, C.: Z. Physik **167**, 53 (1962).

vornahm. Auf den Einfluß der Auflösungsfunktion auf die Messungen kommen wir später noch eingehend zurück.

Die Schwenkung der dritten Blende um das Objekt geschieht nicht auf mechanischem Wege, sondern durch Ablenkung des Elektronenstrahles in einem ebenen elektrischen Feld. Man schwenkt also den Strahl relativ zur dritten Blende und kann auf diese Weise Messungen der Winkelverteilung durchführen. Das Ablenssystem besteht aus zwei parallelen und zum Strahl symmetrischen Platten von 10 mm Länge im gegenseitigen Abstand von 3 mm und beginnt 20 mm hinter dem Objekt. Es wurde mit Hilfe der scharfen Interferenzringe einer polykristallinen Germaniumfolie geeicht; die angelegte Spannung, deren

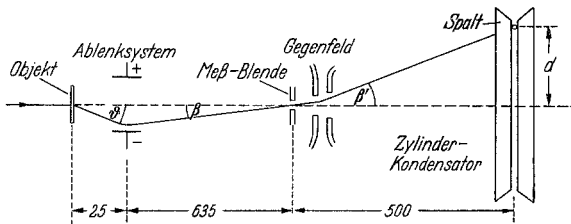


Fig. 1. Schematischer Strahlengang in der Apparatur. Im Zylinderkondensator wird der Elektronenstrahl tatsächlich senkrecht zur Zeichenebene abgelenkt (Energieanalyse)

Mittelpotential das der Anode (Erddpotential) ist, bewirkt eine lineare Winkelablenkung bis etwa 10^{-2} rad. Bei den in den Messungen benötigten Winkeln von maximal $\vartheta_{\text{Max}} = 10^{-3}$ rad ist eine Genauigkeit von einigen Prozent gewährleistet.

Der Strahlengang bei der elektrischen Winkelablenkung unterscheidet sich von dem bei mechanischer Schwenkung dadurch, daß der Strahl mit einer gewissen Neigung in das Gegenfeld gelangt, wie Fig. 1 zeigt.

Der Neigungswinkel β beträgt im vorliegenden Falle $\beta = \vartheta \cdot \frac{25}{635} =$

$0,04 \vartheta$; mit $\vartheta_{\text{Max}} = 10^{-3}$ rad wird $\beta_{\text{Max}} = 4 \cdot 10^{-5}$ rad. Bei einer Abbremsung von 50 keV auf 300 eV vergrößert sich im Gegenfeld der Winkel

um den Faktor $\sqrt{\frac{50000}{300}} \approx 13^*$, so daß der Strahl mit einer maximalen

Neigung von $\beta'_{\text{Max}} = 5 \cdot 10^{-4}$ in den Zylinderkondensator (Energieanalysator) eintritt. Da der Zylinderkondensator nur in der Richtung senkrecht zum Spalt fokussiert und der Strahl in ihm etwa 500 mm zurücklegt (in Fig. 1 ist dieser Weg in die Zeichenebene abgerollt), trifft der um ϑ_{Max} abgelenkte Strahl den Analysatorspalt an einer um $d = 500 \cdot \beta'_{\text{Max}} = 0,25$ mm in Spaltlängsrichtung verschobenen Stelle. Bei einer Spaltlänge von 10 mm werden sicher noch alle Elektronen registriert, selbst wenn der Strahl um $\vartheta = 10 \cdot \vartheta_{\text{Max}}$ abgelenkt werden würde. Eine

* Dies gilt streng nur für ebene Felder. Es konnte aber durch eine Messung gezeigt werden, daß der Faktor im vorliegenden Falle nicht wesentlich größer ist.

Beeinflussung der Energieanalyse tritt bei der Ablenkung ersichtlich nicht ein, da diese in der Richtung senkrecht zum Spalt erfolgt.

Damit zeigt sich, daß die elektrische Winkelablenkung bei kleinen Winkeln einer mechanischen überlegen ist, da die Einstellgenauigkeit sehr gut und der apparative Aufwand wesentlich geringer sind. Senkrecht zu dem beschriebenen Ablenssystem wurde für Justierzwecke noch ein zweites Plattenpaar angebracht.

Das Energieauflösungsvermögen der Apparatur wird außer durch die Monochromasie des Elektronenstrahles (Halbwertsbreite 0,2 bis 0,3 eV) durch den Energieanalysator bestimmt. Es hängt nach der Berechnung hauptsächlich von der Größe der dritten Blende ab, die durch das Gegenfeld vergrößert auf den Eingang des Zylinderkondensators abgebildet wird. In der Ebene des Spaltes erscheint dann ein Strich, dessen Breite in der Richtung senkrecht zum Spalt (Fokussierichtung) infolge der 1:1-Abbildung gleich der des Eingangsbildes ist und das Energieauflösungsvermögen bestimmt. Die gemessene Energieverteilung besitzt minimal (d. h. bei niedriger Kathodentemperatur und 50 μ Spaltbreite) eine Halbwertsbreite von 0,5 eV, die also das maximal erreichbare Energieauflösungsvermögen darstellt.

Die meisten der im folgenden beschriebenen Messungen wurden mit einer Spaltbreite von 0,2 mm und einem Energieauflösungsvermögen von 0,8 bis 1,0 eV durchgeführt. Dies reichte für die Untersuchungen der Energieverlustmaxima von einigen eV Breite aus.

Das Maß für die Intensität ist die Anzahl der pro Zeiteinheit durch den Meßspalt tretenden Elektronen. Ihre Registrierung erfolgt mittels eines offenen Multipliers und ist nach oben begrenzt durch dessen zeitliches Auflösungsvermögen, während eine untere Grenze durch den statistischen Fehler gegeben ist. Es können Intensitäten zwischen 20 und 10000 Elektronen pro Sekunde registriert werden.

