



BMBWF - Förderschwerpunkt

## Erforschung der kondensierten Materie

Großgeräte der physikalischen  
Grundlagenforschung

### **Nutzung der Rossendorfer Beschleuniger für ionenstrahlphysikalische Verbundforschungsexperimente**

Zuwendungsempfänger:	<b>Forschungszentrum Rossendorf e.V.</b>
Projektleitung:	<b>Möller</b>
Förderkennzeichen:	03 MO5ROS/2
Förderzeitraum:	01.04.98 - 31.03.01
Zuwendung:	140.638 €[275.063 DM]
E-Mail:	w.moeller@fz-rossendorf.de
Projektträger:	PTJ

### **Genutzte Großgeräte:**

FZR - Beschleuniger

### **Angaben zum Projekt:**

Veröffentlichungen:	41
Konferenzbeiträge:	19
Diplomarbeiten:	3
Dissertationen:	6
Habilitationen:	0
Patente:	0

## **Schlussbericht - Kurzfassung**

Der Schwerpunkt der Arbeiten im Vorhaben lag auf der ionenstrahlanalytischen Charakterisierung von unterschiedlichsten Materialien. Die enorme thematische Breite der Nutzung der Rossendorfer Beschleuniger durch Gastgruppen reicht dabei von musealem Kunst- und Kulturgut bis hin zu ultradünnen epitaktischen Schichten. An Hand einiger Beispiele werden spezielle Probleme und Ergebnisse im Bericht ausführlicher erläutert. Angefügt ist eine Liste von Publikationen, in denen die Ergebnisse publiziert worden sind. Eine wichtige methodische Verbesserung war die Entwicklung und Inbetriebnahme eines Magnetspektrometers für die hochauflösende Teilchenspektrometrie, das höchste Tiefenauflösung bis herab zu einer atomaren Monolage ermöglicht. Die Publikation ist Teil dieses Berichtes.

# Schlussbericht

**Zuwendungsempfänger:** Forschungszentrum Rossendorf

**Projektleitung:** Prof. Dr. W. Möller

Nutzung der Rossendorfer Beschleuniger für ionenstrahlphysikalische Verbundforschungsexperimente

## Vorbemerkungen

Die Förderung im Rahmen dieses Vorhabens hatte das Ziel, Forschergruppen von deutschen Hochschulen und Universitäten sowie außeruniversitären Forschungseinrichtungen, die über keine eigenen Beschleuniger verfügen, die Nutzung der im Forschungszentrum Rossendorf betriebenen Teilchenbeschleuniger zu ermöglichen und sowohl wissenschaftlich-methodische als auch organisatorisch-logistische Unterstützung zu gewähren.

Die Nutzung der Anlagen erfolgte im Vorhaben fast ausschließlich für die Ionenstrahlanalytik, die Möglichkeiten der Ionenimplantation wurden sehr wenig in Anspruch genommen, so dass im folgenden nur über Ergebnisse der Ionenstrahlanalytischen Arbeiten berichtet wird.

An den Rossendorfer Beschleunigern sind für die Ionenstrahlanalytik mehr als 10 Experimentierplätze installiert, an denen praktisch alle Methoden der Ionenstrahlanalytischen Festkörpercharakterisierung zur Verfügung stehen. Standardmethoden wie Rutherford – Rückstreuungsspektrometrie (RBS) /channeling, teilcheninduzierter Röntgenemissionsspektrometrie (PIXE) und der Kernreaktionsanalytik (NRA) sind selbstverständlich vorhanden.

Daneben gibt es eine Reihe von Methoden, die anspruchsvoller sind und deshalb weltweit nicht an vielen Beschleunigern genutzt werden. Dazu zählen insbesondere die Schwerionen-Rückstoßatomspektrometrie (ERDA) mit Mehrparameter-Spektrometern zur Teilchenunterscheidung, die die Tiefenprofile aller leichten Elemente liefern kann, der Ionenmikrostahl und die Beschleuniger-Massenspektrometrie (AMS).

Schließlich sind auch experimentelle Einrichtungen verfügbar, die heute den Höchststand in der Welt bestimmen. Dazu zählen der externe Protonenstrahl, der mit einer Kombination von PIXE, PIGE und RBS i.w. zur Analytik von Kunstgut eingesetzt wird, zwei Magnetspektrometer für die höchstauflösende Teilchenspektrometrie und die in-situ ERDA, die transiente Prozesse nahe der Oberfläche von Festkörpern mit einer Zeitauflösung im Sekundenbereich erfassen kann.

Zur Ionenimplantation und weiteren Methoden der Ionenstrahlmodifikationen von Materialien verfügt das Institut über eine Reihe von Anlagen, die den Energiebereich von einigen 100 eV bis zu einigen zehn MeV abdecken.

All diese Einrichtungen stehen prinzipiell für Arbeiten von Gastwissenschaftlern zur Verfügung, wobei in Abhängigkeit von der Kompliziertheit der Meßaufgabe bei der Vorbereitung und bei der Durchführung der Experimente mehr oder weniger auf personelle Unterstützung durch Mitarbeiter des FZR zurückgegriffen werden muß.

Durch die Förderung in diesem Vorhaben war es möglich, einer großen Zahl von Forschungsgruppen die Möglichkeit der Nutzung der Rossendorfer Beschleuniger für eine Vielfalt von Arbeiten zu bieten.

Die thematische Spannweite dieser Arbeiten ist dabei so groß, daß es unmöglich ist, im Rahmen eines solchen Berichtes die erzielten Ergebnisse zusammenfassend darzustellen. Einige der erzielten Ergebnisse werden im folgenden kurz vorgestellt, wobei die enorme thematische Breite sichtbar wird.

Die unten aufgeführten Publikationen stellen deshalb eine Auswahl dar, wobei die Ergebnisse der Ionenstrahlanalytik sehr unterschiedliches Gewicht haben.

