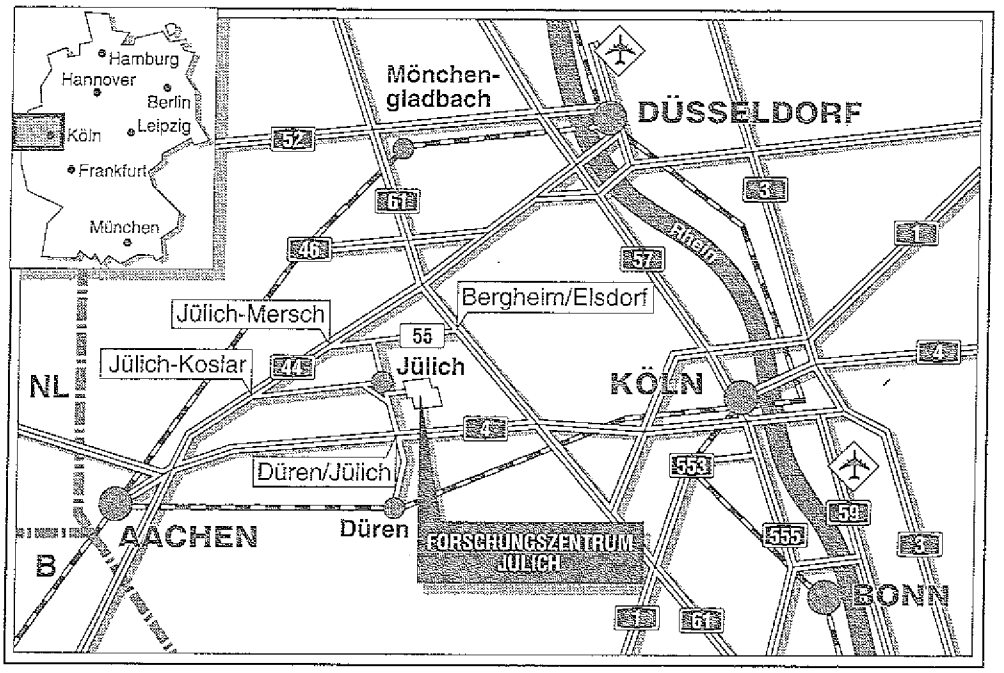
FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH GmbH KFA

Institut für Plasmaphysik
Assoziation EURATOM-KFA

Untersuchungen zur physikalischen Zerstäubung an amorphen Kohlenstoffschichten mittels laserinduzierter Fluoreszenz

Ekkehard Pasch



Berichte des Forschungszentrums Jülich ; 2647
ISSN 0366-0885
Institut für Plasmaphysik Jül-2647
Assoziation EURATOM-KFA
D 465 (Diss. Universität GH Essen)

Zu beziehen durch: Forschungszentrum Jülich GmbH · Zentralbibliothek
Postfach 1913 · D-5170 Jülich · Bundesrepublik Deutschland
Telefon: 02461/61-6102 · Telefax: 02461/61-6103 · Telex: 833556-70 kfa d

Untersuchungen zur physikalischen Zerstäubung an amorphen Kohlenstoffschichten mittels laserinduzierter Fluoreszenz

Ekkehard Pasch

Abstract

In order to minimize the radiation losses, it is desirable to keep the plasmas in nuclear fusion devices free of high-Z-impurities. Therefore, the walls of TEXTOR and other tokamaks are covered with thin layers of amorphous carbon layers (a-C:H) or amorphous carbon/boron layers (a-C/B:H).

The sputtering behaviour of these layers has been studied under bombardment by Ar^+ ions with energies of 1.5 keV and current densities of a few mA/cm^2. Investigations of these coatings were carried out with the object to measure the velocity distribution of the sputtered atoms and the sputtering yields by laser induced fluorescence in the vacuum ultraviolet.

Both in order to avoid excessivly high material removal from the films and also to study transient effects, the ion gun was pulsed with 2 Hz repetition frequency for a duration of 30 μs.

To generate the vacuum-UV radiation, two different methods have been applied. The frequency tripling of an excimer laser pumped dye laser in a noble gas mixture has been used in the wavelength ranges of 120.3 - 122.5 nm and 127.0 - 127.9 nm. Continuously tunable radiation down to 120 nm has been produced by a Raman-shifted, frequency doubled dye laser. The energy of the 9th anti-stokes-line at L_α (121.5 nm) is about 0.1 μJ, the pulse length < 2 ns.

The velocity distribution and absolute density of sputtered H (121.6 nm), D (121.5 nm), B (249.8 nm), C (127.8 nm) and O (130.2 nm) have been measured. A Thompson-distribution can be fitted to the experimental points. The best fit gives surface energies of about 1.0 eV for H- or D-, 7.6 for C- and 5.6 for B-atoms. The velocity distribution of atomic oxygen could not be fitted with a single value for the surface energy, but with the superposition of two Thompson-distributions with energies of 0.5 and 4.8 eV. For H-atoms, the sputtering yield shows a strong dependence on the fluence. The effect is considerably stronger for a-C:H than for a-C/B:H layers.

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung

Eines der größten Ziele friedlicher Energieerzeugung ist die Beherrschung der thermischen, kontrollierten Kernfusion. Am aussichtsreichsten Weg erscheint zur Zeit die Verschmelzung der beiden Wasserstoffisotope Deuterium (D) und Tritium (T) zu Helium (He), wobei ein Neutron (n) und eine Energie von 17,6 MeV freigesetzt wird.

$$^{2}D + {}^{3}T \rightarrow {}^{4}He + n + 17{,}6\ \text{MeV} \tag{1.1}$$

Um die gegenseitige elektrische Abstoßung zu überwinden, müssen die Atomkerne auf über $1 \cdot 10^{8}$ K aufgeheizt werden. Außerdem muß das Produkt aus zentraler Ionendichte n_i und Energieeinschlußzeit τ_E größer als $2 \cdot 10^{14}$ $cm^{-3}s$ betragen, damit genügend Fusionsprozesse eintreten. Diese Bedingungen werden oft zu einem "Fusionsprodukt" formuliert, welches von einem zukünftigen Fusionsreaktor erfüllt werden muß, wenn die durch die Fusionsreaktion erzeugte Leistung die Verluste durch Strahlung überkompensieren soll.

$$n_i \cdot \tau_E \cdot T > 5 \cdot 10^{22}\ cm^{-3}sK \tag{1.2}$$

Die besten Werte für das Fusionsprodukt wurden mit Experimenten erzielt, die nach dem Tokamak-Prinzip arbeiten. Beim Tokamak-Prinzip erfolgt der magnetische Plasmaeinschluß in toroidaler Geometrie.

Ein perfekter magnetischer Einschluß eines Plasmas ist nicht realisierbar. Stöße der Plasmateilchen untereinander bewirken eine Diffusion der Wasserstoffionen aus dem einschließenden Magnetfeld in die "Abschälschicht". Die dort verlaufenden Magnetfeldlinien schneiden die Wände bzw. die Limiter. Limiter sind Bauteile, die den Durchmesser des Plasmas gezielt durch materiellen Kontakt begrenzen, um so die Wände des Tokamaks vor zu intensiven Teilchenflüssen zu schützen. Als Folge kommt es zur Wechselwirkung von Plasmasteilchen mit den das Plasma umgebenden Komponenten

/1/. Die Limiter werden folglich besonders stark beansprucht und nehmen trotz der geringen Fläche oft mehr als die Hälfte der in das Plasma gesteckten Leistung auf.

Die Zündung eines Fusionsplasmas erfordert unter anderem, daß nicht zu viele schwere Atome (z. B. Metallatome) durch auftreffende Plasmateilchen aus der Wand geschlagen (Zerstäubung) werden und das Wasserstoffplasma verunreinigen. Dies hat zwei Gründe: Eine wegen der hohen Kernladungszahl der Verunreinigungen erhöhte Abstrahlung und eine Verdünnung des Plasmas müssen vermieden werden.

Erlaubt man eine Erhöhung des Fusionsproduktes um einen Faktor zwei, so sind folgende Konzentrationen an Verunreinigungen des Plasmas tolerierbar: 0,3% Fe, 5% C, 8% Be, 10% He /2/. Dies gilt unter der Annahme, daß jeweils nur eine Verunreinigungsart vorhanden ist. Als Maß für die Verunreinigungskonzentration gilt der über alle Verunreinigungsarten gemittelte Wert der Kernladungszahlen Z_{eff}. Ein reines Wasserstoffplasma hätte folglich ein Z_{eff} von 1. In der Fusionsforschung bezeichnet man alle Elemente mit Z kleiner acht als "niedrig"-Z Material.

Der Plasma-Wand-Weschselwirkung kommt bei der Entwicklung eines Fusionsreaktors eine zentrale Bedeutung zu, da das Plasma, wie oben gezeigt, durch aus dem Wandmaterial freigesetzte Verunreinigungen nicht zu stark verunreinigt werden darf.

Der Jülicher Tokamak TEXTOR (Torus Experiment for Technology Oriented Research) wurde speziell zur Untersuchung der Fragen zur Plasma-Wand-Wechselwirkung und Plasma-Wand-Technologie konzipiert. Mit einem "großen" Torusdurchmesser von 3,5 m und einem "kleinen" Durchmesser von 1 m gehört TEXTOR zu den Fusionsexperimenten mittlerer Größe. Als Besonderheit besitzt TEXTOR im Vakuumgefäß eine innere Wand, den "Liner". Der "Liner" sorgt für eine definierte und homogene Wandoberfläche, die leicht austauschbar ist. Er ist aus einer 1 mm dicken Nickel-Legierung (Inconel 625) gefertigt und elektrisch bis auf 500 °C aufheizbar.

Bis Anfang der achtziger Jahre wurden für Fusionsexperimente ausschließlich Metallwände und Edelstahl- bzw. Inconel-Limiter verwendet. In TEXTOR wurden Plasmen mit typischen Werten für Z_{eff} von 2-3 und mittlere Ionendichten von $2\text{-}3 \cdot 10^{13}$ cm^{-3} erreicht. Die Verunreinigungen bestanden hauptsächlich aus Metallatomen und Sauerstoff.

Um den Anteil der "hoch"-Z-Verunreinigungen im Plasma zu reduzieren, wurde 1984 ein Verfahren entwickelt, das es ermöglicht, die gesamte Innenfläche von TEXTOR (Limiter, Liner) mit einem Kohlenstoffilm zu bedecken. Die Haltbarkeit der Kohlenstoffschichten auf Metall-Limitern war aber zunächst nicht befriedigend und betrug nur etwa 10 Entladungen. Danach waren die Kohlenstoffschichten an den stark belasteten Stellen abgetragen. Die an den Metall-Limitern freigesetzten Metallatome verunreinigten zusätzlich die Kohlenstoffschicht auf dem Liner, so daß auch von dort Metallatome freigesetzt werden konnten. Durch den Einsatz von Kohlenstoff-Limitern konnte die Lebensdauer der Kohlenstoffschichten auf etwa 2000 Entladungen gesteigert werden. Durch die Redeposition des Kohlenstoffs wird eine zusätzliche Verlängerung der Standzeit einer "ganz-Kohlenstoff-Maschine" erreicht.

Die Hauptverunreinigungen einer "ganz-Kohlenstoff-Maschine" sind Kohlenstoff und Sauerstoff. Der Sauerstoffpegel ist allerdings gegenüber einer Maschine mit metallischen Wänden um einen Faktor 5-10 kleiner.

Im Gegensatz zu metallischen Wänden können Kohlenstoff und Kohlenstoffschichten große Mengen Wasserstoff aufnehmen. Während die Wasserstoffkonzentration in Edelstahl $\leq$ 100 ppm beträgt, liegt das H/C Verhältnis bei Kohlenstoffschichten typischer Weise bei 0,4. Bei einer "ganz-Kohlenstoff-Maschine" findet ein starker Austausch von Wasserstoffteilchen aus dem Plasma und der Wand statt. Dieser Prozeß wird als Wasserstoff-Recycling bezeichnet. Der Recyclingkoeffizient R gibt die Zahl der von der Wand pro auftreffenden Wasserstoffatom freigesetzten Wasserstoffatome an. Während bei metallischen Wänden R meist $\leq$ 1 ist, kann der Recyclingkoeffizient bei Kohlenstoffwänden größer oder kleiner als eins sein. Dies führt entweder zu einer Dichtezunahme ($R > 1$) oder -abnahme ($R < 1$) des Plasmas. Um sich eine Vorstellung über die Häufigkeit dieses Prozesses zu machen, soll folgendes Beispiel dienen. Die mittlere Zeit, die ein Wasserstoffteilchen im Plasma verbleibt, beträgt bei TEXTOR ca. 80 ms. Während einer vier Sekunden andauernden Entladung durchläuft jedes Wasserstoffteilchen im statistischen Mittel 50 mal diesen Zyklus /3/.

Bisherige Untersuchungen an den Kohlenstoffschichten beschäftigten sich mit dem Aufbringen und Wachstum der Schicht /3,4/, dem Transport von Wasserstoff innerhalb der Schicht /5/ und der chemischen Erosion /6,7,8/. Dabei erfolgten die Untersuchun-

gen in der Regel mit Massenspektrometern.

Die Abtragung der Kohlenstoffschichten in TEXTOR erfolgt im wesentlichen durch zwei Prozesse: Die "chemische Erosion" und die "physikalische Zerstäubung".

Bei der chemischen Erosion werden aufgrund einer chemischen Reaktion zwischen einem einfallenden Teilchen und dem Targetmaterial Moleküle gebildet, welche anschließend thermisch desorbieren. Chemische Erosionsprozesse laufen nur für spezielle Systeme ab und lassen sich nur schwer quantitativ berechnen. Zusätzlich geht die Temperatur des Targetmaterials als ein wesentlicher Reaktionsparameter ein. Ganz anders sind die Verhältnisse bei physikalischen Zerstäubungsprozessen. Diese lassen sich durch Impuls- und Energieübertrag eines einfallenden Teilchens mit einem Targetatom beschreiben. Ist die auf das Targetatom übertragene Energie größer als die Bindungsenergie, so kann das Atom seinen Gitterplatz verlassen und wie das Projektil mit weiteren Atomen stoßen. Angestoßene Atome, die in Richtung auf die Targetoberfläche zu gestreut werden, können das Target verlassen, wenn die auf das Atom übertragene Energie größer als die Bindungsenergie an die Oberfläche ist. Die durch physikalische Zerstäubung freigesetzten Atome besitzen aufgrund des Energieübertrages eine relativ hohe kinetische Energie im Vergleich zu den thermischen Atomen des Targetmaterials. Die physikalische Zerstäubung ist daher von der Temperatur des Targets unabhängig.

Ziel dieser Arbeit ist es, das Verhalten der Kohlenstoffschichten bei physikalischer Zerstäubung durch energiereiche Ionen zu untersuchen.

Um gut definierte Bedingungen zu haben, wurden die Zerstäubungsprozesse zunächst in einem Laborexperiment untersucht. Als Meßmethode wird zum erstenmal die laserinduzierte Fluoreszenz zur Untersuchung der Kohlenstoffschichten eingesetzt. Die laserinduzierte Fluoreszenz erlaubt es, die bei der Zerstäubung freigesetzten Atomsorten selektiv nachzuweisen. Außerdem ruft die laserinduzierte Fluoreszenz keine Störung des Plasmas hervor; daher sind mit dieser Methode auch Messungen innerhalb von Fusionsexperimenten wie TEXTOR möglich /9/.

Die Anregungswellenlängen der in Frage kommenden Atome liegen im ultravioletten

(UV) bzw. im vakuum-ultravioletten (VUV) Spektralbereich. Da für diesen Bereich keine kommerziellen abstimmbaren Strahlungsquellen zur Verfügung stehen, muß die Pumpstrahlung durch Methoden der nichtlineraren Optik erzeugt werden. Ausgehend von einem Farbstofflasersystem wird die UV- bzw. VUV-Strahlung je nach Anwendung durch Raman-Verschiebung in molekularem Wasserstoff (Variante 1), durch Frequenzverdreifachung in einem Edelgasgemisch (Variante 2) oder durch Frequenzverdopplung in einem Verdopplerkristall (Variante 3) erzeugt. Da das verwendete Farbstofflasersystem nur gepulst betrieben werden kann, und die nur 100 nm dicken Kohlenstoffschichten unter größeren Bestrahlungsdosen zerstört werden, muß die Ionenquelle ebenfalls gepulst betrieben werden. Durch die Verwendung von sehr kurzen Ionenpulsen ist die Durchführung der Messungen bei geringen Strahlendosen möglich. Dies erlaubt auch, die Dosisabhängigkeit der Zerstäubungsausbeute zu bestimmen.

Die Messungen erfolgen vor dem Hintergrund, daß sowohl die Freisetzung von Verunreinigungen, als auch das Wasserstoff-Recycling stark vom Wandmaterial und vom Oberflächenzustand abhängig sind. Vom besonderen Interesse ist die Messung der Geschwindigkeitsverteilung und der Dichte der durch den Zerstäubungsprozeß freigesetzten Atome. Die Messung der Geschwindigkeitsverteilung ist dabei von besonderer Wichtigkeit, da durch diese die Eindringtiefe der neutralen Atome ins TEXTOR-Plasma bestimmt wird. Die Form der Geschwindigkeitsverteilung liefert außerdem Einsichten in die zu Grunde liegenden physikalischen Prozesse. Durch eine Absolutkalibrierung der Fluoreszenzsignale läßt sich die Teilchendichte bestimmen. Aus Teilchendichte und Geschwindigkeitsverteilung ergeben sich dann auch die Teilchenflüsse von der Wand in Richtung Plasma.

Neben den reinen Kohlenstoffschichten werden in TEXTOR seit 1988 auch borhaltige Kohlenstoffschichten eingesetzt. Diese Schichten sind mit dem Ziel entwickelt worden, den Anteil an niedrig-Z-Verunreinigungen weiter zu reduzieren. Die Untersuchung dieser borhaltigen Kohlenstoffschichten bei physikalischer Zerstäubung ist neben der Untersuchung der reinen Kohlenstoffschichten Gegenstand dieser Arbeit.

2. Grundlagen

2.1 Amorphe Kohlenstoffschichten

In diesem Kapitel sollen die Herstellung, die Struktur und die Eigenschaften der untersuchten Kohlenstoffschichten beschrieben werden.

Die Bildung harter Kohlenstoffilme mit "diamantähnlichen" Eigenschaften wurde 1953 als Begleiterscheinung von Gasentladungen in Kohlenwasserstoffgasen beobachtet /10/. Eine Methode zum gezielten Aufbringen solcher Schichten auf ein Substrat wurde 1971 von Aisenberg und Chabot /11/ veröffentlicht. Sie extrahierten einen niederenergetischen Kohlenstoffionenstrahl (50 - 100 eV) aus e8iner Kohlenstoff-Argon Entladung, um Silizium-Wafer mit "diamantähnlichen" Kohlenstoffilmen zu beschichten.

Heutzutage sind verschiedene Techniken bekannt, um harte, wasserstoffhaltige Kohlenstoffilme, sei es mittels Gasentladungen oder Ionenstrahlen, auf ein Substrat aufzubringen. Dabei ist es unerheblich, ob es sich bei dem Substrat um ein Metall, eine Keramik oder um einen Halbleiter handelt.

Je nach Herstellungsverfahren und Zusammensetzung ergeben sich aber unterschiedliche Arten von wasserstoffhaltigen Kohlenstoffschichten. Die Eigenschaften und der Wasserstoffgehalt der Schichten hängen stark von der Energie und der Zusammensetzung der auf dem Substratmaterial auftreffenden Kohlenwasserstoffmolekülionen ab. Alle gemeinsam weisen eine amorphe Struktur, optische Transparenz und eine relativ hohe chemische Widerstandsfähigkeit auf. Bei geringen Ionenenergien von nur einigen eV werden im allgemeinen polymerartige Schichten abgeschieden, die nur eine geringe mechanische Beständigkeit aufweisen. Mit steigender Ionenenergie nimmt die Härte der Schichten zu, und man erhält schließlich harte, amorphe, wasserstoffhaltige Kohlenstoffschichten. Für diese Art von Kohlenstoffschichten hat sich die Bezeichnung a-C:H Schicht durchgesetzt.

Ein Überblick über den Schichtaufbau und die Eigenschaften der verschiedenen Kohlenstoffschichten ist in /5/ zu finden. Hier soll nur auf die a-C:H Schichten näher eingegangen werden, wie sie zur Wandkonditionierung von TEXTOR verwendet werden.

Zur Abscheidung der Kohlenstoffschichten auf die Innenwände von TEXTOR wurde 1984 ein eigenes Verfahren zur "Karbonisierung" /3/ entwickelt. Unter Karbonisierung versteht man die plasmainduzierte Abscheidung von wasserstoffhaltigen Kohlenstoffschichten aus Glimmentladungen im Durchstrom von Methan-Wasserstoffgemischen. Es hat sich gezeigt, daß diese Karbonisierungsschichten gleichartig mit den in der Literatur beschriebenen a-C:H Schichten sind. Die Bezeichnung a-C:H Schicht wird daher im folgenden auch für die Karbonisierungsschichten verwendet.

Die Einzelheiten des "Karbonisierungsverfahrens" sind in /3/ ausführlich beschrieben. Da die untersuchten Schichten größtenteils direkt aus TEXTOR stammen, und das Herstellungsverfahren Aufschluß über die Struktur der Schichten liefert, soll das Karbonisierungsverfahren von TEXTOR kurz erläutert werden.

Als Entladungstyp wird eine hochfrequenzunterstützte Glimmentladung (RG-Entladung) verwendet. Dies bedeutet, daß an die Elektroden eine Hochfrequenz-Spannung und eine positive Gleichspannung angelegt wird. Als Prozeßgas wird eine Mischung aus Methan- und Wasserstoffgas (p_{CH4}/p_{H2} = 0,15-0,4) verwendet. Der Arbeitsdruck beträgt etwa $1 \cdot 10^{-3}$ mbar. Die zu beschichtenden Komponenten (Liner, Limiter) sind als Kathode geschaltet und befinden sich auf Erdpotential. Die prinzipielle Anordnung zur Karbonisierung von TEXTOR ist in Abb.2.1 gezeigt.

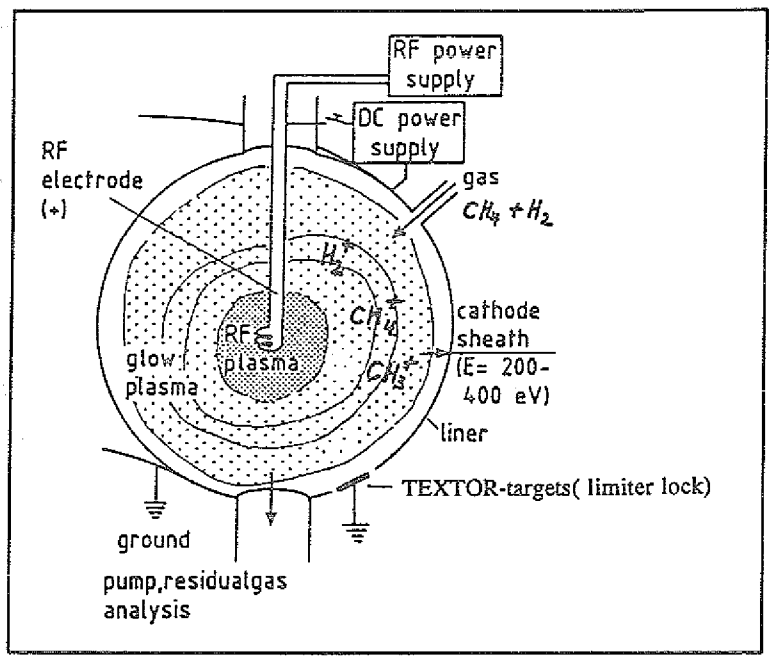


Abb.2.1: Schematische Anordnung zur Karbonisierung in TEXTOR. Nach /12/.

Zur Karbonisierung werden zwei (um etwa 180^0 toroidal versetzte) Elektroden in die Mitte des TEXTOR-Gefäßes eingefahren. Die Elektroden sind als mehrwindige Spulen ausgeführt und als Anoden eines Gleichspannungsnetzteils geschaltet. Die Induktivität der Spulen bildet mit einem Kondensator einen Serienschwingkreis, dessen Resonanzfrequenz bezüglich der Frequenz eines ebenfalls an die Spulen angeschlossenen Hochfrequenzgenerators (f = 13,6 MHz) abgestimmt wird. Wird Hochfrequenzleistung (100 W) eingekoppelt und die Resonanzbedingung erfüllt, fällt an den Spulen eine Spannung von einigen tausend Volt ab. Sie führt zum elektrischen Durchbruch im Wasserstoffgas in der Nähe der Spulen und zur Bildung eines Plasmas. In dieses Plasma können durch das Gleichspannungsnetzgerät, welches ebenfalls an den Spulen angeschlossen ist (siehe. Abb.2.1), Leistungen von mehreren Kilowatt eingekoppelt werden. Die erzeugten Molekül-Ionen werden im Kathodenfall (V > 200 V) auf die Wand beschleunigt und aufgrund der hohen Ionenenergien (E > 200 eV) implantiert. Da die Aufprallenergie wesentlich größer als die interne Bindungsenergie (einige eV) der Molekül-Ionen ist, dissoziieren diese, und die entstehenden Atome werden in die Schicht eingebaut. Daß die Schichten trotz der komplizierten Geometrie des Liners weitgehend homogen sind, liegt daran, daß er eine Äquipotentialfläche für das Schichtpotential bildet. Die Kohlenstoff-Flußdichte auf die Wand beträgt $2\text{-}4 \cdot 10^{13}$ $cm^{-2}s^{-1}$, was einem Wachstum der

Schicht von etwa einer Monolage (eine Monolage wird hier angesetzt als $2 \cdot 10^{15}$ Atome/cm^2) pro Minute entspricht. Der Karbonisierungsprozeß wird so lange fortgesetzt, bis Beschichtungsdicken von etwa 100 nm erreicht sind.

Vor jeder Beschichtung können mittels einer "Limiterschleuse" Proben in TEXTOR eingebracht werden, die dann nach der Beschichtung für unsere Untersuchungen im Labor zur Verfügung stehen.

Über das Wachstum der a-C:H Schichten gibt es bis heute noch kein einheitliches Modell.

Allen Modellen gemeinsam ist jedoch die Vorstellung, daß das Wachstum durch Deposition aber auch gleichzeitige Zerstäubung der Schicht durch die auftreffenden Ionen gekennzeichnet ist.

Ein Modell /13/ geht davon aus, daß das Wachstum geprägt ist durch die Überlagerung der Kohlenstoffimplantations-Profile im Substrat und die Zerstäubung der Oberflächenatome. Diese Prozesse können mit der Sigmund'schen Zerstäubungstheorie beschrieben werden. Ausgehend von dieser Theorie ist mittels des dynamischen TRIM-Programms (TRIDYN) /14,15/ eine Simulation des Wachstums möglich.

Andere Vorstellungen über das Wachstum von diamantähnlichen Schichten sind schon 1976 entwickelt worden /16/. Danach bildet der Kohlenstoff an der Oberfläche eine vielfältige Kombination von sp^1-, sp^2- und sp^3-Bindungen. Durch die auftreffenden Kohlenstoffmolekülionen werden die schwächeren Bindungen bevorzugt zerstäubt, so daß nur die am stärksten gebundenen Atome auf der Oberfläche bleiben und eine harte Schicht bilden.

Aber auch der Wasserstoff scheint bei der Bildung der für die a-C:H Schichten charakteristischen sp^3-Bindung eine wichtige Rolle zu spielen. So wird vermutet, daß der atomare Wasserstoff freie Kohlenstoffbindungen sättigt und damit die sp^3-Konfiguration stabilisiert.

Im Vergleich zum Wasserstoffgehalt der Schicht, führt die Verwendung von H_2/CH_4-

Gasgemischen darüber hinaus zu einem großen Überschuß an Wasserstoff bei der Schichtbildung, wodurch die Absättigung der freien Bindungen durch H-Atome noch begünstigt wird. Das typische Verhältnis der Wasserstoff zu Kohlenstoff Atome bei Karbonisierungsschichten beträgt 0,4 /5/.

Analysen mittels Infrarotspektroskopie und inelastischer Elektronenstreuung haben ein Verhältnis von 68% sp^3-, 30% sp^2- und 2% sp^1-hybridisierten Bindungen in der a-C:H Schicht ermittelt.

Die Vorstellungen, die man sich von den Strukturen der Schichten macht, sind in Abb. 2-2 als zweidimensionales Schema dargestellt.

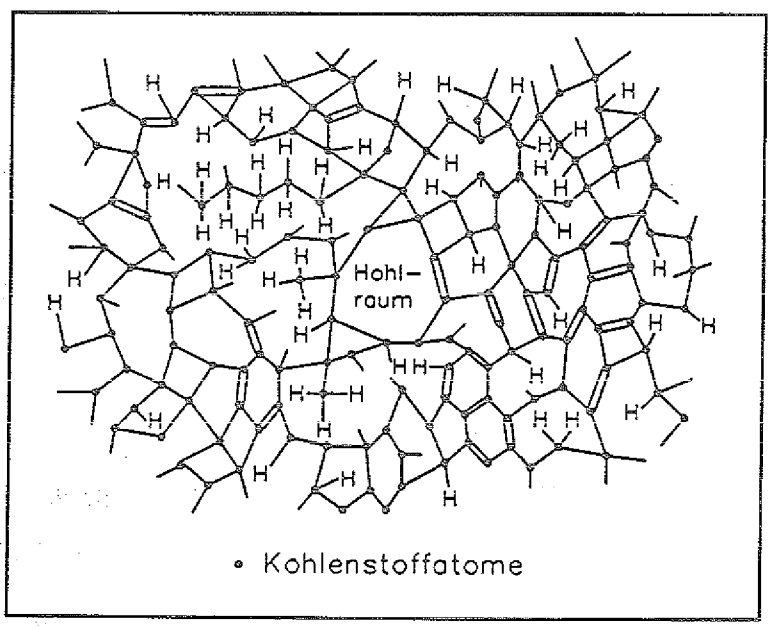


Abb. 2-2: Vereinfachte Darstellung der Struktur einer amorphen Kohlenstoffschicht. Entnommen aus /17/.

Eine Weiterentwicklung der a-C:H Schichten sind die amorphen, borhaltigen Kohlenstoffschichten (a-C/B:H Schichten) /18/. Sie sind 1988 mit dem Ziel entwickelt worden, den Anteil an niedrig-Z-Verunreinigungen einer karbonisierten Maschine weiter zu reduzieren. Der Boranteil in der Schicht verringert die chemische Erosion; speziell die Bildung von Kohlenwasserstoffen CH_x. Zusätzlich verringert die Getterwirkung von Bor auf Sauerstoff den Sauerstoffanteil der Verunreinigungen im Plasma.

Die a-C/B:H Schichten werden ähnlich den Karbonisierungsschichten plasmachemisch abgeschieden. Als Prozeßgas wird eine Mischung aus Methan, Diboran und Helium verwendet. Eine typische Zusammensetzung ist 10% CH_4 + 10% B_2H_6 + 80% He. Die Verwendung des giftigen und explosiven Diborans erfordert allerdings besondere Sicherheitsmaßnahmen während des Borierungsprozesses.

Abhängig vom Verhältnis Methan/Diboran beträgt die Wasserstoffkonzentration H/(B+C) = 0,3-0,4. Das typische B/C Verhältnis liegt bei 0,5-1. Abb.2-3 zeigt ein mit Auger-Elektronen-Spektroskopie (AES) aufgenommenes Tiefenprofil einer TEXTOR Probe.

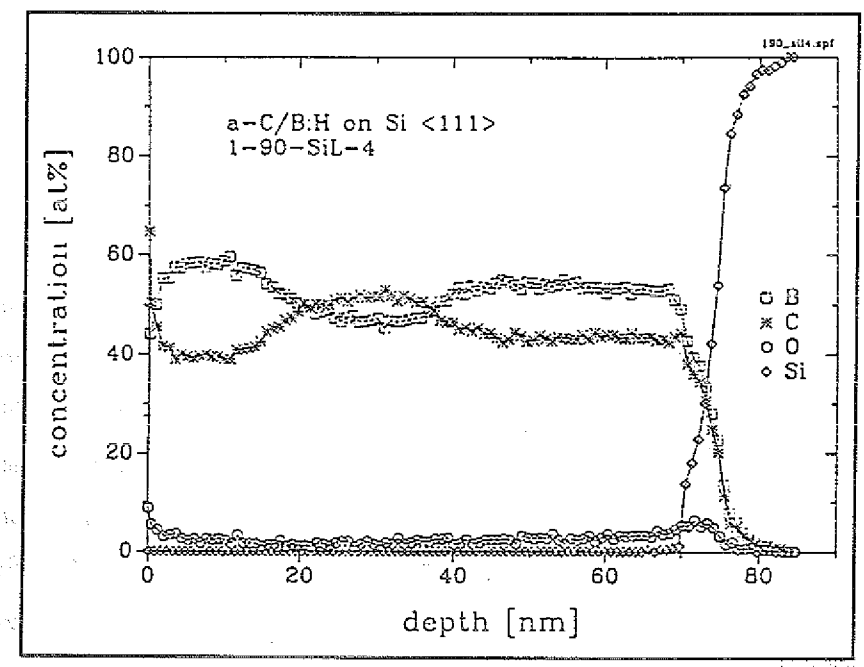


Abb. 2-3: AES-Tiefenprofil einer borierten Si-Probe /19/.

2.2 Physikalische Zerstäubung

Wie in der Einleitung erwähnt, spielt das Verständnis der Zerstäubungsprozesse des Wandmaterials in einem Tokamak eine wichtige Rolle auf dem Weg zur Kontrolle der Verunreinigungen und damit zur Entwicklung eines Fusionsreaktors. In Fusionsexperimenten werden die Wände, die mit dem Plasma in Kontakt stehen, durch elektromagnetische Strahlung und durch auftreffende Teilchen belastet. Dabei handelt es sich um Ionen, Neutralteilchen, Elektronen sowie Neutronen.

Im folgenden sollen die physikalischen Prozesse, die durch energiereiche Neutralteilchen oder Ionen hervorgerufen werden, beschrieben werden, da sie maßgeblich zur Erzeugung der Verunreinigungen beitragen.

Treffen energiereiche Ionen oder Neutralteilchen auf eine Festkörperoberfläche, so werden sie entweder reflektiert oder dringen in den Festkörper ein. Beim Eindringen der Teilchen in den Festkörper stoßen sie mit den Gitteratomen zusammen und übertragen auf diese einen Teil ihrer Energie und ihres Impulses. Aufgrund der Impulsübertragung führen diese elastischen Stöße mit den Gitteratomen zu einer Richtungsänderung der Flugbahn. Nachdem die eindringenden Teilchen ihre Energie auf den Festkörper übertragen haben, kommen sie im Festkörper zur Ruhe, d.h. sie werden in den Festkörper implantiert.

Ist die übertragene Energie so groß, daß die Gitteratome ihre Plätze verlassen, so können diese Atome dann mit weiteren Gitteratomen zusammenstoßen, die dann wiederum Atome von ihren Gitterplätzen lösen können, und so weiter. Dies führt zur Ausbildung einer "Stoßkaskade".

Die Implantation von Atomen und die Versetzung der Gitteratome führt zu einer Änderung der physikalischen Struktur des Festkörpers (Strahlenschäden) wie z. B. der Bildung von Fehlstellen.

Angestoßene Atome, die in Richtung auf die Festkörperoberfläche zu gestreut werden, können diese verlassen, wenn ihre Energie ausreicht, das Oberflächenpotential zu überwinden. Dieser Prozeß wird als "physikalische Zerstäubung" bezeichnet.

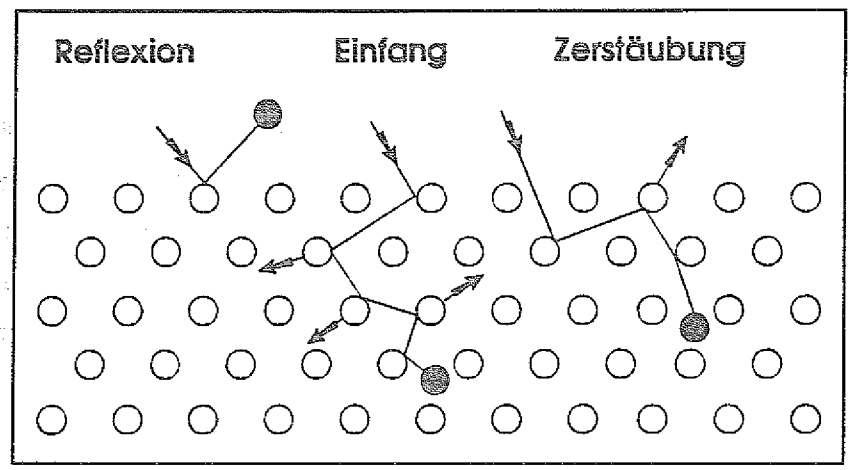


Abb.2-4: Veranschaulichung verschiedener Wechselwirkungsprozesse energiereicher Ionen oder Neutralteilchen mit einer Festkörperoberfläche.

Physikalische Zerstäubungsprozesse lassen sich durch eine Analyse des Impuls- und Energieübertrages beschreiben. So überträgt ein einfallendes Atom 1 mit der Energie E auf ein ruhendes Atom 2 bei einem zentralen Stoß maximal die Energie:

$$T_M = \frac{4m_1 \cdot m_2}{(m_1 + m_2)^2} E = \gamma \cdot E \qquad (2.1)$$

m_1 und m_2 bezeichnen die entsprechenden Massen der Teilchen, γ den "Energieübertragungsfaktor".

Die Oberflächenatome eines Festkörpers werden durch Kräfte an die Gitterstruktur gebunden. Das heißt, es existiert ein Potential, welches versucht, das Atom an den Festkörper zu binden. Das einfachste Modell, das die Bindung eines Oberflächenatoms an den Festkörper beschreibt, ist ein überall auf der Oberfläche konstantes (planares) Oberflächenpotential U_s. Dieses Potential läßt sich so interpretieren, daß das Atom zum Verlassen der Oberfläche eine Arbeit leisten muß, die der Sublimations- oder Oberflächenbindungsenergie des Festkörpers entspricht.

Aufgrund der Oberflächenbindungsenergie U_s gibt es für die physikalische Zerstäubung eine Schwellenenergie E_{th}, unterhalb welcher keine Zerstäubung auftritt:

$$E_{th} = U_s [\gamma (1-\gamma)]^{-1} \quad . \tag{2.2}$$

Dies folgt aus der Überlegung, daß bei nahezu senkrechtem Einfall des Projektils zwei Stöße notwendig sind, damit die für das Verlassen des Oberflächenatoms notwendige Impulsumkehr möglich ist. Einmal muß das Projektil an einem tiefer liegenden Atom reflektiert werden und anschließend mit einem Oberflächenatom stoßen (siehe auch Abb. 2-4). Bei der Reflexion verliert das Projektil die Energie $\gamma \cdot E$ (zentraler Stoß), das heißt, es bleibt die Energie $E' = (1-\gamma)E$. Bei dem anschließenden Stoß mit dem Oberflächenatom kann maximal die Energie $\gamma \cdot E'$ auf das Oberflächenatom übertragen werden. Der gesamte Energieübertrag ist dann $\gamma(1-\gamma)E$ und muß größer sein als das Oberflächenpotential U_s, wenn das Oberflächenatom den Festkörper verlassen soll.