Zur Verringerung der Verunreinigungen des Objektes bei Bestrahlung wurde dieses mit einem Kühlmantel umgeben, der die Temperatur der flüssigen Luft hatte. Die Stromdichte am Objekt wurde auf maximal $1 \cdot 10^{-3}$ A/cm² abgeschätzt. Bei Bestrahlung bis zu 1 Std konnten keine Veränderungen des Objektes und seiner Energiespektren festgestellt werden.

3. Präparation

Die untersuchten Silizium- und Germaniumschichten wurden im Hochvakuum ($2 \cdot 10^{-6}$ Torr) entweder auf eine dünne Zaponlack- oder Kohleschicht, oder auf KBr-Spaltflächen aufgedampft. Als Träger dienten Nickel-Mesh (Lochgröße $0,1 \times 0,1$ mm²) oder Siebenlochblenden (Lochdurchmesser 70 μ). Die Schichtdickenbestimmung geschah mit einem optischen Interferenzmikroskop. Durch die Herstellung von Präparaten mit linear in einer Richtung zunehmender Dicke (sog. Keil-

folien) ist eine Schichtdickenangabe bis herab zu 50 \AA möglich. Die Genauigkeit der Angabe schwankt zwischen $\pm 50\%$ bei sehr dünnen und $\pm 20\%$ bei dickeren Schichten ($\sim 500 \text{ \AA}$).

Das Verdampfen der Materialien geschah aus Tantal-Schiffchen; da Silizium sehr leicht mit Metallen legiert, wurde — bei einer Aufdampf-rate von etwa 20 \AA sec^{-1} — nicht länger als 1 min aufgedampft. Verunreinigungen durch Tantal konnten weder im Interferenzdiagramm — dieses ließ auf eine amorphe Silizium- bzw. Germaniumschicht schließen — noch im Energieverlustspektrum festgestellt werden. Eine probeweise aus Wolfram aufgedampfte Siliziumfolie zeigte die gleichen Energieverlustspektren wie die aus Tantal aufgedampften Folien.

4. Schichtdickenabhängigkeit

Wie schon eingangs erwähnt, tritt der im folgenden untersuchte 5 eV-Energieverlust an Silizium und Germanium nur in Durchstrahlung von sehr dünnen Schichten deutlich hervor. In Fig. 2 sind Energieverlustspektren bei Durchstrahlung von Siliziumschichten verschiedener Dicke d (einer sog. Keilfolie) dargestellt. Man kann sie als aus drei Anteilen zusammengesetzt betrachten: dem 5 eV-Verlust, dem 17 eV-Verlust und einem Kontinuum, das beiden überlagert ist. Die Entstehung des Kontinuums ist unklar⁶; jedenfalls aber kann es nicht allein von der — bei den dünnen Schichten meist notwendigen — Träger-substanz herrühren, da es auch bei freitragenden Schichten auftritt.

Man sieht an den Spektren der Fig. 2, daß bei Schichten, die dünner als 100 bis 200 \AA sind, der 5 eV-Verlust an Intensität überwiegt, während bei größerer Schichtdicke der 17 eV-Verlust intensiver wird. Dieses Verhalten zeigte sich an allen untersuchten sog. Keilfolien. In Fig. 3 sind Messungen an zwei Keilfolien wiedergegeben; man erkennt, daß der 5 eV-Verlust ab Schichtdicken von 100 bis 200 \AA nicht mehr stärker wird, während der 17 eV-Verlust proportional zur Schichtdicke wächst*.

Wie im obersten Spektrum von Fig. 2 angedeutet, geschieht die Abtrennung in den folgenden Messungen durch eine glatte Kurve, die den Verlauf des Kontinuums fortsetzt. Die Fläche zwischen dieser Kurve und dem gemessenen Energie-spektrum wird als Intensität des Verlustes definiert; entsprechend bezeichnet man die Fläche unter dem Maximum bei $\Delta E = 0$ als „elastische Intensität“. Die Verlustintensitäten lassen sich also nur mit der Genauigkeit der Abtrennung von Kontinuum angeben.

* Man kann mit dem in Fig. 3 sichtbaren Überkreuzungspunkt der beiden Verlustintensitäten keine Aussagen über die mittlere freie Weglänge für die beiden Verluste erhalten, da nicht totale Wirkungsquerschnitte gemessen, sondern infolge der Ausblendung von den beiden Verlusten verschieden große Anteile mit erfaßt werden (vgl. Fig. 8).

⁶ Vgl. dazu CREUZBURG, M., u. H. DIMIGEN: Z. Physik **174**, 24 (1963).

Zur Fig. 3 ist zu bemerken, daß der Meßfehler relativ groß ist, weil bei verschiedenen gleichdicken Folien die Energieverluste verschieden intensiv auftreten. Da diese Abweichungen wesentlich größer waren, als daß sie durch die Unsicherheit in der Schichtdicke erklärbar wären, ist anzunehmen, daß sie durch unterschiedlichen Feinbau der Folien verursacht werden. Dies wurde aber nicht näher untersucht.