## 1. Teilchenspektrometrie mit höchster Auflösung

Die Ionenstrahlanalytischen Methoden RBS, ERDA und NRA gehören zu den Standard-Verfahren der Dünnschichtcharakterisierung. Sie liefern standardfrei und einfach quantifizierbar die Tiefenverteilung der chem. Elemente oder Isotope aus der Spektrometrie der Sekundärteilchen, wobei die erreichbare Tiefenauflösung unmittelbar von der Energieauflösung der Teilchenspektrometer abhängt. Mit dem zunehmenden Interesse an ultradünnen Funktionsschichten und Stapeln davon, typisch für z.B. die Entwicklung von elektronischen Schaltkreisen oder Röntgenoptiken, steigen die Anforderungen an die Tiefenauflösung und damit an die Energieauflösung der Detektoren. Es werden Spektrometer benötigt, die eine relative Energieauflösung von ca.  $10^{-3}$  auch für Schwerionen im unteren MeV-Energiebereich haben und damit Tiefenauflösungen von 1 Monolage ermöglichen. Mit den üblicherweise eingesetzten Halbleiterdetektoren lassen sich diese Werte bei weitem nicht erreichen und man muß Magnetspektrometer oder elektrostatische Energieanalysatoren einsetzen.

Wir haben deshalb zwei Magnetspektrometer installiert.

1.1 Für RBS und NRA wurde ein Magnetspektrometer vom Browne-Buechner-Typ entwickelt und am Tandetron-Beschleuniger aufgebaut, das Tiefenauflösungen im Bereich einer Monolage liefert.

Eine detaillierte Beschreibung dieses Gerätes ist in der Zeitschrift Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 183 (2001) 3-9, erschienen. Sonderdrucke dieser Arbeit sind dem Bericht beigelegt und Teil desselben.

1.2 Ein zweites Magnetspektrometer konnte vom FZ Karlsruhe erworben werden und ist nach größeren Modifikationen am 5-MV Tandem installiert.

Diese Anlage wurde von uns im Juli 2001 auf der 15. Internationalen Konferenz über Ionenstrahlanalytik in Cairns/Australien vorgestellt, der veröffentlichte Abstract ist nachfolgend aufgeführt.

A MAGNETIC SPECTROMETER FOR HIGH RESOLUTION ION BEAM ANALYSIS AND TRANSMISSION EXPERIMENTS AT THE ROSSENDORF 5 MV TANDEM ACCELERATOR.

R. Grötzschel<sup>(a)</sup>, U. Kreissig<sup>(a)</sup>, Ch. Klein<sup>(a)</sup>, M. Mäder<sup>(a)</sup>, T. Wang<sup>(a,b)</sup>

A magnetic spectrometer, developed by Gils et al. for nuclear reaction analysis was reconstructed and installed at the Rossendorf 5 MV Tandem accelerator. This instrument can be used both for materials analysis (RBS, ERDA, NRA) with high depth resolution and for ion-solid-interaction studies. The spectrometer consists of two quadrupoles, one  $60^\circ$  dipole with a mean orbit radius of 1.5 m and one sextupole, providing a particle rigidity of 2.5 Tm. This QQDS configuration allows a variable dispersion when placing the focal plane detector at different position behind the magnets. The maximum focal plane length of 0.5 m corresponds to relative energy ranges  $E_{min}/E_{max}$  of 0.65 near the magnets and 0.81 at the most distant position. The calculated values of the energy resolution  $dE/E$  at these positions amount to  $7 \cdot 10^{-4}$  and  $3.8 \cdot 10^{-4}$ . The spectrometer can be rotated around the axis of the UHV scattering chamber and connected to ports at fixed angles of  $0^\circ$ ,  $15^\circ$ ,  $30^\circ$ ,  $45^\circ$ , and  $60^\circ$ , respectively. Channeling measurements can be accomplished using either a universal five-axes UHV goniometer or a two-axes goniometer with a virtual tilt axis, which allows sample cooling down to 25 K or electron beam heating above 2000 K with different heads.

This magnetic spectrometer is described in detail and the first results obtained with a silicon PSD and a one-dimensional position sensitive ionisation chamber telescope as focal plane detectors are discussed.

## 2. Zerstörungsfreie Elementanalytik von Kunstwerken und Kulturgut

Die Möglichkeiten, die der externe Protonenstrahl am 5 MV –Tandem für die Elementanalytik an musealen Objekten bietet, wurde sehr umfangreich von Museen und Bildungseinrichtungen im künstlerisch-restauratorischen Bereich genutzt (. S. Nutzerliste ).

Als ein repräsentatives Beispiel dafür wird hier die materialtechnische Untersuchung von 3 historischen Glasbechern näher erläutert, die von Mitarbeitern des Kunstmuseums Düsseldorf gemeinsam mit Rossendorfer Kollegen durchgeführt worden sind.

### 2.1 Einführung / Methodik

Für die zerstörungsfreie Charakterisierung werden drei Methoden der Ionenstrahlanalyse in einer simultanen Messung kombiniert. Die Verwendung des externen, an Luft ausgeführten Protonenstrahles ermöglicht die Untersuchung intakter Objekte ohne Probennahme. Mit PIXE (Protoneninduzierte Röntgenemission) können alle chemischen Elemente schwerer als Aluminium analysiert werden. Durch PIGE (Protoneninduzierte Gamma-strahlen-Emission) werden zusätzlich einige Elemente kleinerer Ordnungszahl (Bor, Natrium, Magnesium, Aluminium, Silizium) nachweisbar. Aussagen über den Schichtaufbau an der Oberfläche liefert RBS (Rutherford-Rückstreuung). Mit einer speziellen Auswerteprozedur werden Schichten auf der Glasoberfläche identifiziert, deren Zusammensetzung sich vom Grundglas unterscheidet. Derartige Schichten entstehen z. B. bei der Glaskorrosion durch Auslaugung von Netzwerkwandlern. Im Falle dünner Korrosionsschichten auf Kali-Kalk-Silikatgläsern kann die Zusammensetzung des Grundglases aus den Messergebnissen ermittelt werden. Die entwickelte Prozedur ermöglicht eine zerstörungsfreie Charakterisierung der Korrosion im Anfangszustand. Es können die Glasobjekte bestimmt werden, die aufgrund ihrer Zusammensetzung sehr empfindlich für Korrosionsprozesse sind. Resultat können dann Empfehlungen für die Aufbewahrung entsprechend sensitiver Glasobjekte unter besonderen konservatorischen Bedingungen sein.