Für den Fall der Selbstzerstäubung ($m_1 = m_2$) nimmt der Energieübertragungsfaktor seinen Maximalwert an.

Die Oberflächenbindungsenergien der einzelnen Elemente liegen zwischen 0,8 eV (Cs) und 8,69 eV (W).

Eine ausführliche Beschreibung der linearen Stoßkaskaden ist bei P. Sigmund in /20/ zu finden. Die quantitative Beschreibung der physikalischen Zerstäubung benuzt die Definition der Zerstäubungsausbeute Y:

$$Y = \frac{\textit{Anzahl der emittierten Atome}}{\textit{Anzahl der einfallenden Ionen}} \tag{2.3}$$

bezogen auf gleiche Flächen- und Zeiteinheiten. Dabei handelt es sich um die absolute Zerstäubungsausbeute, d. h., die abgestäubten Atome werden unabhängig von der Emissionsrichtung und der Geschwindigkeit erfaßt. Die Zerstäubungsausbeute hängt neben der Oberflächenbindungsenergie des Targetmaterials stark von der Ionensorte, mit der zerstäubt wird, deren Energie und Einfallswinkel ab. Die Zerstäubungsausbeute

für zahlreiche Elemente bei Beschuß mit verschiedenen monoenergetischen Ionen wie z. B. H, He und Ar ist in /21-23/ zu finden. Die Abbildung 2-5 zeigt die Energieabhängigkeit der Zerstäubungsausbeute von Kohlenstoff (Graphit) bei Beschuß mit Argonionen.

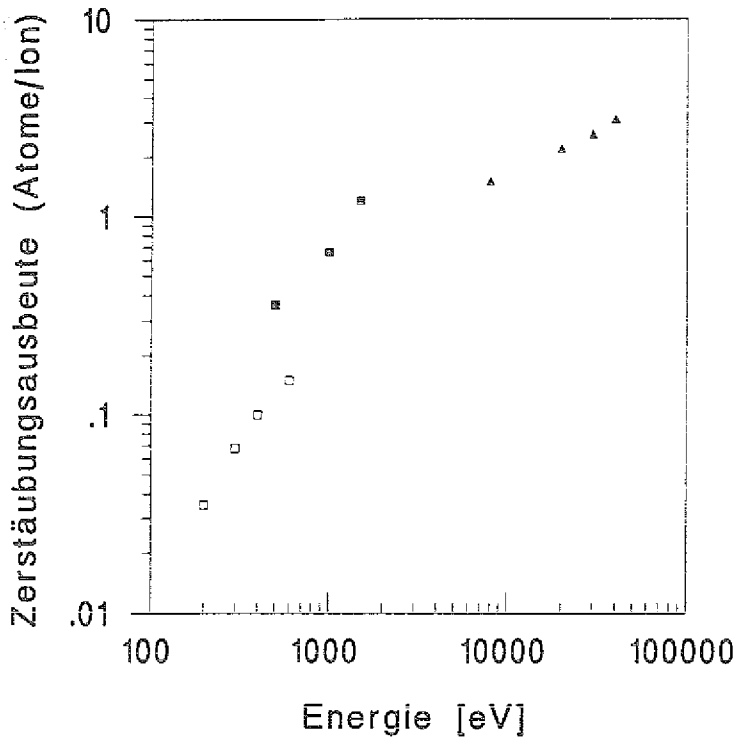


Abb. 2-5: Zerstäubungsausbeute von Kohlenstoff bei Beschuß mit Ar-Ionen /21,23/.

Für die Energie- und Winkelverteilung der abgestäubten Atome leitete M. W. Thompson in /24/ unter der Voraussetzung des linearen Stoßkaskadenmodells und der Einschränkung, daß die Energie der einfallenden Ionen << 200 keV ist (um Elektronenanregungsprozesse auszuschließen), folgende Beziehung her:

$$\Phi(E,\vartheta)\,dE\,d\Omega \sim \frac{E}{(E+U_s)^3}\cos\vartheta\,dE\,d\Omega \qquad (2.4)$$

Hierbei bedeutet E die Energie der abgestäubten Atome; ϑ ist der Winkel der emittierten Teilchen bezogen auf die Oberflächennormale; Ω ist der Raumwinkel und U_s die Sublimationsenergie des zerstäubten Materials.

Diese "Thompson-Verteilung" ist in vielen Zerstäubungsexperimenten gefunden worden

/25-32/, jedoch treten oft auch Abweichungen auf, insbesondere bei kleinen Ionenenergien /33/.

Daß die Winkelverteilung der abgestäubten Teilchen einer Kosinusverteilung folgt, ist eine direkte Folge der Ausbildung isotroper Stoßkaskaden. Bei schrägem Einfall der Ionen erfolgt jedoch insbesondere bei leichten Projektilen eine verstärkte Emission in Richtung des Reflexionswinkels. Die Thompson-Verteilung ist unabhängig von der Energie und Masse der einfallenden Ionen. Die Energieverteilung der abgestäubten Atome hat ihr Maximum bei $U_s/2$ und fällt bei höheren Energien wie $1/E^2$ ab bis hin zu der maximal übertragbaren Energie γE.

Die Abb. 2-6 zeigt die nach Thompson zu erwartende Energieverteilung abgestäubter Kohlenstoffatome aus Graphit mit U_s=7,4 eV.

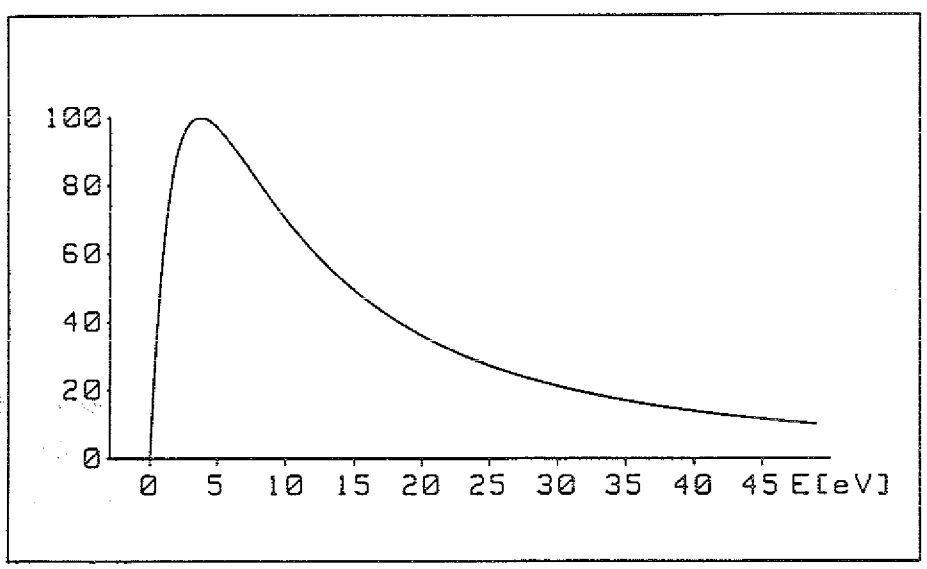


Abb.2-6: Energieverteilung der durch physikalische Zerstäubung freigesetzten C-Atome aus Graphit mit U_s=7,4 eV.

Wie Abb. 2-6 zu entnehmen ist, verlassen die abgestäubten Kohlenstoffatome die Targetoberfläche mit typischen Energien von einigen eV; damit sind diese in ihrer Mehrzahl erheblich schneller als die durch Verdampfung freigesetzten Atome.

Die durch Stöße übertragene Energie ist erheblich größer als die thermische Energie des Festkörpers. Daher ist die physikalische Zerstäubung von der Targettemperatur weitgehend unabhängig.

Die oben beschriebene Thompson-Verteilung läßt sich mit Hilfe von $E = mv^2/2$ in eine reine Geschwindigkeitsverteilung umschreiben:

$$n(v)\,dv \sim \frac{v^2}{(v^2 + v_s^2)^3}\,dv \quad . \tag{2.5}$$

v ist hier die Geschwindigkeit des abgestäubten Atoms, v_s ist mit der Masse und der Sublimationsenergie U_s über die Beziehung

$$U_s = \frac{1}{2} m v_s^2 \tag{2.6}$$

verknüpft.

Die von Thompson abgeleitete Gleichung 2.4 beschreibt die Verhältnisse in großem Abstand von einer Quelle vernachlässigbarer Ausdehnung. Die Zerstäubungsmessungen erfolgen aber vor einer ausgedehnten, kreisförmigen Probe. Um die Targetgeometrie bei den Zerstäubungsmessungen zu berücksichtigen, wird die Thompson-Verteilung auf Zylindergeometrie umgeschrieben.

Unter der Voraussetzung, daß ein homogener Ionenstrahl senkrecht auf eine kreisförmige Probe mit dem Durchmesser 2R trifft, ergibt sich am Meßort B, der sich im Abstand z von der Targetoberfläche auf der Symmetrieachse des Targets befindet, nach /26/ folgende Verteilung der Atome mit senkrechter Geschwindigkeit v_z (Laserstrahl ebenfalls senktrecht zur Targetoberfläche):

$$f(v_z)\,dv_z \sim ([1 + (v_z/v_s)^2]^{-2} - (1 + [1 + (R/z)^2]\,(v_z/v_s)^2)^{-2} \tag{2.7}$$

mit

$$v_s = \sqrt{\frac{2\,U_s}{M}} \tag{2.8}$$

Die Oberflächenenergie U_s ist der einzige freie Parameter. Er wird zur Anpassung des theoretischen Profiles an die Meßpunkte benutzt.

Bei einem Probendurchmesser von 2R = 36 mm und einem mittleren Abstand des Meßvolumens von z = 25 mm von der Targetoberflache ergibt sich für unsere Messungen ein R/z von 0,7.

Durch die Integration über alle Teilchengeschwindigkeiten erhält man die Teilchendichte am Meßort

$$n(z) = n(0)\,(1 - \frac{1}{\sqrt{1 + (R/z)^2}}) \tag{2.9}$$

Umgekehrt läßt sich mit der durch laserinduzierter Fluoreszenz am Meßort z gemessenen Dichte n(z) die entsprechende Atomdichte an der Targetoberflache n(0) berechnen, die zur Bestimmung der Zerstäubungsausbeute benötigt wird.

Die mittlere Geschwindigkeit in z-Richtung läßt sich aus Gleichung 2.10 bestimmen.

$$<v_z> = \int_{-\infty}^{+\infty} v_z f(v_z)\, dv_z \tag{2.10}$$

Die mittlere Geschwindigkeit an der Probenoberfläche (z=0) ergibt sich zu:

$$<v_z(0)> = \int_{-\infty}^{+\infty} v_z f(v_z)\, dv_z \;|_{z=0} \tag{2.11}$$

$$<v_z(0)> = \frac{2 v_s}{\pi} \tag{2.12}$$

Die Gesamtflußdichte der von der Targetoberfläche abgestäubten Teilchen erhält man aus

$$\Phi(0) = n(0) <v_z(0)> \tag{2.13}$$

Die Messung der Teilchengeschwindigkeiten basiert auf der Dopplerverschiebung der Resonanzwellenlänge λ_0 aufgrund der Bewegung der Teilchen. Mit Hilfe der Relationen

$$\lambda - \lambda_0 = \frac{v_z \lambda_0}{c} \tag{2.14}$$

und

$$\Delta\lambda_s = \frac{v_s \lambda_0}{c} \tag{2.15}$$

läßt sich die Geschwindigkeitsverteilung $f(v_z)$ auf ein spektrales Thompson-Profil $L(\lambda-\lambda_0)$ umschreiben

$$L(\lambda-\lambda_0) = \frac{4}{\pi \Delta \lambda_s} \left(1 - \frac{1}{\sqrt{1 + (R/z)^2}}\right)^{-1}$$

$$\times \left(\left[1 + \frac{(\lambda-\lambda_0)^2}{(\Delta\lambda_s)^2}\right]^{-2} - \left[1 + \left[1 + (R/z)^2\right] \frac{(\lambda-\lambda_0)^2}{(\Delta\lambda_s)^2}\right]^{-2}\right) \tag{2.16}$$

Aus der Faltung des spektralen Thompson-Profiles $L(\lambda-\lambda_0)$ mit dem spektralen Laserprofil (Gauß-Profil) läßt sich dann das normierte Spektralprofil berechnen, welches mit dem gemessenen spektralen Verlauf zu vergleichen ist.

Alle gemessenen spektralen Profile der durch den Zerstäubungsprozeß freigesetzten Atome, wurden mit diesen "normierten Spektralprofilen" verglichen. Anschließend wurde aus dem einzigen freien Parameter $\Delta\lambda_s$ ein Wert für die Oberflächenenergie abgeleitet.

2.3 Laserinduzierte Fluoreszenz (LIF)

Der Nachweis der durch physikalische Zerstäubung freigesetzten Atome erfolgt mittels laserinduzierter Fluoreszenz. Im folgenden Kapitel wird diese Methode beschrieben, soweit sie für das Verständnis der durchgeführten Experimente notwendig ist. Eine ausführliche Beschreibung der theoretischen Grundlagen ist in /34/ zu finden.

Die zu untersuchenden neutralen Atome werden durch eine Strahlungsquelle (Laser), der auf die entsprechende Resonanzwellenlänge abgestimmt ist, angeregt und strahlen dann Fluoreszenzlicht aus. Ein Teil dieses Fluoreszenzlichts kann auf einen Detektor abgebildet und das entsprechende Signal (meistens eine Spannung) gemessen werden. Im folgenden soll die Abhängigkeit des Fluoreszenzsignals von der Atomdichte und der Laserintensität in einem vereinfachten (aber in guter Näherung gültigen) Modell beschrieben werden. Dabei wird vorausgesetzt, daß:

- die anregende Strahlung isotrop und nicht polarisiert ist
- die Laserleistungsdichte spektral homogen ist
- die Absorptionslinien optisch dünn sind
- die Atome das Streuvolumen nicht vor der Emission verlassen
- das durch die Pumpstrahlung bevölkerte Niveau nicht durch Stoßprozesse mehrheitlich entvölkert wird.

Für den einfachsten Fall wird das Termschema des Atoms auf ein zwei-Niveausystem reduziert (Abb. 2-7).

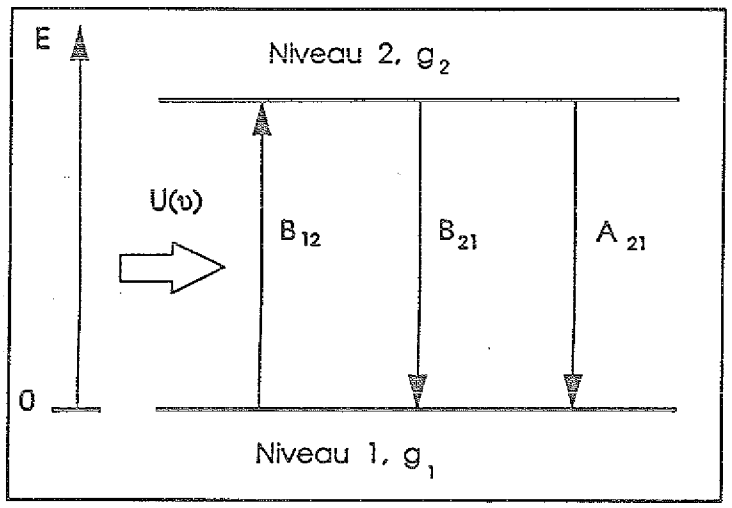


Abb. 2-7: Schematische Darstellung eines zwei-Niveausystems in einem homogenen Strahlungsfeld.

Durch das äußere homogene Strahlungsfeld U(ν) geht das Atom aus dem Grundzustand N_1 in das angeregte Niveau N_2 über. Dieser Vorgang, die Absorption eines Photons, wird durch den Einsteinkoeffizienten der Absorption B_{12} gegeben. Die Emission eines Lichtquants durch spontane Emission, beschrieben durch A_{21}, oder induzierte Emission, beschrieben durch B_{21}, bringt das Atom in den Grundzustand zurück. Die statistischen Gewichte der beiden Niveaus werden durch g_1 und g_2 beschrieben. Die Einsteinkoeffizienten /35/ erfüllen die Gleichungen:

$$g_1 B_{12} = g_2 B_{21} = g_2 A_{21} \frac{c^3}{8 \pi h \nu^3} \tag{2.17}$$

Für die zeitliche Änderung der Besetzungsdichte n_2 im angeregten Niveau 2 läßt sich eine einfache Ratengleichung aufstellen:

$$\frac{dn_2}{dt} = U(\nu)\,(B_{12} n_1 - B_{21} n_2) - A_{21} n_2 \tag{2.18}$$

in der n_1 die Besetzungsdichte des Grundzustandes bezeichnet.

Diese Differentialgleichung läßt sich für einen rechteckförmigen Laserpuls der Länge τ_{Las} mit den Nebenbedingungen:

$$n_2(t=0) = 0 \tag{2.20}$$

$$n = const. \tag{2.21}$$

$$n = n_1(t) + n_2(t) \tag{2.22}$$

lösen:

für Zeiten $0 \leq t \leq \tau_{Las}$ erhält man für die Besetzungsdichte im oberen Zustand

$$n_2(t) = \frac{n g_2}{g_1 + g_2} \frac{S}{1+S} \left(1 - e^{-(1+S)A_{21}t}\right) \tag{2.23}$$

und für Zeiten $t \geq \tau_{Las}$

$$n_2(t) = n_2(\tau_{Las})\, e^{A_{21}(\tau_{Las}-t)} \quad . \tag{2.24}$$

S ist eine Abkürzung für den "Sättigungsparameter" der Laserstrahlung:

$$S = \frac{U(\nu)\ (B_{12}+B_{21})}{A_{21}} = \frac{U(\nu)}{U_0(\nu)} \tag{2.25}$$

mit

$$U_0(\nu) = \frac{A_{21}}{B_{12} + B_{21}} \tag{2.26}$$

Aus praktischen Gründen ist es vorteilhaft, den Sättigungsparameter nicht auf die Frequenz- sondern auf die Wellenlängeneinheit zu beziehen:

$$S = \frac{\Phi_{Las}(\lambda,t)}{\Phi_0(\lambda)} \tag{2.27}$$

wobei $\Phi_{Las}(\lambda,t)$ die Leistungsdichte der Laserstrahlung bezogen auf eine Flächen- und Wellenlängeneinheit ist.

$\Phi_0(\lambda)$ ist die "Sättigungsleistungsdichte". Sie ist ein Maß dafür, wie stark die Laserleistungsdichte sein muß, um die Besetzungsdichte n_2 des angeregten Zustandes hinreichend zu sättigen, was man durch einen Wert von $S=1$ definieren kann. Dabei wird das angeregte Niveau zur Hälfte des nach Gleichung (2.23) möglichen Maximalwertes besetzt. Unter Zuhilfenahme der Einstein-Relationen (2.17) berechnet sich die Sättigungsleistungdichte zu:

$$\Phi_0(\lambda) = \frac{g_1}{g_1+g_2}\frac{8\pi hc^2}{\lambda^5} \quad . \tag{2.28}$$

Die Sättigungsleistungsdichte ist proportional zu λ^{-5} und zeigt damit eine sehr starke Abhängigkeit von der Wellenlänge. Im Vakuum UV wird es also nicht nur immer schwieriger, große Laserpulsenergien zu erzeugen, sondern die zur Fluoreszenz notwendige Sättigungsleistung steigt auch noch stark an. Gleichung 2.23 zeigt, daß es zweckmäßig ist, den Sättigungsparameter groß gegen eins zu wählen, wenn man den Teilchennachweis so empfindlich wie möglich machen will. Bei einer Eichung der Fluoreszenzsignale mit Rayleigh-Streuung ist jedoch der Fall $S << 1$ vorzuziehen, da dann die oft schwer zu ermittelnde Laserleistungsdichte nicht bekannt sein muß.

Die Sättigungsleistungsdichte wird durch die im Rahmen dieser Arbeit mittels nichtlinearer optischer Methoden erzeugte Laserleistung im Vakuum UV nicht erreicht. Dies wird deutlich, wenn man die Sättigungsleistungsdichte von 1,4 MW/cm^2nm zur Anregung von atomarem Wasserstoff bei L_α = 121,6 nm mit der verfügbaren Pumpleistung von etwa 100 kW/cm^2nm (100 W Laserenergie, Spektralbreite der Laserstrahlung ca. 1 pm, Querschnittsfläche des Streuvolumens 1 cm^2) vergleicht. Bei Messungen im UV (250 nm) muß die Laserleistung durch Quarzfilter abgeschwächt werden. Für die durchgeführten Messungen kann man daher davon ausgehen, daß die Teilchendichte im angeregten Zustand linear von der Gesamtdichte und der Laserleistung abhängig ist.

Dasselbe gilt für das Fluoreszenzsignal, dem unter der Voraussetzung, daß $A_{21}^{-1} << \tau_{Las}$ ist, ein gesamter Photonenfluß:

$$\int_0^\infty \Phi(\lambda,t)\,dt = \frac{g_2}{g_1 + g_2}\,\frac{S}{1 + S}\,n\,\tau_{Las} \tag{2.29}$$

entspricht.

Zur Bestimmung von absoluten Teilchendichten ist eine Kalibrierung der Fluoreszenzsignale erforderlich. Dies geschieht häufig durch Rayleigh-Streuung. Bei einem zwei-Niveausystem kann die Kalibrierung durch Rayleigh-Streuung bei derselben Wellenlänge wie die Fluoreszenzmessung erfolgen. Dies hat den Vorteil, daß dasselbe optische Detektionssystem verwendet werden kann, und so die Kalibrierung der gesamten Anordnung möglich ist. Zur Durchführung der Rayleigh-Streuung wird in die Vakuumanlage ein Gas mit definiertem Druck (z. B. 100 mbar Argon oder Stickstoff) eingelassen. Für das gemessene Rayleigh-Streusignal gilt dann:

$$S_R = A\,n_R\,\sigma_R\,P_R\,P_{Las}\ , \tag{2.30}$$

wobei

- A die optischen Eigenschaften des Detektionssystems (Raumwinkel des Beobachtungssystems, Transmissionsgrad von Fenstern, Reflexionsgrad von Spiegeln,...) enthält, und
- n_R die Füllgasdichte
- σ_R der Streuquerschnitt
- P_R der Polarisationsfaktor
- P_{Las} die auf die Strahlquerschnittsfläche bezogene Leistungsdichte

ist.

Der Polarisationsfaktor $P_R = (3/2)\sin^2\alpha$ /25/ beträgt 3/2 bei linear polarisiertem Laserstrahl und dem in unserer experimentellen Anordnung verwendetem Streuwinkel

von $\alpha = 90$ Grad.

Der Streuquerschnitt σ_R (pro Teilchen) kann aus dem Brechungsindex n berechnet werden /36/:

$$\sigma_R = \frac{8\pi^3}{3n_R^2} \frac{(n^2-1)^2}{\lambda^4} \quad . \tag{2.31}$$

Der Brechungsindex n für Argon kann z. B. aus der Tabelle von Chashchina et. al. /37/ entnommen werden.

Die nach Gl. 2.31 berechneten Werte für den Streuquerschnitt σ_R betragen:

λ_0 = 121,6 nm	$\sigma_R(121{,}6) = 5{,}4 \cdot 10^{-24}$ cm^2	(Argon)
λ_0 = 127,7 nm	$\sigma_R(127{,}7) = 3{,}5 \cdot 10^{-24}$ cm^2	(Argon)
λ_0 = 249,7 nm	$\sigma_R(249{,}7) = 1{,}3 \cdot 10^{-25}$ cm^2	(Stickstoff)

Um das Fluoreszenzsignal mit dem Rayleigh-Streusignal zu vergleichen, ist es sinnvoll, dies in entsprechender Weise anzuschreiben:

$$S_F = A\, n_F\, \sigma_F\, P_F\, P_{Las} \tag{2.32}$$

wobei

A dieselben experimentellen Faktoren wie bei der Rayleigh-Streuung enthält,

n_F die zu bestimmende atomare Teilchendichte,

P_{Las} die Laserleistung,

σ_F der Wirkungsquerschnitt,

P_F der Polarisationsfaktor /38,39/ ist.

Der Herleitung von A. Unsöld /40/ folgend läßt sich die "quantenmechanische" Gesamtabsorption mit der klassischen Elektronentheorie (harmonischer Oszillator) verbinden.

Der Wirkungsquerschnitt entspricht der Absorption einer optisch dünnen Schicht mit Absorptionskoeffizient k_λ [m^{-1}].

$$\sigma_F = \frac{k_\lambda}{n_F} = \frac{1}{4\pi\varepsilon_0}\frac{e^2}{mc^2}\pi\lambda_0^2 f_{12} L(\lambda-\lambda_0) \tag{2.33}$$

mit

$\frac{1}{4\pi\varepsilon_0}\frac{e^2}{mc^2} = r_e$, dem klassischen Elektronenradius,

λ_0, der Linienmitte der Resonanzlinie,

$L(\lambda-\lambda_0)$, dem normierten Lininenprofil um λ_0,

f_{12}, der Oszillatorenstärke.

Die Form, für die bei den Zerstäubungsmessungen zu erwartende spektrale Verteilung $L(\lambda-\lambda_0)$, ist im Kapitel 2.2 (Gleichung 2.16) angegeben worden.

Aus dem Vergleich von Fluoreszenz- und Rayleigh-Streusignal erhält man die absolute Teilchendichte:

$$n_F = \frac{S_F\, n_R}{S_R}\,\frac{\sigma_R P_R}{\sigma_F P_F} \quad . \tag{2.34}$$

Eine Kalibrierung der Fluoreszenzsignale mittels Rayleigh-Streuung setzt gleiche experimentelle Bedingungen voraus. Es ist daher empfehlenswert, eine Kalibrierung durch Rayleigh-Streuung direkt im Anschluß an die Fluoreszenzmessungen durchzuführen. An dieser Stelle sei auch noch einmal daran erinnert, daß eine direkte Kalibrierung der Fluoreszenzsignale durch Rayleigh-Streuung nur für kleine Sättigungsparameter ($S << 1$) möglich ist, da nur unter diesen Bedingungen das Fluoreszenzsignal linear von Laserleistung abhängig ist.

3.Beschreibung der experimentellen Einrichtungen und der eingesetzten Methoden

3.1 Erzeugung der Pumpstrahlung

Zur Anregung der Atome wird schmalbandige, abstimmbare Strahlung benötigt, die sich auf die jeweilige Resonanzwellenlänge abstimmen läßt. Wegen ihres weiten Abstimmbereiches werden für Messungen mittels laserinduzierter Fluoreszenz bevorzugt Farbstofflaser eingesetzt. Für unsere Untersuchungen wird ein kommerzieller Farbstofflaser (FL 2002, Lambda Physik) verwendet, der durch einen Excimer-Laser (EMG 201, Lambda Physik) gepumpt wird. Der Excimer-Laser (XeCl) liefert bei 308 nm pro Puls mindestens 500 mJ. Der Farbstofflaser wird mit verschiedenen Farbstoffen betrieben, die je nach Wellenlängenbereich ausgewählt werden. Er liefert je nach Farbstoff zwischen 30-40 mJ. Die Pulslänge beträgt etwa 15 ns.

Der Einsatz von Laserfarbstoffen ist bis zu Wellenlängen von etwa 320 nm möglich. Da für unsere Untersuchungen kurzwelligere Laserstrahlung bis herab zu 121 nm benötigt wird, muß diese durch nichtlineare optische Methoden erzeugt werden. Für die vorliegende Untersuchung wurden folgende Methoden eingesetzt:

Frequenzverdopplung + Raman-Verschiebung (Variante 1)

Frequenzverdreifachung (Variante 2)

Frequenzverdopplung (Variante 3)

Je nach angestrebter Wellenlänge wurde die optimal erscheinende Methode eingesetzt.

Die Auswahl der Anregungswellenlängen der verschiedenen Atomsorten wird im Kapitel 4.1 begründet. Die spektroskopischen Daten der Übergänge und jeweils benutzte Methode zur Erzeugung der Pumpstrahlung sind im Anhang A zusammengefaßt.

Im folgenden sollen die physikalischen Grundlagen der eingesetzten nichtlinearen optischen Methoden kurz erläutert werden.

3.1.1 Frequenzverdopplung:

Die optische Frequenzverdopplung ist die am weitesten verbreitete Methode der nichtlinearen Optik. Eine Beschreibung der Grundlagen ist daher in fast jedem Lehrbuch über neuere Optik z. B. in /41/ zu finden, so daß hier auf eine Darstellung der Grundlagen verzichtet werden kann. Die optische Frequenzverdopplung erfolgt in anisotropen doppelbrechenden Kristallen mit ausgeprägter nichtlinearer Polarisierbarkeit (siehe Frequenzverdreifachung).

Die Leistung der frequenzverdoppelten Strahlung ergibt sich für parallele Strahlen nach Ref. /42/ zu:

$$P_{2\omega} \sim \frac{L \cdot P_{\omega}^{2}}{n_{ao}(2\omega)\, n_{o}^{2}(\omega)\, \lambda_{\omega} A} \frac{\sin^2 X}{X} \qquad (3.1)$$

wobei

- L die Länge des Lichtweges im Kristall
- P_{ω} die Laserleistung des Farbstofflasers (Grundwellenlänge)
- A die Querschnittsfläche der Strahlung im Kristall
- λ_{ω} die Wellenlänge des Farbstofflasers
- $n_{ao}(2\omega)$ und $n_0(\omega)$ die jeweiligen Brechzahlen
- $X := \{k(2\omega) - k(\omega)\}L/2$, k = Wellenzahl

bedeuten.

Aus Gleichung 3.1 geht hervor, daß die Leistung der zweiten Harmonischen proportional zum Quadrat der Leistung der einfallenden Welle und invers proportional zur Querschnittsfläche des Laserstrahls ist. In vielen Fällen fokussiert (Zylinderlinse) man daher den Primärstrahl in den Verdopplerkristall. In unserem Fall ist die Ausgangsleistung des Farbstofflasers so groß, daß der Laserstrahl eher etwas aufgeweitet werden muß, um den Kristall vor thermischer Zerstörung zu bewahren.

Verdopplerkristalle können von der Industrie bezogen werden. Für unsere Messungen wurde ein Beta-Bariumborat Kristall (β-BaB_2O_4), kurz BBO-Kristall, verwendet, mit dem effektive Frequenzverdopplung im Bereich von 205-320 nm möglich ist. Er liefert bei 250 nm Pulsenergien von 7 mJ, die ausreichend sind, um Sättigung der Borresonanzlinie zu erreichen.

3.1.2 Frequenzverdopplung + Raman-Verschiebung

Mit den bisher bekannten Frequenzverdopplerkristallen läßt sich aufgrund der starken Absorption keine Strahlung wesentlich unterhalb 200 nm erzeugen. Um tiefer ins Vakuum-UV vorzudringen, müssen andere oder zusätzliche Methoden eingesetzt werden. Speziell bei Verwendung eines BBO-Kristalls reicht die im UV erzeugte Leistung aus, die Raman-Schwelle in H_2 zu überwinden und durch Raman-Frequenzverschiebung weiter ins VUV vorzudringen. Bevor die Leistungsfähigkeit und Grenzen dieser Methode experimentell demonstriert werden, sollen zunächst die wesentlichen Merkmale des Raman-Effekts skizziert werden. Eine ausführliche Beschreibung des Raman-Effekts ist z. B. in /43,44/ zu finden.

Die stimulierte Ramanstreuung basiert auf der Anregung eines molekularen Systems durch einen Pumplaser der Frequenz ω_0 von einem Anfangszustand (Energie E_i) in einen virtuellen Zustand (Energie E_v). Unter der Voraussetzung, daß die Pumpintensität groß genug ist, erfolgt stimulierte Emission in einen tiefer liegenden Endzustand (Energie E_f) der Frequenz:

$$\omega_{-1} = \omega_0 - \frac{2\pi(E_f - E_i)}{k} = \omega_0 - \omega_{if} \tag{3.2}$$

Diese rot-verschobene Welle (erste Stokes-Komponente S_1) breitet sich mit der Pumpwelle aus. Durch einen vier-Wellen-Mischprozeß von Pumpwelle und Stokeswelle entsteht die blau-verschobene erste anti-Stokes Komponente

$$\omega_1 = 2\omega_0 - \omega_{-1} = \omega_0 + \omega_{if} \tag{3.3}$$

Durch wiederholte vier-Wellenmischung der Pumpwelle ω_0 mit der vorangehenden anti-Stokes-Linie ω_{n-1} und der ersten Stokes-Linie entstehen weitere blau-verschobene anti-Stokes Komponenten

$$\omega_n = \omega_0 + \omega_{n-1} - \omega_{-n} = \omega_0 + n \cdot \omega_{if} \tag{3.4}$$

mit

$$n = 2,3,4,\ldots \quad .$$

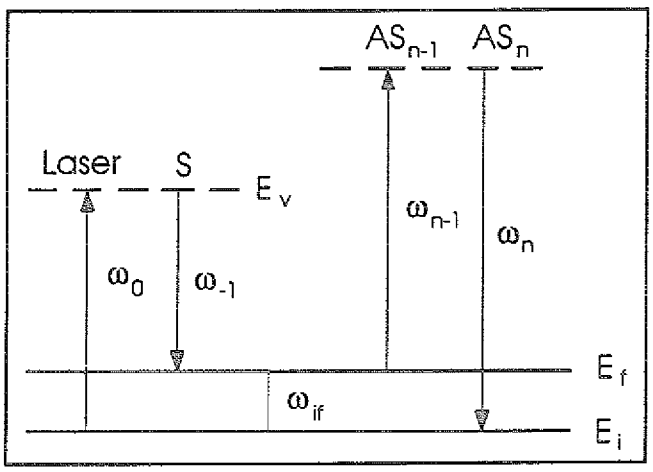


Abb. 3-1: Energieschema der Raman-Verschiebung für hohe anti-Stokes-Komponenten.

Zur VUV Erzeugung durch Raman-Verschiebung ist molekularer Wasserstoff H_2 besonders geeignet, da Wasserstoff bis etwa 110,8 nm transparent ist und von allen Gasen mit $\nu = \omega_{if}/2\pi c = 4155{,}25\ cm^{-1}$ die größte Raman-Verschiebung besitzt. Ausgehend von Laserstrahlung im Bereich von 230 nm (nach Frequenzverdopplung im BBO) sind zur Anregung von Bor bzw. Kohlenstoff bei 166 nm 4-anti-Stokes Schritte notwendig. Zur Anregung von Sauerstoff bei 130 nm werden 8-anti-Stokes und zur Anregung von Wasserstoff bei 121,6 nm 9-anti-Stokes Schritte benötigt. Die Abb. 3-2 verdeutlicht noch einmal diese Technik zur VUV-Erzeugung. Die VUV-Strahlung ist lückenlos und kontinuierlich abstimmbar, so daß jede Resonanzwellenlänge zwischen 230 und 120 nm aufgesucht werden kann.

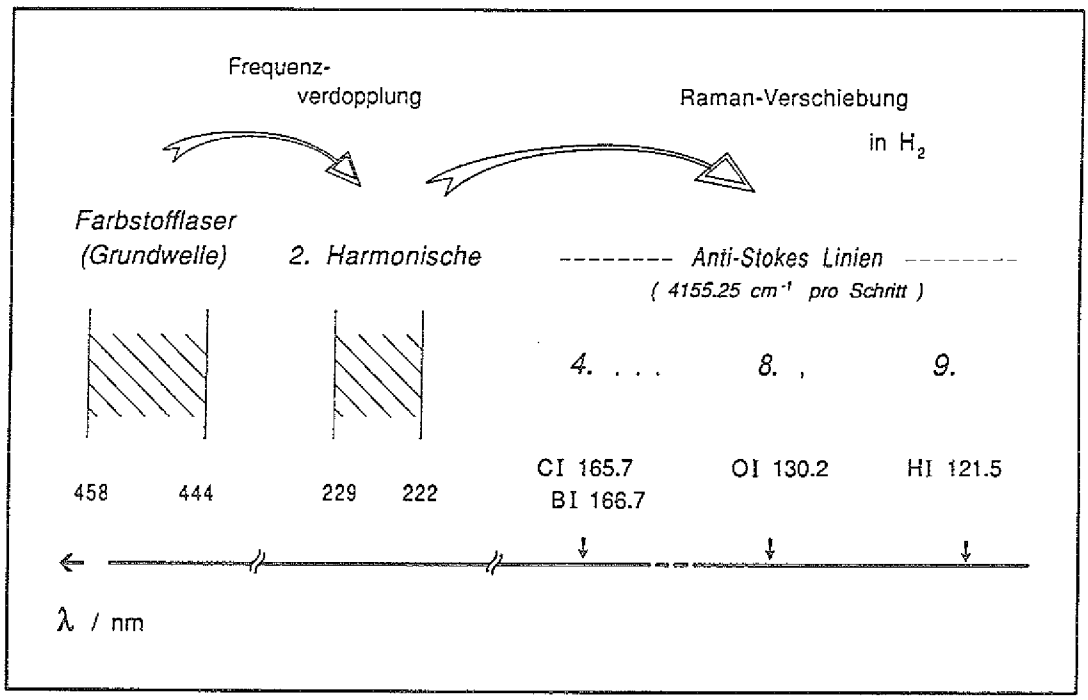


Abb.3-2: Schematische Darstellung zur Erzeugung von VUV-Strahlung durch Frequenzverdopplung und anschließende Raman-Verschiebung in H_2.

Die VUV-Leistung nimmt allerdings mit jedem Ramanschritt um etwa 70 % ab. Die bei 121,6 nm erzielte VUV-Leistung nach 9-anti-Stokes Schritten beträgt etwa 100 W.

Die anti-Stokes-Linien treten kegelförmig aus der Ramanzelle aus und müssen daher mit einer Linse kollimiert werden. In den meisten Fällen wird für Fluoreszenzmessungen nur eine bestimmte anti-Stokes-Linie benötigt. Um die Anregung nicht erwünschter Übergänge auszuschließen, müssen die einzelnen anti-Stokes-Linien z. B. durch ein Prisma spektral getrennt werden. Eine weitere Schwierigkeit dieser Methode liegt in der geringen Reproduzierbarkeit der erzeugten VUV-Leistung mit zunehmender anti-Stokes Ordnung. Eine Normierung der Fluoreszenzsignale durch ein Lasermonitorsignal ist daher erforderlich.

Die experimentellen Einzelheiten werden im Kapitel 3.2 ausführlich beschrieben. Im Anhang B wird die Linienbreite der anti-Stokes-Linien diskutiert.

3.1.3 Frequenzverdreifachung

Um im tiefen VUV Strahlung bei bestimmten Wellenlängen zu erzeugen, bietet sich die Frequenzverdreifachung in einem Edelgasgemisch an /45/.