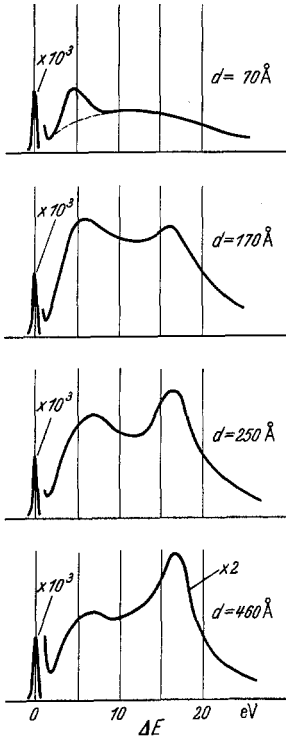


Fig. 2. Energieverlustspektren polykristalliner Siliziumfolien verschiedener Schichtdicken d bei $\theta=0$. Die Bezeichnungen „ $\times 10^3$ “ und „ $\times 2$ “ bedeuten, daß für die Zeichnung die gemessenen Intensitäten um diese Faktoren verkleinert wurden

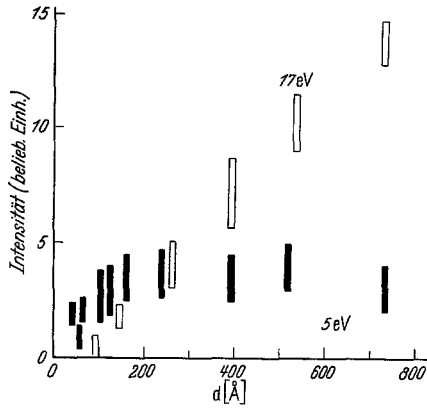


Fig. 3. Schichtdickenabhängigkeit der Intensitäten des 5 eV-Verlustes und des 17 eV-Verlustes, gemessen an zwei Silizium-Keilfolien

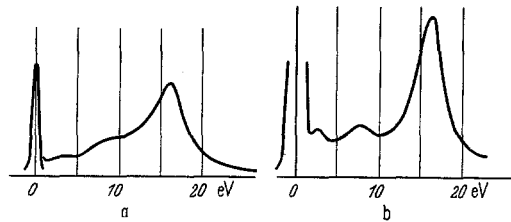


Fig. 4. Energieverlustspektren *a* einer etwa 700 Å dicken polykristallinen Germaniumfolie und *b* einer dünngezätzten Germanium-Einkristallfolie (Schichtdicke etwa 1000 Å) bei $\theta=0$. Die „elastische Intensität“ wurde nicht mitgemessen

Dieser Sachverhalt wird verständlich, wenn man den 5 eV-Verlust nicht wie den 17 eV-Verlust auf die Anregung von Plasmaschwingungen im Inneren, sondern auf Oberflächenplasmaanregung zurückführt. Die Intensität des 5 eV-Verlustes bleibt dann bei Schichtdickenvergrößerung konstant. Allerdings tritt diese Konstanz der Intensität nach den Messungen erst ab Schichtdicken von 100 bis 200 Å ein.

Der 5 eV-Verlust, der eine Halbwertsbreite von 4 bis 5 eV besitzt, ist, wie oben erörtert, einem Kontinuum überlagert. Trotz einer gewissen Ungenauigkeit in seiner Abtrennung vom Kontinuum kann man eine Vergrößerung der Verlustenergie um 0,5 bis 1 eV bei Schichtdicken-

vergrößerung bis etwa 200 \AA feststellen; oberhalb dieser Schichtdicke bleibt sie konstant*. Bei dünnen Schichten ($\lesssim 100 \text{ \AA}$) liegt das Verlustmaximum für Silizium bei $4,3 \pm 0,3 \text{ eV}$ und für Germanium bei $4,0 \pm 0,3 \text{ eV}$, während es bei dickeren Schichten (200 bis 300 \AA) bei $5,3 \pm 0,3 \text{ eV}$ bzw. $4,5 \pm 0,3 \text{ eV}$ gefunden wird.

Bei der Durchstrahlung von Schichten, die dicker als 400 bis 800 \AA sind, tritt der 5 eV -Verlust vollständig neben dem 17 eV -Verlust zurück, Fig. 4. Stattdessen erkennt man für Silizium bei 7 eV und für Germanium bei 3 und 8 eV weitere Verlustmaxima. Es ist noch ungeklärt, ob die 7 eV - und 8 eV -Verluste mit den in Reflexion beobachteten Energieverlusten von etwa 10 eV in Verbindung stehen; für eine solche Vermutung spricht, daß sich der 10 eV -Verlust beim Übergang vom Reflexions- zum Durchstrahlungsfall zu kleineren Energien verschiebt³.

5. Winkelabhängigkeit

Die Winkelabhängigkeit der Intensität des 5 eV -Verlustes wurde untersucht. Die Messung geschah in Durchstrahlung einer 70 \AA dicken Siliziumfolie (auf eine Zaponlackschicht aufgedampft) mit 50 keV -Elektronen. In Fig. 5 sind die Meßpunkte mit Fehlerangaben als Kreuze eingezeichnet. Sie wurden drei Meßreihen entnommen, die durch Gleichsetzen der „elastischen Intensität“ aneinander angepaßt wurden. Die Meßpunkte bei $\vartheta = 0$ sind willkürlich gleich 100 gesetzt. In größeren Winkeln als $\vartheta \approx 10^{-3} \text{ rad}$ verschwindet das 5 eV -Verlust-Maximum im Kontinuum.