Für die Analyse von Farbschichten auf dem Glas sind die Ionenstrahlmethoden ebenfalls geeignet. Der Nachweis der farbgebenden Komponenten ermöglicht die Identifizierung der verwendeten Pigmente. Die Chronologie ihrer Verwendung gibt Hinweise auf die zeitliche Einordnung der Glasmalerei.

Aus der Zusammensetzung historischer Gläser und der Glasmalfarben ergeben sich wertvolle Hinweise zur Herstellung und Herkunft der einzelnen Objekte und zur Entwicklung der Glastechnologie allgemein.

### 2.2 Objekte der Untersuchung:

Drei historische Glasobjekte aus dem Kunstmuseum Düsseldorf / Glasmuseum Henrich:

1. Warzenbecher  
15. Jh. (?), Inv.-Nr.: P 1940-51
2. Becher mit achtseitiger Mündung, enge optische Rippung  
15. Jh., Höhe 7 cm, Inv.-Nr.: p 1936-10
3. Stangenglas mit Nuppen  
19. Jh. (?), Inv.-Nr: P.I.A. 255

### 2.3 Problem / Fragestellung

- Beurteilung des Korrosionszustandes der Objekte, ggf. Nachweis von Oberflächenschichten
- Bestimmung der chemischen Zusammensetzung des Grundglases
- Einschätzung der chemischen Beständigkeit aufgrund der Zusammensetzung
- Zuordnung der Objekte zu bekannten Glastypen und Versuch einer zeitlichen Einordnung

## 2.5 Ergebnisse

Für jedes der drei Objekte wurde gefunden, dass die an verschiedenen Positionen gemessenen Spektren (einer Nachweismethode) innerhalb statistischer Fehlergrenzen identisch sind. Das bedeutet, dass die Zusammensetzung der Gläser lateral homogen ist.

Die Messspektren liefern bei keinem der drei Objekte einen Hinweis auf eine Oberflächenschicht. Die Schichtdicke einer hydratisierten Schicht (Gelschicht) auf der Glasoberfläche der drei Objekte ist damit kleiner als 200 – 300 nm (0,2 – 0,3 µm).

Tab. 1 gibt die Konzentrationen der Hauptbestandteile (Netzwerkbildner und –wandler) wieder. Nebenelemente und Spurenelemente wurden qualitativ bestimmt.

Tab. 1: Konzentration der Hauptkomponenten der drei Glasobjekte (alle Angaben in gew%). Zusätzlich werden die charakteristischen Verhältnisse von Kalium- zum Kalziumoxid und zum Phosphoroxid angegeben.

	Warzenbecher	8-Seiten-Becher	Stangenglas
Na <sub>2</sub> O	3,80	1,86	16,96
SiO <sub>2</sub>	64,13	54,78	67,68
K <sub>2</sub> O	13,80	7,35	6,12
CaO	13,08	21,39	4,25
K <sub>2</sub> O/CaO	1,06	0,34	1,44
K <sub>2</sub> O/P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	76,67	3,60	-

## 2.6 Diskussion

Tabelle 1 zeigt die großen Unterschiede zwischen den Gläsern sowohl im SiO<sub>2</sub>-Gehalt als auch in den Anteilen an Netzwerkwandlern Na<sub>2</sub>O, K<sub>2</sub>O, CaO.

Der SiO<sub>2</sub>-Gehalt im 8-Seiten-Becher ist mit ca. 55 gew% deutlich unter der Grenze von 66 gew% für chemisch beständige Gläser. Die Korrosionsbeständigkeit (s.o.) wurde hier durch Zugabe einer großen Kalkmenge zur Schmelze erreicht.

Der Na<sub>2</sub>O-Gehalt ist im Warzenbecher und im 8-Seiten-Becher sehr gering und ist sicher durch die verwendete Asche in das Glas gekommen. Der hohe Anteil im Stangenglas deutet auf die Verwendung von Soda hin.

Warzenbecher und 8-Seiten-Becher gehören zur Gruppe der Holz-asche-Gläser. Während das Verhältnis von Kalium- und Kalziumoxid im Warzenbecher nahezu eins ist, wurde für die Herstellung des 8-Seiten-Bechers eine geringere Menge Asche und wesentlich mehr Kalk verwendet. Nach Müller gehört der Warzenbecher zu den Holz-asche-Gläsern vom Typ 1, der 8-Seiten-Becher ist den Holz-asche-Kalk-Gläsern vom Typ 2 zuzuordnen. Das Stangenglas gehört zur Gruppe der Soda-Aschegläser.

- 1a Römisches Soda-Kalkglas
- 1b Frühmittelalterl. Soda-Kalkglas
- 2 Spätmittelalterl. Soda-Ascheglas
- 3 Frühmittelalterl. Holzascheglas
- 4 Hoch-spätmittelalt. Holzascheglas
- 5 Frühes mittelalt. Holzasche-Kalkglas
- 6 Spätmittelalterl. Holzasche-Kalkglas