Zum Verständnis dieses Prozesses benötigt man die Abhängigkeit der Polarisation P in einem optisch nichtlinearen Medium von der Feldstärke E:

$$P = \varepsilon_0(\chi^{(1)}E + \chi^{(2)}E^2 + \chi^{(3)}E^3 + ...) \quad . \tag{3.5}$$

Mit $\chi^{(n)}$ sind die dielektrischen Suszeptibilitäten der entsprechenden Ordnung bezeichnet. Die lineare Suszeptibilität $\chi^{(1)}$ beschreibt das normale Dispersions- und Absorptionsverhalten, die Suszeptibilitäten höherer Ordnung die nichtlinearen Effekte. Die Suszeptibilitäten sind im allgemeinen Tensoren. Beschränkt man sich bei der Beschreibung auf Gase, welche homogen und isotrop sind, ist eine skalare Darstellung möglich.

Im Gegensatz zur Frequenzverdopplung, die aufgrund der Suszeptibilität zweiter Ordnung $\chi^{(2)}$ in anisotropen (doppelbrechenden) Kristallen erfolgt, ist die Frequenzverdreifachung von der Suszeptibilität dritter Ordnung $\chi^{(3)}$ abhängig. In isotropen Medien verschwindet die Suszeptibilität zweiter Ordnung, so daß z. B.in Gasen eine Frequenzkonversion erst aufgrund der Suszeptibilität dritter Ordnung möglich ist. Eine derartige Konversion führt zu einer Frequenzverdreifachung $\omega_3=3\omega_1$. Zur Verstärkung der dritten Harmonischen durch konstruktive Interferenz muß die Phasenanpassungsbedingung erfüllt werden. Sie läßt sich durch folgende Gleichung beschreiben:

$$n(\omega)=n(3\omega) \quad . \tag{3.6}$$

Dies erreicht man in optisch isotropen Medien durch Ausnutzen der anomalen Dispersion in der Nähe von Absorptionslinien. Der Brechungsindex wird dabei durch ein

geeignetes Mischungsverhältnis zweier Gase eingestellt. Die Phasenanpassungsbedingung bei der Mischung zweier Gase (Gassorte 1 der Dichte N_1 und Brechungsindex n_1 sowie Gassorte 2 der Dichte N_2 und Brechungsindex n_2) ist in Abb. 3-3 schematisch dargestellt.

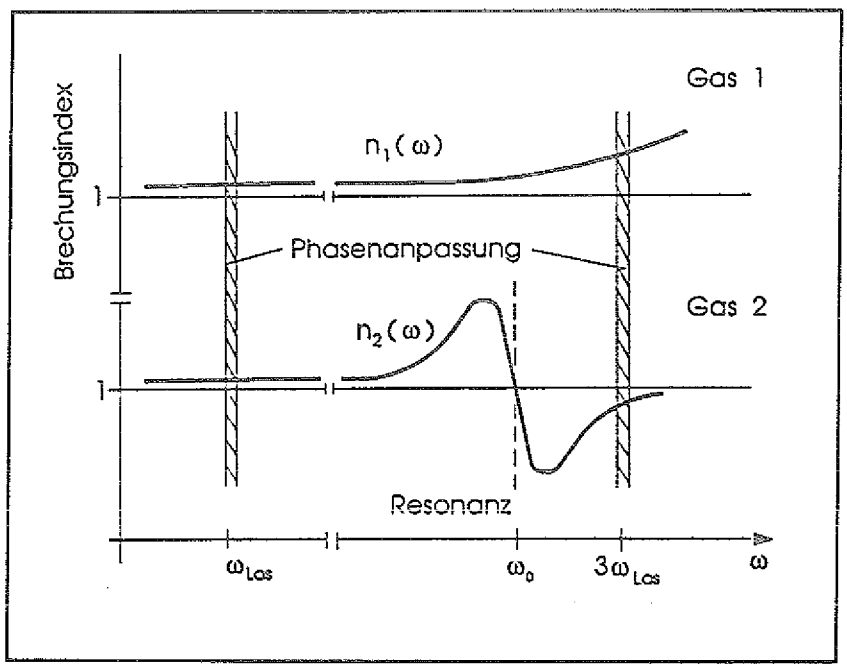


Abb. 3-3: Brechungsindex zweier verschiedener Gase als Funktion der Wellenlänge. Die anomale Dispersion des Gases 2 in der Nähe der Resonanz ω_0 kann zur Erfüllung der Phasenanpassungsbedingung zur Frequenzverdreifachung ausgenutzt werden. Dies wird durch den schraffierten Bereich angedeutet.

Für die Betrachtung der Dispersion eines Gases ist es sinnvoll, die makroskopische dielektrische Suszeptibilität $\chi^{(1)}$ auf die mikroskopische Polarisierbarbeit $\alpha^{(1)}$ des Atoms umzuschreiben:

$$\alpha^{(1)} = \frac{\chi^{(1)}}{N} \tag{3.7}$$

wobei N die Anzahldichte beschreibt.

Der Brechungsindex n ist mit der Polarisierbarkeit $\alpha^{(1)}$ über Gleichung 3.8 miteinander verknüpft /40/:

$$n^2 - 1 = N\,\alpha^{(1)} \tag{3.8}$$

Für Gase gilt in guter Näherung:

$$n^2 - 1 \approx 2(n-1) \tag{3.9}$$

Die Phasenanpassungsbedingung 3.6 wird dann bei der Mischung zweier Gase /46/ beschrieben durch:

$$N_1\,\alpha_1^{(1)}(3\omega) + N_2\,\alpha_2^{(1)}(3\omega) = N_1\,\alpha_1^{(1)}(\omega) + N_2\,\alpha_2^{(1)}(\omega) \tag{3.10}$$

Durch die Bedingung, daß $n(\omega) = n(3\omega)$ sein soll, ist die Frequenzverdreifachung auf einzelne Wellenlängengebiete begrenzt. Im Rahmen dieser Arbeit wird die Frequenzverdreifachung zur Anregung von Wasserstoff $L_\alpha = 121{,}6$ nm (Mischung aus Krypton/Argon) und Kohlenstoff bei 127,7 nm (Xenon/Argon) eingesetzt. Die Abstimmbreite und die erzeugten Leistungen sind in Abb. 3-4 und 3-5 dargestellt. Für eine detallierte Beschreibung der experimentellen Einzelheiten zur Frequenzverdreifachung wird auf Ref. /25/ verwiesen.

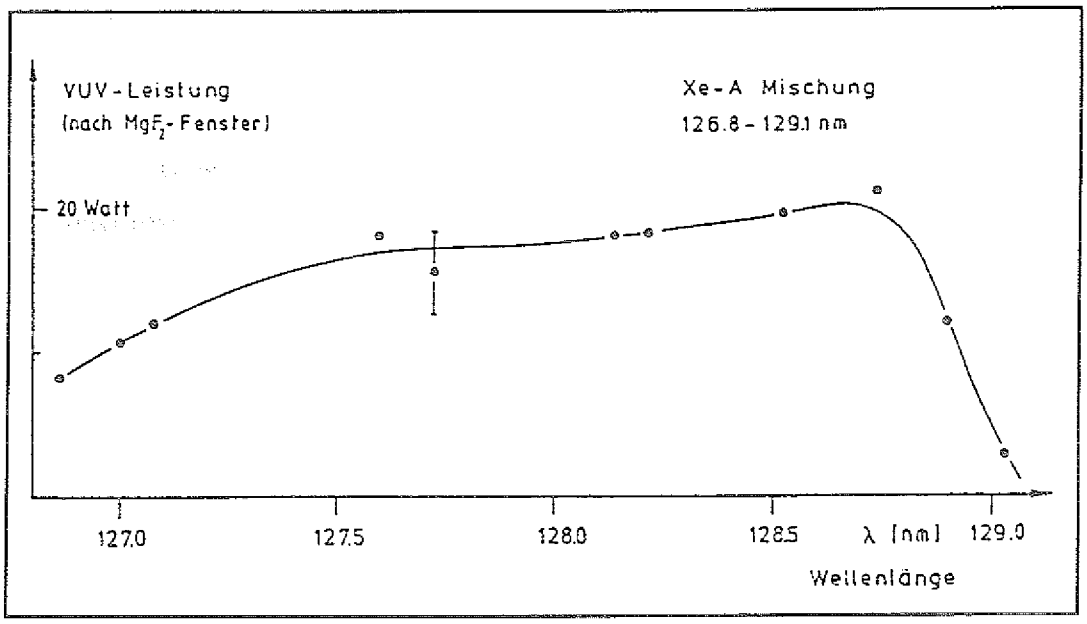


Abb.3-4: VUV-Leistung zwischen 127,0 und 129,0 nm als Funktion der Wellenlänge bei einem Xe/Ar Gemisch. Nach /25/.

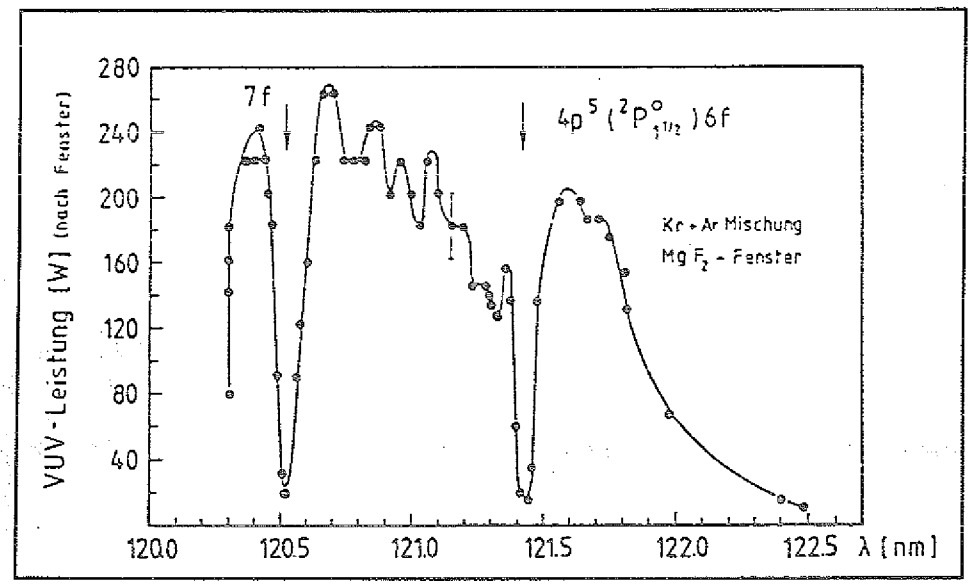


Abb. 3-5: VUV-Leistung zwischen 120,3 und 122,4 nm bei einem Kr/Ar-Gemisch. Die zwei Leistungseinbrüche ergeben sich durch Zwei-Photonenabsorptionslinien in Krypton. Nach /25/.

Im Gegensatz zur VUV-Erzeugung über stimulierte anti-Stokes Raman-Streuung, bei

welcher die Phasenanpassung durch die Ausbildung von Kegelförmigen Abstrahlcharakteristiken sich quasi von selbst einstellt, muß bei der Frequenzverdreifachung die Anpassung durch geeignete Gasmischungen herbeigeführt werden. Soll die Laserstrahlung über einen weiten Bereich abgestimmt und keine Einbuße bei der Effizienz hingenommen werden, so muß das Mischungsverhältnis der Gase angepaßt werden. Für unsere Messungen ist eine Änderung der Edelgasmischung nicht erforderlich. Allerdings ändert sich die Laserleistung beim Überstreichen des Abstimmbereichs, der zur Messung der Geschwindigkeitsverteilung notwendig ist, um bis zu einem Faktor zwei, so daß das Fluoreszenzsignal auf die anregenden Laserleistung normiert werden muß.

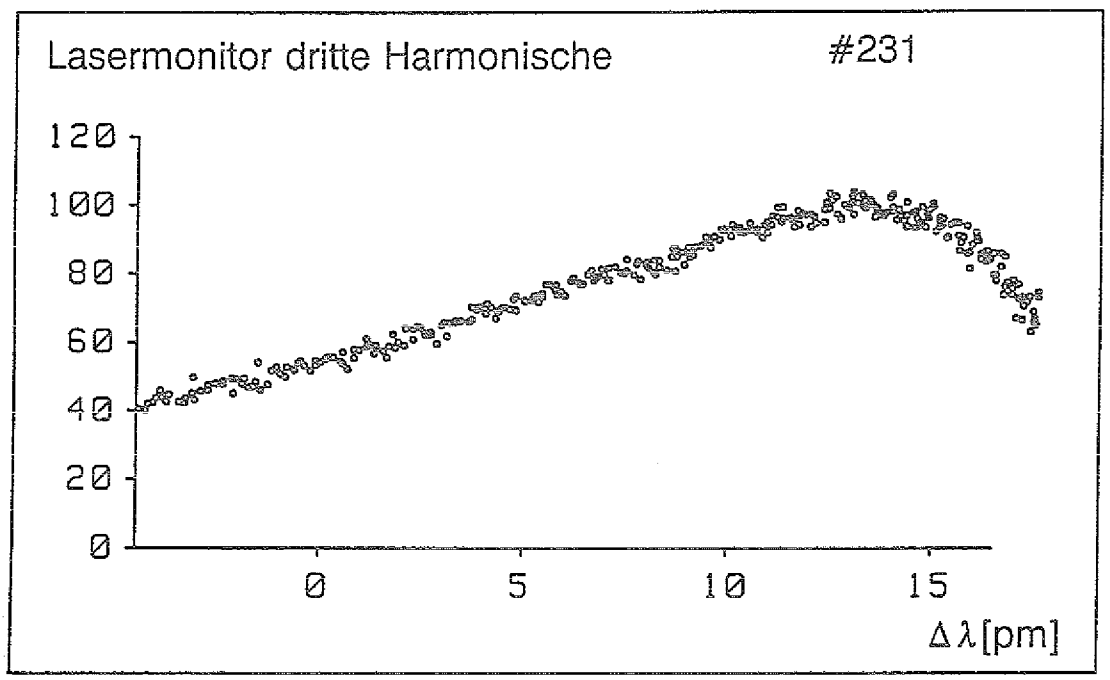


Abb. 3-6: Normierte Leistung der dritten Harmonischen bei 121,6 nm als Funktion der Wellenlänge (Abstimmbereich etwa 20 pm).

3.2 Varianten des experimentellen Aufbaus

In diesem Kapitel wird der Aufbau des Experimentes und die verschiedenen Anregungs-Varianten beschrieben. Zuerst soll die Variante 1 (Frequenzverdopplung + Raman-Verschiebung) beschrieben werden. In Abb. 3-7 sind die Komponenten, die bei den Messungen verwendet wurden, dargestellt. Als Laserfarbstoffe wurden Coumarin 47 bzw. Coumarin 2 verwendet.

Zur Erzeugung der Anregungsstrahlung wird die Farbstofflaserstrahlung ($\lambda = 460$ nm) zunächst in einem Beta-Bariumborat-Kritall (BBO) frequenzverdoppelt. Die Energie bei der zweiten Harmonischen beträgt bei optimaler Phasenanpassung im BBO-Kristall bei 230 nm etwa 7 mJ. Um durch stimulierte anti-Stokes-Ramanstreuung tiefer ins VUV vorzudringen, ist es unumgänglich, daß auch bei einer Änderung der Wellenlänge des Farbstofflasers z. B. zur Messung der Geschwindigkeitsverteilung die optimale Phasenanpassung durch "Nachdrehen" des BBO-Kristalls erhalten bleibt. Eine Wellenlängenänderung erfolgt durch die Druckänderung in der Gitterkammer des Farbstofflasers. Dadurch wird eine kontinuierliche Abstimmung der Farbstofflaserstrahlung ermöglicht. Der Druck in der Gitterkammer wird mit einem piezolektrischen Druckaufnehmer (Kistler, Typ 4043A2) gemessen. Die Druckänderung während der Messung beträgt bis zu einem bar. Der Verstärker der Kistlersonde liefert ein Spannungssignal von 5V/bar, welches zur Wellenlängenmessung verwendet wird.

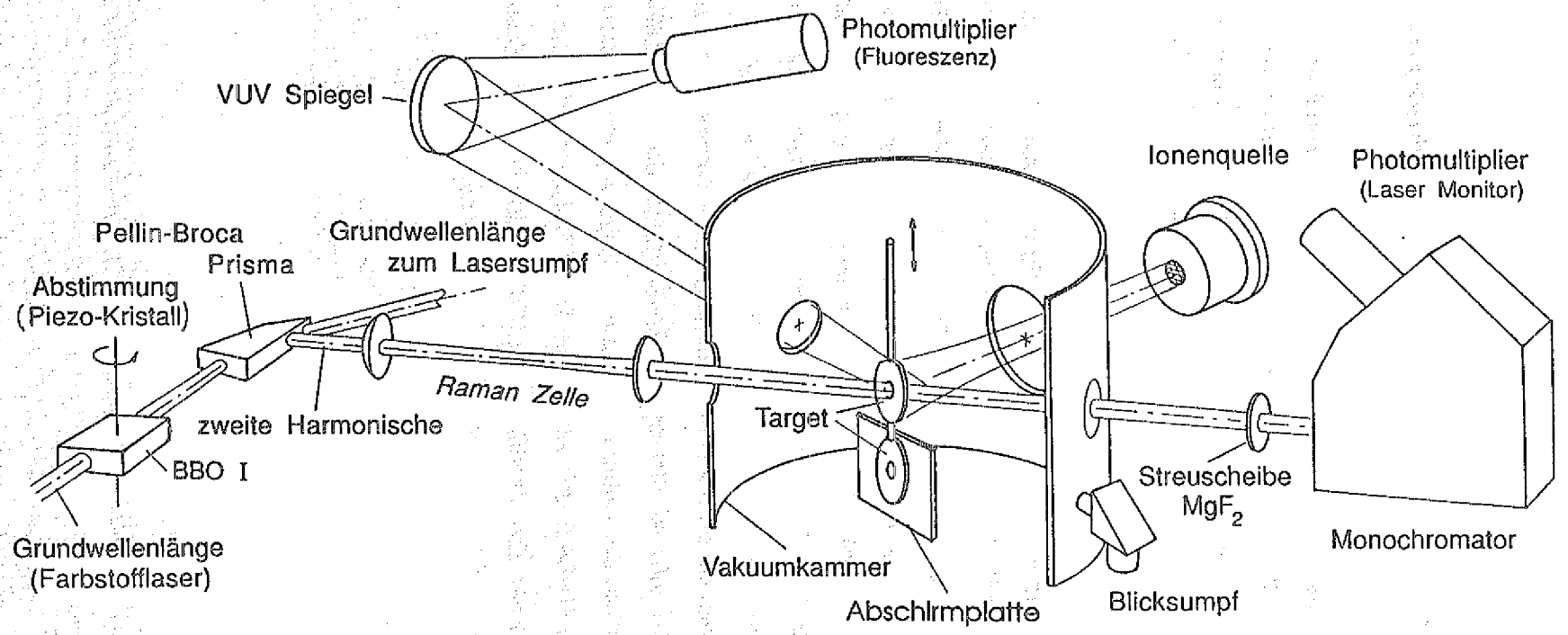


Abb. 3-7: Experimenteller Aufbau der Variante 1 (Frequenzverdopplung + Raman-Verschiebung).

Zur Abstimmung des Verdopplerkristalls ist im Farbstofflaser eine mechanische Abstimmung "von Hand" vorgesehen. Diese ist aber für unsere Messungen unzureichend. Um eine automatische Nachstimmung des Verdopplerkristalls zu erreichen, wurde an die Drehachse des Kristalls eine Piezo-Linearverstellung (Disk-Translator, Physik Instrumente Modell P-288) montiert. Der Stellweg beträgt 50 µm bei einer Spannung von +750 V. Dabei dreht sich der Kristall um etwa 0,15 Grad. Die Steuerung der Piezo-Linearverstellung erfolgt über einen Hochspannungsverstärker. Als Eingangssignal für den Hochspannungsverstärker wird, wie zur Wellenlängenbestimmung, das Ausgangssignal der Kistlersonde der Gitterkammer verwendet. Auf diese Weise wird eine direkte Kopplung zwischen Farbstofflaserwellenlänge und dem Drehwinkel des Verdopplerkristalls erreicht.

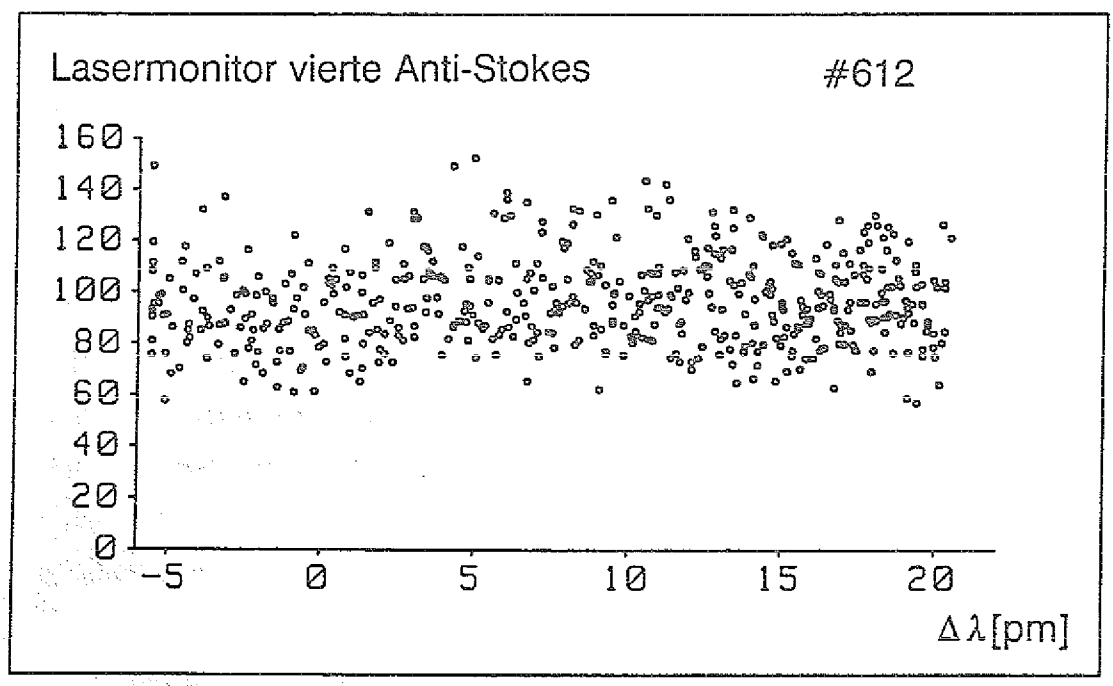


Abb.3-8: Normierte Laserleistung der vierten anti-Stokes-Linie bei 165 nm als Funktion der Wellenlänge (Abstimmung Piezo-Kristall).

Mit Hilfe eines Pellin-Broca-Prismas aus Suprasil wird die UV-Strahlung der zweiten Harmonischen von der Grundwellenlänge getrennt. Anschließend wird die UV-Strahlung mit einer Linse (f=40 cm, bei 500 nm) in eine mit Wasserstoff gefüllte Raman-Zelle (ℓ=60 cm) fokussiert. Der Wasserstoff wird im Mittelstück der Raman-Zelle durch flüssigen Stickstoff auf T=77 K gekühlt. Die besten Ergebnisse zur anti-Stokes-Erzeugung erhält man in der vorliegenden Situation bei einem Fülldruck von etwa

500 mbar. (Die Ergebnisse der Untersuchungen zur Druckabhängigkeit der Raman-Verschiebung sind im Anhang B zusammengefaßt).

Die aus der Raman-Zelle kegelförmig austretenden anti-Stokes-Linien werden mit einer MgF_2-Linse (f=50 cm bei λ=500 nm) kollimiert. Die einzelnen anti-Stokes-Linien werden für die Messungen nicht spektral zerlegt und treten daher gemeinsam in die Experimentierkammer ein. Der Nachweis der anti-Stokes-Linien erfolgt am Austritt aus der Vakuumkammer nach der spektralen Zerlegung durch einen 0,2 m VUV-Monochromator (Minuteman,Modell 302-VM) mit einem Photomultiplier (solar-blind) mit CsI-Photokathode.

In der Anfangsphase der Experimente war es nicht möglich, höhere als die vierte anti-Stokes-Linie bei 165 nm nachzuweisen. Dies lag vermutlich daran, daß die Divergenz der zweiten Harmonischen nicht ausreichte, die Phasenanpassungsbedingung für höhere anti-Stokes-Linien zu erfüllen. Aufgrund der Dimensionen des Kühlsystems der Raman-Zelle konnten aber keine kurzbrennweitigere Fokussierungslinse verwendet werden. Es wurde daher beschlossen, die Divergenz des Farbstofflasers zu vergrößern. Eine einfache Möglichkeit zur Änderung der Divergenz bietet die Verstellung des Teleskops zur Strahlaufweitung zwischen Vorverstärker und Hauptverstärker. Eine Reduzierung des Abstandes zwischen den Linsen mit f=-5 cm und f=15 cm von 10 cm auf 9 cm bewirkt einen virtuellen Fokuss 200 cm vor dem Verstärker, so daß der Durchmesser des frequenzverdoppelten Strahls vor dem Eintritt in die Raman-Zelle um einen Faktor zwei erhöht wird. Die Divergenz innerhalb der Raman-Zelle ändert sich um den gleichen Wert und beträgt etwa 10^{-2} rad. Diese Maßnahme ermöglichte den Nachweis von VUV-Stralung bis zur neunten anti-Stokes-Linie bei 121,6 nm. Auf die Frequenzverdopplung hat die Änderung der Divergenz praktisch keinen Einfluß. Wie schon erwähnt, nimmt die VUV-Leistung mit jedem Raman-Schritt ab. Die bei 121,6 nm erzielte VUV-Leistung beträgt nach neun anti-Stokes-Schritten etwa 100 Watt. Des weiteren nehmen die Fluktuationen der anti-Stokes-Linien von anti-Stokes-Schritt zu anti-Stokes-Schritt weiter zu. So fluktuiert die Laserleistung der achten anti-Stokes-Linie, wie in Abb. 3-9 gezeigt, um ±50 %. Daher müssen alle Meßkurven entsprechend verarbeitet werden.

Die Kühlung der Raman-Zelle auf 77 K verursacht einen "thermischen Prismen-Effekt",

der bewirkt, daß die Strahlung in den hohen anti-Stokes-Ordnungen nach unten verstärkt aus der Zelle austritt, wenn der H_2-Druck vergrößert wird. Dieser Effekt muß bei der Justierung der Raman-Zelle in Bezug auf die nachfolgende Abbildung berücksichtigt werden.

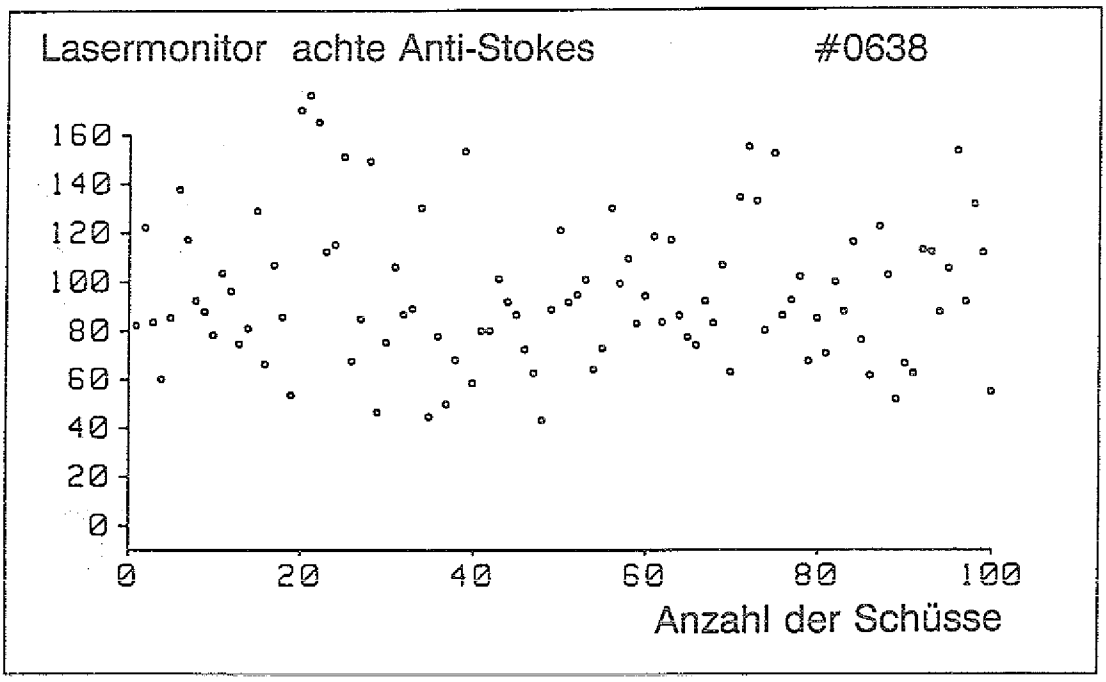


Abb.3-9: Reproduzierbarkeit der Energie der achten Anti-Stokes-Linie bei $\lambda = 130$ nm.

In Abb. 3-10 ist die Statistik der achten anti-Stokes-Linie noch einmal in einem Histogramm dargestellt. Dazu wurden 1000 Ereignisse ausgewertet.

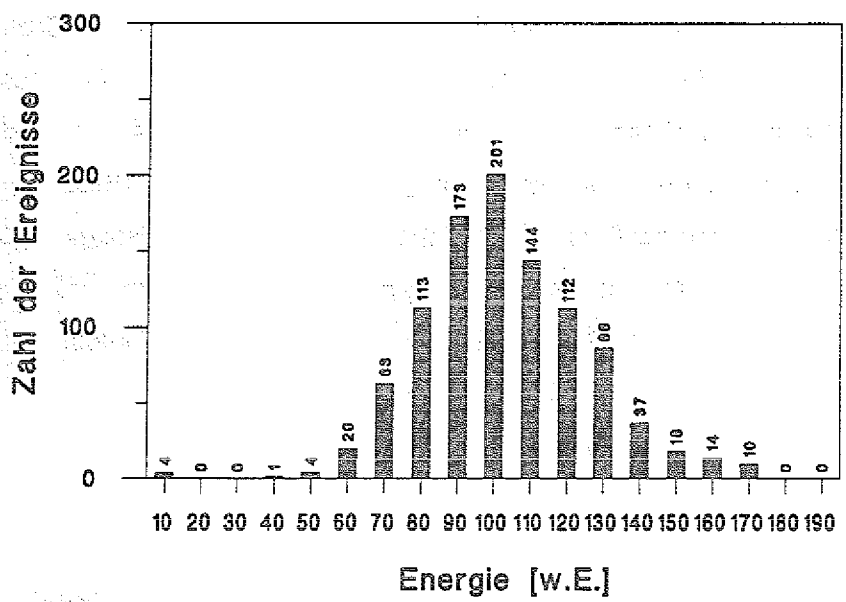


Abb.3-10: Histogramm zur Statistik der achten anti-Stokes-Linie bei 130 nm.

Zur Unterdrückung von Falschlicht befindet sich am Eintritt und Austritt der Vakuumkammer je eine Blende.

In der Vakuumkammer (Basisdruck $4 \cdot 10^{-7}$ mbar) befinden sich zwei Proben. Dabei handelt es sich um 1mm dicke Edelstahlscheiben mit einem Durchmesser von 36 mm. Ein Loch von 10 mm Durchmesser erlaubt den Durchtritt des Laserstrahls. Auf der der Ionenquelle zugewandten Seite befindet sich der etwa 100 nm dicke a-C:H Film. Die Proben sind gegenseitig elektrisch isoliert am Targethalter befestigt und über 50 Ω-Widerstände geerdet. Die über die Widerstände abfallende Spannung wird zur Messung des Gesamtionenstromes auf das Target benutzt. Unter dem unteren Target befindet sich ein Miniatur-Mantel Heizleiter (Philips, Modell SEI 10 50), der es erlaubt, das Target auf 400 °C zu erwärmen. Die Targettemperatur wird mit einem Miniatur-Manteltherm-oelement (Philips, Modell CA 4S 500), das sich auf der Oberfläche des Targets befindet, gemessen. Mittels einer Linearverstellung können die Proben nacheinander an den Meßort gefahren werden. Eine Abschirmplatte aus Edelstahl verhindert, daß die zweite Probe vor der Messung dem Ionenstrahl ausgesetzt ist. Auf diese Weise ist es möglich, nacheinander zwei verschiedene Proben zu untersuchen, ohne das Vakuum brechen zu müssen.

Der Winkel zwischen Targetnormalen und Laserstrahl bzw. Targetnormalen und Ionenstrahlrichtung beträgt jeweils 22,5° (siehe Abb. 3-11). Der Winkel zwischen Laserstrahl und Beobachtungsrichtung beträgt 45°. Der Mittelpunkt des Meßvolumens (ø9 mm, Länge 15 mm) befindet sich 2,5 cm vor der Targetoberfläche. Das Meßvolumen wird mit einem sphärischen Aluminiumspiegel (ø15 cm, f=45 cm) mit MgF_2 Schutzschicht auf die Kathode eines gepulsten (Gate-Breite 10 µs) Photomultipliers abgebildet. Die Registrierung der Fluoreszenzsignale erfolgt mit einem Boxcar-Integrator (EG&G, Modell 4400) mit einer Gate-Breite von 15 ns. An den Boxcar-Integrator ist eine Workstation (HP, Modell HP 9000-375) angeschlossen, die die Speicherung der Meßdaten ermöglicht und die spätere Auswertung erleichtert.

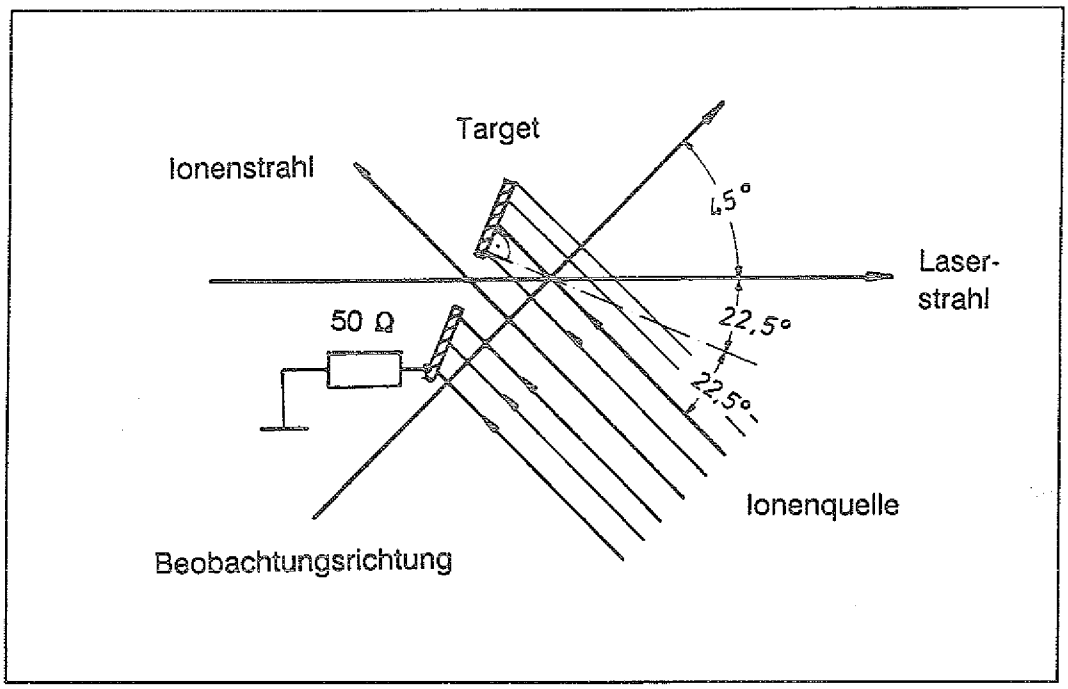


Abb.3-11: Geometrische Verhältnisse vor dem Target.

Die Triggerung der angeschlossenen Geräte erfolgt ausschließlich durch eine schnelle Photodiode (United Detector Technology, Modell UV 50), die durch den Excimerlaser-pumpstrahl ausgelöst wird.

Beschreibung der Variante 2:

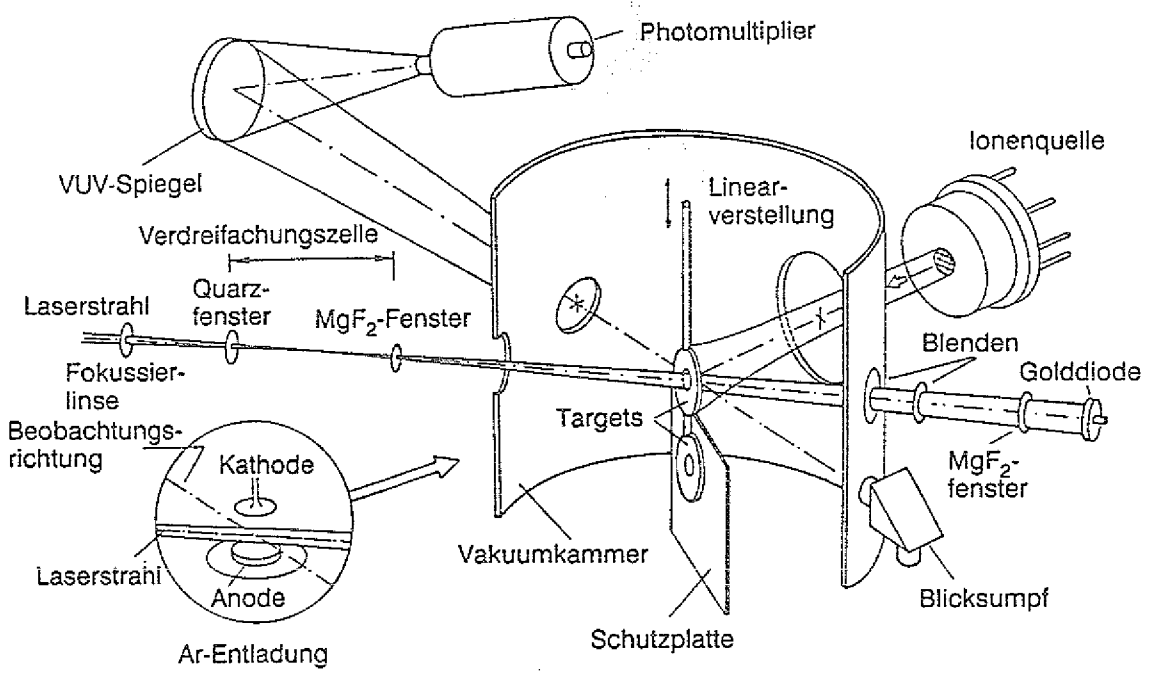


Abb. 3-12: Experimenteller Aufbau bei Messungen mit frequenzverdreifachtem Laserstrahl.