Im vorigen Kapitel wurde gezeigt, daß man das vom 17 eV -Plasmaverlust unterschiedene Verhalten des 5 eV -Verlustes bei Schichtdickenveränderung mit der Annahme erklären kann, daß der 5 eV -Verlust durch Oberflächenplasmanregung zustande

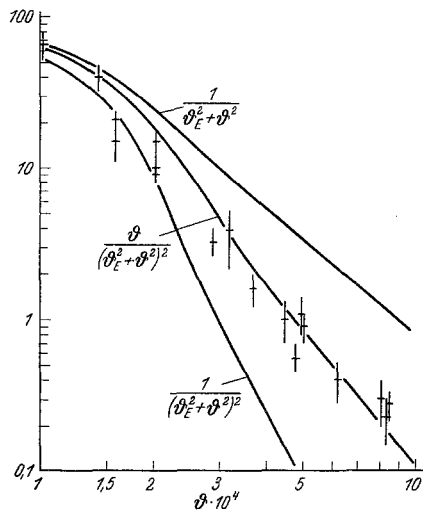


Fig. 5. Messung der Winkelverteilung. Die Kreuze geben die Intensitäten des 5 eV -Verlustes mit Meßfehlern an. Die Kurve „ $\frac{\vartheta}{(\vartheta_L^2 + \vartheta^2)^2}$ “ erhält man durch Faltung aus der Verteilung (3) (vgl. Fig. 6). Zum Vergleich sind noch zwei andere Verteilungen berechnet und eingezeichnet worden (vgl. Text). Die Meßwerte und die Kurven sind bei $\vartheta = 0$ gleich 100 gesetzt

* Offenbar tritt bei kleineren Schichtdicken eine Veränderung des 5 eV -Verlustes ein. Ein ähnliches Verhalten ist an den 6 eV -Aluminium- und $3,6 \text{ eV}$ -Silber-Verlusten, die man ebenfalls auf Oberflächenplasmanregung zurückführt, beobachtet worden⁵.

kommt. Bei dieser Schwingungsform beträgt nach ² die Wahrscheinlichkeit, mit der ein Elektron der Energie E_0 und Geschwindigkeit v durch die Anregung von Oberflächenplasmaschwingungen um den Winkel ϑ gestreut wird, pro Oberfläche und Raumwinkelement

$$w(\vartheta) = \frac{e^2}{\pi \hbar v} \cdot \frac{2}{1 + \varepsilon} \cdot \frac{\vartheta_E \cdot \vartheta}{(\vartheta_E^2 + \vartheta^2)^2} \cdot f. \quad (3)$$

Dabei sind ε die Dielektrizitätskonstante des an die Folie angrenzenden Mediums, f ein Faktor, der für senkrechte Inzidenz 1 ist, und $\vartheta_E = \Delta E / 2E_0$, mit ΔE dem Energieverlust. Die Gl. (3) stellt also den differentiellen Wirkungsquerschnitt für einen Oberflächenenergieverlust dar.

Für einen Vergleich mit den Messungen wird das endliche Winkelauflösungsvermögen der Apparatur in folgender Weise berücksichtigt. Untersucht man die Winkelverteilung (3) nicht mit einem unendlich feinen Strahl, sondern mit einem Strahl, der die Verteilung $\sigma(\vec{\Theta})$ besitzt, so ist die Verteilung der mit ΔE gestreuten Elektronen durch das Faltungsintegral

$$W(\vec{\Theta}) = \int w(\vec{\vartheta}) \cdot \sigma(\vec{\vartheta} - \vec{\Theta}) d^2\vartheta \quad (4)$$

gegeben ^{*}.

Diese Verteilung wird nun durch die Meßblende abgetastet. Setzt man sie daher in der Gl. (2) an die Stelle der Funktion $\sigma(\vec{\Theta})$, so stellt der Wert von (2) die gemessene Verteilung $I_{\Delta E}(\vec{\vartheta})$ der mit ΔE gestreuten Elektronen dar. Nach Koordinatentransformation und unter Benutzung der Vertauschbarkeit der Faltungsintegrale erhält man dann:

$$I_{\Delta E}(\vec{\vartheta}) = \int w(\vec{\vartheta}' - \vec{\vartheta}) I(\vec{\vartheta}') d^2\vartheta'. \quad (5)$$

Dabei ist $I(\vec{\vartheta}')$ die in (2) eingeführte Auflösungsfunktion, die man durch eine Messung der „elastischen Intensität“ ermitteln kann. Es ergibt sich also, daß die gemessene Verteilung der mit ΔE gestreuten Elektronen durch die Faltung der Verteilung (3) mit der Auflösungsfunktion (2) dargestellt wird.

Für die numerische Auswertung wurde das Integral (5) approximiert durch die Produktsumme

$$I_{\Delta E}(\vec{\vartheta}) \approx \sum_{\vartheta_i < \vartheta_0} w(\vec{\vartheta}'_i - \vec{\vartheta}) I(\vec{\vartheta}'_i) \Delta^2\vartheta', \quad (6)$$

wobei die Bereiche $\Delta^2\vartheta'$ Quadrate der Kantenlänge $\Delta\vartheta$ waren, die Funktionswerte jeweils in der Mitte der Quadrate genommen, und

^{*} Genauer muß in (4) für $\sigma(\vec{\Theta})$ die „elastische“ Winkelverteilung *hinter* der Folie gesetzt werden. Bei den hier verwendeten dünnen Folien wurde festgestellt, daß die „elastische“ Verteilung mit und ohne Folie die gleiche Gestalt hatte.

schließlich $I(\vec{\vartheta})$ im Maximum (bei $\vartheta = 0$) auf 1 normiert wurden⁷. Das Integrationsgebiet war ein Kreis mit dem Radius ϑ_0 . Die Kantenlänge $\Delta\vartheta$ wurde so klein gewählt, daß sich innerhalb der Quadrate die Funktionswerte nur wenig änderten und andererseits der Aufwand der numerischen Auswertung (mechanische Rechenmaschine) nicht zu groß war. Das Integrationsgebiet ϑ_0 wurde so groß gewählt, daß die Beiträge von außerhalb zu vernachlässigen waren. Im vorliegenden Falle waren $\Delta\vartheta = \frac{1}{3} \cdot 10^{-4}$ und $\vartheta_0 = 2 \cdot 10^{-4}$. Das Ergebnis ist in Fig. 6 dargestellt (ausgezogene Kurve); die gestrichelte Kurve stellt die Verteilung (3) dar, und die punktierte Kurve bedeutet die Auflösungsfunktion, beide in willkürlichem Ordinatenmaßstab.