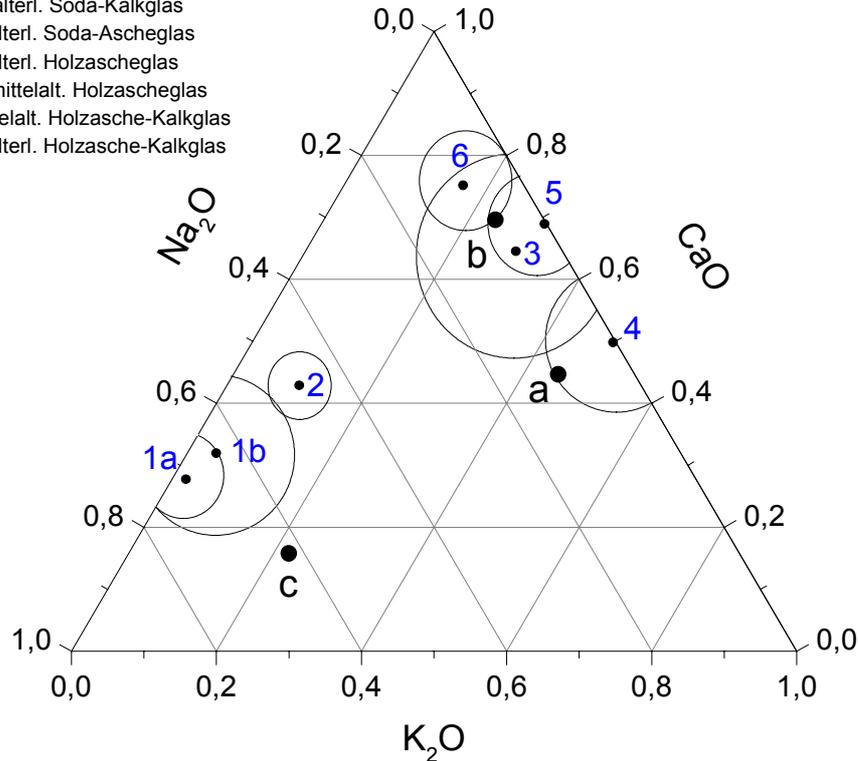


Abb. 1: Mittlere Gehalte an  $\text{Na}_2\text{O}$ ,  $\text{K}_2\text{O}$ ,  $\text{CaO}$  (normiert auf 100%) häufiger antiker und mittelalterlicher Glastypen [2]. Die Kreise geben den Variationsbereich der Gehalte in den einzelnen Gruppen an. Zusätzlich sind die Werte für die drei untersuchten Glasobjekte eingetragen (fette Punkte): a – Warzenbecher, b – 8-Seiten-Becher, c – Stangenglas.

Die von Wedepohl eingeführte Darstellung der Glasbestandteile  $\text{Na}_2\text{O}$ ,  $\text{K}_2\text{O}$ ,  $\text{CaO}$  ermöglicht eine Zuordnung der drei Glasobjekte. Dabei wird die Summe der drei Komponenten auf 100% normiert. Abb. 1 zeigt die mittleren Gehalte häufiger antiker und mittelalterlicher Glastypen (kleine Punkte). Die Kreise um die Mittelwerte der einzelnen Glasbefunde geben den Variationsbereich der Einzelwerte an. Deutlich unterscheiden sich die Gruppen der Soda-Gläser (1a, 1b, 2) von den Holzasche-Gläsern (3, 4, 5, 6). Die Abbildung zeigt, dass der Warzenbecher am ehesten der Gruppe der hoch-spätmittelalterlichen Holzaschegläser zuzuordnen ist. Der 8-Seiten-Becher ist nach dieser Einteilung ein frühmittelalterliches Holzascheglas oder Holzasche-Kalkglas. Auch in dieser Darstellung wird die besondere Stellung des Stangenglases deutlich. Mit dem hohen Soda-Anteil gehört es offensichtlich nicht zur Gruppe der Holzasche-Gläser. Es unterscheidet sich aber in der Zusammensetzung auch deutlich von den römischen oder frühmittelalterlichen Soda-Kalkgläsern.

### 3. Epitaktische Schichten von Siliziden von Übergangsmetallen

Die Gruppe von Prof. Hinneberg von der TU Chemnitz hat im Berichtszeitraum sehr intensiv RBS/channeling am 2 MV van de Graaff-Beschleuniger genutzt, um atomaren Transport und Phasenbildung in dünnen Metall-Silizium-Schichtstrukturen zu studieren. RBS liefert über die Tiefenprofile der interessierenden Elemente die Stöchiometrie der Schichten und damit indirekt die vorliegende Phase. Channeling bringt zudem Informationen über den Grad

bzw. die Güte der Einkristallinität der Schichten nach der Deposition bzw. nach notwendigen Temperschritten.

Für die Präparation der verschiedenen Silicidschichten wurden sehr unterschiedliche Verfahren wie reaktive Abscheidung der Metallschicht auf dem Siliciumsubstrat bei erhöhter Temperatur, Co- bzw sequenzielle Abscheidung von Metall und Silicium sowie die Allotaxie eingesetzt.

Für die quantitative Analyse der Zusammensetzung von Schichten (a), für die Untersuchung von Reaktionsabläufen (b) durch Temperprozesse bzw. des Schichtabtrages durch Plasmaätzprozesse oder auch für die Untersuchung der kristallinen Qualität (b) der präparierten Schichten waren RBS-Messungen unverzichtbar.

Ein für die Präparation von Silicidschichten neues Gebiet ist der Einsatz von Surfactens (c), wo mittels RBS-Untersuchungen ebenfalls wesentliche Fragen beantwortet werden konnten.

a) Das Verfahren der Allotaxie wird zur Herstellung von vergrabenen  $\text{NiSi}_2$ -Schichten verwendet. Maßgeblich für den Erfolg dieser Schichtpräparationsmethode ist die Ausgangsverteilung von  $\text{NiSi}_2$ -Präzipitaten in der Si-Matrix. Die wenig aufwendigen RBS-Messungen gaben Aufschluss über die Tiefenverteilung der Elemente und somit Hinweise auf bereits stattgefundenen Materialtransport während der Reaktion. Die Allotaxie ist ein Verfahren mit einer großen Anzahl von Verfahrensparametern, wodurch für eine erfolgreiche Probenpräparation und Prozessoptimierung eine sehr große Zahl von Analysen zwingend notwendig ist. Aufgrund der einfachen physikalischen Grundlagen und der daraus folgenden einfachen Datenauswertung ist die RBS für derartige Messaufgaben die Methodik der Wahl.