Der optische Aufbau entspricht im Wesentlichen der Variante 1. Anstelle der Raman-Zelle wird eine für die Frequenzverdreifachung optimierte Edelstahlzelle in den Strahlengang gestellt und der Verdopplerkristall entfernt. Die Farbstofflaserstrahlung (λ=364.5 nm, Laserfarbstoffe QUI bzw. DMQ) wird mit einem dielektrischen Spiegel umgelenkt und mit einer Linse (f=25 cm) in die 40 cm lange Frequenzverdreifachungszelle fokussiert. In der Verdreifachungszelle befindet sich die Kr-Ar- oder Xe-Ar-Edelgasmischung. Um eine homogene Gasmischung zu erhalten, welche die Phasenanpassungsbedingung erfüllt, werden die Gase innerhalb der Zelle ständig umgewälzt. Die dritte Harmonische (121.5 nm) und die Grundwellenlänge (360 nm) verlassen die Zelle durch ein 2 mm dickes MgF_2 Fenster. Der Abstand zwischen der Fokussierungslinse und dem Target ist so gewählt, daß der Durchmesser der dritten Harmonischen am Ort des Targets - wie bei der Varianten 1 - 9 mm beträgt. Eine spektrale Trennung von Strahlung der Grundwellenlänge und dritter Harmonischen ist

nicht erforderlich, da zum einen für die Messung der Fluoreszenzsignale ein solar-blind Photomultiplier und zum anderen als Lasermonitor eine Golddiode verwendet wird. Die Empfindlichkeit der Au-Diode ist für die dritte Harmonische etwa 10^7 mal höher als für die Grundwelle ($\eta_{3\omega}/\eta_{\omega} > 10^7$) /47/. Mit der Diode ist eine zeitaufgelöste Messung des Laserpulses möglich. Wie bei der stimulierten Ramanstreuung ist auch bei der Frequenzverdreifachung eine Verkürzung des Pulses gegenüber der Grundwelle zu beobachten. Die maximale Leistung der dritten Harmonischen liegt bei der Kr-Ar-Mischung bei 200 W; bei der Xe-Ar-Mischung werden 20 W gemessen (vergl. Abb. 3-4 und 3-5). Das Beobachtungssystem entspricht demjenigen der Variante 1.

Im Gegensatz zur Raman-Verschiebung sind die Fluktuationen der dritten Harmonischen sehr klein und betragen weniger als ±10 %.

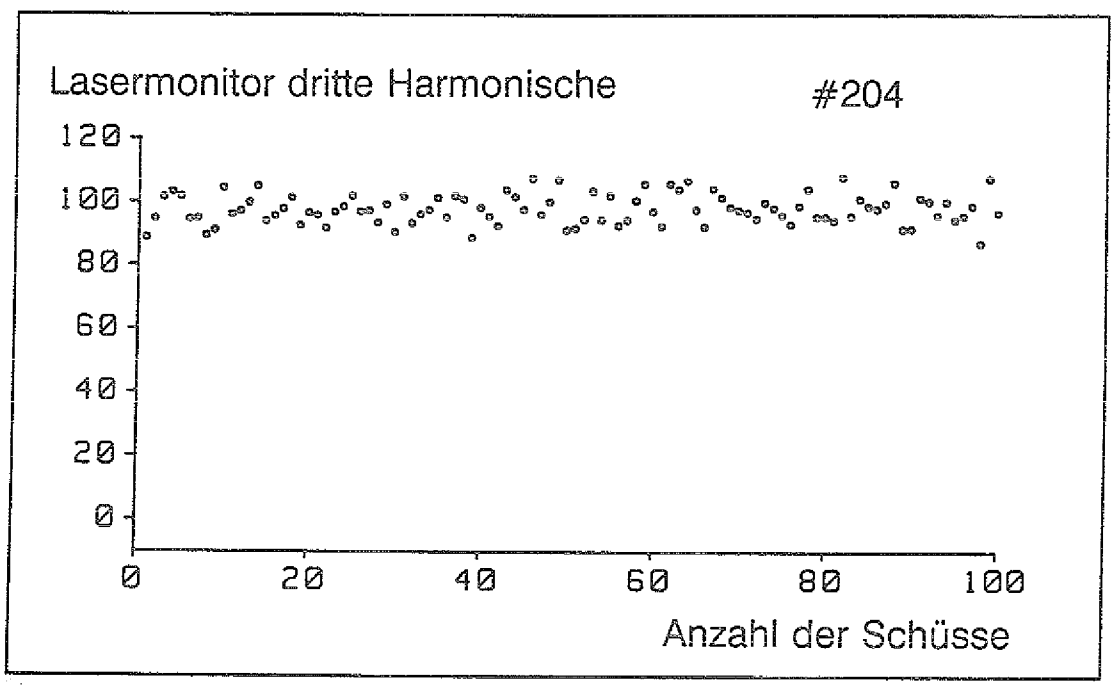


Abb. 3-13: Reproduzierbarkeit der dritten Harmonischen bei 121,6 nm.

Beschreibung der Variante 3

Zur Anregung von Bor bei 250 nm wird die Frequenzverdopplung benutzt. Dazu wird die Farbstofflaserstrahlung ($\lambda = 500$ nm, Laserfarbstoff Coumarin 307) in einem BBO-Kristall verdoppelt und in einem Pellin-Broca-Prisma von der Grundwellenlänge getrennt (vergl. Variante 1). Um das Streuvolumen nicht zu ändern, bleibt die evakuierte Verdreifachungszelle mit Fokussierungslinse (f=25 cm) im Strahlengang, so daß der Laserstrahl am Ort des Targets einen Durchmesser von 9 mm besitzt. Die Energie der zweiten Harmonischen wird mit einer UV-empfindlichen Photodiode (United Detector Technology, Modell UV 50) oder mit einem Kalorimeter (pyroelektrischer Detektor Gentec ED 200) gemessen. Die Energie der zweiten Harmonischen beträgt 7 mJ und muß mittels UV-Filter stark abgeschwächt werden, um eine übermäßige Sättigungsverbreiterung zu vermeiden. Das Beobachtunssystem bleibt ebenfalls unverändert; lediglich der VUV-empfindliche Photomultiplier muß durch einen UV-empfindlichen, solar blind Photomultiplier (Hamamatsu, Type R 166, mit Cs-Te Kathode) ersetzt werden.

3.3 Die Ionenquelle

Um die harten, amorphen Kohlenstoffschichten im Labor mit energiereichen Ionen zu bestrahlen, wird eine kommerzielle Ionenquelle von Ion Tech /48/ eingesetzt. Mit der Ionenquelle läßt sich ein Teilchenstrahl erzeugen, dessen Energie von 400-1700 eV variiert werden kann. Als Arbeitsgas wird für die Zerstäubungsmessungen meistens Argon verwendet. Der Argon Fülldruck beträgt dann $1{,}5 \cdot 10^{-4}$ mbar.

Der Betrieb der Quelle mit anderen Gasen ist möglich, der Gasdruck muß allerdings beispielsweise bei Verwendung von Wasserstoff oder Helium auf $1 \cdot 10^{-3}$ mbar erhöht werden.

Die Ionenquelle ist für kontinuierlichen Betrieb ausgelegt. Die Ionen werden durch eine Gasentladung mit geheizter Kathode (Wolframdraht) erzeugt, wobei die Zündung des Plasmas durch ein statisches Magnetfeld von etwa 0,01 Tesla erleichtert wird. Bei Verwendung von Argon als Arbeitsgas beträgt die Entladungsspannung 40 V und der Entladungsstrom 0,3 A. Die Entladungsspannung soll 43 V nicht überschreiten, da sich sonst auch Ar^{++} Ionen bilden können. Das Plasma befindet sich mit dem Extraktionsgitter auf einem Potential von 400 und 1700 V gegen Erde je nach gewünschter Ionenenergie (siehe Abb. 3-14). Die Ionen diffundieren zum Extraktionsgitter, strömen durch die auf einer Fläche von 5 cm^2 verteilten 369 Löcher (⌀0,8 mm, Stegbreite 0,2 mm) und werden von einem zweiten Gitter beschleunigt. Dieses sogenannte Beschleunigungsgitter ist leicht negativ gegen Erde vorgespannt, um ein Rückströmen von Elektronen in die Quelle zu vermeiden.

Das Target liegt an Erde oder ist wenige Volt vorgespannt, um Sekundärelektronen zurückzuhalten, die die Strommessung verfälschen würden.

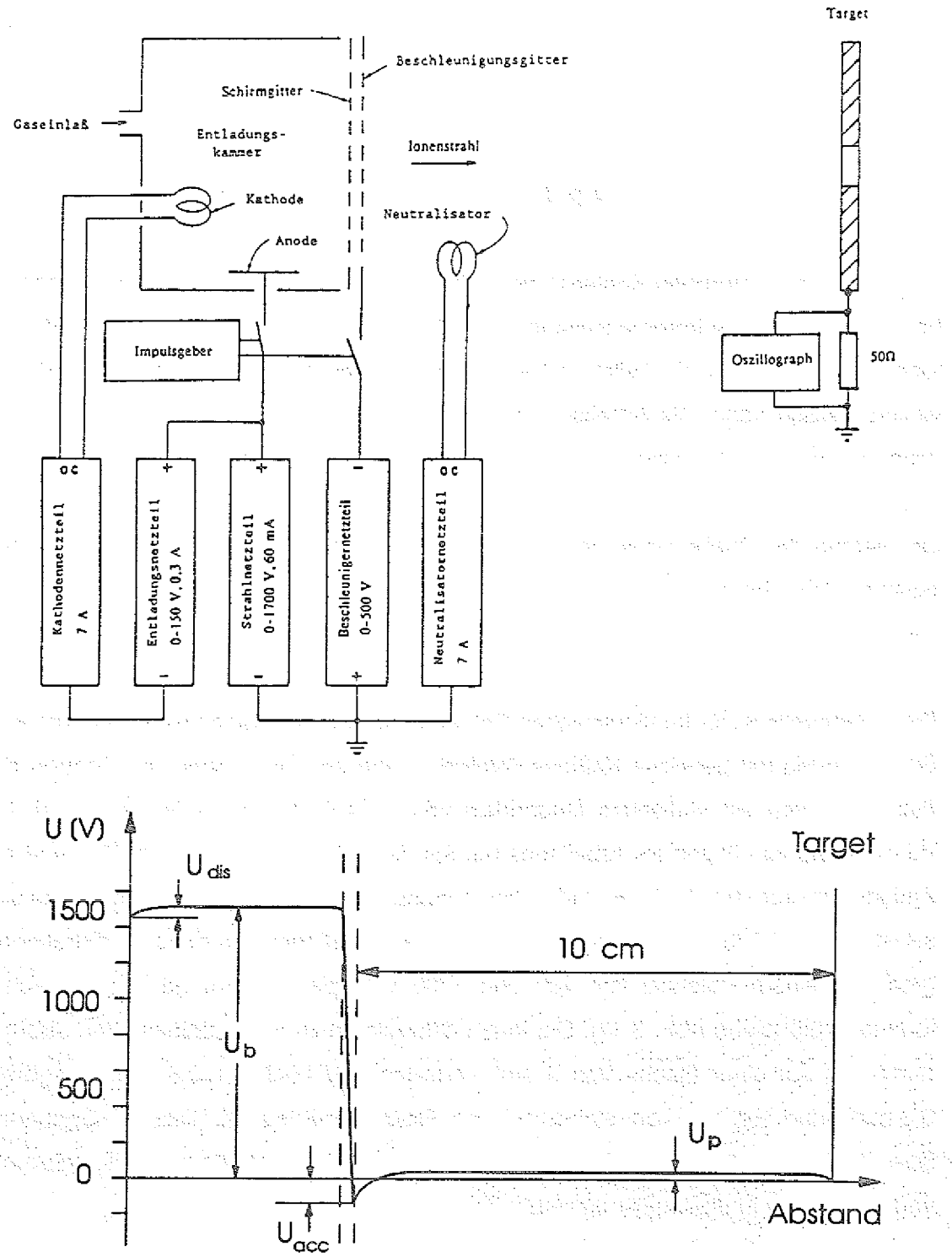


Abb. 3-14: Prinzipieller Aufbau der Ionenquelle und schematische Darstellung der Potentialverteilung.

Um die Belastung der dünnen Karbonisierungsschichten möglichst gering zu halten, wurde die kommerzielle Ionenquelle so modifiziert, daß ein Impulsbetrieb möglich ist. Die Erzeugung eines Ionenpulses durch das Pulsen der Gasentladung ist möglich,

jedoch beträgt der Jitter beim Zünden der Entladung bis zu 10 µs. Um den Jitter von 10 µs beim Ionenstrahl zu verhindern, wurde neben der Entladung zusätzlich das Extraktionsgitter gepulst. Die Schaltfolge zur Erzeugung eines 100 µs langen, praktisch jitterfreien Ionenpulses ist in Abb. 3-15 dargestellt.

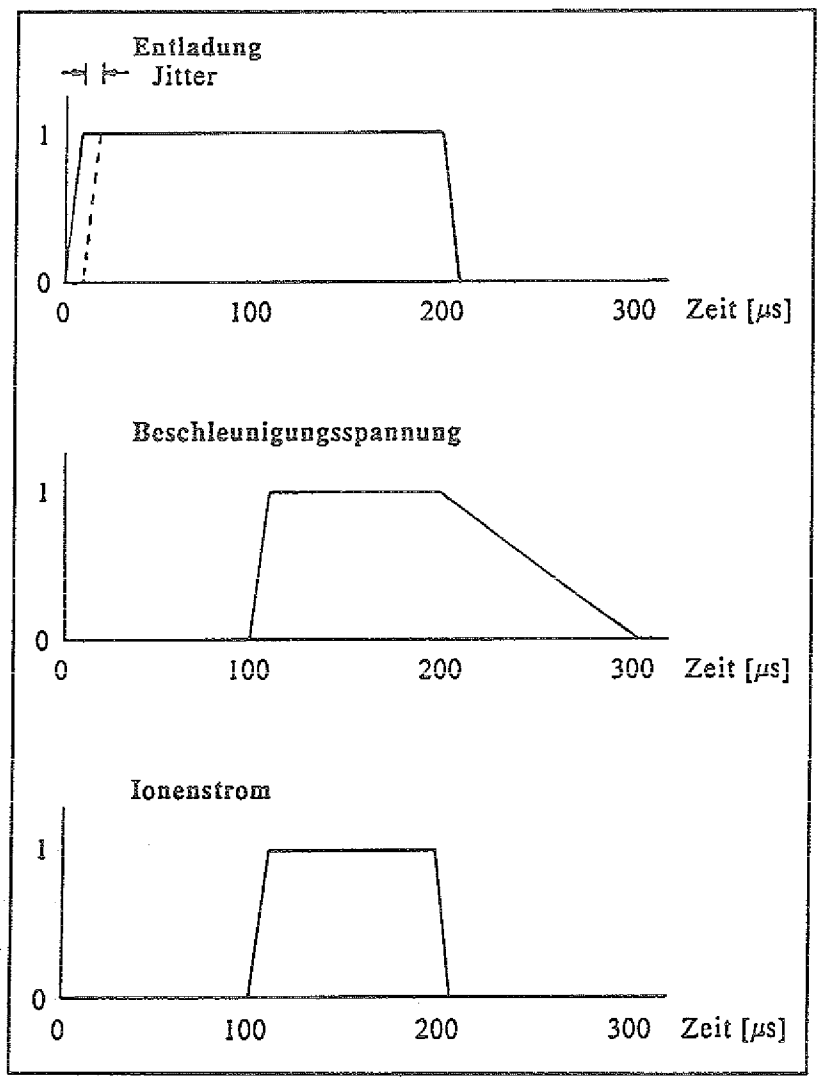


Abb.3-15: Schematische Darstellung der Schaltfolge zur Erzeugung der Ionenpulse.

Zunächst wird die Bogenentladung für 200 µs gezündet. Nach 100 µs wird die Extraktionspannung für 100 µs angelegt. Da nur dann ein Ionenstrahl aus der Quelle extrahiert wird, wenn die Entladung brennt und die Extraktionsspannung angelegt ist, entsteht auf diese Weise ein praktisch jitterfreier Ionenpuls mit 100 µs Pulslänge. Durch vorzeitiges Abschalten der Bogenentladung können kürzere, jitterfreie Ionenpulse erzeugt werden. Ein solcher Puls, mit einer Pulslänge von 30 µs, ist in Abb. 3-16

dargestellt. Bei Pulslängen über 100 µs wird die Beschleunigungsspannung ständig eingeschaltet und die Pulslänge allein über die Pulsdauer der Bogenentladung bestimmt.

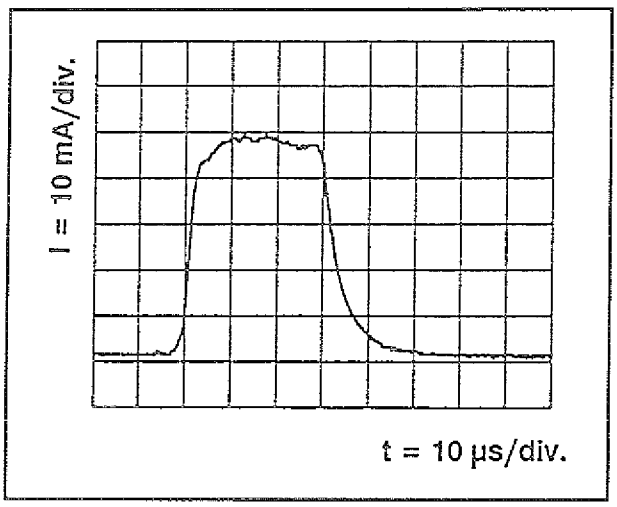


Abb.3-16: Stromverlauf des Ionenpulses unter Verwendung der Schaltfolge der Abb. 3-15.

Bei Pulslängen von 30 µs und einer Stromdichte von 3 mA/cm^2 werden bei 1000 Pulsen etwa 1 Monolage, was etwa 2,5 Å entspricht, vom Target abgetragen.

Bemerkenswert ist, daß bei Pulsbetrieb der Quelle die Ionenstromdichte durch Erhöhung des Kathodenheizstromes um bis zu 30% gegenüber dem Dauerbetrieb vergrößert werden kann. Der Argon-Druck kann bei Pulsbetrieb von $1{,}5 \cdot 10^{-4}$ mbar auf $9 \cdot 10^{-5}$ mbar verringert werden. Die Möglichkeit, bei Impulsbetrieb größere Stromdichten erzeugen zu können, ist für die Zerstäubungsmessungen insbesondere bei geringer Ionenenergie sehr nützlich.

Ein Umschalten von Impulsbetrieb auf Dauerbetrieb ist allerdings nur dann problemlos möglich, wenn die Betriebsbedingungen der Ionenquelle auf Dauerbetrieb eingestellt sind.

Die maximal erreichbare Strahlstromdichte j läßt sich durch das Langmuir-Child -Gesetz /49/ beschreiben:

$$j = \frac{4\varepsilon_0}{9}\sqrt{\frac{2q}{m}}\;\frac{U^{3/2}}{d^2} \quad . \tag{3.11}$$

Dabei bedeutet U die Extraktionsspannung, m die Masse und q die Ladung des verwendeten Arbeitsgases. Mit d ist der Abstand zwischen dem Extraktions- und dem Beschleunigungsgitter bezeichnet.

Die Spannungsabhängigkeit der Strahlstromdichte hat zur Folge, daß bei festem Abstand der Gitter bei niedriger Beschleunigungsspannung (und damit geringer Ionenenergie) nur geringe Strahlströme zur Verfügung stehen. Durch Verringerung des Gitterabstandes d läßt sich die Strahlstromdichte erhöhen. Allerdings vergrößert ein kleiner Gitterabstand die Strahldivergenz. Da in unserem Fall das Target nur 10 cm von der Quelle entfernt ist, wurde der Gitterabstand in der Weise optimiert, daß der auf dem Target auftreffende Ionenstrom maximal wurde. Abb. 3-17 zeigt den gemessenen Gesamtstrom auf dem Target in Abhängigkeit von der Beschleunigungsspannung für zwei verschiedene Gitterabstände.

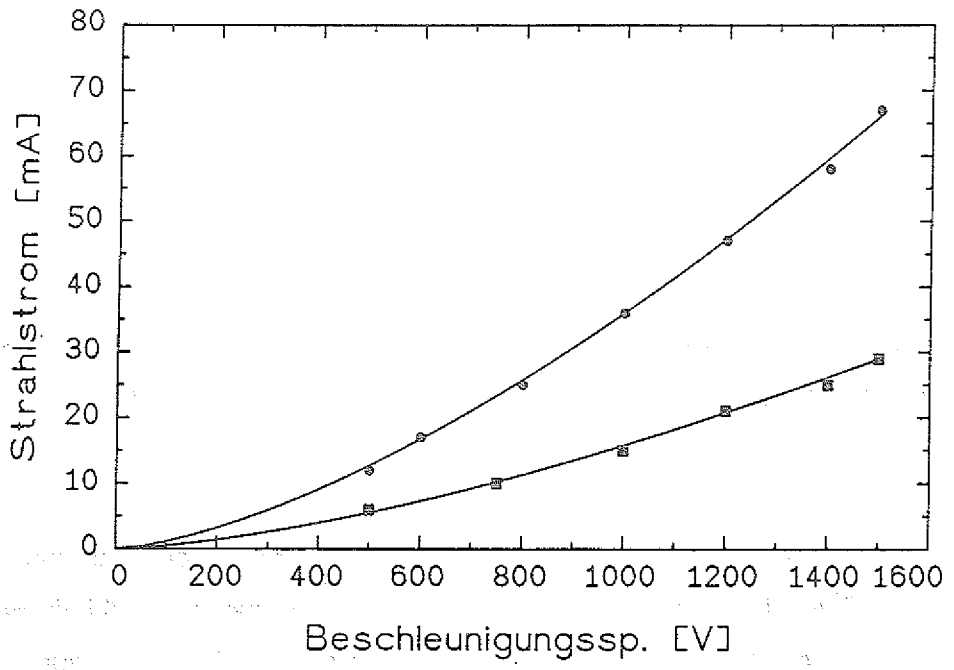


Abb.3-17: Abhängigkeit des Ionenstromes (Argon, Pulslänge 30 µs) von der Extraktionsspannung für d=0,5 mm (Kreise) und d=1,5 mm (Quadrate).

Eine Verringerung des Abstandes zwischen dem Extraktions- und dem Beschleunigungsgitter unter 0,5 mm führte nach kurzer Zeit zu Kurzschlüssen zwischen den Gittern, so daß ein Abstand von 0,5 mm bei den von uns verwendeten Graphit-Gittern als kleinster realisierbarer Gitterabstand angesehen werden kann.

4. Experimentelle Ergebnisse

4.1 Auswahl der optischen Übergänge

Die durch Zerstäubung freigesetzten neutralen Atome befinden sich vor der Anregung durch den Laser im Grundzustand. Die spektralen Übergänge der nachzuweisenden Atome müssen daher so ausgewählt werden, daß eine Anregung vom Grundzustand aus möglich ist. Des weiteren soll die Oszillatorenstärke des Übergangs möglichst groß sein, um eine niedrige Nachweisgrenze zu erreichen. Da die optischen Komponenten aus MgF_2 gefertigt sind, müssen die Anregungswellenlängen oberhalb von 114 nm liegen. Die spektroskopischen Daten der Spektrallinien sind im Anhang A zusammengefaßt.

Auswahl der optischen Übergänge zum Nachweis von atomarem Wasserstoff

Ein Ausschnitt aus dem Grotrian-Diagramm /50/ des atomaren Wasserstoffs ist in Abb. 4-1 dargestellt. Zur Anregung aus dem ^2S-Grundzustand kommt nur ein Übergang in den $^2P^o$ Zustand in Frage (Auswahlregeln). Die dabei entstehende Linie L_α ist die erste der bekannten Lyman-Serie. Die Wellenlänge beträgt für Wasserstoff $L_\alpha(H) = 121{,}567$ nm und für das Wasserstoffisotop Deuterium $L_\alpha(D) = 121{,}534$ nm. Der Isotopenabstand beträgt $\Delta\lambda_{HD} = 33{,}1$ pm und ist groß gegen die Breite der Geschwindigkeitsverteilung der abgestäubten Atome. Die Feinstrukturaufspaltung (0,54 pm) wird bei unseren Messungen an Wasserstoff zusammengefaßt, da die Linien so dicht beieinander liegen, daß sie mit unserem Lasersystem nicht getrennt angeregt werden können. Die Feinstrukturaufspaltung trägt neben der Dopplerverbreiterung nur geringfügig zur Gesamtbreite (FWHM = Full Width at Half Maximum) = 1,65 pm für Wasserstoff bei. Ohne Berücksichtigung der Feinstrukturaufspaltung ergibt sich eine Gesamtbreite$_{(FWHM)}$ = 1,51 pm.

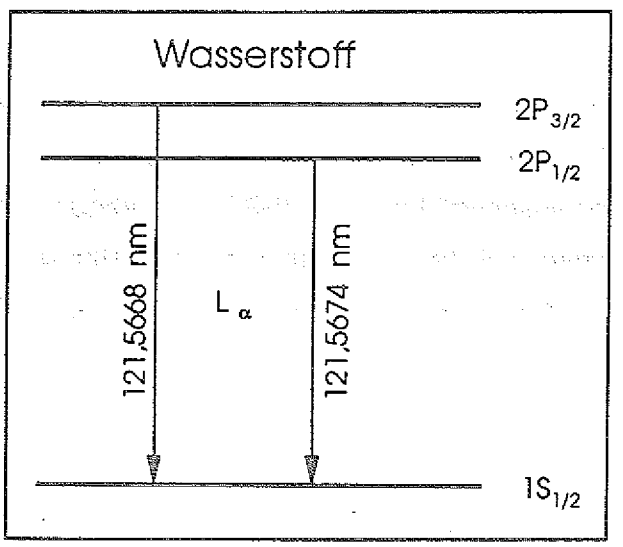


Abb. 4-1: Ausschnitt aus dem Grotrian-Diagramm von Wasserstoff. Eingezeichnet ist der Wasserstoffdipolübergang vom 1S-Grundzustand zum 2P-Zustand (L_α) bei Berücksichtigung der Feinstrukturaufspaltung von 0,54 pm.

Auswahl der optischen Übergänge zum Nachweis von atomarem Kohlenstoff:

Wie dem Grotrian-Diagramm /50/ von atomarem Kohlenstoff (CI) zu entnehmen ist, ist hier die Auswahl an Resonanzlinien erheblich größer als bei Wasserstoff. Die Wahl fiel auf das Multiplett ^3P - $^3D^o$ bei 127,7 nm, da dieser Wellenlängenbereich mit - in einer Edelgasmischung - frequenzverdreifachter Laserstrahlung zugänglich ist; sowie auf das Multiplett ^3P - $^3P^o$ bei 165,7 nm da dies in der Nähe einer Resonanzlinie von atomarem Bor (166,7 nm) liegt. Die Aufspaltungen des ^3P - $^3D^o$ Multipletts bei 127,7 nm und ^3P - $^3P^o$ Multipletts bei 165,7 nm sind in Abbildung 4-2 und 4-3 dargestellt.

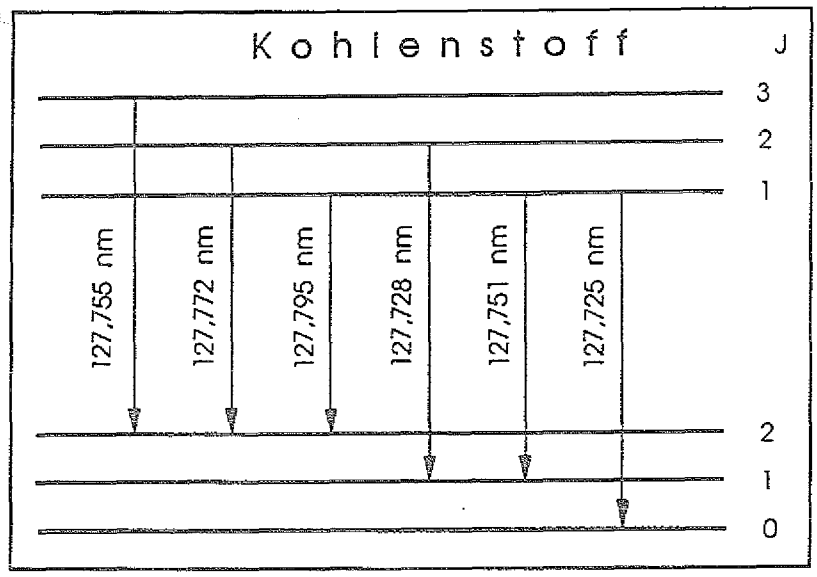


Abb.4-2: Aufspaltung des ^3P - $^3D^o$ Multipletts bei 127,7 nm.

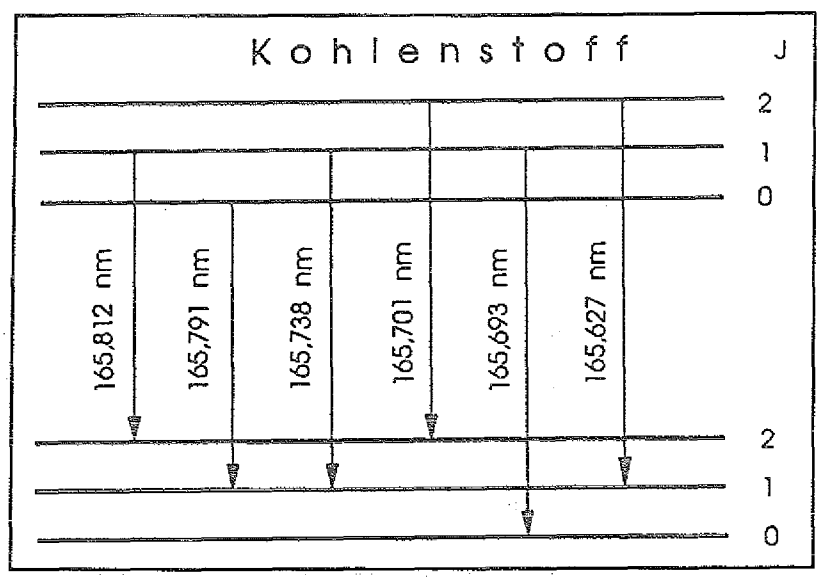


Abb.4-3: Aufspaltung des ^3P - $^3P^o$ Multipletts bei 165,7 nm.

Auswahl der optischen Übergänge von atomarem Bor:

Wie aus dem Grotrian-Diagramm /50/ für Bor I zu entnehmen ist, ist eine Anregung aus dem $^2P^o$ Grundzustand in den ^2S Zustand mit λ=249,7 nm spektroskopisch am leichtesten möglich, da dieser Übergang als einziger im UV-Spektralbereich liegt. Die zweite Linie, die für unsere Messungen ausgewählt wurde, ist ein Übergang des $^2P^o$ - ^2D Multipletts mit einer Anregungswellenlänge von 166,7 nm welcher, wie schon erwähnt, in der Nähe einer Kohlenstofflinie liegt. Das Lasersystem muß daher für die Anregung bei 166,7 nm (B I) und 165,7 nm (C I) nur wenig verändert werden.

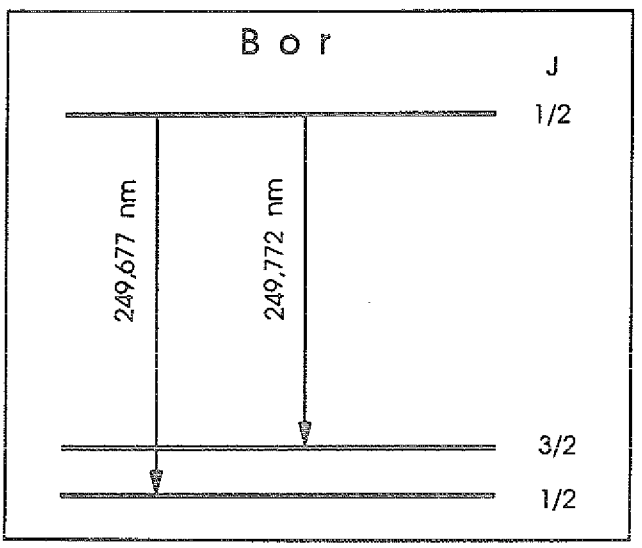


Abb. 4-4: Aufspaltung bei 249,7 nm ($^2P^o$ - ^2S).

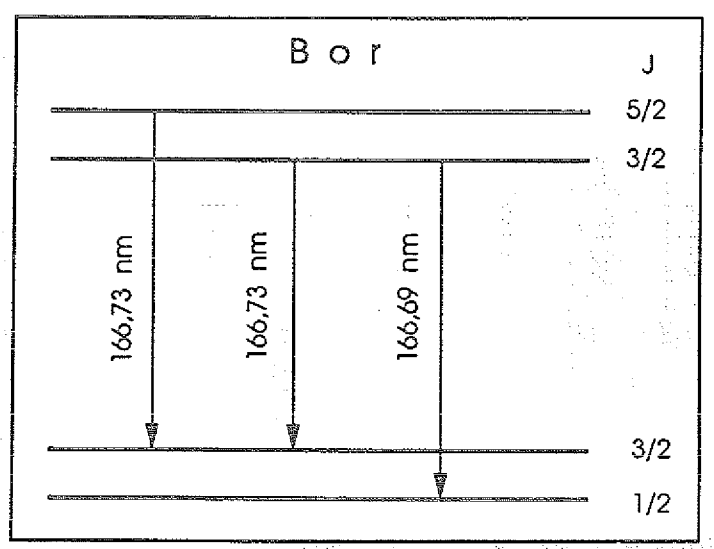


Abb. 4-5: Aufspaltung bei 166,7 nm ($^2P^o$ - ^2D).

Auswahl der optischen Übergänge von atomarem Sauerstoff:

Im Fall der Anregung von atomarem Sauerstoff ist die Auswahl auf das Multiplett ^3P - $^3S^o$ bei 130 nm eingeschränkt, da es als einziger Übergang aus dem Grundzustand eine Anregungswellenlänge oberhalb der Transmission von MgF_2 besitzt. Die Aufspaltung des Multipletts bei 130 nm gibt Abb.4-6 wieder.

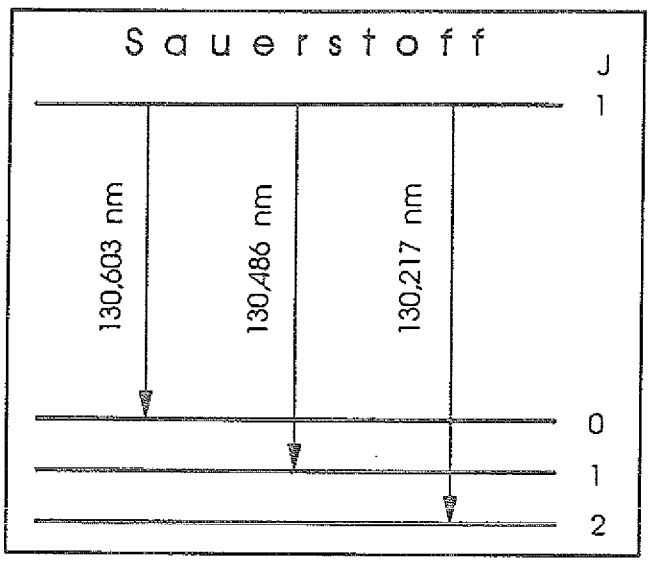


Abb.4-6: Aufspaltung des Sauerstoff-Multipletts ^3P - $^3S^o$ bei 130 nm.

4.2 Wellenlängenkalibrierung an thermischen Atomen

Mit der durch verschiedene Methoden der nichtlinearen Optik erzeugten VUV-Strahlung ist man in der Lage, neutrale Atome durch laserinduzierte Fluoreszenz nachzuweisen. Zum Auffinden der Resonanzlinien und zum genauen Kalibrieren der Wellenlängenskala ist es allerdings vorteilhaft, wenn die nachzuweisenden Atomsorten separat vorliegen. Im folgenden wird daher zunächst über die Messungen an thermisch dissoziierten und angeregten Atomen berichtet.

Als besonders einfache Methode zur Erzeugung von atomarem Wasserstoff, Deuterium und Sauerstoff hat sich die Dissoziation von molekularen H_2 /51/ (Bindungsenergie 4,48 eV), D_2 (Bindungsenergie 4,56 eV) und O_2 (Bindungsenergie 5,12 eV) erwiesen. Dazu wird die Experimentierkammer z. B. mit $5 \cdot 10^{-5}$ mbar der entsprechenden Gassorte gefüllt. Die Dissoziation der Moleküle erfolgt an einem ca. 2000 K heißen Wolframdraht (ℓ=10 cm, ⌀0,25 mm, I=5A). Die freien Atome thermalisieren (T=300 K) durch Stöße mit den Wänden der Experimentierkammer (⌀26 cm) oder mit dem Restgas (freie Weglänge ≈ 100 cm). Die durch Dissoziation am Glühdraht erreichte Teilchendichte läßt sich leicht durch den Heizstrom regeln. Der Strom wurde so eingestellt, daß die Teilchendichten etwa 10^9 cm^{-3} betragen, wie sie auch bei den Zerstäubungsmessungen auftreten. Umgekehrt läßt sich daraus der Dissoziationsgrad zu etwa 0,1 % abschätzen.

Da die für unsere Messungen im VUV benutzten Photomultiplier "solar blind" sind, hat die Schwarzkörperstrahlung des etwa 2000 K heißen Wolframdrahtes keinen störenden Einfluß auf die Messung.