In Fig. 5 sind die Meßwerte für die Winkelverteilung des 5 eV-Verlustes mit der so berechneten Verteilung (Bezeichnung „ $\frac{\vartheta}{(\vartheta_E^2 + \vartheta^2)^2}$ “) verglichen, wobei die gemessene und die berechnete Kurve bei $\vartheta = 0$ auf den Wert 100 normiert wurden. Zum Vergleich wurden in Fig. 5 noch zwei weitere Kurven eingezeichnet; man erhält sie, wenn man in (6) für die Funktion w nicht den Ausdruck (3) sondern zwei andere Verteilungen einsetzt: die mit „ $\frac{1}{\vartheta_E^2 + \vartheta^2}$ “ bezeichnete Kurve entspricht der

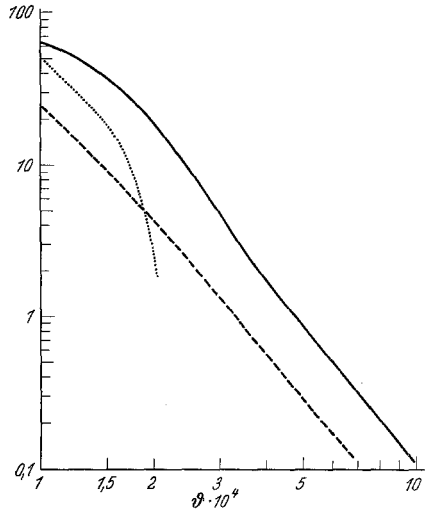


Fig. 6. Die Berechnung der Winkelverteilung. Die Verteilung (3) mit $E_0 = 50$ keV (gestrichelt) wird mit der gemessenen Auflösungsfunktion (punktiert) gefaltet und ergibt die berechnete Winkelverteilung (ausgezogen). Die Verteilung (3) ist in ihrem Maximum bei $\vartheta = \vartheta_E/\sqrt{3} = 2,9 \cdot 10^{-6}$ gleich 100 gesetzt, die beiden anderen Kurven bei $\vartheta = 0$

Winkelverteilung für Volumenplasmaverluste und die mit „ $\frac{1}{(\vartheta_E^2 + \vartheta^2)^2}$ “ bezeichnete Kurve einer Verteilung, die für eine spezielle Form der Plasmaschwingungen angegeben worden ist⁸. Man sieht, daß die Verteilung (3) die Experimente am besten wiedergibt, und zwar im gesamten Meßbereich.

In der Fig. 5 wird also deutlich, daß der 5 eV-Verlust eine wesentlich steilere Winkelabhängigkeit besitzt als ein Volumenverlust wie der 17 eV-Verlust. Aus diesem Grunde tritt der 5 eV-Verlust auch unter verschiedenen Beobachtungsbedingungen im Energiespektrum verschieden stark hervor. Vergleicht man nämlich ein genau in Vorwärtsrichtung

⁷ Siehe auch: MARTON, L., J. A. SIMPSON, H. A. FOWLER and N. SWANSON: Phys. Rev. **126**, 182 (1962), Appendix.

⁸ FERRELL, R. A.: Phys. Rev. **111**, 1214 (1958).

aufgenommenes Spektrum (Fig. 7, $\vartheta = 0$) mit einem in einem kleinen Streuwinkel (Fig. 7, $\vartheta = 2,7 \cdot 10^{-4}$) an derselben Folie gemessenen Spektrum, so erkennt man, daß bei $\vartheta = 0$ die Intensität des 5 eV-Verlustes, und bei $\vartheta \neq 0$ die des 17 eV-Verlustes überwiegt*. — Auch das Winkelauflösungsvermögen der Apparatur besitzt einen entscheidenden Einfluß auf die Form der Energieverlustspektren. Im oberen Spektrum von Fig. 8 zeigt sich bei gutem Winkelauflösungsvermögen ($\vartheta_{1/2} = 1,8 \cdot 10^{-4}$) für den 5 eV-Verlust eine höhere Intensität als für den

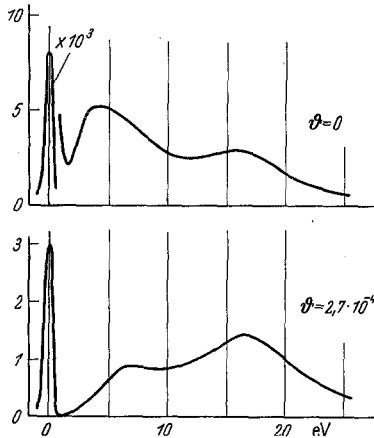


Fig. 7

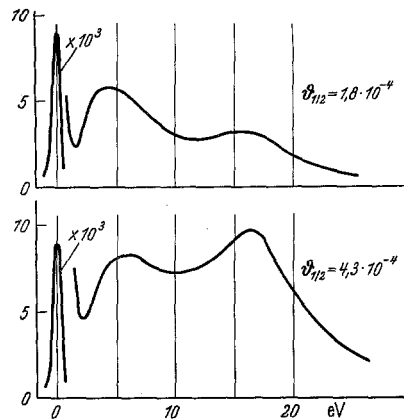


Fig. 8

Fig. 7. Energieverlustspektren einer 150 Å dicken Siliziumfolie bei $\vartheta = 0$ und bei $\vartheta = 2,7 \cdot 10^{-4}$ rad. Das Winkelauflösungsvermögen betrug $\vartheta_{1/2} = 1,8 \cdot 10^{-4}$