b) Zur Herstellung von epitaktischen Silicidschichten auf Si(100) unter HV- bzw. UHV/MBE-Bedingungen wird ein Metalldoppelschichtverfahren eingesetzt, wobei das eine Metall das silicidbildende Metall ist und das andere Metall in Verbindung mit Silicium eine Reaktionsbarriere für die Silicidreaktion ausbildet. Wesentlich für eine erfolgreiche Präparation ist die genaue Kenntnis der ablaufenden Reaktionsprozesse, die insbesondere durch die Diffusion der Metalle und des Siliciums bestimmt wird. Eine Analyse der Abhängigkeit der Elementverteilung in der Probe von den Temperbedingungen ist wesentliche Voraussetzung für die Aufstellung eines Reaktionsmodells und der Optimierung der Reaktionsparameter und damit der Schichtqualität. Die benötigten Informationen konnten durch RBS-Messungen gewonnen werden. Die Kombination mit Channeling-Messungen lieferte darüber hinaus Aussagen über die Einkristall-Qualität der Schichten.

c) Durch den Einsatz von Surfactens kann, wie die Untersuchungen am System Si-Ge gezeigt haben, das Schichtwachstum wesentlich beeinflusst werden. Im Falle des Einsatzes von Surfactens (Sb) zur Steuerung des Wachstums von Silicidschichten mussten zunächst solche wesentlichen Fragestellungen geklärt werden wie: Wird das Antimon in das Silicid eingebaut, wenn ja wie viel? Wie dick darf die Sb-Schicht sein? Bleibt die Sb-Schichtdicke erhalten? Wo befindet sich das Sb nach der Silidreaktion?

Auch zu diesem Problem wurde RBS intensiv genutzt, da auf Grund der hohen Atommasse von Antimon die Nachweisempfindlichkeit so hoch ist, dass noch bei integralen Sb – Flächendichten  $< 10^{14}/\text{cm}^2$  (ca. 0,1 Monolage) Tiefenverteilungen gemessen werden konnten.

#### **4. Wasserstofftransport in keramischen Hochtemperatur-Protonenleiterschichten**

Das Interesse an Hochtemperatur-Protonenleitern hat in den letzten Jahren stark zugenommen, da sich diese für viele elektrochemische Anwendungen eignen. Zu nennen sind insbesondere die Hochtemperatur-Brennstoffzellen und Wasserdampfelektrolysezellen, aber auch Wasserstoff- und Feuchtigkeitssensoren.

Die Arbeitsgruppe von Prof. R. Hempelmann am Institut für Physikalische Chemie der Universität des Saarlandes, Saarbrücken untersucht dafür intensiv verschiedene Perowskitverbindungen, zunächst  $\text{SrCeO}_3$  und  $\text{SrZrO}_3$ . Diese Verbindungen selbst zeigen auch oberhalb von  $600^\circ\text{C}$  nur eine geringe Protonenleitfähigkeit, jedoch wird diese durch aliovalente Dotierung mit Lanthanoid- oder d-Element-Kationen deutlich gesteigert. Der Ersatz von  $\text{Ce}^{4+}$  bzw.  $\text{Zr}^{4+}$  durch dreiwertige Kationen führt wegen der Wahrung der Ladungsneutralität zur Bildung von Sauerstofflücken. Behandelt man so dotierte Verbindungen mit Wasserdampf, so besetzt das Oxidion des Wassermoleküls diese Fehlstelle, während die beiden Wasserstoffionen interstitielle Plätze einnehmen.

Desweiteren wurden perowskitische Protonenleiter der allgemeinen Zusammensetzung  $\text{A}_2\text{B}'\text{B}''\text{O}_6$  bzw.  $\text{A}_3\text{B}'\text{B}''\text{O}_9$  untersucht. In beiden Stöchiometrien ist A ein zweiwertiges ( $\text{Sr}^{2+}$ ,  $\text{Ba}^{2+}$ ) und  $\text{B}''$  ein fünfwertiges Ion. In der ersten Formel bezeichnet  $\text{B}'$  ein dreiwertiges, in der zweiten ein zweiwertiges Ion. Auch deren Protonenleitfähigkeit beruht auf der Beladung mit Wasserdampf nach Erzeugung von Sauerstofflücken. Hier werden die Fehlstellen allerdings durch gezieltes Einstellen von "falschen" Stöchiometrien (z. B.  $\text{A}_3\text{B}'_{1-x}\text{B}''_{1-x}\text{O}_9$ ) erzeugt.

Während der Laufzeit dieses Vorhabens wurde von der Gruppe um Prof. Hempelmann speziell die Protonenleiter  $\text{SrYb}_{0.05}\text{Zr}_{0.95}\text{O}_{2.925}$ ,  $\text{Ba}_2\text{YSnO}_{5.5}$ ,  $\text{BaZr}_{0.85}\text{Y}_{0.15}\text{O}_{2.925}$  und  $\text{Ba}_3\text{Ca}_{1.18}\text{Nb}_{1.82}\text{O}_{8.73}$  untersucht.

Dünne Filme dieser Protonenleiter wurden mittels Sol-gel Prozeß auf Siliziumwafer präpariert, wobei durch wiederholte Tauchbeschichtung Schichtdicken bis zu  $1,5\ \mu\text{m}$  erreicht werden konnten ( $100\ \text{nm}$  Schichtdickenzuwachs je Beschichtungsschritt).

Weiterhin wurden mikro- und nanokristalline Pulver, mit Teilchengrößen zwischen  $8\ \text{nm}$  und  $20\ \text{nm}$ , präpariert.

Die Wasserstoffbeladung erfolgte durch dissoziative Wasserabsorption bei –Temperaturen von  $600 - 800\ ^\circ\text{C}$  und definierten Werten von Wasserdampfdruck, der in einem weiten Bereich von  $5 \times 10^{-2}\ \text{mbar}$  bis  $845\ \text{mbar}$  variiert wurde.