Im thermischen Gleichgewicht haben die Atome eine Maxwell'sche Geschwindigkeitsverteilung. Aufgrund des Doppler-Effektes ist bei den Resonanzlinien daher ein Gauß-Profil zu erwarten, mit einer Halbwertsbreite (FWHM) von

$$\Delta\lambda_{FWHM} = 2\,(ln2)^{1/2}\,\Delta\lambda_D \tag{4.1}$$

$$\Delta\lambda_{FWHM} = 2\,(ln2)^{1/2}\,\frac{\lambda_0}{c}\sqrt{\frac{2\,k_B\,T}{M}} \tag{4.2}$$

mit

λ_0	die zentrale Wellenlänge
k_B	die Boltzmann Konstante $1{,}38\cdot10^{-23}$ J/K
c	die Lichtgeschwindigkeit $3\cdot10^{8}$ m/s
M	die Teilchenmasse $\mu\cdot1{,}661\cdot10^{-27}$ kg

Die Breite $\Delta\lambda_D$ entspricht einem Doppler-Profil

$$L(\lambda-\lambda_0) = \frac{1}{\sqrt{\pi}\,\Delta\lambda_D}\exp[-(\lambda-\lambda_0)^2/\Delta\lambda_D^2] \quad , \tag{4.3}$$

so daß man für $\Delta\lambda_{FWHM}$ bei Zimmertemperatur (T=300 K) folgende Werte erwartet:

Für Sauerstoff	λ_0=130,217 nm	$\Delta\lambda_O$ = 0,40 pm
für Kohlenstoff	λ_0=127,755 nm	$\Delta\lambda_C$ = 0,46 pm
für Bor	λ_0=249,773 nm	$\Delta\lambda_B$ = 0.98 pm

Die Doppler-Breite bezieht sich bei Sauerstoff, Kohlenstoff und Bor auf eine einzelne Linie des Multipletts (siehe z. B. Abb.4-6). Bei Wasserstoff ist die Feinstrukturaufspaltung ($\Delta\lambda$=0,54 pm) so gering, daß sich die Doppler-Profile der einzelnen Linien überschneiden. Ohne Berücksichtigung der Feinstrukturaufspaltung ergibt sich nach Gleichung 4.3 (eine Linie)

für Wasserstoff	$\lambda_0 = 121{,}567$ nm	$\Delta\lambda_H = 1{,}51$ pm
für Deuterium	$\lambda_0 = 121{,}534$ nm	$\Delta\lambda_D = 1{,}07$ pm

Bei Berücksichtigung der Feinstruktur erhält man:

Für Wasserstoff	$\lambda_0 = 121{,}567$ nm	$\Delta\lambda_H = 1{,}65$ pm
für Deuterium	$\lambda_0 = 121{,}534$ nm	$\Delta\lambda_D = 1{,}25$ pm

Die Abbildung 4-7 zeigt das thermische Profil von atomarem Sauerstoff bei 130,22 nm gemessen mit Anregung durch die achte anti-Stokes-Linie. Um den Farbstofflaser möglichst schmalbandig zu betreiben, wurde für die Messung ein Fabry-Perot Etalon in die Oszillatorkammer des Farbstofflasers eingesetzt. Die gemessene Halbwertsbreite$_{(FWHM)}$ von 0,46 pm entspricht fast der theoretischen Dopplerbreite von 0,40 pm.

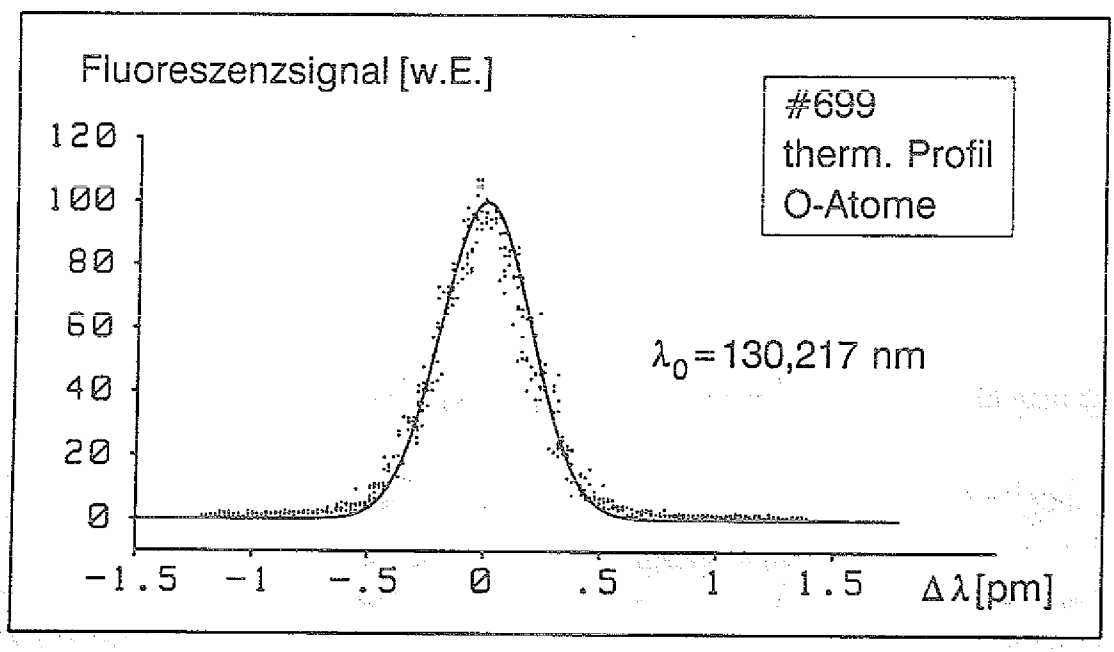


Abb.4-7: Thermisches Profil von atomarem Sauerstoff (T=300 K).

Die Abweichung der Halbwertsbreite vom theoretischen Wert wird auf die spektrale Breite des VUV-Laserprofiles (achte anti-Stokes-Linie) zurückgeführt. Damit ermöglicht die Messung des thermischen Profiles gleichzeitig eine Abschätzung der Laserlinienbreite (Dieser Punkt wird im Anhang B näher diskutiert). Unter der Voraussetzung, daß das Laserlinienprofil ebenfalls einer Gauß-Verteilung entspricht, ergibt sich für die

Laserlinienbreite

$$\Delta\lambda_{Las,O} = 0{,}2 \text{ pm}.$$

In gleicher Weise wurde auch das thermische Profil von Wasserstoff und Deuterium gemessen. Abb.4-8 zeigt das mit der dritten Harmonischen (Frequenzverdreifachung) und Abb. 4-9 das mit der neunten anti-Stokes-Komponente (Raman-Verschiebung) aufgenommene thermische Profil von Deuterium. Die VUV-Strahlung wurde in beiden Fällen auf die L_α-Resonanz bei 121,534 nm abgestimmt und der Farbstofflaser zur spektralen Einengung mit einem Fabry-Perot Etalon betrieben.

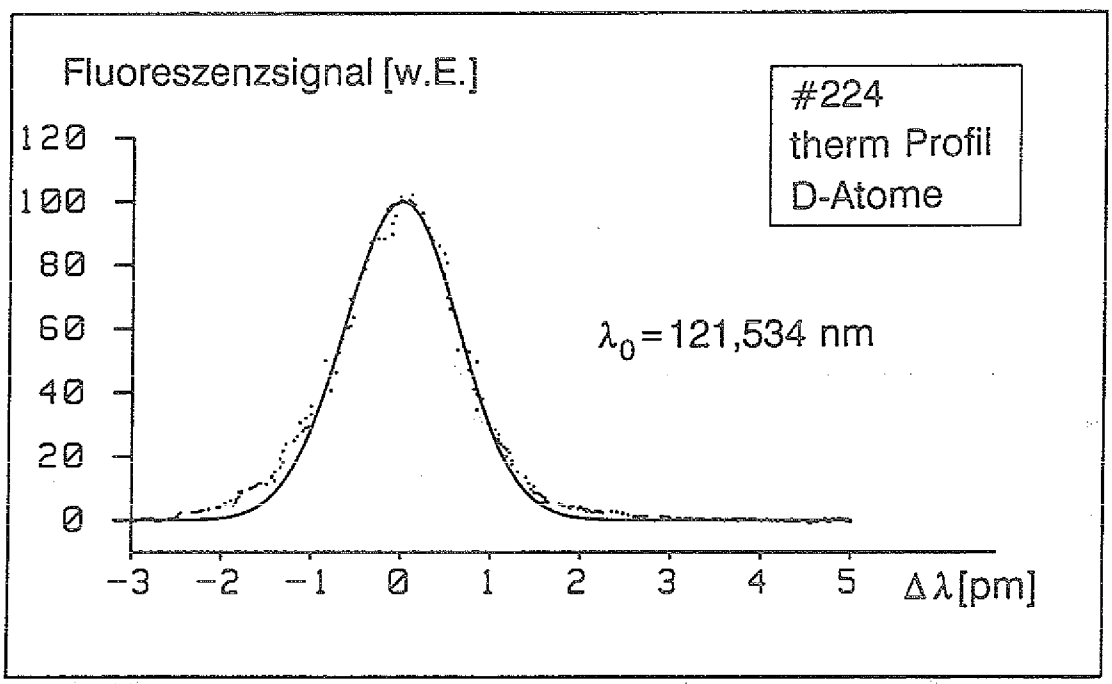


Abb. 4-8: Thermisches Profil von atomarem Deuterium (T=300 K) gemessen mit der dritten Harmonischen.

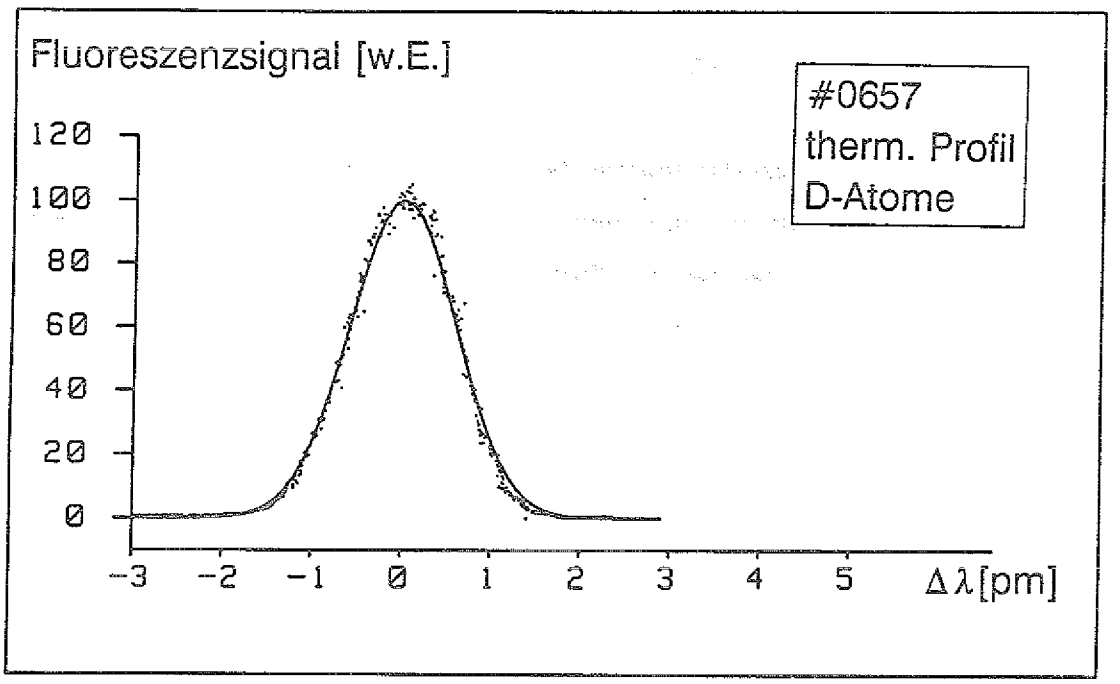


Abb. 4-9: Thermisches Profil von atomarem Deuterium (T=300 K) gemessen mit der neunten anti-Stokes-Linien.

Aus der gemessenen Breite von 1,4 pm ergibt sich bei beiden Varianten eine Laserlinienbreite von 0,6 pm. Die Abweichung der Linienflügel von der reinen Gauß-Verteilung, bei der Messung mit der dritten Harmonischen, deutet auf einen Lorentz-anteil des Laserprofiles hin. Dieser Anteil ist aber klein und bleibt bei der Auswertung der Geschwindigkeitsverteilung unberücksichtigt.

Der Versuch, atomaren Kohlenstoff durch die Dissoziation von CO-Gas an einem heißen Wolframdraht zu erzeugen, scheiterte an der relativ hohen Bindungsenergie von CO (11,14 eV). Zwar konnte bei einem Gasdruck von $1 \cdot 10^{-3}$ mbar atomarer Kohlenstoff angeregt werden, aber die Fluoreszenzsignale werden von etwa gleich großen Fluoreszenzsignalen, die von CO-Banden stammen, überlagert. Das Doppler-Profil von atomarem Kohlenstoff wurde deshalb an den freien Kohlenstoffatomen in einer CO-Glimmentladung gemessen. Um das Vakuum der Experimentierkammer nicht brechen zu müssen, wird die CO-Entladung zwischen dem unteren Target (Anode) und der sich auf Massepotential befindlichen Abschirmplatte (Kathode) gezündet. Die Glimment-ladung wird mit einem CO-Gasdruck von 0,2 mbar und einem Strom von 1mA betrieben. Die Entladung ist gepulst; die Pulslänge beträgt 1 ms.

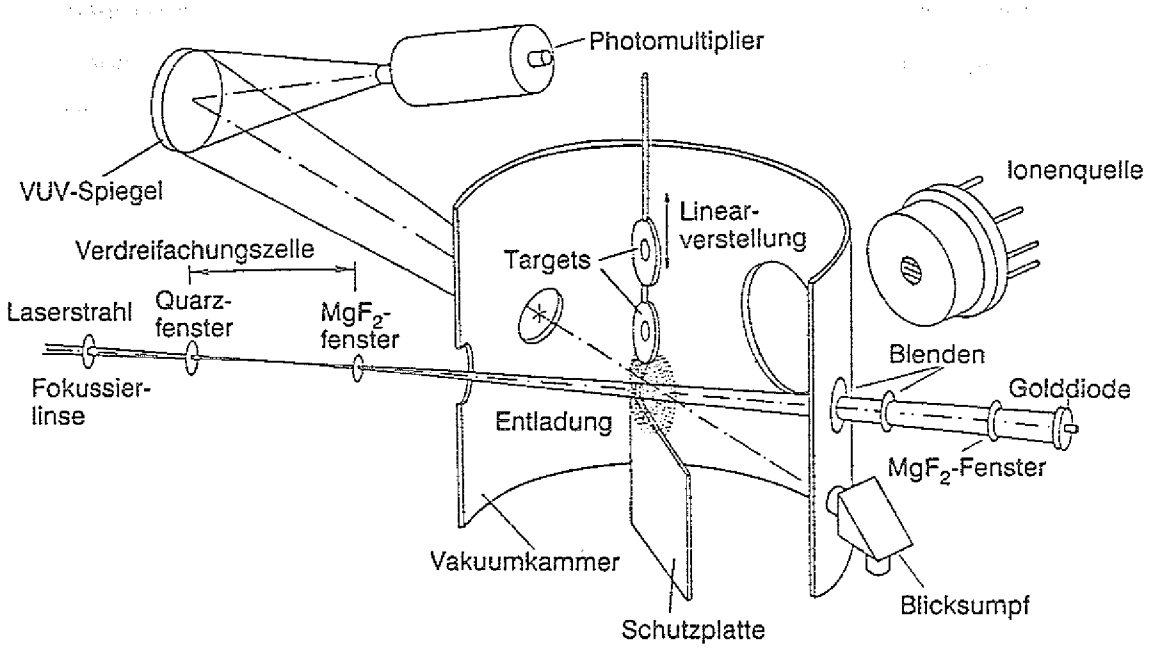


Abb. 4-10: Experimenteller Aufbau zum Betrieb einer CO-Glimmentladung zur Anregung von atomarem Kohlenstoff.

Die Messung erfolgte ohne Etalon mit der dritten Harmonischen bei 127,7 nm. Die Abb. 4-11 zeigt den Teil des 127,7 nm Multipletts, der für den Nachweis der C-Atome bei den Zerstäubungsmessungen angeregt wurde.

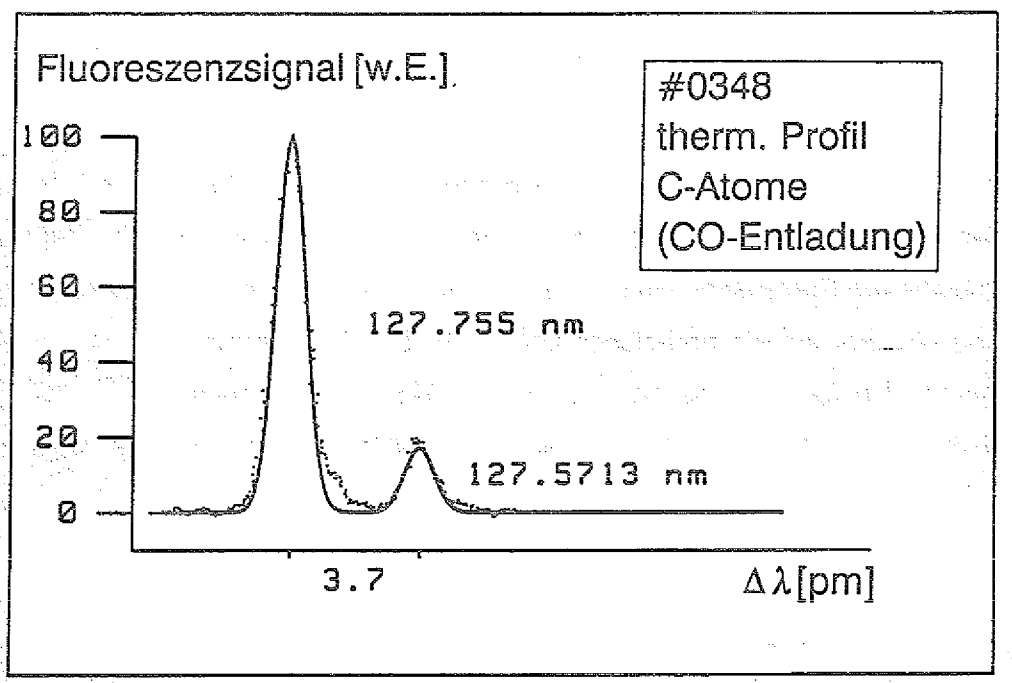


Abb. 4-11: Fluoreszenzsignal (127,7 nm Multiplett) freier C-Atome in einer CO-Glimmentladung.

Erst nach Abschluß der Experimente zur physikalischen Zerstäubung wurde festgestellt, daß atomarer Kohlenstoff auch durch die Dissoziation von Methan (CH_4, Dissoziationsenergie 4,5 eV) mit einem heißen Wolframdraht erzeugt werden kann. Der Methandruck betrug $2 \cdot 10^{-4}$ mbar, der Strom durch den 0,25 mm dünnen Wolframdraht 7 A. Die in Abb. 4-12 dargestellte Messung erfolgte mit der vierten anti-Stokes-Linie bei 165 nm. Zur spektralen Einengung des Lasers wurde die Messung mit Etalon durchgeführt.

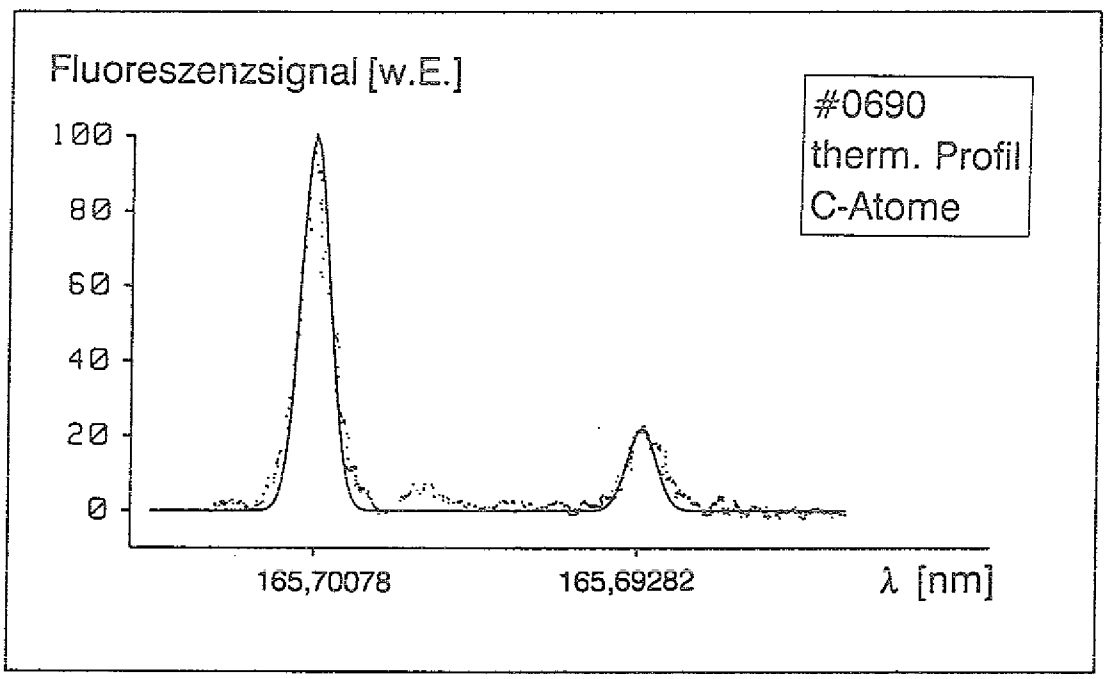


Abb. 4-12: Thermisches Profil atomaren Kohlenstoffs erzeugt durch die Dissoziation von CH_4.

Um atomares Bor anzuregen, müssen anstelle der Zerstäubungstargets die Elektroden einer Glimmentladung in die Experimentierkammer eingesetzt werden. Im Gegensatz zur Anregung von Kohlenstoff, wo eine Glimmentladung in CO gezündet wird, muß zur Anregung von Bor auf ein borhaltiges Gas (z. B. Diboran) verzichtet werden, da die Vakuumapparatur für den Umgang mit toxischen Gasen nicht ausgelegt ist. Statt dessen wird für die Glimmentladung als Kathode eine Edelstahlscheibe (⌀ 3 cm) verwendet, deren Oberfläche mit einer 1 µm Dicken borhaltigen Schicht (a-C/B:H Schicht) versehen ist.

Der experimentelle Aufbau zur Messung der Bor-Atome in einer Ar-Glimmentladung durch Zerstäubung des Kathodenmaterials ist in Abbildung 3-12 als Option eingezeichnet.

Nach der Zündung einer gepulsten Ar-Glimmentladung (U = 1500 V, I = 1mA, $p_{Ar} = 1 \cdot 10^{-1}$ mbar, T = 1 ms) kann an den aus der Kathode durch Zerstäubung freigesetzten Boratome die Resonanzlinie aufgenommen werden. Eine solche Messung ist in Abb.9-7 dargestellt. Um den Farbstofflaser möglichst schmalbandig zu machen, wurde die Messung mit Etalon durchgeführt. Als Anregungsstrahlung wurde die zweite Harmonische (Frequenzverdopplung) auf die Borresonanz bei 249,773 nm abgestimmt.

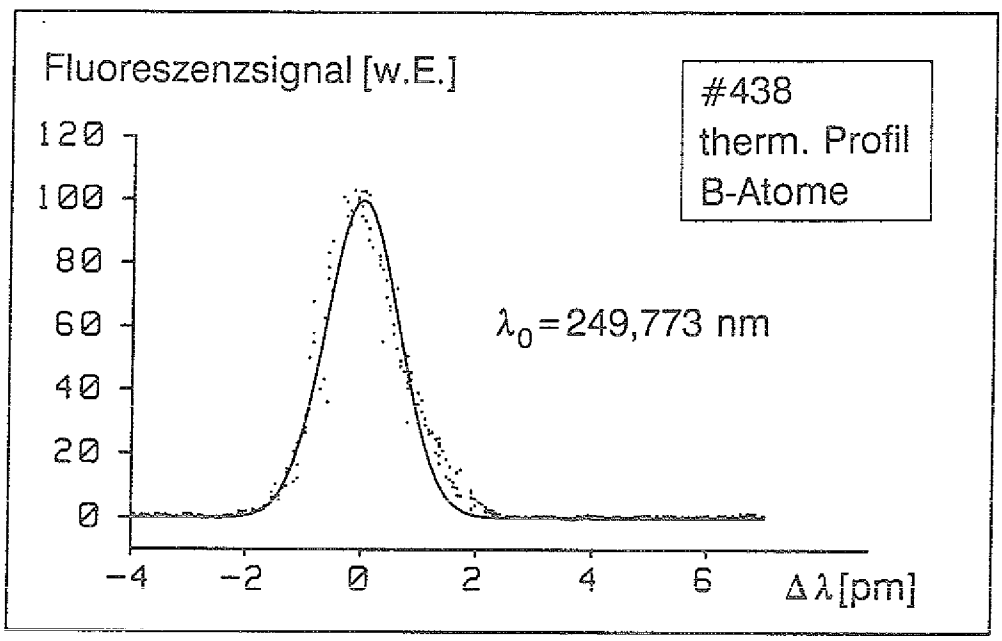


Abb.4-13: Thermisches Profil von atomarem Bor gemessen mit der zweiten Harmonischen bei 249,773 nm.

Mit der gleichen Methode läßt sich auch atomarer Kohlenstoff erzeugen. Da aber zum Einbau der Elektroden die Experimentierkammer belüftet werden muß, wurde zum Aufsuchen der Kohlenstoffresonanzen die CO-Glimmentladung bzw. die Dissoziation von CH_4 bevorzugt verwendet.

Die Messungen an thermischen Atomen erfolgen zum einen zum Auffinden der Resonanzlinien und zum Anderen zur Bestimmung der spektralen Breite der Anregungsstrahlung. Das Maximum des Doppler-Profiles dient als Referenzpunkt der Wellenlängenskala, d. h., es legt auch den Nullpunkt der Geschwindigkeitsskala fest.

Die Druckabstimmung des Farbstofflasers ermöglicht eine kontinuierliche Durch-

stimmung der Wellenlänge. Zur Messung eines thermischen Profiles werden etwa 300 Meßpunkte aufgenommen. Die Halbwertsbreiten der gemessenen Profile liegen zwischen 0,4 pm (Sauerstoff) und 1,6 pm (Wasserstoff). Für die Auswertung werden die Meßpunkte mit einem gleitenden Mittelwert über neun Meßpunkte zusammengefaßt. Die Abweichung bei der Festlegung des Nullpunktes der Geschwindigkeitsskala ist daher kleiner als 0,1 pm. Dem entspricht eine Geschwindigkeitsungenauigkeit von 250 m/s.

Zur Messung der wesentlich breiteren Geschwindigkeitsverteilungen, der durch den Zerstäubungsprozeß freigesetzten Atome, werden 1000 Meßpunkte aufgezeichnet und für die Auswertung ebenfalls mit einem gleitenden Mittelwert über neun Meßpunkte zusammengefaßt.

4.3 Zerstäubungsmessungen

Die Zerstäubungsmessungen werden durchgeführt, um die Freisetzung von Atomen aus dem Wandmaterial von Fusionsexperimenten bei Beschuß mit energiereichen Teilchen zu simulieren. Ziel ist die Messung der Geschwindigkeitsverteilung der durch physikalische Zerstäubung aus Graphit, sowie aus den in TEXTOR verwendeten a-C:H und a-C/B:H Schichten freigesetzten C-,B- und H-Atome. Die Schichten werden im Laborexperiment durch Argon-Ionen zerstäubt. Der Zerstäubungsprozeß ist ähnlich dem in einem Tokamak, so daß die Geschwindigkeitsverteilungen Aufschlüsse über die Eindringtiefe der neutralen Atome ins TEXTOR-Plasma ermöglichen. An die gemessenen Geschwindigkeitsverteilungen werden die üblicherweise benutzten Thompson-Profile angepaßt, da die Bedingungen (vergl. Kapitel 2.2) zur Anwendung des linearen Stoßkaskaden-Modells bei Beschuß mit 1,5 keV Ar-Ionen gut erfüllt werden.

4.3.1 Kohlenstoff

Der Nachweis von atomarem Kohlenstoff erfolgt mit Hilfe der Resonanzlinien bei 127,755 nm ($^3P \rightarrow {}^3D^o$) oder bei 165,700 nm ($^3P \rightarrow {}^3P^o$). Das Abstimmen des Lasersystems auf die Resonanzen ist bereits im vorherigen Kapitel beschrieben worden, so daß wir uns hier auf die Beschreibung der Zerstäubungsmessungen konzentrieren. Zerstäubt werden die Proben mit Argon-Ionen, deren Energie 1,7 keV beträgt. Die Pulslänge des Ionenstrahls beträgt 30 µs. Die Abbildung 4-14 zeigt eine gemessene Geschwindigkeitsverteilung abgestäubter C-Atome aus einer a-C:H Probe. Zum Vergleich ist auch noch einmal das Linienpaar des thermischen Profiles (Doppler-Profil)

der C-Atome, welches in einer Glimmentladung gemessen wurde, dargestellt.

Das Maximum des thermischen Profiles entspricht der Resonanzwellenlänge λ_0. Es legt den Nullpunkt der Geschwindigkeitsverteilung fest, und ist bei der Anpassung der berechneten Thompson-Verteilung an die gemessene Geschwindigkeitsverteilung sehr nützlich.

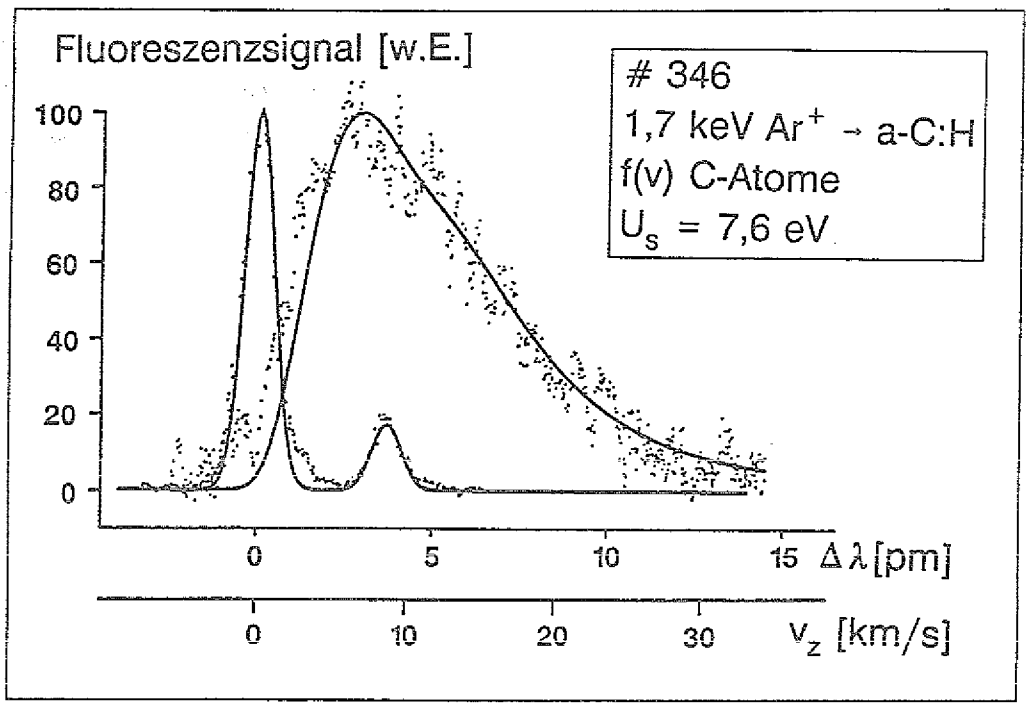


Abb. 4-14: Geschwindigkeitsverteilung der C-Atome bei Zerstäubung eines a-C:H Filmes. Meßpunkte und Thompson-Verteilung mit U_s=7,6 eV (breite durchgezogene Kurve). Zusätzlich ist das thermische Profil von C-Atomen, welches in einer Glimmentladung zur Bestimmung des Nullpunktes gemessen wurde, dargestellt (schmale Kurve).
λ_0 = 127,755 nm ($^3P \rightarrow {}^3D^o$).

Wie der Abbildung 4-14 zu entnehmen ist, ist das Geschwindigkeitsprofil der abgestäubten Atome deutlich breiter als der Abstand der Resonanzlinien mit 3,7 pm. Die an die Meßpunkte angepaßte Thompson-Verteilung stellt die Überlagerung zweier Thompson-Profile mit gleicher Oberflächenenergie U_s dar. Bei der Anpassung der einzelnen Thompson-Profile wurden die Intensitäten entsprechend dem Verhältnis der thermischen Linien berücksichtigt. Aus der angepaßten Thompson-Verteilung ergibt sich eine Oberflächenenergie von U_s=7,6 eV.

Die mittlere Geschwindigkeit der C-Atome beträgt nach Gleichung 2.11 beim Verlassen der Targetoberfläche $<v_z(0)> = 7 \cdot 10^5$ cm/s. Die durch Rayleigh-Streuung bestimmte Teilchendichte im Streuvolumen beträgt $n(z) = 1{,}1 \cdot 10^9$ cm^{-3}. Dabei handelt es sich nur um den Anteil der Atome, die sich im Zustand J=2 befinden. Zur Bestimmung der Gesamtzahl der C-Atome, die die Targetoberfläche verlassen, muß daher das Verhältnis der statistischen Gewichte $g_i/\sum g_j = 5/9$ berücksichtigt werden. Eine Abschätzung der Gesamtteilchendichte bei Berücksichtigung der statistischen Gewichte, nach Gl. 2.9 ergibt $n(0) = 1{,}6 \cdot 10^{10}$ cm^{-3}. Für die Gesamtflußdichte der C-Atome von der Targetoberfläche erhält man nach Gl. 2.13 $\phi(0) = 1{,}1 \cdot 10^{16}$ cm^{-2}s^{-1}.

Die einfallende Ar-Ionenflußdichte beträgt bei einer gemessenen Stromdichte von 2,5 mA/cm^2 etwa $\phi_I = 1{,}6 \cdot 10^{16}$ cm^{-2}s^{-1}. Damit läßt sich die Zerstäubungsausbeute zu $Y_C \approx 0{,}7$ abschätzen.

Zusammenfassung der Meßdaten von Kohlenstoff bei Zerstäubung einer a-C:H Schicht mit 1,5 keV Ar-Ionen :

U_s	=	7,6 eV	Oberflächenenergie der C-Atome
$<n(z)>$	=	$2{,}0 \cdot 10^9$ cm^{-3}	mittlere Dichte im Streuvolumen
$<n(0)>$	=	$1{,}6 \cdot 10^{10}$ cm^{-3}	mittlere Dichte an der Targetoberfläche
$<v(0)>$	=	$7 \cdot 10^5$ cm/s	mittlere Geschwindigkeit an der Oberfläche
$\phi(0)$	=	$1{,}1 \cdot 10^{16}$ cm^{-2}s^{-1}	Gesamtflußdichte an der Oberfläche

Die gleiche Thompson-Verteilung läßt sich auch an die Meßpunkte der Geschwindigkeitsverteilung von C-Atomen, die von einer zerstäubten Graphitprobe stammen, anpassen.

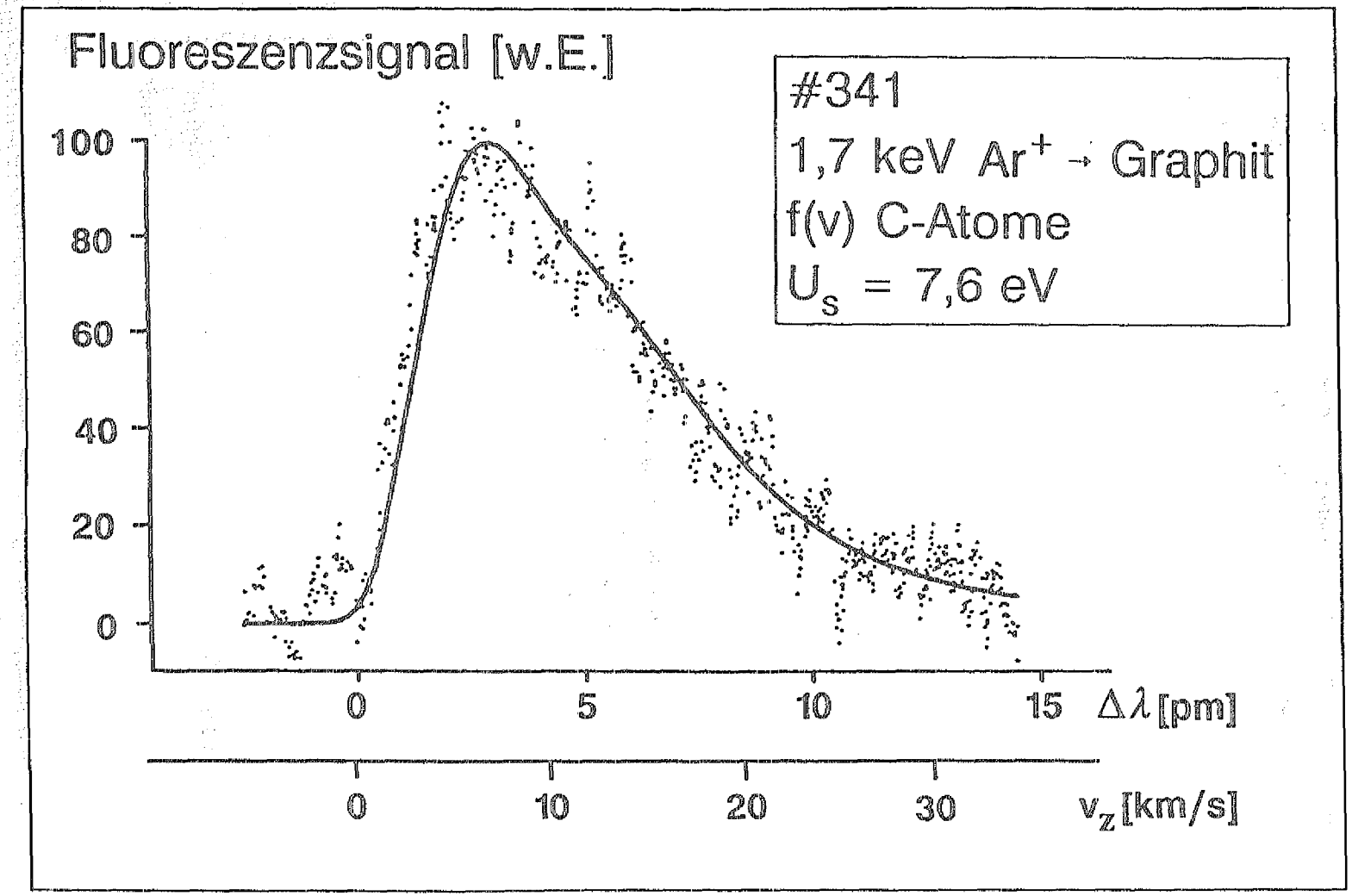


Abb. 4-15: Geschwindigkeitsverteilung von C-Atomen bei Zerstäubung von Graphit. Meßpunkte und Thompson-Verteilung mit U_s = 7,6 eV. λ_0 = 127,755 nm ($^3P \rightarrow {}^3D^o$).

Der experimentell bestimmte Wert für die Oberflächenenergie von 7,6 eV stimmt gut mit der Sublimationsenergie von Graphit (7,4 eV) überein.

Ein Vergleich der Zerstäubungsausbeuten an C-Atomen zwischen einer a-C:H Schicht und Graphit zeigt ebenfalls nur geringe Unterschiede. In den meisten Fällen sind die Zerstäubungsausbeuten im Rahmen der Meßgenauigkeit gleich. Da der Relativ-Verlauf der Geschwindigkeitsverteilungen gleich ist, genügt es die Fluoreszenzsignale im Maximum der Geschwindigkeitsverteilung zu vergleichen. Einen Vergleich der Fluoreszenzsignale zeigt Abb. 4-16.