Fig. 8. Energieverlustspektren einer 150 Å dicken Siliziumfolie bei $\vartheta = 0$ und verschiedenen Winkelauflösungsvermögen $\vartheta_{1/2}$

17 eV-Verlust, während es im unteren Spektrum bei schlechtem Winkelauflösungsvermögen ($\vartheta_{1/2} = 4,3 \cdot 10^{-4}$) gerade umgekehrt ist. Dieser Sachverhalt erklärt sich damit, daß von der Intensität des 17 eV-Verlustes wegen ihres relativ langsamen Winkelabfalles bei Verschlechterung des Winkelauflösungsvermögens ein größerer Anteil noch zusätzlich registriert wird als von der Intensität des 5 eV-Verlustes mit ihrem sehr schnellen Winkelabfall.

Bemerkung zur absoluten Intensität. Das Experiment zeigt, daß bei dem verwendeten Winkelauflösungsvermögen die Intensität des 5 eV-Verlustes bei $\vartheta = 0$ an dünnen Schichten (~ 70 Å) ungefähr $2,5 \cdot 10^{-3}$ und an dickeren Schichten (200 bis 300 Å) etwa $5 \cdot 10^{-3}$ der „elastischen Intensität“ beträgt. Bei der Auswertung von (6) mit (3) erhält man

* Das Maximum des 5 eV-Verlustes verschiebt sich im Winkel zu höheren Energien, eine Erscheinung, die auch bei den niedrigen Energieverlusten von Aluminium und Silber beobachtet wurde⁵.

dagegen den Wert $2,2 \cdot 10^{-2}$, wenn man berücksichtigt, daß beide Folienoberflächen beitragen, und wenn man zunächst $\varepsilon = 1$ setzt. Die Abweichung des gemessenen vom berechneten Wert ist also bei dickeren Schichten geringer, was man damit erklären kann, daß erst bei diesen Schichtdicken eine Annäherung an die von der Theorie vorausgesetzten Verhältnisse eintritt (vgl. Fußnote S. 517). — Der Wert von ε , der Dielektrizitätskonstanten der Oberflächenbedeckung, beeinflusst die berechnete Intensität. Würde man die Theorie der Oberflächenplasmaanregung auch auf die energetische Lage des 5 eV-Verlustes anwenden (da er ja spezifische Eigenschaften eines Oberflächenverlustes zeigt), so müßte man nach (1) für $\varepsilon \approx 11$ setzen, wodurch nach (3) die berechnete Intensität um den Faktor 6 kleiner und damit dem experimentellen Ergebnis näher kommen würde. Die vorliegenden Messungen ermöglichen jedoch keine genaue Angabe von ε .

Die gleichen Experimente wie an Silizium wurden auch an Germanium durchgeführt. Dabei zeigte sich dasselbe Verhalten des 5 eV-Verlustes, und zwar sowohl in der Winkelabhängigkeit als auch in dem Absolutwert der Intensität.

Mit diesen Experimenten ist gezeigt worden, daß die Winkelabhängigkeit des 5 eV-Verlustes an Silizium und Germanium durch die für Oberflächenplasmaanregung angegebene Formel (3) richtig beschrieben wird.

6. Winkelverteilung bei nichtsenkrechter Inzidenz

Die durch die Messungen für die Intensität des 5 eV-Verlustes bestätigte Winkelverteilung (3) besitzt bei $\vartheta = 0$ eine Nullstelle. Da dies ein charakteristisches Merkmal für das Vorliegen von Oberflächenplasmaschwingungen ist, wäre es von großer Bedeutung für die experimentelle Bestätigung der Theorie, wenn bei $\vartheta = 0$ ein Minimum in der Intensität des 5 eV-Verlustes gefunden würde. Man erkennt aber in Fig. 9, daß das Minimum in der Verteilung (3) (gestrichelte Kurve) eine sehr geringe Winkelbreite besitzt, selbst wenn die Elektronenenergie auf 15 keV erniedrigt wird. Nach dem vorigen Abschnitt läßt sich die gemessene Intensitätsverteilung als Faltung von (3) mit der Auflösungsfunktion auffassen. In Fig. 9 sind die Auflösungsfunktion (punktierte Kurve)

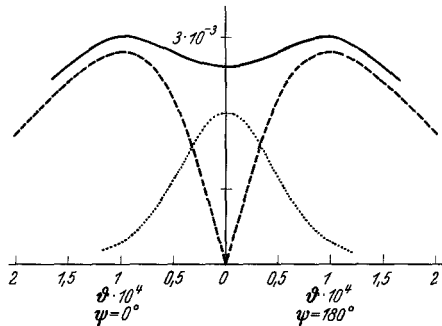


Fig. 9. Berechnung der Winkelverteilung in sehr kleinen Streuwinkeln. Die Verteilung (3) mit $E_0 = 15$ keV (gestrichelt) wird mit der Auflösungsfunktion (punktiert) gefaltet und ergibt die berechnete Winkelverteilung (ausgezogen). Das Minimum in (3) bei $\vartheta = 0$ bewirkt nur eine schwache Einsattelung

beim besten erreichbaren Winkelauflösungsvermögen von $1 \cdot 10^{-4}$ rad und das Ergebnis der numerischen Faltungsintegration (ausgezogene Kurve) mit (3) eingezeichnet. [Dabei bezieht sich die Intensitätsangabe auf die ausgezogene Kurve, und es wurde in (3) $\varepsilon = 1$ gesetzt und berücksichtigt, daß zwei Folienoberflächen zur Intensität beitragen.] Man erkennt in Fig. 9, daß die Nullstelle in der Verteilung (3) bei der Messung mit endlichem apparativen Winkelauflösungsvermögen nur noch als schwaches Minimum auftritt. Wegen des Fehlers bei der Abtrennung des 5 eV-Verlustmaximums vom Kontinuum liegt die Ermittlung dieses Minimums unterhalb der Meßgenauigkeit; es konnte auch kein Absinken der Intensität bei $\vartheta = 0$ beobachtet werden.