Zur systematischen Untersuchung des Einflusses der variierenden Beladungsbedingungen wurden am Rossendorfer Tandembeschleuniger mittels der resonanten Kernreaktion  $^1\text{H}(^{15}\text{N},\alpha\gamma)^{12}\text{C}$  die Tiefenverteilungen der Wasserstoffkonzentration gemessen. Mit einem Zweizustandsmodell, basierend auf der Fermi-Dirac-Statistik, wurden die thermodynamischen Daten der Wasserdampfabsorption bestimmt. Durch impedanz-spektroskopische Messungen an gepressten und gesinterten mikrokristallinen Pulvern konnte die Bulkleitfähigkeit ermittelt werden und aus der Kombination der Leitfähigkeit, der absoluten Protonenkonzentration und den protonischen Transportzahlen wurden die Leitfähigkeits-Diffusionskoeffizienten des Bulkmaterials berechnet.

## 5. Nutzerliste

Die hier angefügte Nutzerliste (Tabelle 2) gibt einen Überblick, in welcher vielfältiger Weise die an den Rossendorfer Beschleunigern installierten Ionenstrahlanalytischen Techniken durch dt. Gäste im Berichtszeitraum vom 1.4.1998 bis zum 31.3.2001 genutzt wurde.

Die in der Tabelle angegebenen Meßzeiten sind jeweils 8h-Schichten, wobei die Umrüst- und Strahlbereitstellungszeiten eingeschlossen sind.

Nutzung der Rossendorfer Beschleuniger durch externe Gruppen im Zeitraum von 1.4.1998 – 31.03.2001

Meßplatz/ Instrument	Universität / Institut Lehrstuhl / Gruppe	Beteiligte Wissenschaftler / Doktoranden/Diplomanten	Meßzeit / (Schichten a 8 h)	Thematik Kurzbezeichnung
ERDA + NRRRA	TU Chemnitz, LS Prof. Richter	Ch.Späth, I.Dani, Weiß	32	Plasmadepon. Hartstoffschichten,
ERDA + NRRRA	IPP Garching, Prof. Dose	R.Behrlich	15	Ionenstrahlbed. Freisetzen von H
ERDA +NRRRA	Fern-Uni Hagen	W.R. Fahrner	10	Nano-Polishing von Stahloberflächen
ERDA + NRRRA	TU Dresden, Prof.Worch	D. Scharnweber, S. Rößler	19	TiO <sub>x</sub> Biokompatibilität
ERDA + NRRRA	Uni Hannover	B.Lenkeit	6	SiN <sub>x</sub> -Schichten
NRRRA	Uni Saarbrücken, Prof. Hempelmann	B.Groß, J.Engeldinger	36	Wasserstoff-Ionen-transport
NRRRA	TU Chemnitz, Prof., Geßner	U. Weiß	7	H in HfH <sub>x</sub>
RBS/channeling	TU Chemnitz, Prof. Hinneberg	G.Beddies, S.Teichert, Schwendler	53	Wachstum von Silizidschichten
RBS/channeling	HMI Berlin, Photovoltaik	K.Ellmer	8	div. Schichten für Photovoltaik
RBS/channeling	LMU München, LS Prof. Habs	W.Assmann	11	Strahlenschäden in div. Kristallen
RBS	IFW Dresden, AG Prof.Heinrich	U.Brüstel, H.Griessmann, B.Holzapfel	3	Oxid – und HTSL-Schichten
RBS	IFW Dresden	H.Mai	2	Multilayers für Röntgenspiegel

Meßplatz/ Instrument	Universität / Institut Lehrstuhl / Gruppe	Beteiligte Wissenschaftler / Doktoranden/Diplomanten	Meßzeit / (Schichten a 8 h)	Thematik Kurzbezeichnung
RBS	TU Dresden, LS Prof. Paufler	T. Belger	2	Ti- und V – Carbide
RBS	TU Dresden, LS Prof. Bartha	Ch. Wenzel	2	TaSiN-Dünnschichten
RBS	Uni Heidelberg, LS Prof. Wolf	D. Heyden	4	Plasma-abgeschiedene Schichten
NRRA + ERDA	IfH Frankfurt/O.	O.Krüger	3	H in Poly-Si
Kernmikrosonde	TU Dresden,	I.Haase	16	H-Versprödung
Kernmikrosonde	TU Dresden, IfWerkstoffw.	D. Scharnweber	2	P in Ti-Legierungen
Kernmikrosonde	Uni Leipzig, Prof. Butz	T.Reinert, U.Reibetanz	9	Spurenelemente in Knochen
Kernmikrosonde	MPI Heidelberg	A.Wallianos	7	Geologische min. Einschlüsse
Kernmikrosonde	Uni Jena	F.Schrempel	4	Mikromechanik
Kernmikrosonde	Uni Bremen, ZMT	W. Ekau	9	Otholith-Querschnitte
Externer Strahl	HfBK, LS Prof. Schramm	H.-P.Schramm, U.Friedrich	5	Glasmalerei,Malschichtabfolgen
Externer Strahl	Staatl. Kunstsamm. Dresden	C. Engemann-Wendt, R. W. Richter	18	hist. Steinzeug, Goldträger für Emails
Externer Strahl	FHS Köln, FB Restaurierung	C. Fiebiger, I. Sandner	16	div. Malerei
Externer Strahl	Staatl. Kunstsamm. Dresden/ Porzellansammlung	U. Pietsch, H.-M.Walcha, H.Ullbricht	3	Klassifiz. von Boettger-Steinzeug
Externer Strahl	Kunstmuseum Düsseldorf	H. Ricke	2	hist. Glas und Glasmalerei