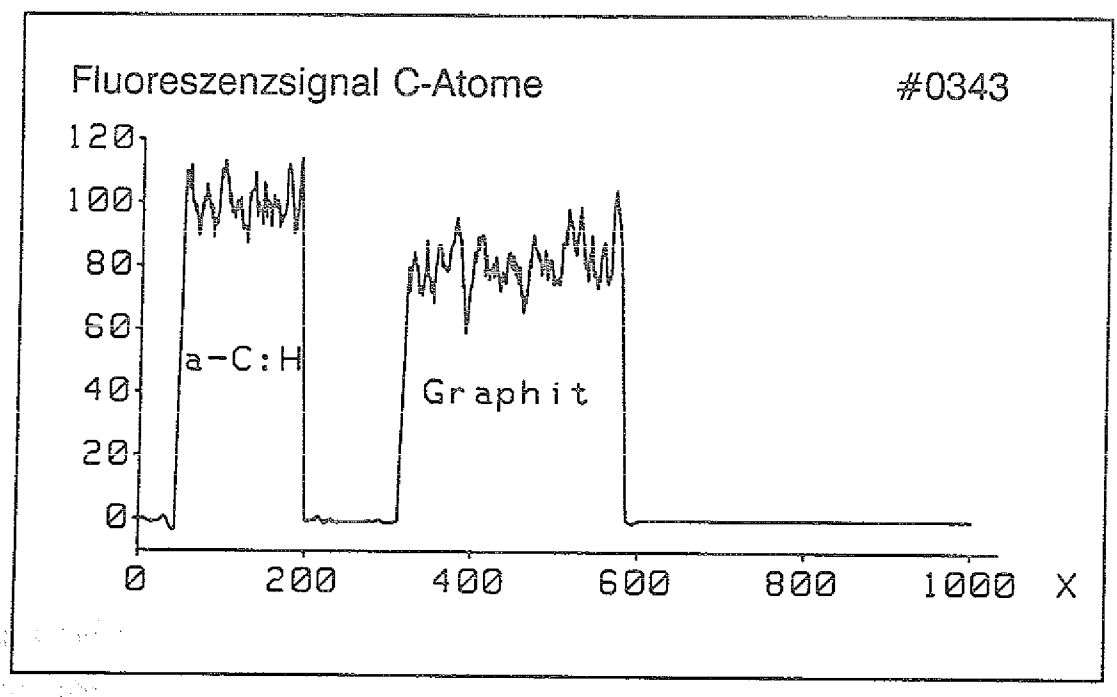


Abb. 4-16: Vergleich der Zertäubungsausbeuten von C-Atomen zwischen einer frischen a-C:H Schicht und Graphit bei Beschuß mit 1,7 keV Ar-Ionen. Die Messung erfolgte im Maximum der Geschwindigkeitsverteilung. Nach 300 Ionenpulsen wurden die Targets gewechselt.
λ_0 = 127,755 nm ($^3P \rightarrow {}^3D^o$).

Die Ausbeute der C-Atome aus dem a-C:H Film ist hier etwa 15% größer als bei Graphit.

Die Abb. 4-17 zeigt die Geschwindigkeitsverteilung von C-Atomen, die von der Zerstäubung einer a-C/B:H Schicht stammen. Zur Messung wurde der Laser auf die Resonanz bei 165,701 nm abgestimmt. Da auch hier neben der Hauptresonanz ein kleiner Satellit liegt (vergl. Abb. 4-19), müssen wieder zwei Thompson-Profile überlagert werden. Die abgeleitete Oberflächenenergie beträgt U_s=7,2 eV und ist etwas kleiner als die Oberflächenenergie von Graphit oder a-C:H mit 7,6 eV.

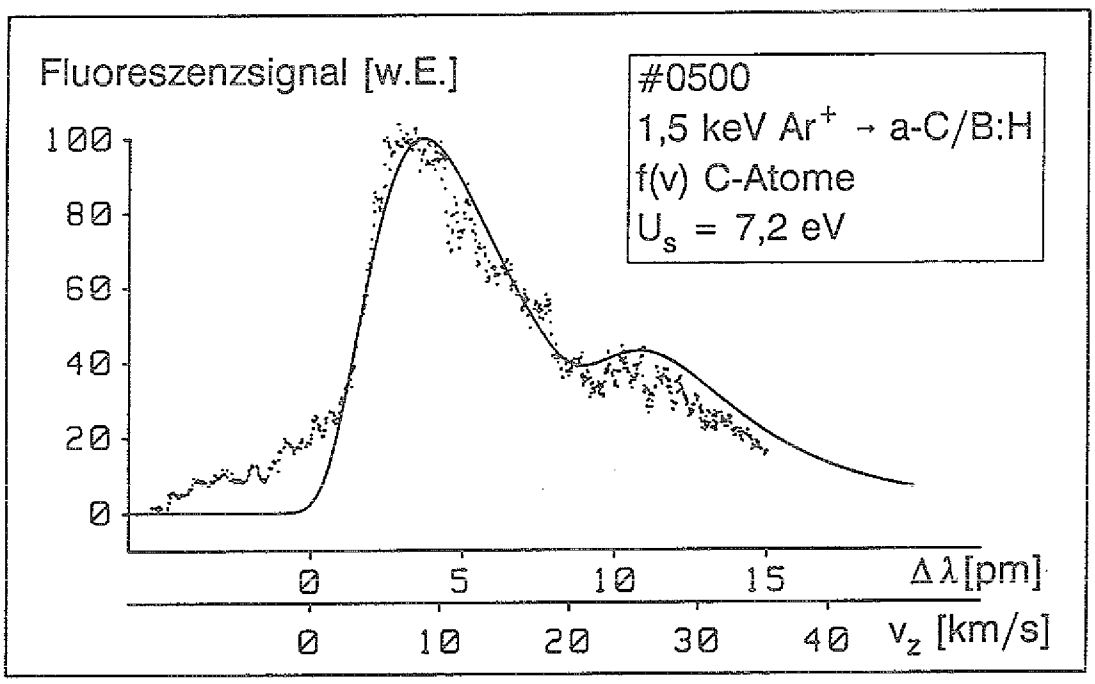


Abb. 4-17: Geschwindigkeitsverteilung abgestäubter C-Atome aus einer a-C/B:H Schicht. Meßpunkte und Thompson-Profil mit U_s=7,2 eV. λ_0 = 165,701 nm ($^3P \rightarrow {}^3P^o$).

Bei einer Oberflächenenergie von U_s=7,2 eV beträgt die mittlere Geschwindigkeit der C-Atome beim Verlassen der a-C/B:H Schicht $<v_z(0)>=6{,}9\cdot10^5$ cm/s. In Anlehnung an die Messung der relativen Zerstäubungsausbeuten zwischen a-C:H und a-C/B:H (vergl. Abb. 4-20) ergibt sich eine Kohlenstoffflußdichte von der a-C/B:H Schicht von $\phi(0)=5{,}5\cdot10^{15}$ cm^{-2}s^{-1}. Die Zerstäubungsausbeute beträgt $Y_c\approx0{,}35$.

Neben a-C:H Schichten lassen sich auch Schichten herstellen, bei denen der Wasserstoff durch Deuterium ersetzt wird. Abb. 4-18 zeigt die Geschwindigkeitsverteilung von C-Atomen, die aus einer a-C:D Schicht stammen.

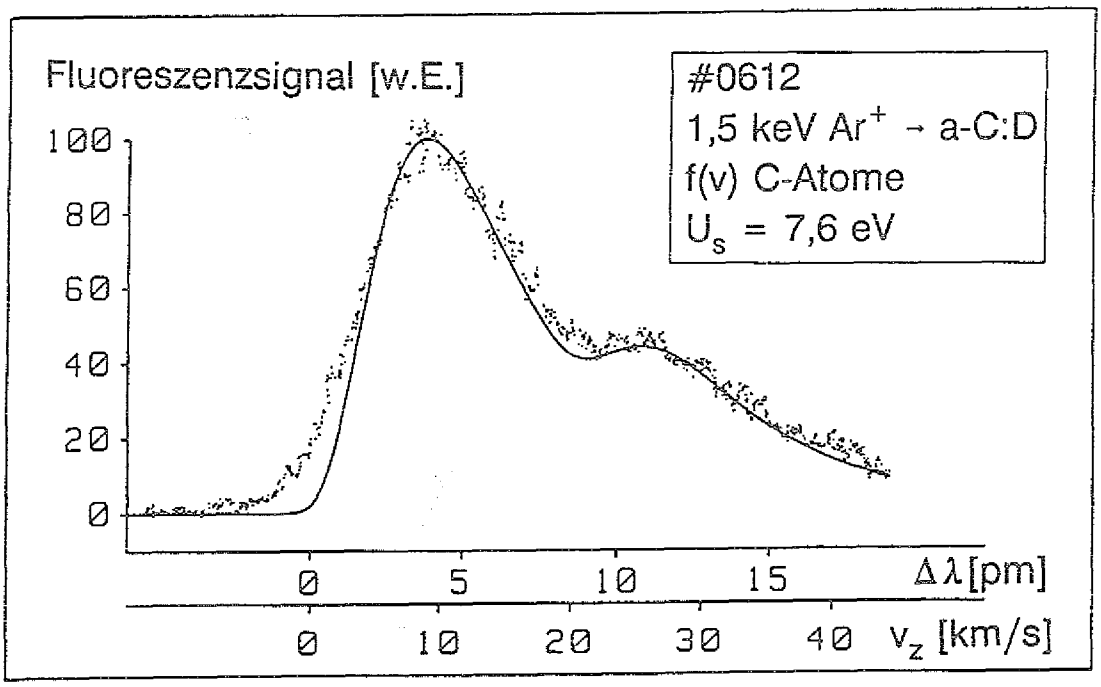


Abb. 4-18: Geschwindigkeitsverteilung abgestäubter C-Atome aus einer a-C:D Schicht. Meßpunkte und Thompson-Profil mit U_s=7,6 eV. λ_0 = 165,701 nm ($^3P \rightarrow {}^3P^o$).

Die Messung wurde ebenfalls bei der 165,701 nm Resonanz durchgeführt. Die Oberflächenenergie beträgt wie bei der a-C:H Schicht 7,6 eV.

Die Abweichung der Meßpunkte in der Nähe des Nullpunktes der Geschwindigkeitsverteilung von der Thompsonverteilung kann auf thermische Atome zurückgeführt werden. Mißt man die Fluoreszenzsignale z. B. 60 µs nach dem Abschalten der Ionenquelle, lassen sich diese Atome von den abgestäubten Atomen separieren, da die abgestäubten neutralen Atome das Streuvolumen aufgrund ihrer Geschwindigkeit verlassen haben.

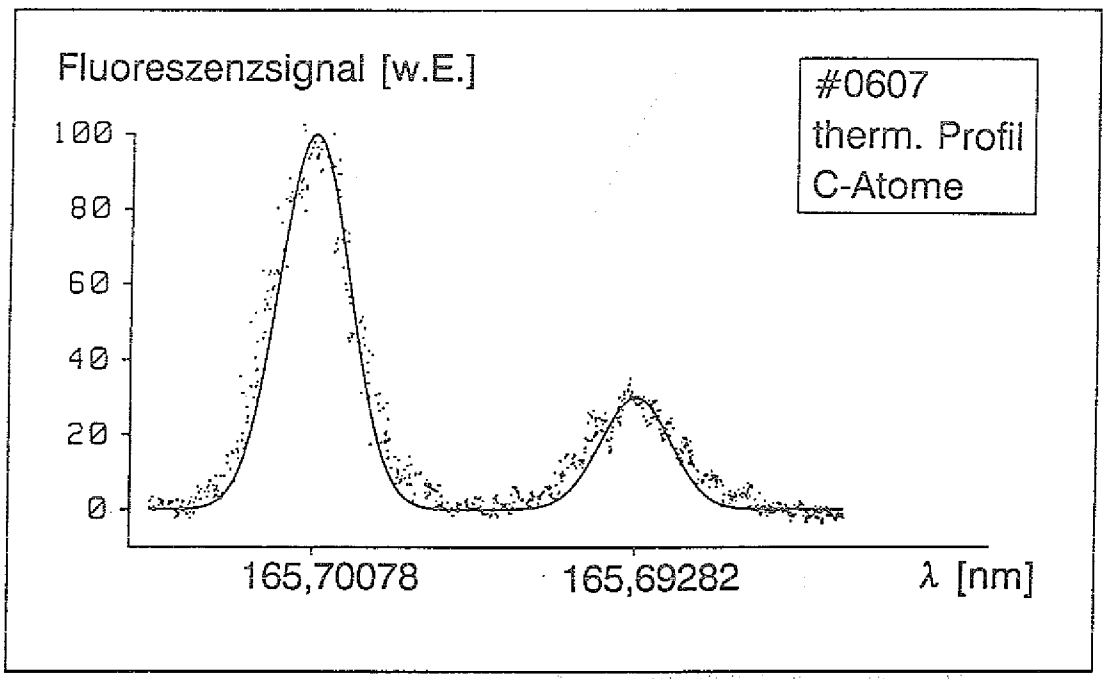


Abb. 4-19: Thermisches Profil von C-Atomen 60 µs nach dem Abschalten des Ar-Ionenpulses.

Die Messung des thermischen Profiles nach dem Abschalten der Ionenquelle kann ebenfalls zur Festlegung des Nullpunktes der Geschwindigkeitsverteilung benutzt werden.

Der Effekt der thermischen Atome wird bei den Messungen zum Nachweis von Wasserstoff besonders deutlich und daher dort näher diskutiert.

Den Vergleich der Zerstäubungsausbeute von C-Atomen zwischen einer frischen a-C/B:H Schicht und Graphit zeigt Abb. 4-20.

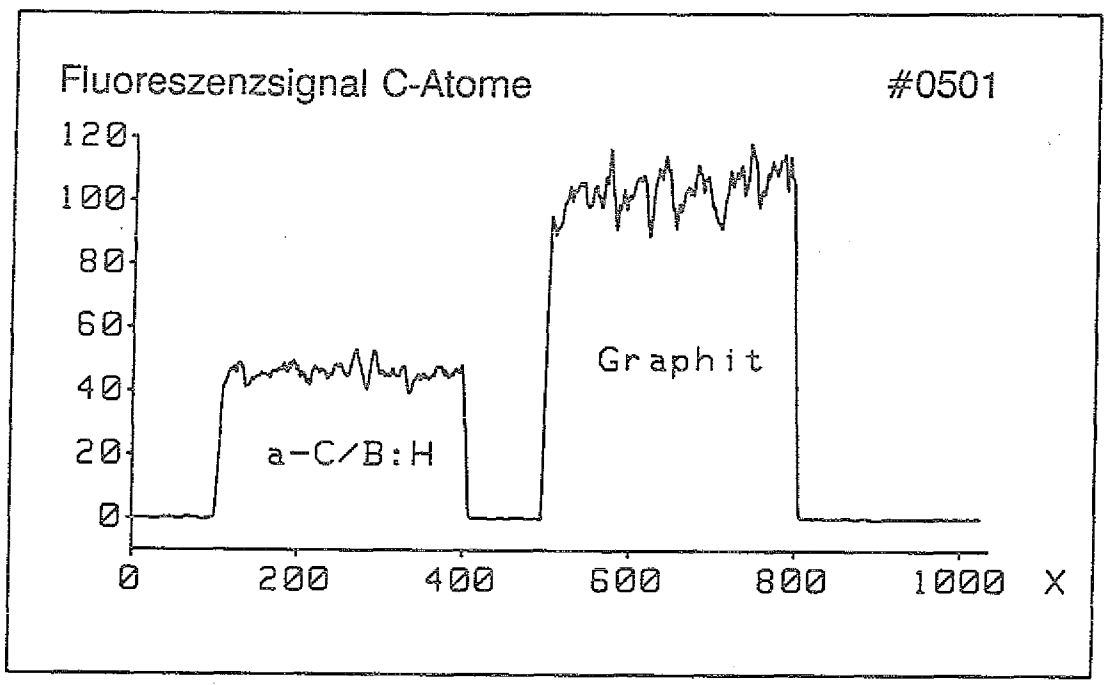


Abb. 4-20: Vergleich der Zerstäubungsausbeute von C-Atomen zwischen einer a-C/B:H Schicht und Graphit. Die Messung erfolgte im Maximum der Geschwindigkeitsverteilung. λ_0 = 165,701 nm ($^3P \rightarrow {}^3P^o$).

Die kleinere Zerstäubungsausbeute bei der a-C/B:H Schicht läßt sich direkt auf den geringeren Kohlenstoffgehalt der Schicht zurückführen (vergl. Abb. 2-3), denn das Bor-zu-Kohlenstoffverhältnis der Probe beträgt etwa 1:1.

An einer frischen a-C/B:H Schicht wurde die Dosisabhängigkeit der Zerstäubungsausbeute untersucht. Für diese Messung wurde die Wellenlänge des Lasers auf das Maximum der Geschwindigkeitsverteilung abgestimmt, und die a-C/B:H Schicht mit 1,5 keV-Ar-Ionen beaufschlagt. Wie Abb. 4-21 zu entnehmen ist, wurde keine Dosisabhängigkeit der Zerstäubungsausbeute für Kohlenstoff festgestellt. Messungen an a-C:H Schichten und Graphit ergaben das gleiche Ergebnis.

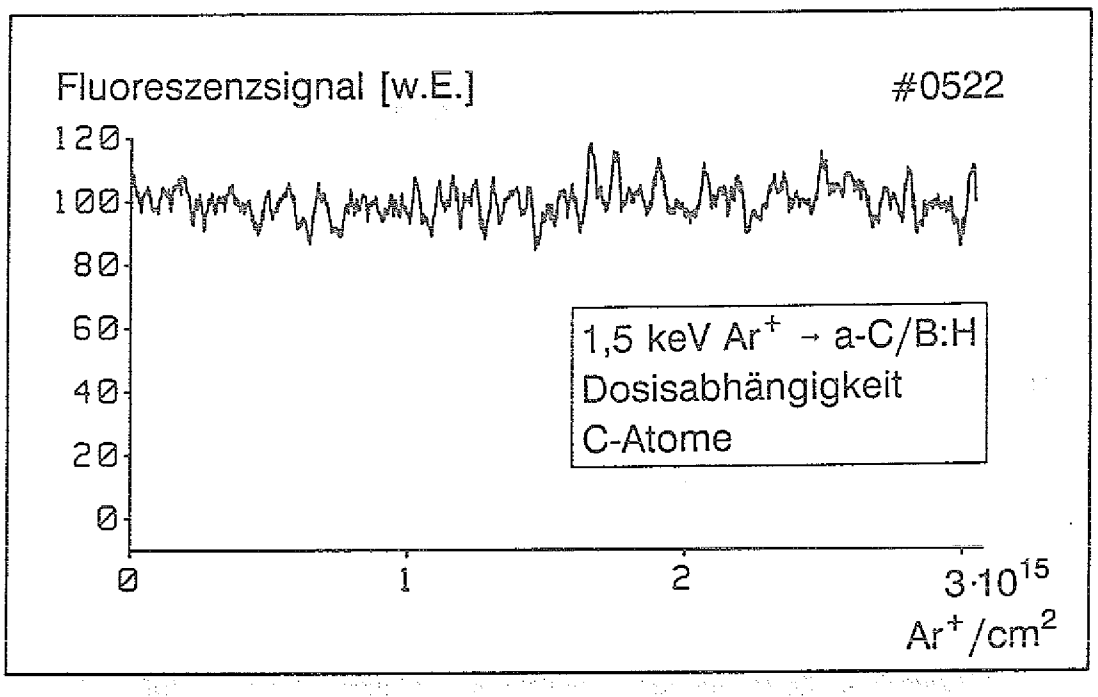


Abb. 4-21: Dosisabhängigkeit der Zerstäubungsausbeute von Kohlenstoff aus einer a-C/B:H Schicht.
λ_0 = 165,700 nm ($^3P \rightarrow {}^3P^o$).

Zusammenfassung der Meßdaten von Kohlenstoff bei Zerstäubung einer a-C/B:H Schicht mit 1.5 keV Ar-Ionen:

U_s	=	7,2 eV	Oberflächenenergie der C-Atome
$\langle n(z) \rangle$	=	$1{,}0 \cdot 10^9$ cm^{-3}	mittlere Dichte im Streuvolumen
$\langle n(o) \rangle$	=	$8{,}0 \cdot 10^9$ cm^{-3}	mittlere Dichte an der Targetoberfläche
$\langle v(0) \rangle$	=	$6{,}9 \cdot 10^5$ cm/s	mittlere Geschwindigkeit an der Oberfläche
$\phi(0)$	=	$5{,}5 \cdot 10^{15}$ cm^{-2}s^{-1}	Gesamtflußdichte an der Oberfläche

4.3.2 Wasserstoff, Deuterium

Im Anschluß an die Kohlenstoffmessungen werden jetzt die Messungen und Ergebnisse bei der Freisetzung von Wasserstoff beschrieben. Dabei wurden sowohl a-C:H als auch a-C:D Schichten untersucht. Bei der Borierung lassen sich zwar a-C/B:H Schichten aber keine reinen a-C/B:D Schichten herstellen, die nur Deuterium enthalten. Zwar läßt sich das bei der Herstellung verwendete CH_4 durch CD_4 ersetzen, aber Diboran B_2H_6 ist zur Zeit nicht als B_2D_6 erhältlich. Dies führt dazu, daß die für den Nachweis von Deuterium verwendeten a-C/B:D Schichten zusätzlich zum Deuterium auch Wasserstoff enthalten, der aber bei Messungen der Geschwindigkeitsverteilung nicht weiter stört.

Zur Anregung von Wasserstoff wird der Laser auf die Resonanzlinie $L_{\alpha,H}$ = 121,567 nm und für Deuterium auf $L_{\alpha,D}$ = 121,534 nm abgestimmt.

Das gemessene Geschwindigkeitsprofil bei Beschuß einer a-C:D Schicht mit 1,5 keV Ar-Ionen zeigt Abb. 4-22. Zum Vergleich ist in Abb. 4-23 noch einmal das thermische Profil von Deuterium dargestellt.

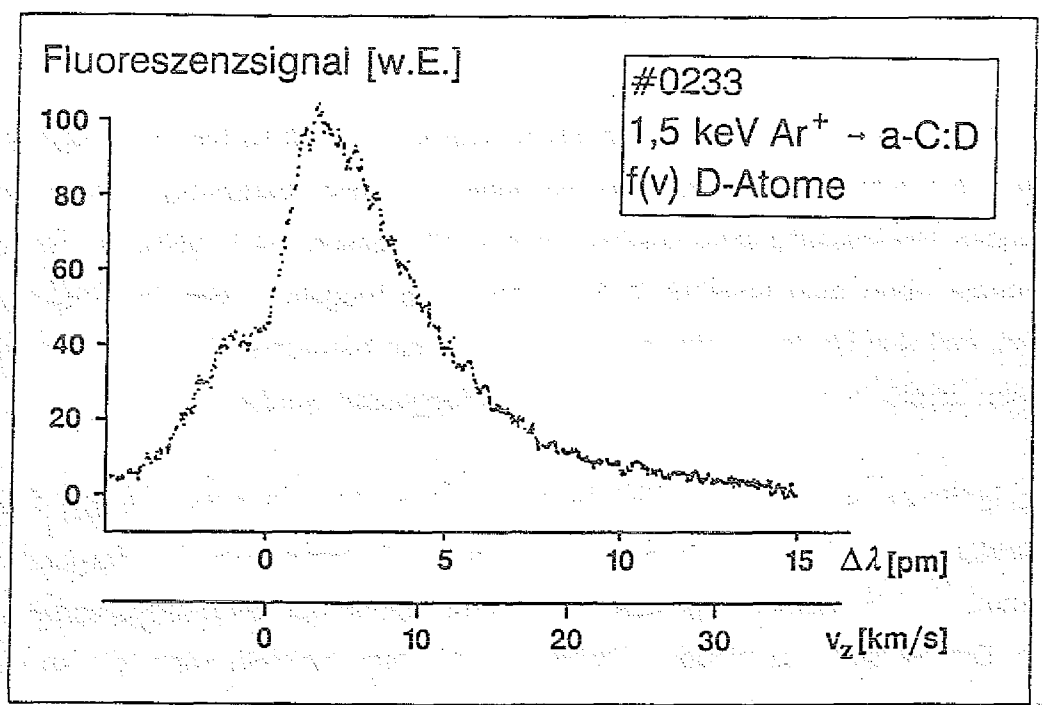


Abb. 4-22: Gemessene Geschwindigkeitsverteilung von atomarem Deuterium aus einer a-C:D Schicht bei Beschuß mit 1,5 keV Ar-Ionen λ_0 = 121,534 nm ($^2S \rightarrow {}^2P^o$).

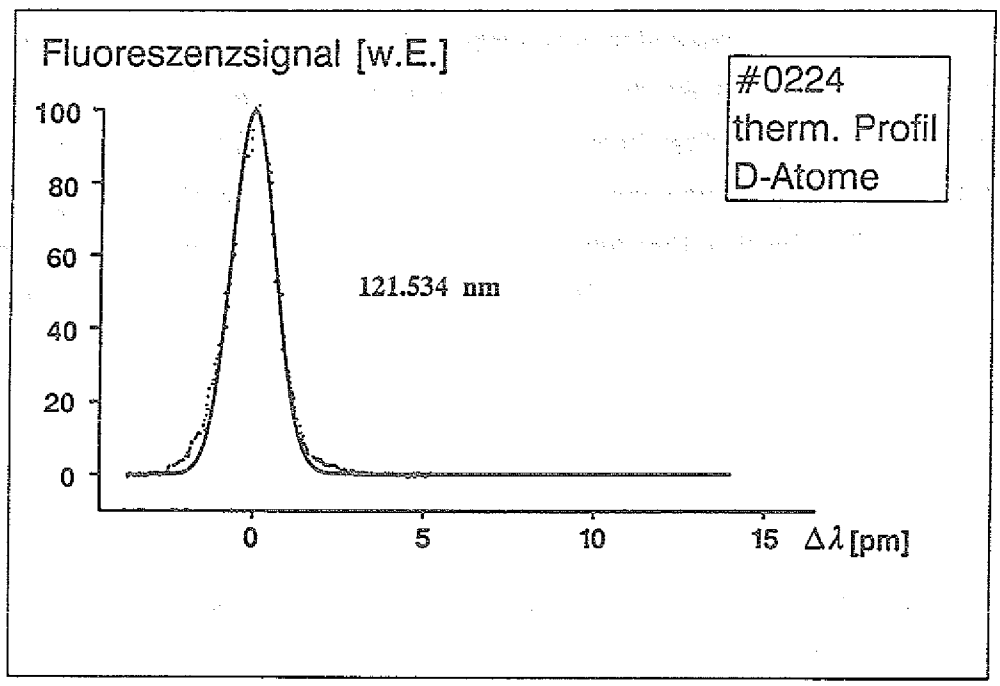


Abb. 4-23: Thermisches Profil (T=300 K) von atomarem Deuterium.
λ_0 = 121,534 nm ($^2S \rightarrow {}^2P^o$).

Im Gegensatz zur Geschwindigkeitsverteilung von Kohlenstoff ist hier eine deutliche Abweichung der gemessenen Verteilung von einer Thompson-Verteilung am Nullpunkt zu erkennen. Die Messung eines solchen Geschwindigkeitsprofiles ist völlig unerwartet, inbesondere wenn man bedenkt, daß die Messung "negativer" Geschwindigkeiten bedeutet, daß sich Deuteriumatome auf das Target hin bewegen, nachdem sie zuvor durch den Zerstäubungsprozeß aus dem Target freigesetzt wurden.

Da die Messung an einer deuteriumhaltigen Schicht durchgeführt wurden, kann ausgeschlossen werden, daß die Messungen durch die Bedeckung der Targetoberfläche mit der in der Vakuumapparatur immer vorhandenen Spuren von H_2O verfälscht wurden. Daß es sich - zumindest teilweise - um Atome handeln kann, die an den Wänden der Experimentierkammer reflektiert werden und zurück ins Streuvolumen gelangen, zeigt folgende Überlegung: Die Messung erfolgt 28 µs nach Beginnn des Arionenpulses (T=30 µs). Um die 15 cm entfernten Wände zu erreichen, benötigen die

schnellen Deuteriumatome (v=30 km/s) 5 µs. Bei der Reflexion werden die Atome thermalisiert (v=5 km/s) und brauchen daher für den Rückweg 15 µs. Rein rechnerrisch können also einige reflektierte Atome das Streuvolumen wieder erreichen. Der Anteil der thermischen Atome von fast 25% läßt sich nicht allein durch reflektierte Atome erklären. Ein weiterer Teil entsteht dadurch, daß abgestäubte Teilchen in die Ionenquelle gelangen, und von dort zusammen mit dem Argon-Ionenstrahl extrahiert werden. (Dieser Anteil ist beim Nachweis von Sauerstoff besonders deutlich erkennbar). Außerden können Atome mit "negativer" Geschwindigkeit durch die Dissoziation von Molekülen, welche bei der Zerstäubung freigesetzt werden und mit Ar-Gas ($p=10^{-4}$ mbar) zusammenstoßen, entstehen. Durch eine Messung der Geschwindigkeitsverteilung 40 µs nach dem Abschalten der Ionenquelle lassen sich die thermischen Atome, die - wie wir annehmen - durch verschiedene Prozesse entstanden sind, von den durch Zerstäubung freigesetzten neutralen Deuteriumatome separieren. Eine solche Messung ist in Abb. 4-24 dargestellt.

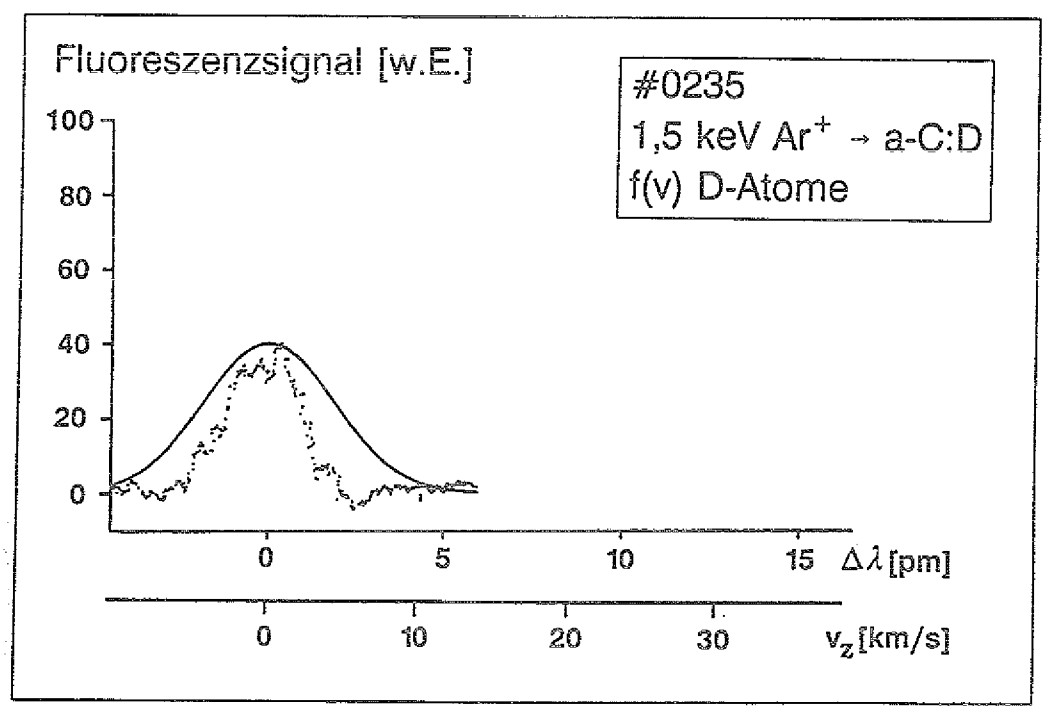


Abb. 4-24: Fluoreszenzsignale 40 µs nach dem Abschalten der Ionenquelle. λ_0= 121,534 nm ($^2S \rightarrow {}^2P^o$).

Die Halbwertsbreite entspricht einer Temperatur von etwa 2000 K also erheblich mehr als Raumtemperatur. Zur besseren Unterscheidung von den thermischen Atomen, welche am Glühdraht erzeugt werden, werden die durch Dissoziation entstandenen

Atome aufgrund der größeren Halbwertsbreite als "überthermische" Atome bezeichnet. Bemerkenswert ist, daß diese "überthermischen" Atome auch noch einige 100 µs nach dem Abschalten der Ionenquelle nachgewiesen werden können. Die Intensität und Halbwertsbreite nehmen aber mit der Zeit ab. Um die "echte" Geschwindigkeitsverteilung abgestäubter Deuteriumatome zu erhalten, haben wir das Profil der "überthermischen" Atome (durchgezogene Linie in Abb. 4-24) von der gemessenen Geschwindigkeitsverteilung (vergl. Abb. 4-22) abgezogen. An diese korrigierte Geschwindigkeitsverteilung (Abb. 4-25) wurde eine Thompson-Verteilung mit einer Oberflächenenergie von $U_s = 1{,}0$ eV angepaßt. Die mittlere Geschwindigkeit der abgestäubten Deuteriumatome beträgt an der Targetoberfläche $\langle v_z(0) \rangle = 6{,}2 \cdot 10^5$ cm/s. Die durch Rayleigh-Streuung in Argon ermittelte Teilchendichte im Streuvolumen beträgt $\langle n(z) \rangle = 1{,}4 \cdot 10^8$ cm^{-3}. Die Teilchendichte an der Targetoberfläche beträgt nach Gl. 2.9 $\langle n(0) \rangle = 7{,}8 \cdot 10^8$ cm^{-3}. Damit ergibt sich für den Gesamtfluß an der Oberfläche $\phi(0) = 5 \cdot 10^{14}$ cm^{-2}s^{-1}.

Aus der einfallenden Ionenflußdichte von $\phi_I = 8 \cdot 10^{15}$ cm^{-2}s^{-1} ergibt sich eine Zerstäubungsausbeute $Y_D \approx 0{,}06$.

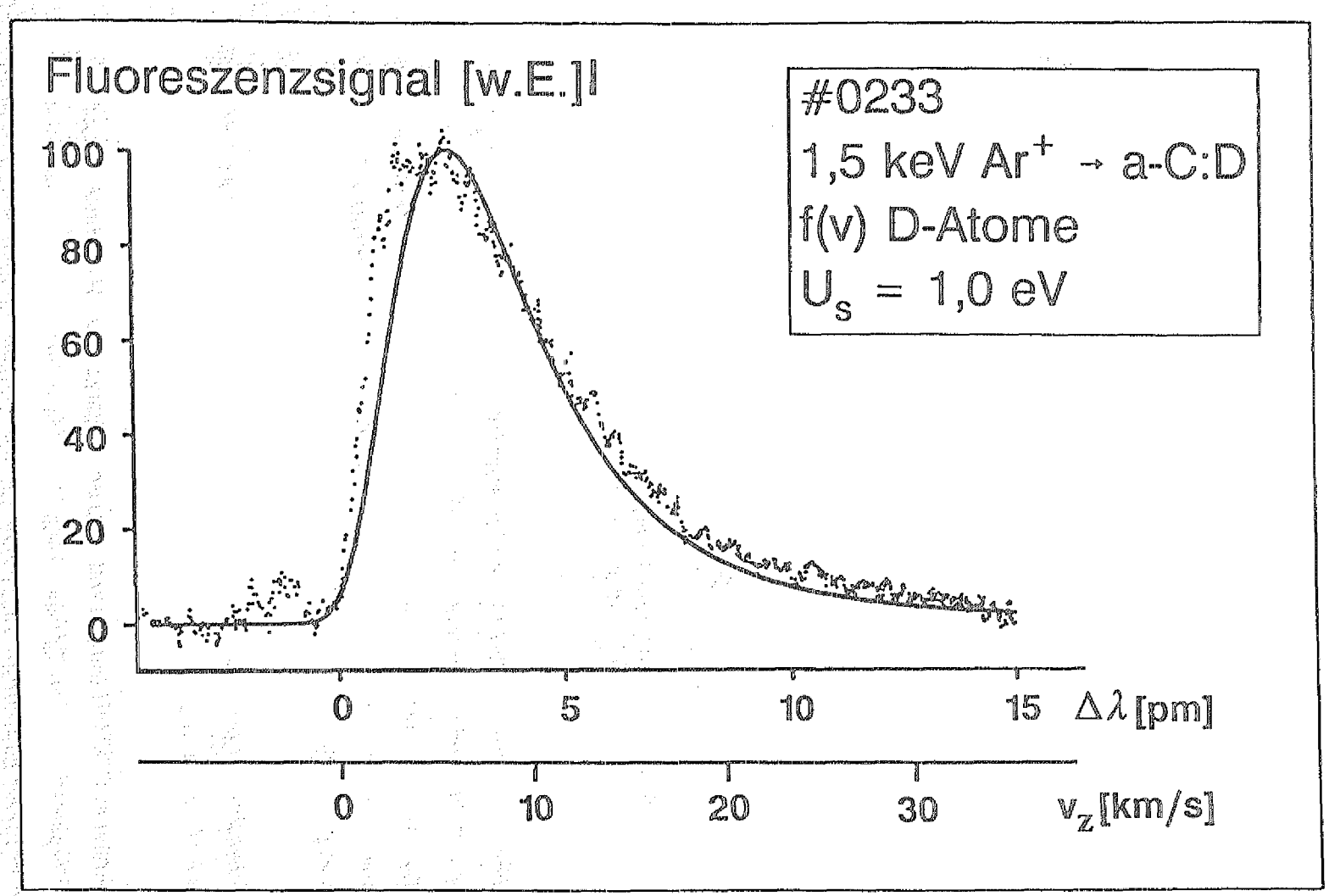


Abb. 4-25: Geschwindigkeitsverteilung abgestäubter Deuteriumatome aus einer a-C:D Schicht. Die experimentellen Werte wurden um die "überthermischen" Atome korrigiert und eine Thompson-Verteilung mit U_s = 1,0 eV angepaßt. λ_0 = 121,534 nm ($^2S \rightarrow {}^2P^o$).

Die Messung der Geschwindigkeitsverteilung der aus einer a-C:H Schicht abgestäubten H-Atome zeigt das gleiche Verhalten am Nullpunkt wie Deuterium aus einer a-C:D Schicht. In Abb. 4-26 ist daher gleich die um die "überthermischen" Atome korrigierte Geschwindigkeitsverteilung dargestellt.