Anders liegen die Verhältnisse, wenn man sich nicht wie bisher auf den Spezialfall der senkrechten Inzidenz beschränkt, sondern den Elektronenstrahl in einem Winkel α mit der Foliennormalen auf die Folie einfallen läßt. Dann verschiebt sich die Nullstelle in (3) von $\vartheta = 0$ zu dem Winkel $\vartheta = \vartheta_E \cdot \operatorname{tg} \alpha$. Dies führt dazu, daß die Intensitätsverteilung unsymmetrisch gegenüber $\vartheta = 0$ wird. Nach der Theorie² ist für nicht-senkrechte Inzidenz der Wirkungsquerschnitt (3) noch mit dem Faktor f zu multiplizieren, der durch

$$f^2 = \frac{1 + (\vartheta_E/\vartheta)^2}{\cos^2 \alpha} - \left(\operatorname{tg} \alpha \cos \psi + \frac{\vartheta_E}{\vartheta} \right)^2 \quad (7)$$

gegeben ist. Dabei bedeutet ψ das Azimut in der Beobachtungsebene, dessen Anfangspunkt dadurch festgelegt ist, daß die Foliennormale das Azimut $\psi = 180^\circ$ besitzt.

Dieses unsymmetrische Verhalten der Oberflächen-Energieverluste bei nichtsenkrechter Inzidenz läßt sich folgendermaßen anschaulich deuten (vgl. Fig. 10): Im Gegensatz zu den Volumenplasmaschwingungen ist für die Anregung von Oberflächenplasmaschwingungen nicht der gesamte bei der unelastischen Streuung übertragene Impuls $\Delta K = K_0 - K$, sondern nur dessen Komponente K_{\parallel} in Richtung der Folienebene wesentlich. Insbesondere ist die Anregungswahrscheinlichkeit Null, wenn $K_{\parallel} = 0$ ist, also wenn die Richtung des übertragenen Impulses mit der Foliennormalen zusammenfällt. Dann liegt also die Nullstelle der Energieverlust-Intensität in der Richtung von K . Dagegen ist die Intensität im gleichen Streuwinkel ϑ aber in entgegengesetzter Richtung K' ungleich Null, weil der übertragene Impuls $\Delta K'$ dann eine nichtverschwindende Komponente K'_{\parallel} in der Folienebene besitzt. Das Auftreten einer Unsymmetrie läßt also den direkten Schluß auf die Existenz von Oberflächenanregungen zu.

Experimente am 5 eV-Verlust an Silizium und Germanium mit einem Winkelauflösungsvermögen von $1 \cdot 10^{-4}$ rad zeigten erstmalig eine solche Unsymmetrie⁴. Der Einfallswinkel betrug $\alpha = 45^\circ$, und es wurden mit einer Elektronenenergie von 15 keV zu beiden Seiten des Primärstrahles

bei $\psi = 0$ und $\psi = 180^\circ$ Energiespektren ermittelt. In Fig. 11 sind zwei Energiespektren in gleichem Winkelabstand $\vartheta = 1,4 \cdot 10^{-4}$ vom Maximum der „elastischen Intensität“ dargestellt, die an einer etwa 100 \AA dicken

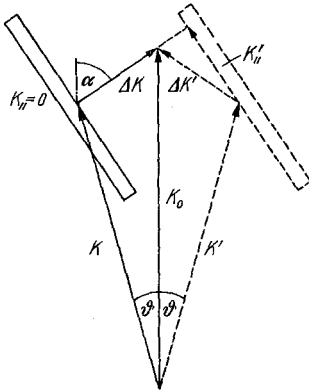


Fig. 10

Fig. 10. Zur Unsymmetrie in der Intensitätsverteilung bei Anregung von Oberflächenplasmaschwingungen durch einen nicht senkrecht auf die Folie treffenden Elektronenstrahl. Vgl. Text

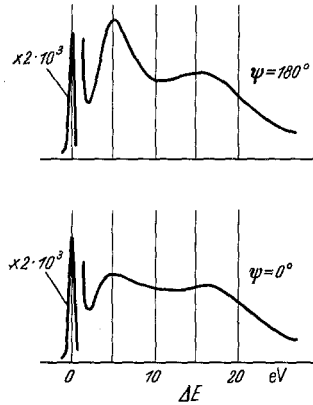


Fig. 11

Fig. 11. Energieverlustspektren bei nichtsenkrechtem Einfall ($\alpha = 45^\circ$) auf eine 100 \AA dicke Siliziumfolie in gleichem Streuwinkel $\vartheta = 1,4 \cdot 10^{-4}$ aber verschiedenem Azimut ψ . Der Intensitätsmaßstab ist in beiden Spektren der gleiche

Siliziumfolie aufgenommen wurden. Man sieht, daß bei $\psi = 180^\circ$ der 5 eV -Verlust eine wesentlich größere Intensität zeigt als bei $\psi = 0$, während sowohl die „elastische“ als auch die Intensität des breiten Verlustkontinuums bei etwa 17 eV in beiden Fällen gleich sind. Die beiden Spektren stellen eine Mittelung über jeweils vier Meßkurven dar, bei deren Aufnahme die einfallende Intensität konstant gehalten und der ϑ -Nullpunkt zwischen die Halbwerte der „elastischen Intensität“ gelegt wurde.