# Schlussbericht – Liste der Veröffentlichungen

## Veröffentlichungen in Fachzeitschriften und -büchern

- Behrisch, R., Grigull, S., Kreissig, U., Grötzschel, R.  
Influence of surface roughness on measuring depth profiles and the total amount of implanted ions by RBS and ERDA  
Nucl. Instr. Meth. B 136-138 (1998) 628
- Groß, B., Marion, St., Hempelmann, R., Grambole, D., Herrmann, F.,  
Proton conducting  $Ba_3Ca_{1.18}Nb_{1.82}O_{8.73}/H_2O$ : Sol-gel preparation and pressure/composition isotherms,  
Solid State Ionics 109 (1998) 13 -23
- Jankuhn, St., Butz, T., Flaggmeyer, R.-H., Reinert, T., Vogt, J., Barckhausen, B., Hammerl, J., Protsch von Zieten, R., Grambole, D., Herrmann, F., Bethge, K.,  
Ion microprobe analyses of ancient human bone,  
Nucl. Instr. and Meth. B (136-138) (1998) 329
- Kreissig, U., Grigull, S., Lange, K., Nitzsche, P., Schmidt, B.  
In situ ERDA studies of ion drift processes during anodic bonding of alkali-borosilicate glass to metal  
Nucl. Instr. Meth. B 136-138 (1998) 674
- Nitzsche, P., Lange, K., Schmidt, B., Grigull, S., Kreissig, U.  
Ion Drift Processes in Pyrex-Type Alkali-Borosilicate Glass during Anodic Bonding  
J. of the Electrochem. Society 145 (1998) 1756
- Reinert, T., Butz, T., Flaggmeyer, R.-H., Jankuhn, St., Vogt, J., Gründer, W., Kanowski, M., Wagner, M., Werner, A., Grambole, D., Herrmann, F.,  
Investigation of the calcium content in joint cartilage: Is it connected with (early arthrotic) changes in cartilage structure?,  
Nucl. Instr. and Meth. B (136-138) (1998) 936
- Soltani-Farshi, M., Baumann, H., Rück, D., Richter, E., Kreissig, U., Bethge, K.  
Content of hydrogen in boron-, carbon-, nitrogen-, oxygen-, fluorine- and neon-implanted titanium  
Surface and Coatings Technology 103-104 (1998) 299
- M. Falke, B. Gebhardt, G. Beddies, S. Teichert and H.-J. Hinneberg  
On the growth of epitaxial  $CoSi_2$  by the solid phase reaction of Co/metal bilayers with Si(001)  
Thin Solid Films 336 (1998) 201
- T. Walter, K. Dörr, K.-H. Müller, B. Holzappel, D. Eckert, M. Wolf, D. Schläfer, L. Schultz, R. Grötzschel  
Low-field magnetoresistance of  $La_{0.7}Sr_{0.3}MnO_3$  thin films with gradually changed texture  
Appl. Phys. Lett. 74 no. 15 (1999), 2218
- Moebius, C. Frenzel, R. Thielsch, R. Rosenbaum, C.J. Adkins, M. Schreiber, H.-D. Bauer, R. Groetzschel, V. Hoffmann, T. Krieg, N. Matz, H. Vinzelberg, M. Witcomb  
Metal-insulator transition in amorphous  $Si_{1-x}Ni_x$ : Evidence for Mott's minimum metallic conductivity,  
Physical Review B 60 (1999) Nr. 20, S. 14209-14223.
- Groß, B., Marion, St., Lind, K., Grambole, D., Herrmann, F., Hempelmann, R.,  
Proton conducting  $Ba_3Ca_{1.18}Nb_{1.82}O_{8.73} - H_2O$ : pressure - compositions isotherms in terms of Fermi-Dirac-statistics, concentration and fuel-cell measurements, and impedance spectroscopy,  
Solid State Ionics 125 (1999) 107
- Grambole, D., Herrmann, F., Behrisch, R., Hauffe, W.,  
Hydrogen and deuterium depth profiling in divertor tiles of a fusion experiment by micro-ERDA,  
Nucl. Instr. and Meth. B 158 (1999) 647

Krieger, K., Maier, H., Grambole, D., Schleussner, D., Franzen, P., and the ASDEX UPGRADE TEAM,  
Hydrogen isotope inventories in plasma facing components of ASDEX Upgrade,  
IAEA-F1-CN-69/FTP/34

Behrisch, R., von der Linden, W., von Toussaint, U., Grambole, D.,  
Surface layer destruction during ion beam analysis,  
Nucl. Instr. and Meth. B155 (1999) 440

Maser, K., Mohr, U., Leihkauf, R., Ecker, K., Beck, U., Grambole, D., Grötzschel, R., Herrmann, F.,  
Krauser, J., Weidinger, A.,  
Hydrogen migration in wet-thermally grown silicon dioxide layers due to high dose  $^{15}\text{N}$  ion beam  
irradiation  
Microelectronic Engineering 48 (1999) 139

S. Teichert, H. Giesler, M. Falke, G. Beddies, H.-J. Hinneberg, G. Lippert, J. Griesche,  
H. J. Osten  
Silicide Reaction of Co with  $\text{Si}_{0.999}\text{C}_{0.001}$   
Solid-State Electronics 43 (1999) 1051.

G. Beddies, M. Falke, S. Teichert, B. Gebhardt, H.-J. Hinneberg  
Reactive Ion Etching of  $\text{CoSi}_2$  in  $\text{CF}_4/\text{Ar}$  Plasma  
Applied Surface Science 138/139 (1999) 370.

S. Teichert, M. Falke, G. Beddies, H.-J. Hinneberg  
Self-Assembling of Epitaxial  $\text{NiSi}_2$  in  $\text{Si}(001)$   
Mat. Res. Soc. Symp. Proc. 570 (1999).

Behrisch, R., Mayer, M., Jacob, W., Assmann, W., Dollinger, G., Bergmaier, A., Kreissig, U., Friedrich,  
M., Sun, G., Hildebrandt, D., Akbi, M., Schneider, W., Schleussner, D., Knapp, W., Edelmann, C.,  
Quantitative analysis of deuterium in a-C:D layers, a Round Robin experiment,  
J. Nucl. Mat. 281 (2000) 42

Friedrich, M., Pilz, W., Sun, G., Behrisch, R., Garcia-Rosales, C., Bekris, N., Penzhorn, R.-D.,  
Tritium depth profiling in carbon by accelerator mass spectrometry,  
Nucl. Instr. Meth. B 161-163 (2000) 216

Friedrich, M., Pilz, W., Sun, G., Behrisch, R., Garcia-Rosales, C., Bekris, N., Penzhorn, R.-D.,  
Tritium depth profiling in carbon samples from fusion experiments,  
Nucl. Instr. Meth. B 172 (2000) 655