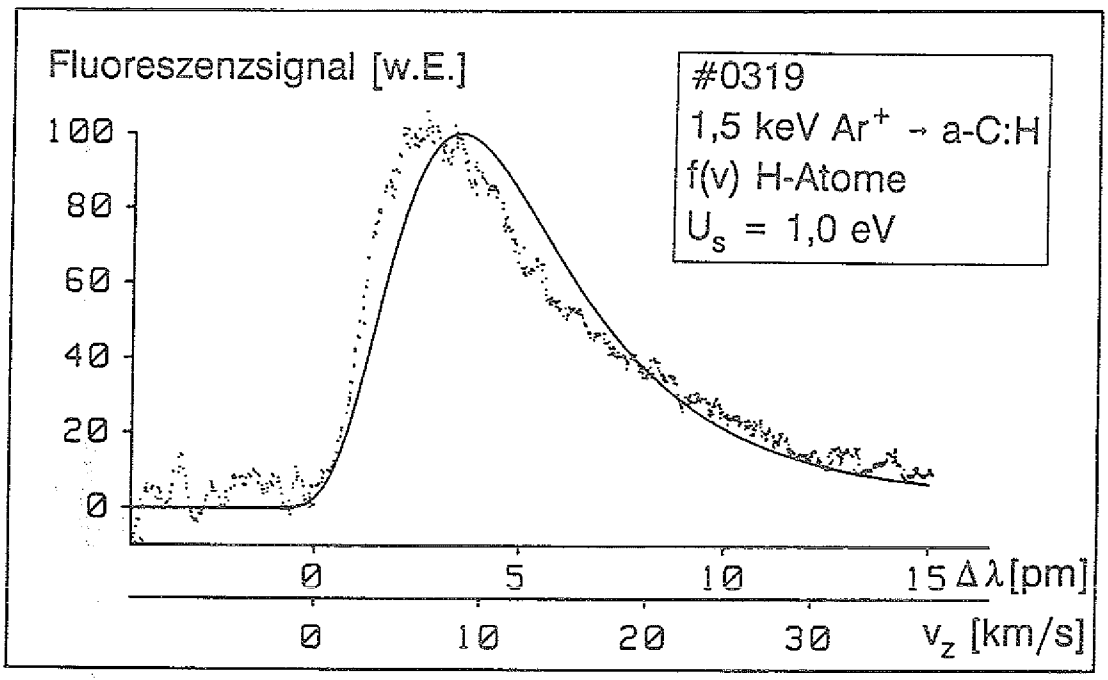


Abb. 4-26: Korrigierte Geschwindigkeitsverteilung abgestäubter H-Atome aus einer a-C:H Schicht und Thompson-Verteilung mit $U_s = 1{,}0$ eV. λ_0 = 121,567 nm ($^2S \rightarrow {}^2P^o$).

Die angepaßte Thompson-Verteilung ergibt ebenfalls eine Oberflächenenergie von 1,0 eV. Aufgrung der geringeren Masse von Wasserstoff im Vergleich zu Deuterium ist die Verteilung um einen Faktor $\sqrt{2}$ breiter. Der experimentell abgeleitete Wert von 1,0 eV für die Oberflächenenergie stimmt mit keiner bekannten Bindungsenergie z. B. CH (3.5 eV), H_2 (4,4 eV), H_2O (5,1 eV) oder CH_4 (4,5 eV) überein.

Die mittlere Geschwindigkeit der H-Atome beim verlassen der Targetoberfläche beträgt $\langle v_z(0) \rangle = 8{,}8 \cdot 10^5$ cm/s ($U_s = 1$ eV).

Die Graphitlimiter in TEXTOR werden während der Entladung mit H-Ionen beaufschlagt. Dabei wird Wasserstoff in den Graphit implantiert. Mit unserem Laborexperiment läßt sich dieser Vorgang simulieren. Dazu wird die Ionenquelle anstelle von Argon mit Wasserstoff betrieben. Die Graphitproben werden ca. 1 Minute mit 1,5 keV H-Ionen

bestrahlt, bis der Graphit mit Wasserstoff gesättigt ist. Dabei dringen die Wasserstoffionen, wie in Abb. 4-15 gezeigt, bis zu 100 nm tief in den Graphit ein.

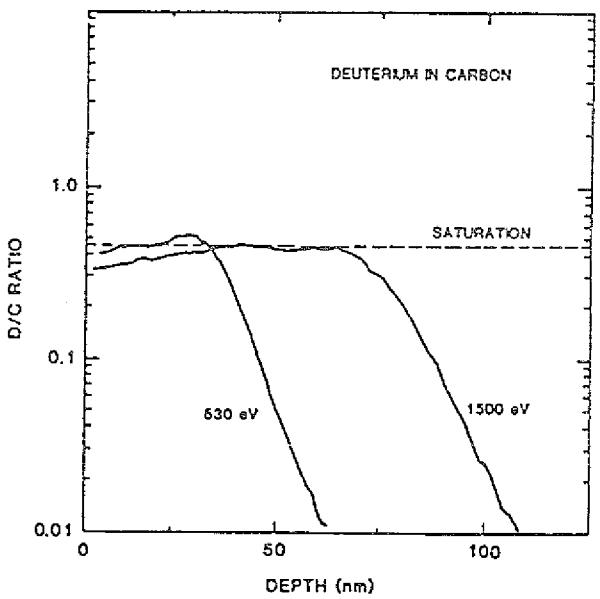


Abb.4-27: Sättigungskurve von Wasserstoff in Graphit bei Beschuß mit 1,5 keV Wasserstoffionen. Nach /52/.

Anschließend werden die so behandelten Graphitproben mit 1,5 keV Ar-ionen bombardiert und die Geschwindigkeitsverteilung der freigesetzten H-Atome gemessen. Die korrigierte Geschwindigkeitsverteilung ist in Abb. 4-28 dargestellt.

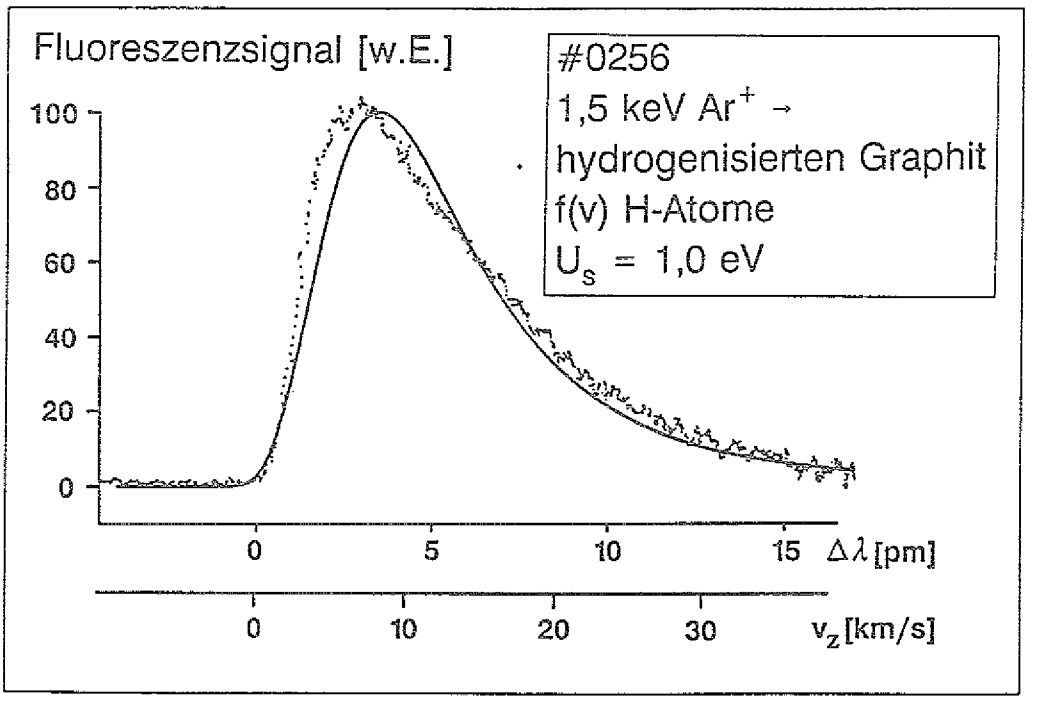


Abb. 4-28: Korrigierte Geschwindigkeitsverteilung von H-Atomen, welche aus hydrogenisiertem Graphit durch Ar-Ionen Beschuß freigesetzt wurden. Die angepaßte Thompson-Verteilung liefert eine Oberflächenenergie von U_s = 1,0 eV.
λ_0 = 121,567 nm ($^2S \rightarrow {}^2P^o$).

An die korrigierten Meßpunkte wurde eine Thompson-Verteilung mit U_s=1,0 eV angepaßt, ein Wert, der dem der a-C:H Schichten identisch ist. Insgesamt konnten zwischen den a-C:H Schichten und dem hydrogenisierten Graphit keine Unterschiede gemessen werden. Dies wird darauf zurückgeführt, daß der Graphit durch den Ionenbeschuß amorphisiert wird. Dieses Ergebnis legt die Vermutung nahe, daß die in TEXTOR durch Redeposition von erodierten Atomen entstehenden Schichten unter Ionenbeschuß das gleiche Verhalten wie frische a-C:H Schichten zeigen.

Die typischen Messungen bei der Zerstäubung einer a-C/B:D Schicht mit 1,5 keV Ar-Ionen zeigen die Abb. 4-29 bis 4-31. Die an die korrigierten Meßpunkte angepaßte Thompson-Verteilung ergibt eine Oberflachenenergie von U_s=0,8 eV.

Die damit verbundene mittlere Geschwindigkeit an der Targetoberfläche beträgt $<v_z(0)> = 5{,}6 \cdot 10^5$ cm/s.

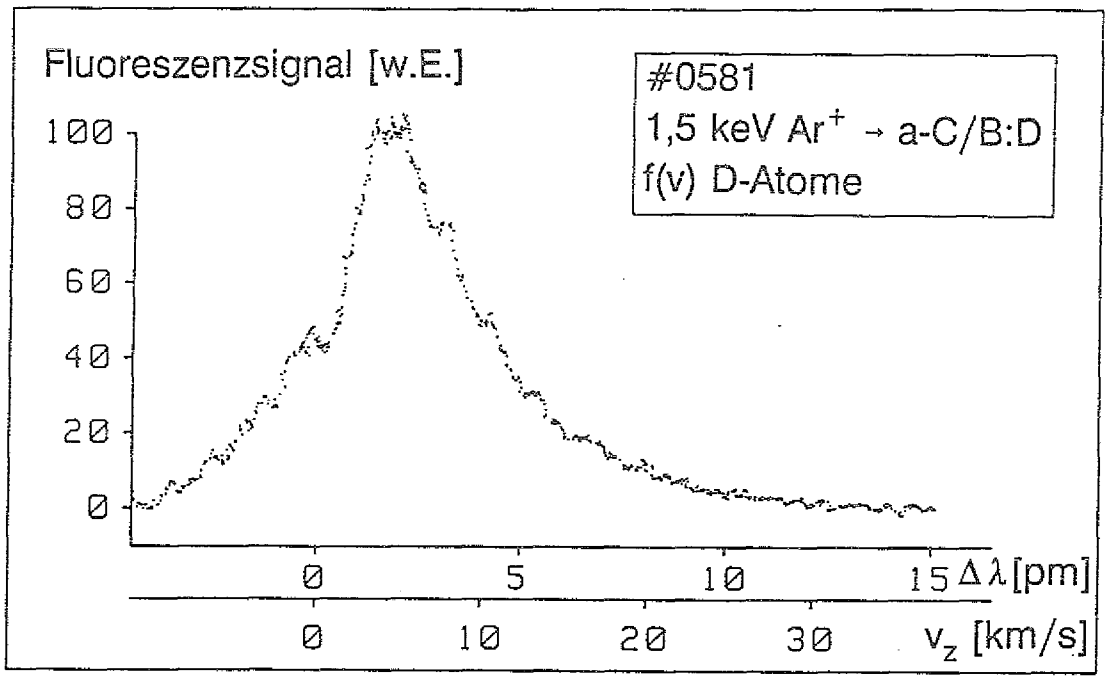


Abb. 4-29: Geschwindigkeitsverteilung abgestäubter D-Atome aus einer a-C/B:D Schicht.
λ_0 = 121,534 nm ($^2S \rightarrow {}^2P^o$).

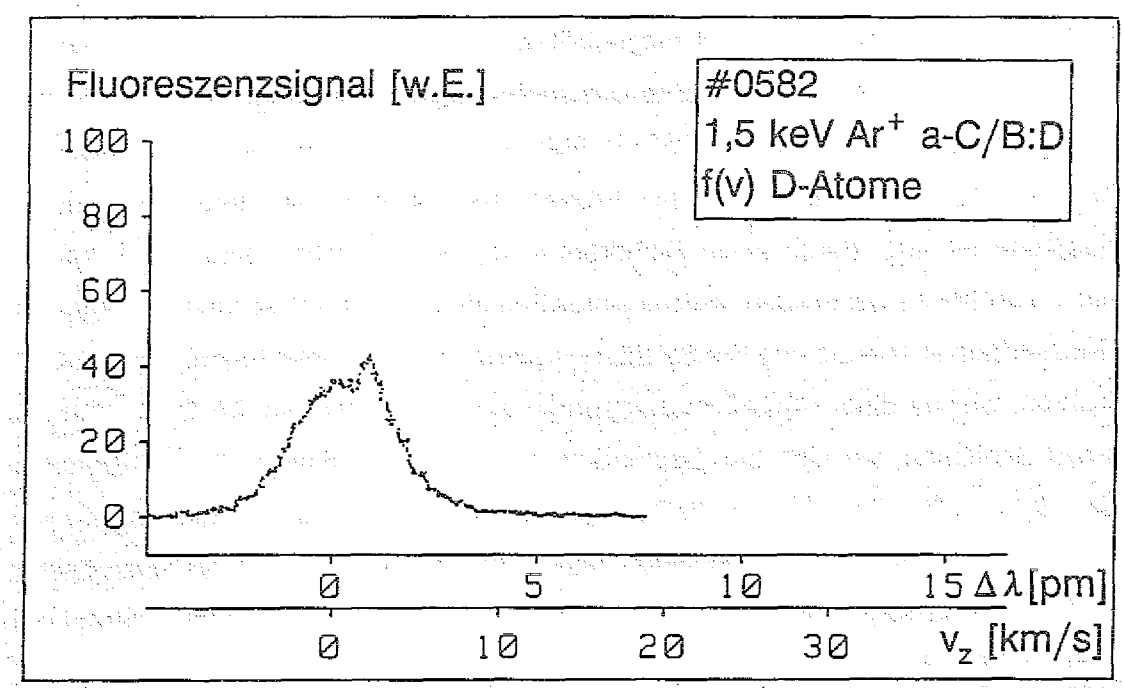


Abb. 4-30: Fluoreszenzsignale 40 µs nach dem Abschalten der Ionenquelle.
λ_0 = 121,534 nm ($^2S \rightarrow {}^2P^o$).

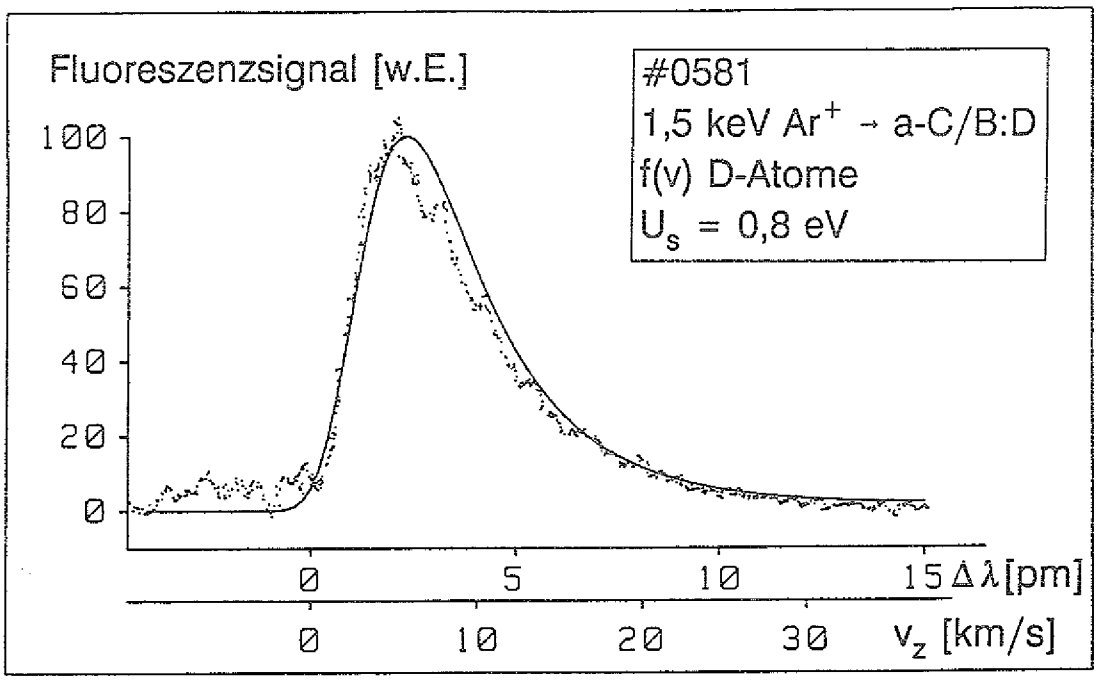


Abb. 4-31: Korrigierte Geschwindigkeitsverteilung abgestäubter D-Atome und Anpassung einer Thompson-Verteilung mit U_s=0,8 eV. λ_0 = 121,534 nm ($^2S \rightarrow {}^2P^o$).

Während bei der Freisetzung von Kohlenstoff aus Graphit, a-C:H oder a-C/B:H Schichten keine Dosisabhängigkeit festgestellt werden konnte, zeigt die Freisetzung von Wasserstoff und Deuterium eine starke Dosisabhängigkeit. Sie hängt jedoch stark von der Vorgeschichte der Targets ab. Wie in Abb. 4-32 und 4-33 für a-C:D und a-C/B:D Schichten gezeigt, ist der Effekt bei Proben, welche einer atomaren Deuteriumatmosphäre (erzeugt durch einen Glühdraht in D_2 bei 10^{-5} mbar) ausgesetzt waren, erheblich größer als bei Proben, welche einige Zeit an Luft gelagert wurden. So ergaben die Messungen eine Änderung der Zerstäubungsausbeute um einen Faktor 30 bei a-C:D Schichten, welche einer Deuteriumatmosphäre ausgesetzt wurden, im Gegensatz zu frischen Schichten, wo sich die Zerstäubungsausbeute um etwa einen Faktor zwölf ändert. Bei a-C/B:D Schichten ist die Dosisabhängigkeit der Zerstäubungsausbeute viel geringer. Bei frischen a-C/B:D Schichten beträgt die Änderung weniger als einen Faktor zwei, nach dem Aussetzen der Schichten mit einer Deuterium Atmosphäre beträgt die Änderung einen Faktor fünf.

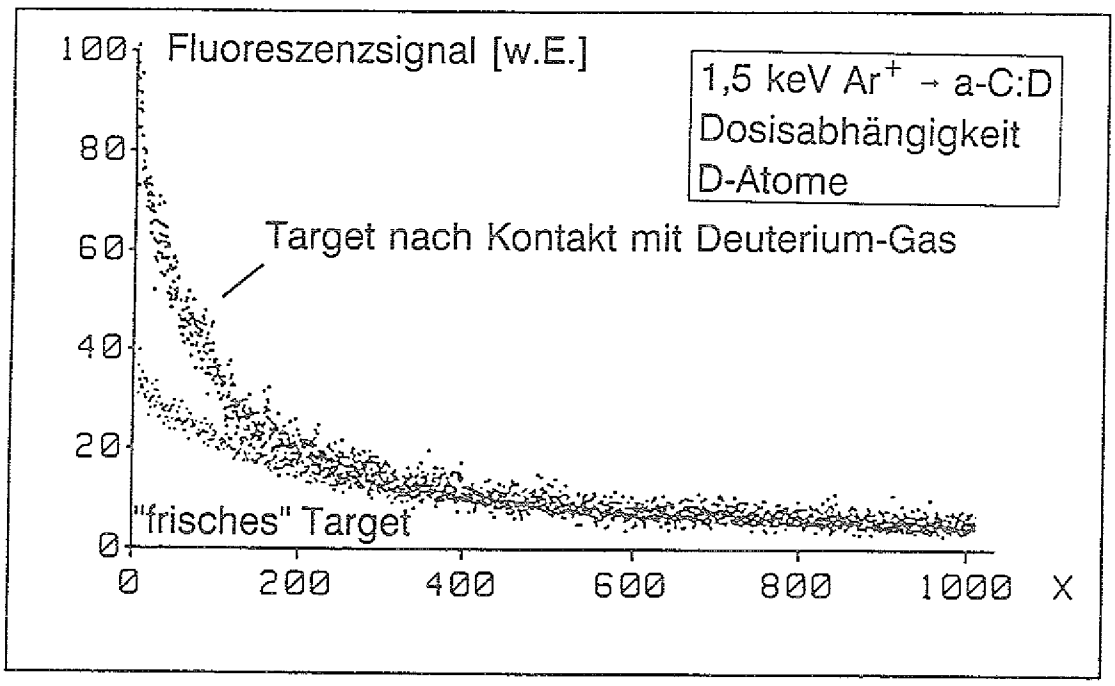


Abb. 4-32: Zerstäubungsausbeute von atomarem Deuterium als Funktion der Dosis im Fall einer a-C:D Schicht. 1000 Ionenpulse(x-Achse) entsprechen einer Dosis von $3 \cdot 10^{15}$ Ar-Ionen/cm^2.
λ_0 = 121,534 nm ($^2S \rightarrow {}^2P^o$).

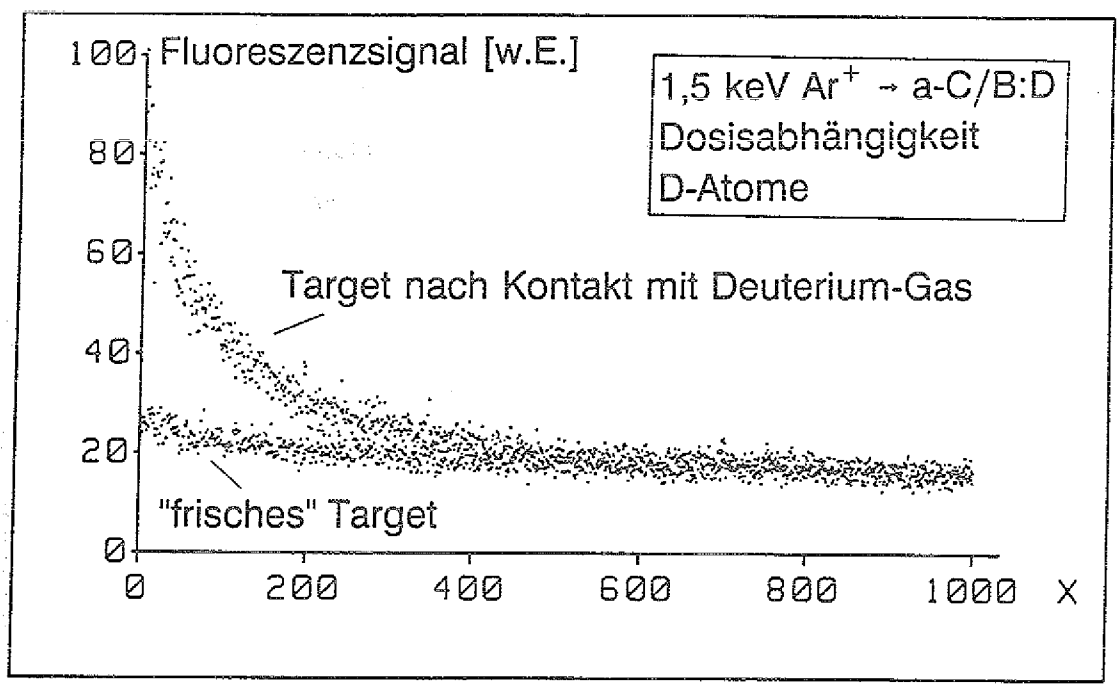


Abb. 4-33: Zerstäubungsausbeute von atomarem Deuterium als Funktion der Dosis im Fall einer a-C/B:D Schicht. 1000 Ionenpulse (x-Achse) entsprechen einer Dosis von $3 \cdot 10^{15}$ Ar-Ionen/cm^2.
λ_0 = 121,534 nm ($^2S \rightarrow {}^2P^o$).

Die Geschwindigkeitsverteilungen wurden grundsätzlich im Gleichgewichtszustand gemessen. Die bei der Zerstäubung einer a-C:D Schicht im Gleichgewichtszustand ermittelte Zerstäubungsausbeute beträgt $Y_D \approx 0.06$ (vergl. Seite 84). Wie Abb. 4-32 zeigt, kann die Zerstäubungsausbeute aber auch deutlich höhere Werte annehmen und sogar $Y_D > 1$ sein.

Zusammenfassung der Meßdaten von Deuterium bei Zerstäubung einer a-C:D Schicht mit 1,5 keV Argon-Ionen:

U_s	=	1,0 eV	Oberflächenenergie der D-Atome
$\langle n(z) \rangle$	=	$1{,}4 \cdot 10^8$ cm^{-3}	mittlere Dichte im Streuvolumen
$\langle n(0) \rangle$	=	$7{,}8 \cdot 10^8$ cm^{-3}	mittlere Dichte an der Oberfläche
$\langle v_z(0) \rangle$	=	$6{,}2 \cdot 10^5$ cm/s	mittlere Geschwindigkeit an der Oberfläche
$\phi(0)$	=	$5 \cdot 10^{14}$ cm^{-2}s^{-1}	Gesamtflußdichte an der Oberfläche

Zusammenfassung der Meßdaten von Deuterium bei der Zerstäubung einer a-C/B:D[1] Schicht mit 1,5 keV Argon-Ionen:

U_s	=	0,8 eV	Oberflächenenergie der D-Atome
$\langle n(z) \rangle$	=	$8{,}4 \cdot 10^7$ cm^{-3}	mittlere Dichte im Streuvolumen
$\langle n(0) \rangle$	=	$4{,}7 \cdot 10^8$ cm^{-3}	mittlere Dichte an der Oberfläche
$\langle v_z(0) \rangle$	=	$5{,}6 \cdot 10^5$ cm/s	mittlere Geschwindigkeit an der Oberfläche
$\phi(0)$	=	$3 \cdot 10^{14}$ cm^{-2}s^{-1}	Gesamtflußdichte an der Oberfläche

[1] Die a-C/B:D Schichten enthalten neben Deuterium auch Wasserstoff.

4.3.3 Bor

Zum Nachweis der Boratome in der a-C/B:H Schicht wird der Laser nach Frequenzverdopplung auf die Resonanzlinie 249,772 nm abgestimmt (Übergang $^2P^o$ - ^2S). Wie bei den vorgenannten Atomsorten zeigen wir zuerst die Geschwindigkeitsverteilung der bei Beschuß der a-C/B:H Filme mit 1,5 keV Ar^+-Ionen abgestäubten B-Atome.

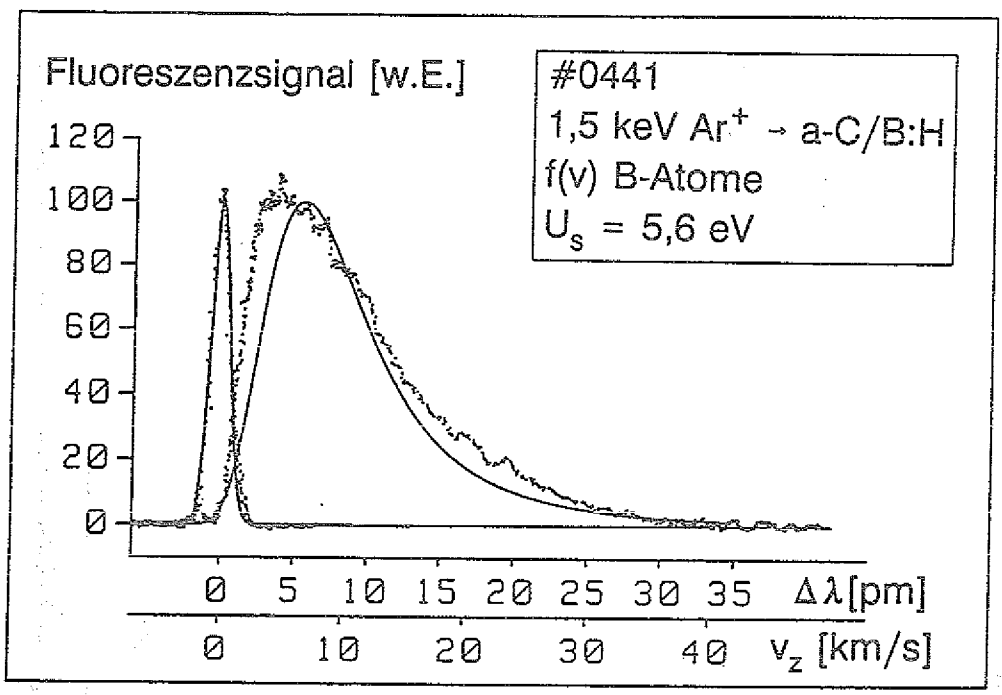


Abb.4-34: Messung der Geschwindigkeitsverteilung abgestäubter Boratome und Thompson-Verteilung mit U_s=5,6 eV, sowie das thermische Profil von Bor (schmale Kurve). λ_0 = 249,772 nm ($^2P^o \rightarrow {}^2S$).

Die an die Meßpunkte angepaßte Thompson-Verteilung liefert eine Oberflächenenergie von 5,6 eV. Die mittlere Geschwindigkeit beträgt $<v_z(0)> = 6{,}6 \cdot 10^5$ cm/s.

Die Empfindlichkeit des Experimentes bei der Bor-Resonanz erlaubt eine Messung der Geschwindigkeitsverteilung auch bei geringerer Energie der Ar-Ionen. Die experimentelle Grenze liegt z. Z. bei einer Energie der Ar-Ionen von 400 eV (siehe auch Abb. 3-17). Die Abb. 4-35 zeigt die Geschwindigkeitsverteilung bei unterschiedlicher Projektilenergie (0,4 und 1,5 keV Ar-Ionen).

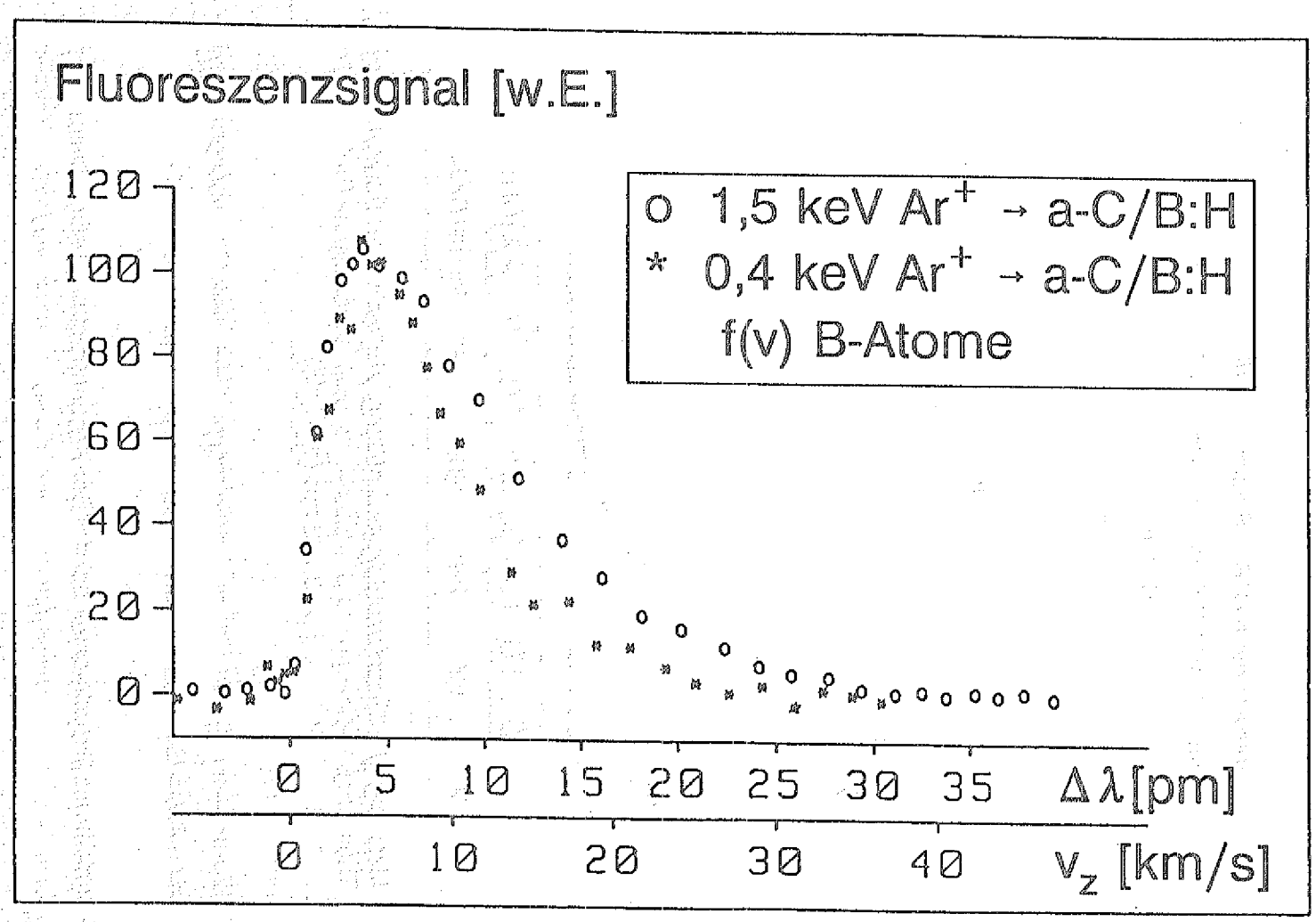


Abb. 4-35: Abhängigkeit der Geschwindigkeitsverteilung abgestäubter Boratome von der Ar-Ionenenergie. λ_0 = 249,772 nm ($^2P^o \rightarrow {}^2S$).

Wie der Abb. 4-35 zu entnehmen ist, wird die Geschwindigkeitsverteilung bei geringerer Projektilenergie deutlich weniger breit. Hier zeigt sich die Grenze des Gültigkeitsbereiches der Thompson-Verteilung, die von der Art und der Energie der Projektilionen unabhängig ist.

Mit der Methode der laserinduzierten Fluoreszenz läßt sich auch die Abhängigkeit der Zerstäubungsausbeute von der Projektilenergie untersuchen. Dies wird am Beispiel von Boratoratomen aus einer a-C/B:H Schicht demonstriert. Für diese Messung wird die Wellenlänge des Lasers auf das Maximum der Geschwindigkeitsverteilung abgestimmt. Es zeigt sich, daß sich die Zerstäubungsausbeute zwischen 500 und 1500 eV um einen Faktor zwei erhöht. Dabei wurde in Abb. 4-36 die Breite der Geschwindigkeitsverteilung (vergl. Abb. 4-35) bereits berücksichtigt.

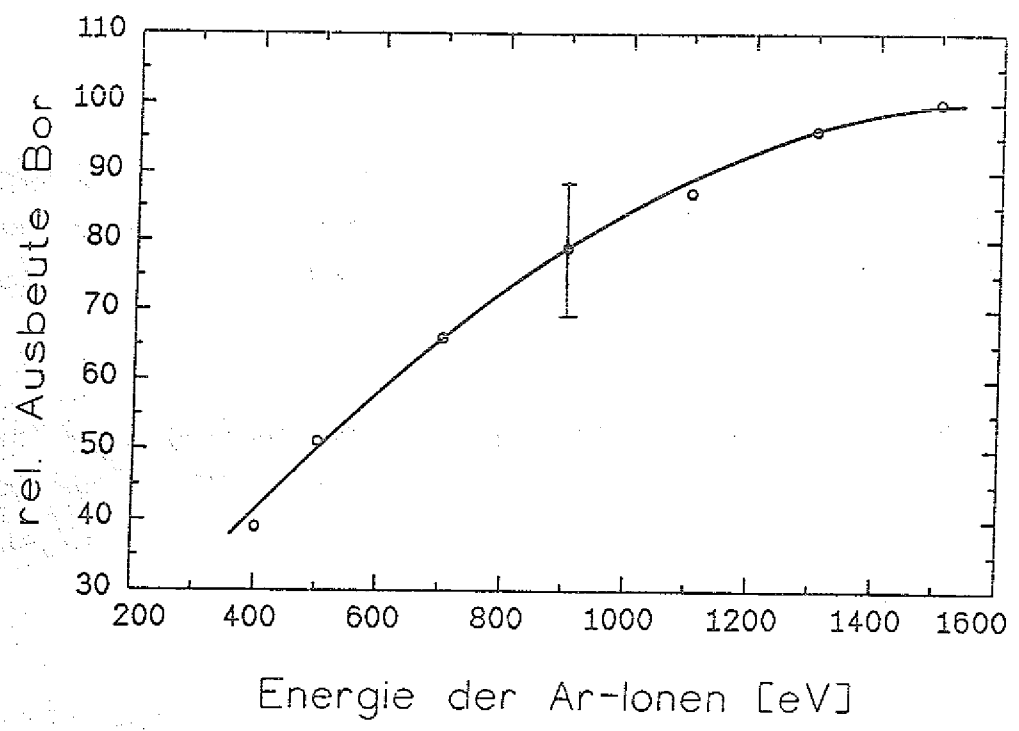


Abb. 4-36: Zerstäubungsausbeute für Bor als Funktion der Ionenenergie. (1,5 keV Ar^+ - a-C/B:H ≙ 100%).

Wie schon bei Kohlenstoff und Wasserstoff wurde an einer "frischen" a-C/B:H Schicht die Zerstäubungsausbeute als Funktion der Ionendosis (Ionenergie = 1,5 keV) untersucht. Diese Messung erfolgte ebenfalls im Maximum der Geschwindigkeitsverteilung.

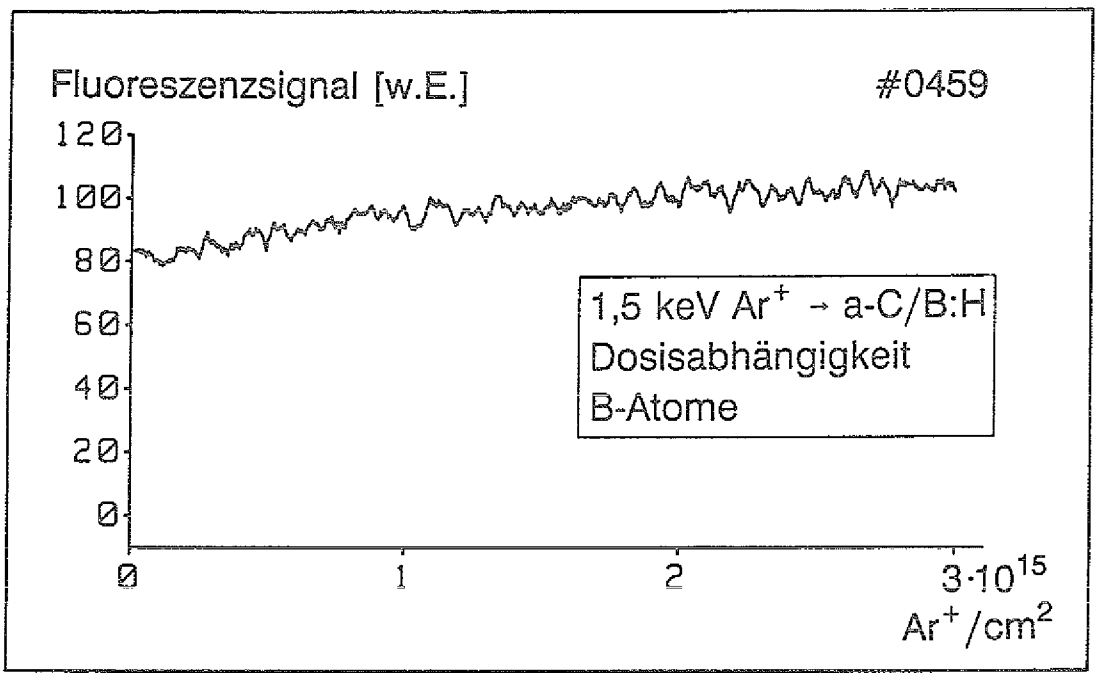


Abb. 4-37: Dosisabhängigkeit der Zerstäubungsausbeute von Bor. (1000 Ar-Ionenpulse entsprechen einer Dosis von 3.10^{15} Ar-Ionen/cm^2). λ_0 = 249,772 nm ($^2P^o \rightarrow {}^2S$).