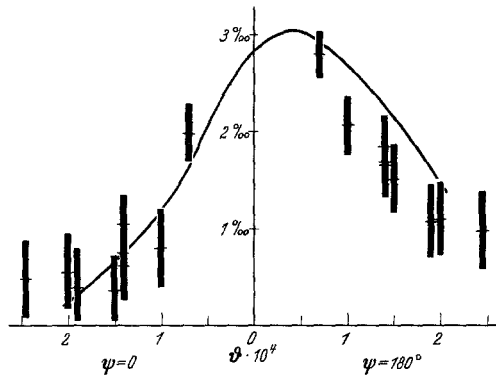


Fig. 12. Messung der Winkelverteilung an Silizium und Germanium bei nichtsenkrechter Inzidenz ($\alpha = 45^\circ$). Die Meßpunkte, mit Fehlerangaben, stellen die Intensitäten des 5 eV -Verlustes dar, bezogen auf die „elastische Intensität“ bei $\vartheta = 0$. Die eingezeichnete Kurve wurde durch Faltung berechnet (vgl. Fig. 13) und an die Meßpunkte angepaßt

Entsprechende Messungen wurden an drei Silizium- und zwei Germaniumfolien, ebenfalls in Schichtdicken um 100 \AA , durchgeführt. In Fig. 12 sind die Meßwerte eingetragen, d.h. die vom Kontinuum abgetrennten Flächen unter dem 5 eV -Maximum, bezogen auf die Fläche unter dem

0 eV-Maximum bei $\vartheta = 0$ („elastische Intensität“, 1000⁰/₁₀₀). Die Meßpunkte beziehen sich sowohl auf Messungen an Silizium als auch an Germanium.

Man erkennt in Fig. 12 deutlich eine Unsymmetrie der Meßpunkte, die bei senkrechter Inzidenz nicht auftritt. Zum Vergleich mit der theoretischen Winkelverteilung (3) mit (7) ist es ebenso wie im vorigen Abschnitt nötig, das endliche apparative Winkelauflösungsvermögen zu berücksichtigen. Die gemessene Auflösungsfunktion ist in Fig. 13 punktiert eingezeichnet; die gestrichelte Kurve stellt die aus (3) mit (7) berechnete Verteilung für $\alpha = 45^\circ$ und $\psi = 0$ bzw. $\psi = 180^\circ$ dar. In den anderen Richtungen ψ tritt die Unsymmetrie weniger ausgeprägt auf, und sie verschwindet bei $\psi = \pm 90^\circ$ ganz. Die numerischen Integrationen

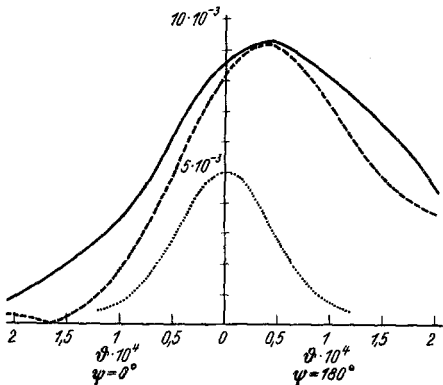


Fig. 13. Berechnung der Winkelverteilung bei $\alpha = 45^\circ$ (ausgezogen) durch Faltung der Verteilung (3) und (7), $E_0 = 15$ keV, (gestrichelt) mit der gemessenen Auflösungsfunktion (punktiert). Der Intensitätsmaßstab bezieht sich auf die ausgezogene Kurve, wobei $\varepsilon = 1$ und 2 Oberflächen angenommen wurden

werden durch das Fehlen der Rotationssymmetrie des differentiellen Wirkungsquerschnittes erschwert. Das Ergebnis von Faltungen, die nach Gl. (6) wie dort beschrieben, jedoch mit $\Delta\vartheta = 1 \times 10^{-5}$ und $\vartheta_0 = 4,2 \cdot 10^{-4}$, durchgeführt wurden, ist in Fig. 13 als ausgezogene Kurve dargestellt. Sie bedeutet also die mit der vorliegenden Auflösungsfunktion bei $\alpha = 45^\circ$ und $E_0 = 15$ keV zu erwartende Intensitätsverteilung für den 5 eV-Verlust; dabei wurde in (3) $\varepsilon = 1$ gesetzt und berücksichtigt, daß zwei Oberflächen beitragen.

Die ausgezogene Kurve in Fig. 13 ist in Fig. 12 mit den Meßpunkten zusammengezeichnet. Zur Anpassung wurde $\varepsilon = 5$ gesetzt.

Man erkennt, daß die am 5 eV-Verlust beobachtete unsymmetrische Winkelverteilung bei nichtsenkrechter Inzidenz — im Rahmen der Meßgenauigkeit — bei geeigneter Anpassung mit der berechneten Verteilung übereinstimmt. Mit diesem Ergebnis dürfte wohl gezeigt sein, daß es sich beim 5 eV-Verlust an Silizium und Germanium um einen Oberflächenplasmaverlust im Sinne der theoretischen Vorstellungen handelt. Darüberhinaus ist damit ein weiteres allgemeines Kriterium für die Identifizierung eines charakteristischen Energieverlustes als Oberflächenverlust aufgezeigt.

Herrn Professor Dr. H. RAETHER möchte ich für die Förderung und für eingehende Diskussionen danken, Herrn Dipl.-Phys. C. KUNZ für Hinweise und Unterstützung. Mehrere Meßgeräte wurden von der Deutschen Forschungsgemeinschaft zur Verfügung gestellt.