Groß, B., Engeldinger, J., Grambole, D., Herrmann, F., Hempelmann, R.,  
Dissociative water vapour absorption in  $\text{BaZr}_{0.85}\text{Y}_{0.15}\text{O}_{2.925}/\text{H}_2\text{O}$ : pressure-compositions isotherms in  
terms of Fermi-Dirac statistics,  
Phys. Chem. Chem. Phys. 2 (2000) 297

Mändl, S., Günzel, R., Richter, E., Möller, W., Rauschenbach, B.,  
Annealing behaviour of nitrogen implanted stainless steel,  
Surf. Coat. Technol. 128-129 (2000) 423

Müller, W., Adam, K., Neelmeijer, C., Mäder, M.,  
Naturwissenschaftliche Untersuchungen zur Ursachenklärung von Schäden an Email-Kunstwerken,  
Restauro 6 (2000) 414

Neelmeijer, C., Mäder, M., Pietsch, U., Ulbricht, H., Walcha, H.-M.,  
Johann Georgius Höroldt fecit ?,  
*in*: Ion Beam Study of Art and Archeological Objects, G. Demortier, A. Adriaens (eds.) European  
Commission, EUR 19218 (2000) 54

Neelmeijer, C., Mäder, M., Schramm, H.-P.,  
Paint layers - depth resolved analysis at the particle accelerator,  
*in: Ion Beam Study of Art and Archeological Objects*, G. Demortier, A. Adriaens (eds.) European  
Commission, EUR 19218 (2000) 15

Penzhorn, R.-D., Bekris, N., Coad, P., Dörr, L., Friedrich, M., Glugla, M., Haigh, A., Lässer, R.,  
Peacock, A.,

Status and research progress at the Tritium Laboratory Karlsruhe,  
*Fusion Eng. Des.* **49-50** (2000) 753

S. Teichert, M. Falke, H. Giesler, D.K. Sarkar, G. Beddies and H.-J. Hinneberg, G. Lippert,  
J. Griesche, and H. J. Osten  
Thin films of  $\text{CoSi}_2$  on  $\text{Si}_{1-y}\text{C}_y$  Substrate Layers  
*Microelectronic Engineering* **50** (2000) 193.

G. Beddies, M. Falke, D.K. Sarkar, S. Teichert, B. Gebhardt, H.-J. Hinneberg  
Plasma Etching of Ternary Silicide Top Layers  
*Microelectronic Engineering* **50** (2000) 199.

M. Falke, B. Gebhardt, S. Teichert, D.K. Sarkar, H.-J. Hinneberg  
Epitaxial  $\text{CoSi}_2$  by Solid Phase Reaction of Co/Ti- and Co/Hf-Bilayers on Si(001)  
akzeptiert zur Publikation in *Microelectronic Engineering*.

S. Teichert, S. Schwendler, H. Giesler, D.K. Sarkar, A. Mogilatenko, M. Falke, G. Beddies, H.-J.  
Hinneberg  
Preparation and Properties of  $\text{MnSi}_{1.7}$  on Si(001)  
*Microelectronic Engineering* **55** (2001) 227.

M. Falke, S. Teichert, H. Giesler, G. Beddies, H.-J. Hinneberg  
 $\text{CoSi}_2$  Growth on  $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ (001) substrates  
*EUREM 2000 Proc.* (2000) Vol. II, p. 287.

A. Mogilatenko, M. Falke, S. Teichert, D. Sarkar, H.-J. Hinneberg  
Preparation and Properties of  $\text{MnSi}_{1.7}$  on Si(001)  
*EUREM 2000 Proc.* (2000) Vol. II, p. 293

D.K. Sarkar, M. Falke, H. Giesler, S. Teichert, G. Beddies, H.-J. Hinneberg  
Role of buried ultra thin interlayer silicide on the growth of Ni film on Si(001) substrate  
*Appl. Phys.* **A70** (2000) 681.

S. Teichert, H. Hortenbach, G. Beddies, H.-J. Hinneberg  
Surfactant mediated growth of  $\text{MnSi}_{1.7}$   
*Appl. Phys. Lett.* **78** (2001) 1988.

S. Teichert, A. Mogilatenko, M. Falke, S. Schwendler, D. Sarkar, G. Beddies, C. Kleint,  
H.-J. Hinneberg  
Growth of  $\text{MnSi}_{1.7}$  on Si(001) by MBE  
angenommen als Vortrag für MBE-XI, Peking (09/2000)  
akzeptiert für *J. Cryst. Growth*

S. Teichert, H. Hortenbach, G. Beddies, H.-J. Hinneberg  
Surfactant mediated Growth of  $\text{MnSi}_{1.7}$  on Si(001)  
angenommen für *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* (12/2000).

C. Kleint, S. Chakraborty, M. Falke, S. Teichert, J. Schumann, A. Boulouz, A. Heinrich  
Strain Symmetrized Silicon/Germanium(111) Superlattices: Structural and Thermoelectric Transport  
Properties  
*Proc. XIX Int. Conf. on Thermoelectrics - ICI 2000*, 20-24th Aug. 2000, Cardiff, Wales, UK  
angenommen zur Publikation

S. Teichert, H. Hortenbach, G. Beddies and H.-J. Hinneberg  
Surfactant Mediated Growth of Silicides  
MAM 2001, accepted for Microelectronic Engineering

A. Mogilatenko, M. Falke, S. Teichert, S. Schwendler, D. Sarkar, H.-J. Hinneberg  
Electron Microscopic Investigation of  $\text{MnSi}_{1.7}$  Layers on Si(001)  
MAM 2001, accepted for Microelectronic Engineering

D. K. Sarkar, I. Rau, M. Falke, H. Giesler, S. Teichert, G. Beddies, and H.-J. Hinneberg  
Structure, interface roughness, and growth mechanism of reactive deposition epitaxy of  
 $\text{CoSi}_2$  on Si(100) substrates  
Appl. Phys. Lett. ca. 06/2001