Die geringere Zerstäubungsausbeute zu Beginn der Messung deutet auf eine Oxidation der Oberfläche hin, da bekannt ist, daß Bor Sauerstoff gettert. An dieser Stelle sei noch einmal daran erinnert, daß bei Kohlenstoff keine Abhängigkeit von der Ionendosis beobachtet wurde.

In Anlehnung an die Zerstäubungsausbeute von Kohlenstoff aus Graghit $Y_C \approx 0{,}7$ und einer a-C/B:H Schicht $Y_C \approx 0{,}35$ (siehe Abb. 4-20) läßt sich die Zerstäubungsausbeute von Bor aus einer a-C/B:H Schicht - bei Beschuß mit 1,5 keV Ar-Ionen - zu $Y_B \approx 0{,}35$ abschätzen, da die a-C/B:H Schicht gleichmäßig abgetragen wird.

4.3.4 Sauerstoff

Bei der Borierung von TEXTOR wurde beobachtet, daß gelegentlich Sauerstoff mit in die a-C/B:H Schicht eingebaut wird (siehe Abb. 2-3). Die Geschwindigkeitsverteilung der Sauerstoffatome, die aus einer solchen Beschichtung stammen, ist in Abb. 4-38 dargestellt. Dazu wurde der Laser auf die Sauerstoffresonanz bei 130,2 nm abgestimmt.

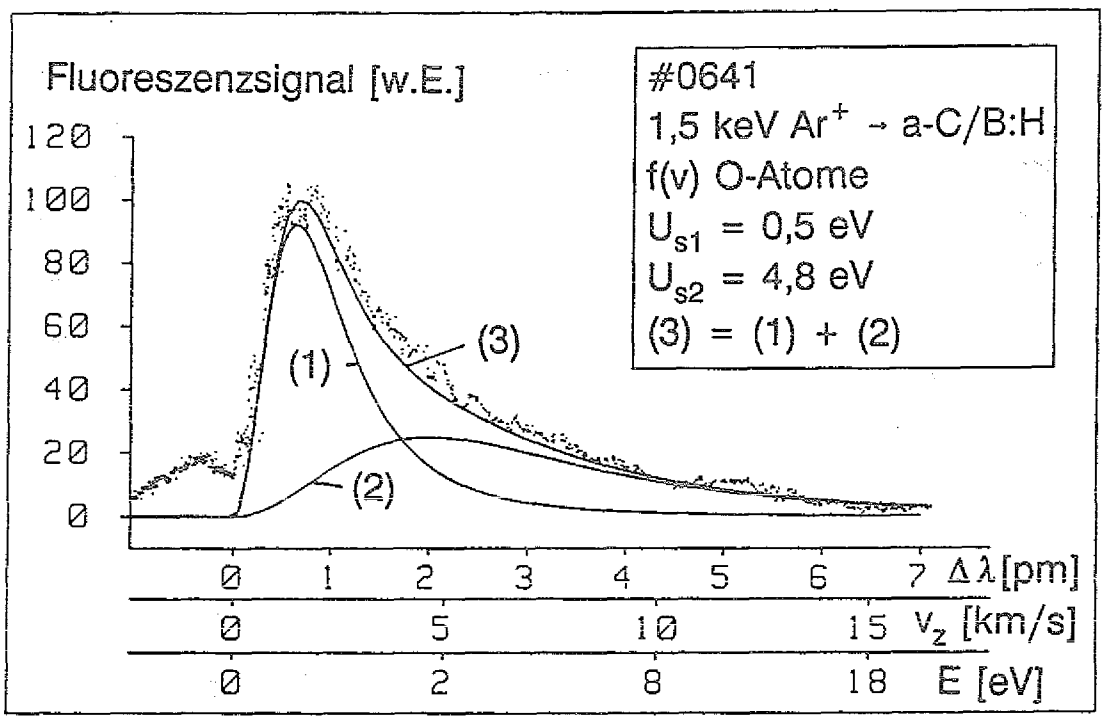


Abb. 4-38: Geschwindigkeitsverteilung abgestäubter O-Atome aus einem a-C/B:H Film bei Beschuß mit 1,5 keV Ar-Ionen (Thompson-Verteilung siehe Text). λ_0 = 130,217 nm ($^3P \rightarrow {}^3P^o$).

An die Geschwindigkeitsverteilung läßt sich eine einzelne Thompson-Verteilung nur unbefriedigend anpassen. Versuchsweise wurden daher zwei Thompson-Profile gemeinsam angepaßt. Die beste Anpassung erhält man mit Thompson-Verteilungen, deren Oberflächenenergien $U_{s,1}$=0,5 eV und $U_{s,2}$=4,8 eV betragen. Die Intensitäten sowie die Summe der einzelnen Thompson-Verteilungen können der Abb. 4-38 entnommen werden.

Die Abweichung am Nullpunkt der Geschwindigkeitsverteilung stammt überwiegend von Sauerstoffatomen aus der Ionenquelle. Dies wird dadurch deutlich, daß das Maximum

der Verteilung der "überthermischen" Atome nicht bei Null liegt, sondern nach links verschoben ist.

Während die Absoluteichung der Teilchendichten bei Kohlenstoff, Bor und Wasserstoff durch Rayleigh-Streuung an Argon erfolgte, ist diese Methode im Fall von Sauerstoff mit der verwendeten Anordnung nicht möglich, da zur Erzeugung der VUV-Strahlung die Raman-Verschiebung in H_2 benutzt wurde und die einzelnen anti-Stokes-Linien nicht getrennt wurden.

Als Alternative zur Rayleigh-Streuung erfolgte deshalb die Bestimmung der Teilchendichte an einem Teil der Moleküllinien von CO-Gas, in der Nähe der Sauerstoffresonanz. Ein Ausschnitt aus dem CO Spektrums (v''=0 → v'=9) ist in Abb. 4-39 dargestellt. Die Spektrallinien wurden mit Hilfe der Tabellen von Kurucz /53/ identifiziert. Aus den Oszillatorenstärken und der bekannten CO-Füllgasdichte von $5 \cdot 10^{-5}$ mbar läßt sich die Sauerstoffdichte abschätzen. Dabei muß man aber bedenken, daß von v=9 Übergänge in verschiedene Schwingungszustände möglich sind. Mit dem von uns verwendeten Photomultiplier mit CsI Kathode können alle Emissionslinien zwischen 130 und 160 nm detektiert werden. Damit erfassen wir etwa 80% aller angeregten Atome.

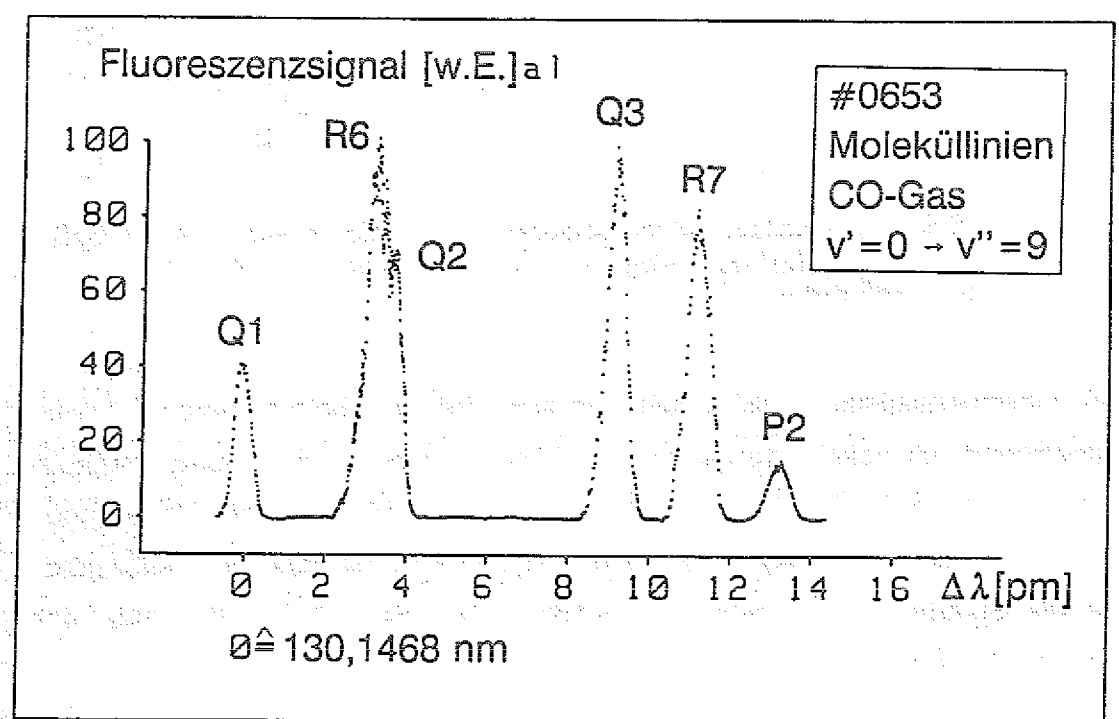


Abb. 4-39: Ausschnitt aus dem Molekülspektrum von CO bei 130 nm. (Referenzmessung zur Absoluteichung der Sauerstoffdichte).

Zur Abschätzung der Dichte werden die Fluoreszenzsignale der abgestäubten O-Atome (Geschwindigkeitsverteilung) mit dem Flureszenzsignal der Q(3)-Linie des CO-Spektrums verglichen.

Das Fluoreszenzsignal der CO-Linie ergibt sich aus:

$$S_{F,CO} = A \cdot n_{CO} \cdot \sigma_{F,CO} \cdot \frac{g}{Z} \cdot e^{-\frac{U}{kT}} \cdot P_{LAS} \quad . \tag{4.1}$$

Dabei bedeutet:

A	die optischen Eigenschaften des Detektionssystems (vergl. Gleichung 2.30)
n_{CO}	die eingefüllte CO-Gasdichte
$\sigma_{F,CO}$	den absorptions Wirkungsquerschnitt
g	das statistische Gewicht des Zustandes
Z	die Zustandssumme
U	die Energie des Niveaus
k	die Boltzmann-Konstante
T	die Temperatur
P_{Las}	die Laserleistung

Aus Gleichung 2.33 ergibt sich für die Q(3)-Linie ein Wirkungsquerschnitt von

$$\sigma_{F,CO} = 4{,}5 \cdot 10^{-16}\ cm^2$$

Die Zustandssumme für CO bei 300 K beträgt Z = 108, das statistische Gewicht der Q(3)-Linie (J=3) beträgt g=7.

Das Signal $S_{F,O}$ der abgestäubten O-Atome ergibt sich aus Gleichung 2.32. Aus dem Vergleich der beiden Fluoreszenzsignale läßt sich die Sauerstoffdichte bestimmen.

Die Abschätzung ergibt eine mittlere Gesamtdichte der durch den Zerstäubungsprozeß

freigesetzten O-Atome im Streuvolumen von $<n(z)> = 8 \cdot 10^8$ cm^{-3}. Nach Gleichung 2.9 ergibt sich eine Sauerstoffdichte von $<n(0)> = 4 \cdot 10^9$ cm^{-3} an der Targetoberfläche.

Zusammenfassung der Meßdaten von Sauerstoff bei der Zerstäubung einer a-C/B:H Schicht mit 1,5 keV Argon-Ionen:

$U_{S,1}$	=	0,5 eV	Oberflächenenergie der O-Atome (Thompson-Verteilung 1)
$U_{S,2}$	=	4,8 eV	Oberflächenenergie der O-Atome (Thompson-Verteilung 2)
$<n(z)>$	=	$8 \cdot 10^6$ cm^{-3}	mittlere Dichte im Streuvolumen
$<n(0)>$	=	$4 \cdot 10^9$ cm^{-3}	mittlere Dichte an der Targetoberfläche.

5. Diskussion der Ergebnisse

Die Messung der Geschwindigkeitsverteilung abgestäubter Atome mittels laserinduzierter Fluoreszenz erfordert eine genaue Wellenlängenbestimmung des "Nullpunkts" der Geschwindigkeitsverteilung. Es wurde daher versucht, die verschiedenen Atomsorten separat zu erzeugen, und zwar mit einer isotropen Geschwindigkeitsverteilung möglichst geringer Breite. Dies ist am einfachsten und besten durch die Dissoziation an einem heißen Wolframdraht gelungen, da hierbei - im Gegensatz zur Glimmentladung - keine störenden Moleküllinien auftreten. In beiden Fällen erhält man eine Gauß-Verteilung, die etwa Zimmertemperatur entspricht.

Die Druckabstimmung des Farbstofflasers ermöglicht eine kontinuierliche Abstimmung der Wellenlänge. Für die Auswertung werden die Meßpunkte mit einem gleitenden Mittelwert über neun Punkte zusammengefaßt. Auf diese Weise erhält man Profile, bei denen die statistische Streuung der Punkte auch in den schwierigsten Messungen (hier L_α mit der 9. anti-Stokes-Linie) noch akzeptabel sind ($< \pm 15\%$). Es muß allerdings betont werden, daß dies einen optimalen Zustand des Lasersystems voraussetzt (sauberer Excimerlaser, frische Farbstoffüllung, unbeschädigte optische Komponenten, gute Justierung), der oft nicht einfach zu erreichen ist.

Durch die Anpassung von Thompson-Verteilungen an die gemessenen Geschwindigkeitsverteilungen läßt sich formal eine Oberflächenenergie U_s der einzelnen Atomsorten in den verschiedenen Schichten bestimmen. Dazu wird die theoretische Thompson-Verteilung mit der Laserlinienbreite (Gauß-Verteilung) gefaltet und der einzige freie Parameter (die Oberflächenenergie U_s) solange variiert, bis sich eine möglichst gute Übereinstimmung mit dem gemessenen Geschwindigkeitsprofil ergibt. Jedoch sind bei kleinen Geschwindigkeiten die Abweichungen oft erheblich.

Die gemessene Oberflächenenergie von 7,6 eV für Graphit stimmt gut mit der Sublimationsenergie von 7,4 eV überein. Der Fehler bei der Bestimmung der

Oberflächenenergie wird daher auf ±0,3 eV abgeschätzt. Als Vergleich können für die Oberflächenenergie von Kohlenstoff auch zwei weitere Autoren, Mertens /54/ U_s=8,2 eV und Goehlich /55/ U_s=7,6 eV angegeben werden, die Zerstäubungsmessungen an Graphit mit einer kontinuierlich arbeitenden Ionenquelle durchgeführt haben. Die Übereinstimmung zeigt zugleich, daß die Zerstäubungsmessungen sowohl mit einer gepulsten als auch mit einer kontinuierlich arbeitenden Ionenquelle durchgeführt werden können, wenn die Oxidation der Oberflächen durch das Restgas in der Vakuumkammer nicht erheblich ist und die zu untersuchenden Proben dick genug sind. Eine Untersuchung der Dosisabhängigkeit mit geringen Dosen ist aber nur mit einer gepulsten Ionenquelle praktikabel durchführbar.

Die experimentell ermittelten Oberflächenenergien sind in Tabelle 5-1 zusammengefaßt.

	Graphit	a-C:H	a-C/B:H
Kohlenstoff	7,6 eV	7,6 eV	7,2 eV
Wasserstoff	-	1,0 eV	0,8 eV
Bor	-	-	5,6 eV
Sauerstoff	-	-	0,5 eV / 4,8 eV

Tabelle 5-1: Experimentell bestimmte Oberflächenenergien U_s. Da für Wasserstoff und Deuterium die gleiche Oberflächenenergie ermittelt wurde, deckt der Begriff "Wasserstoff" hier beide Elemente ab.

Die Bindungsenergie von Bor in einer a-C/B:H Schicht (U_s=5,6 eV) ist etwa mit der Bindungsenergie von Bor in Borkarbid (B_4C) mit U_s=5,4 eV /55/ vergleichbar.

Die kleine Bindungsenergie von Wasserstoff und Deuterium mit etwa 1 eV stimmt mit keiner bekannten Bindungsenergie wie z. B. CH (3,5 eV), H_2 (4,4 eV), H_2O (5,1 eV) oder CH_4 (4,5 eV) überein. Vermutlich handelt es sich hauptsächlich um adsorbierte Atome, deren Bindungsenergie nicht bekannt ist. Es ist bemerkenswert, daß für H- und D-Atome dieselben Oberflächenenergien erhalten werden, was darauf hinweist, daß eine Bindungsenergie die Geschwindigkeitsverteilung bestimmt. Beim einfachen Zweierstoß Argon/Wasserstoff oder Kohlenstoff/Wasserstoff wird nämlich fast doppelt soviel

Energie auf das D-Atom als wie auf das H-Atom übertragen.

Ergänzend zu den a-C:H und a-C/B:H Schichten wurde hydrogenisierter d. h. Wasserstoff gesättigter Graphit untersucht. Die Geschwindigkeitsverteilung der abgestäubten Wasserstoffatome entspricht der Geschwindigkeitsverteilung von Atomen, die aus einer a-C:H Schicht stammen. Damit ergibt sich auch die gleiche Oberflächenenergie von 1,0 eV. Insgesamt konnten zwischen den a-C:H Schichten und dem hydrogenisiertem Graphit keine Unterschiede gemessen werden.

Das Auftreten von Atomen mit "negativer" Geschwindigkeit d.h. Teilchen, die sich auf das Target bewegen, kann verschiedene Ursachen haben. Zum einen können auf Grund der Dimensionen der Vakuumkammer und des Zeitpunktes der Messung einige Atome, die an den Wänden reflektiert werden, das Streuvolumen wieder erreichen. Zum anderen können die abgestäubten Atome mit den Argon-Ionen zusammenstoßen und reflektiert werden, oder es gelangen abgestäubte Teilchen in die Ionenquelle und werden gemeinsam mit dem Ar-Ionenstrahl wieder extrahiert. Eine weitere Möglichkeit besteht darin, daß es sich um Moleküle handelt, welche durch den Zerstäubungsprozeß freigesetzt werden und durch den Ar-Ionenstrahl dissoziiert werden. Bisher konnte aber keine dieser Möglichkeiten eindeutig identifiziert werden.

Die Überlagerung einer Gauß-Verteilung mit einer reinen Thompson-Verteilung wird in der Literatur als "thermal spikes" /56/ beschrieben. Zur Untersuchung von "thermal spikes" scheint uns die laserinduzierte Fluoreszenz besonders gut geeignet zu sein, da sie im Gegensatz zu Laufzeitmessungen mit Massenspektrometern auch Teilchen mit "negativer" Geschwindigkeit problemlos erfassen kann. Da wir solche "negativen" Geschwindigkeiten beobachten,ist ausgeschlossen, daß es sich in unserem Fall um verdampfte Atome handeln kann, die sich ja nur vom Target wegbewegen können.

Bei einem Vergleich der Dosisabhängigkeit der Zerstäubungsausbeute zeigen a-C:D und a-C/B:D Schichen ein deutlich unterschiedliches Verhalten, insbesondere wenn sie zuvor einer Deuterium-Atmosphäre ausgesetzt waren. So ändert sich die Zerstäubungsausbeute um einen Faktor 30 bei a-C:D und um einen Faktor fünf bei a-C/B:D Schichten nach einer Ar-Ionendosis von $3 \cdot 10^{15}$ cm^{-2}. Wenn die a-C:D Schicht einer Deuterium-Atmosphäre ausgesetzt war, ergaben die Messungen Werte für die Zer-

stäubungsausbeute Y_D, die größer als eins sind. Das heißt, es werden pro einfallendem Ar-Ion mehr als ein Deuteriumatom freigesetzt.

Die Geschwindigkeitsverteilung abgestäubter Sauerstoffatome aus einer a-C/B:H Schicht zeigt eine so starke Abweichung von der Thompson-Verteilung, daß wir uns entschlossen haben zwei verschiedene Thompsonverteilungen anzupassen. Die beste Anpassung ergibt sich mit den Oberflächenenergien $U_{s1}=0{,}5$ eV und $U_{s2}=4{,}8$ eV. Dies entspricht der Zerlegung in einen Teil, der schwach gebundene (adsorbierte) Sauerstoffatome, und einen Teil, der fest gebundenen Sauerstoff beschreibt. Der Anteil der schwach gebundenen Sauerstoffatome beträgt etwa 55 %, der Anteil der fest gebundenen Atome etwa 45 %. Es sei noch erwähnt, daß das Aufheizen der Probe auf 200 ^{0}C keinen Einfluß auf die Größe der Fluoreszenzsignale hatte.

Die Absoluteichung der Teilchen erfolgte durch Rayleigh-Streuung an Argon oder durch Fluoreszenzmessungen an CO-Gas (Q3-Linie). Die Nachweisgrenze der experimentellen Anordnung liegt bei etwa 10^7 Teilchen/cm^3. Die Teilchendichten der durch Zerstäubung freigesetzten Atome im Streuvolumen betragen etwa 10^9 cm^{-3}.

6. Zusammenfassung

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden die Eigenschaften der im Fusionsexperiment TEXTOR verwendeten Schichten aus amorphen Kohlenstoff (a-C:H) und amorphen Bor/Kohlenstoff (a-C/B:H) hinsichtlich physikalischer Zerstäubung untersucht. Diese etwa 100 nm dicken Schichten wurden in einem Laborexperiment mit monoenergetischen Argon-Ionen, deren Energie fusionsrelevante Werte aufweist, zerstäubt. Dazu war es erforderlich, eine Ionenquelle von stationären auf gepulsten Betrieb umzubauen, da die Wiederholfrequenz des Lasersystems auf 10 Hz beschränkt ist und die Abtragung der Schicht möglichst gering bleiben sollte. Die Erweiterung der Ionenquelle auf Impulsbetrieb wurde durch das Pulsen der Bogenentladung und des Beschleunigungsgitters erreicht. Bei Pulslängen von 30 μs und einer Messung der Geschwindigkeitsverteilung mit 1000 Meßpunkten ergibt sich eine effektive Bestrahlungsdauer von 30 ms. Bei einer maximalen Stromdichte von 3 mA/cm^2 wird während einer Messung etwa eine Monolage (2,5 Å) von der Schicht abgetragen.

Die durch den Zerstäubungsprozeß freigesetzten Atome wurden mit Methoden der laserinduzierten Fluoreszenz (LIF) untersucht. Ziel war die Messung der Geschwindigkeitsverteilung der abgestäubten Atome aufgrund des Doppler-Effekts sowie die Bestimmung der Teilchendichten durch absolute Bestimmung der Fluoreszenzintensitäten. Diese wurden erhalten durch Kalibrierung mit Rayleigh-Streuung in Argon oder mit LIF an CO-Gas (Q3-Linie).

Die Resonanzlinien von Bor, Kohlenstoff, Sauerstoff und Wasserstoff liegen im ultravioletten (UV) bzw. im vakuum-ultravioletten (VUV) Spektralbereich. Für die Anregung ist daher die Erzeugung von schmalbandiger, abstimmbarer Laserstrahlung im Spektralbereich von 250-120 nm notwendig. Ausgehend von einem kommerziellen Farbstofflasersystem wurde die VUV-Strahlung mit Methoden der nichtlinearen Optik erzeugt. Dabei kamen drei unterschiedliche Verfahren zum Einsatz. Dazu zählt zum einen die Frequenzverdreifachung in einem Edelgasgemisch, bei der schon experimen-

telle Erfahrungen vorlagen. Mit ihr ist es möglich, in bestimmten Wellenlängenbereichen VUV-Strahlung bis 200 W Leistung zu erzeugen. Eine weitere Methode ist die Erzeugung der zweiten Harmonischen in einem Frequenzverdopplerkristall. Aufgrund der Absorption im Kristall können so nur Wellenlängen oberhalb 200 nm erreicht werden. Die Frequenzverdopplung in einem BBO-Kristall ist besonders effektiv und ermöglichte daher noch die Entwicklung einer weiteren Variante zur VUV-Erzeugung. Ausgehend von einer Wellenlänge der zweiten Harmonischen bei 230 nm wurde durch stimulierte Ramanstreuung in H_2 bis zur neunten anti-Stokes-Linie bei 120 nm VUV-Strahlung mit einer Energie > 0,1 µJ nachgewiesen. Die so erzeugte VUV-Strahlung ist bei Verwendung von entsprechenden Laserfarbstoffen lückenlos von 230-120 nm abstimmbar.

Die Festlegung des Nullpunktes der Geschwingigkeitsverteilung wurde an freien thermischen Atomen durchgeführt. Diese wurden durch die Dissoziation von H_2, D_2 oder O_2 an einem heißen Wolframdraht erzeugt. Die Erzeugung von freien C-Atomen auf diese Weise scheiterte an der hohen Dissoziationenergie von CO (11,6 eV) /57/. Sie wurden daher in einer CO-Glimmentladung erzeugt. Erst nach Abschluß der experimentellen Arbeiten wurde festgestellt, daß atomarer Kohlenstoff durch die Dissoziation von CH_4 an einem heißen Wolframdraht erzeugt werden kann.

Die Geschwindigkeitsverteilung der abgestäubten Atome folgt ungefähr einer Thompson-Verteilung. Aus den berechneten Profilen ergeben sich für Kohlenstoff folgende Werte der Oberflächenenergie: a-C:H (7,6 eV), a-C/B:H (7,2 eV) und Graphit (7,6 eV). Die Zerstäubungsausbeuten zwischen einer a-C:H Schicht und Graphit sind etwa gleich groß, die von Kohlenstoff aus einer a-C/B:H Schicht entsprechend dem Bor-Anteil geringer. Eine Dosisabhängigkeit wurde nicht festgestellt. Die Bindungsenergie der Boratome in der a-C/B:H Schicht wurde zu 5,6 eV bestimmt. Die Dosisabhängigkeit zeigte eine Oxidation der Oberfläche, die auf die Getterwirkung von Bor auf Sauerstoff zurückgeführt wird. Die Messungen an Wasserstoff/Deuterium aus a-C:H (a-C:D) und a-C/B:H (a-C/B:D) Schichten zeigte überraschende Ergebnisse. So wurde zum einen eine starke Dosisabhängigkeit der Zerstäubungsausbeute festgestellt und zum anderen liefern die angepaßten Thompson-Verteilungen Oberflächenenergien von 1,0 eV (a-C:H) und 0,8 eV (a-C/B:H), die mit keiner bekannten Bindungsenergie übereinstimmen. Außerdem wurde eine starke Abweichung der Meßdaten am Nullpunkt der Thompson-

Verteilung beobachtet, die auf die Freisetzung von Molekülen durch den Zerstäubungsprozeß hindeuten, welche im Ar-Plasma des Ionenstrahls dissoziiert werden. Der Anteil dieser Atome von den abgestäubten Atomen konnte getrennt werden (Messung 40 µs nach dem Abschalten des Ionenpulses). Weitere Untersuchungen z. B. die Suche nach Moleküllinien könnten weitere Klarheit in diesem Punkt verschaffen.

An die Geschwindigkeitsverteilung von abgestäubtem atomarem Sauerstoff aus einer a-C/B:D Schicht wurden zwei Thompson-Verteilungen mit Oberflächenenergien von 0,5 eV und 4,8 eV angepaßt. Dies entspricht der Zerlegung in einen Teil, der adsorbierte Sauerstoffatome, und einen Teil, der fest gebundenen Sauerstoff beschreibt.

Anhang A

Spektroskopische Daten der Spektrallinien

Die letzte Spalte kennzeichnet die zur Anregung verwendete Methode:

- * Frequenzverdopplung
- ** Frequenzverdopplung + Raman-Verschiebung
- *** Frequenzverdreifachung

$\lambda_{Vak.}$ [nm]	E_i [cm^{-1}]	E_k [cm^{-1}]	$J_{i,k}$	$g_{i,k}$	A [10^8 s^{-1}]	f	Methode
Kohlenstoff CI, $2p^2$ - 2p 3d, ^3P - $^3D^o$							
127,725	00,00	78293	0 1	1 3	0,88	0,064	***
127,728	16,40	78307	1 2	3 5	1,2	0,048	***
127,751	16,40	78293	1 1	3 3	0,65	0,016	***
127,755	43,40	78318	2 3	5 7	1.5	0,055	***
127,772	43,40	78307	2 2	5 5	0,39	0,010	***
127,795	43,40	78293	2 1	5 3	0,042	0,001	***
Kohlenstoff CI, $2p^2$ - 2p 3s, ^3P - $^3P^o$							
165,627	16,40	60393	1 2	3 5	1,1	0,073	**
165,693	00,00	60353	0 1	1 3	1,4	0,17	**
165,701	43,40	60393	2 2	5 5	3,1	0,13	**
165,738	16,40	60353	1 1	3 3	1,0	0,042	**
165,791	16,40	60333	1 0	3 1	4,1	0,056	**
165,812	43,40	60353	2 1	5 3	1,8	0,044	**
Sauerstoff OI, $2p^4$ - 3s, ^3P - $^3S^o$							
130,217	00,00	76795	2 1	5 3	3,3	0,049	**
130,486	158,3	76795	1 1	3 3	2,0	0,049	**
130,603	227,0	76795	0 1	1 3	0,66	0,050	**

$\lambda_{Vak.}$ [nm]	E_i [cm^{-1}]	E_k [cm^{-1}]	$J_{i,k}$		$g_{i,k}$		A [$10^8 s^{-1}$]	f	Methode
Bor BI, $2p^2$ - 4d, $^2P^o$ - ^2D									
166,687	00,00	59993	1/2	3/2	2	4	0,42	0,125[1)]	**
166,729	15,25	59993	3/2	5/2	4	6	0,52	0,112[1)]	**
166,729	15,25	59993	3/2	3/2	4	4	0,08	0,013[1)]	**
Bor BI, 2p 3s, $^2P^o$ - ^2S									
249,677	00,00	40040	1/2	1/2	2	2	1,2	0,11	*
249,772	15,25	40040	3/2	1/2	4	2	2,4	0,11	*
Wasserstoff HI, 1s - 2p, ^2S - $^2P^o$									
121,567	00,00	82259	1/2		2	6	6,2	0,416	**, ***

Allgemeine Daten entnommen aus:

W.L. Wiese, M.W. Smith and B.M. Glennon
Atomic Transition Probabilities, Volume I
NSRDS-NBS 4, Washington, D.C. (1980).

1) P. Zimmermann, TU Berlin, private Mitteilung

Anhang B
Raman-Verschiebung

Zur Untersuchung der Linienbreite und Position der anti-Stokes-Linien wird der gleiche experimentelle Aufbau, wie er in Kapitel 3.2 (Variante 1) beschrieben wurde, verwendet.

Die UV-Strahlung (230 nm) der zweiten Harmonischen wird mit einer Quarz-Linse (f=40 cm, bei 500 nm) in die Raman-Zelle fokussiert. Die Raman-Zelle besteht aus einem 60 cm langen Edelstahlrohr, dessen Innendurchmesser 4 cm beträgt. In dieses Rohr, das an den Enden mit Fenstern versehen ist, wird Wasserstoff eingefüllt. Als Austrittsfenster dient eine MgF_2 Linse (f=50 cm bei 500 nm), die die austretende Strahlung kollimiert. Zur Kühlung des Wasserstoffs ist um den mittleren Teil des Rohres (40 cm) ein Edelstahlbehälter geschweißt, in den flüssiger Stickstoff (T=77 K) eingefüllt wird. Um den Behälter sowie den restlichen Teil des Edelstahlrohres thermisch zu isolieren, sind die Außenflächen mit 2 cm dickem Schaumstoff verkleidet. Aus konstruktiven Gründen kann der mit flüssigen Stickstoff gefüllte Behälter nicht das ganze Rohr abdecken, da sonst die Dichtungen für das Eintritts- bzw. Austrittsfensters einfrieren würden. Trotz der Isolation der Rohrenden scheint die Wasserstoffdichte innerhalb des Rohres nicht homogen zu sein. Dies macht sich dadurch bemerkbar, daß beim Einfüllen des flüssigen Stickstoffs die anti-Stokes-Linien nach unten auswandern. Die Umlenkung des Strahls muß bei der Justierung der Raman-Zelle berücksichtigt werden. Dieser nicht näher untersuchte "thermische-Prismen-Effekt" entsteht vermutlich durch einen Dichtegradienten innerhalb des Rohres aufgrund unterschiedlicher Temperaturen der Rohroberseite und der Rohrunterseite im nicht gekühlten Teil der Raman-Zelle.

Die Raman-Verschiebung im Waserstoff beträgt 4155,25 cm^{-1} pro Raman-Schritt. Ausgehend von der zweiten Harmonischen bei 230 nm (7 mJ, 10 ns) konnten bis zur neunten anti-Stokes-Linie VUV-Strahlung nachgewiesen werden. Dabei nehmen die Pulslängen und die Leistung von anti-Stokes zu anti-Stokes Komponente um etwa 70% ab. So beträgt die Leistung der neunten anti-Stokes-Linie bei 120 nm etwa 100 W und die Pulslänge weniger als 2 ns.

Für die Anpassung der Thompson-Profile an die Geschwindigkeitsverteilungen ist die Kenntnis der Linienbreite der Pumpstrahlung notwendig. Der Einfluß des Wasserstoffdruckes in der Raman-Zelle auf die Linienbreite und Position der anti-Stokes-Linie soll am Beispiel der Sauerstoffresonanz bei 130,2 nm demonstriert werden. Für diese Zwecke wird die evakuierte Vakuumkammer mit $5 \cdot 10^{-5}$ mbar O_2 gefüllt. Durch einen heißen Wolframdraht (⌀0,25 mm, I=5 A) wird ein Teil der Sauerstoffmoleküle dissoziiert und atomarer Sauerstoff erzeugt. Anschließend wird der die achte anti-Stokes-Linie auf alle drei Resonanzlinien des Sauerstoffs bei 130,217 nm, 130,486 und 130,603 nm ($^3P_{2,1,0} \rightarrow {}^3S_1$) abgestimmt und die relativen Intensitäten bestimmt. Die Messung ergab ein Intensitätsverhältnis von 15:4,2:1, was auf Raumtemperatur des atomaren Sauerstoffs hindeutet. Die Linienbreite und die Position der Sauerstofflinie bei 130,2 nm ist in Abb. B-1 als Funktion des H_2-Druckes der Raman-Zelle dargestellt.

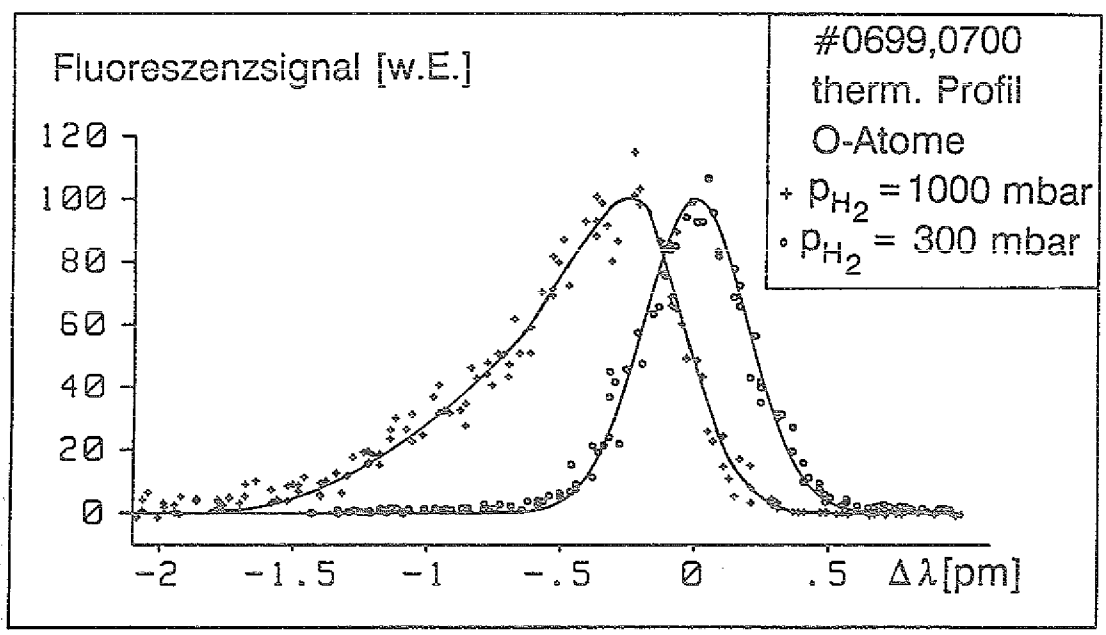


Abb.B-1: Fluoreszenzsignal von thermischem Sauerstoff bei 130,2 nm. (Erläuterungen siehe Text).

Die durch Punkte beschriebene Kurve zeigt das gemessene thermische Profil von atomarem Sauerstoff, welches mit einem H_2-Druck in der Raman-Zelle von 300 mbar gemessen wurde. Die durch Kreuze beschriebene Kurven gibt den unter gleichen Bedingungen gemessene Verlaufs des thermischen Profiles bei einem H_2-Druck von 1000 mbar wieder. Wie der Abb. B-1 zu entnenmen ist, wird das Maximum der

Resonanz bei einer Erhöhung des H_2-Druckes in der Ramanzelle deutlich zu kürzeren Wellenlängen verschoben. Mit den in der Literatur /58/ beschriebenen Werten für die Druckverschiebung von 300 MHz oder 0,01 cm^{-1} pro Amagat* (Dichte) und Raman-schritt, ergibt sich für unseren Fall (acht Raman-Schritte und 3,7 Amagat) eine Verschiebung von 0,3 cm^{-1} oder 0,5 pm/1000 mbar. Die gemessene Verschiebung beträgt 0,4 pm/1000 mbar. Die Abweichung vom theoretischen Wert kann zwei Gründe haben. Zum einen kann es sein, daß das H_2-Gas nicht die Temperatur des Edelstahl-rohres erreicht und zum anderen ist das gemessene Profil leicht unsymmetrisch.

Die Linienbreite der anti-Stokes-Linie nimmt mit steigengen Druck zu. Unter der Annahme, daß die Sauerstofflinie einem Doppler-Profil von T=300 K (Halbwerts-breite$_{FWHM}$=0,404 pm) entspricht, ergibt sich für die achte anti-Stokes-Linie, bei einem H_2-Druck von 300 mbar, eine Linienbreite von 0,22 pm oder 0,13 cm^{-1} was etwa dem Dreifachen der Linienbreite des Farbstoffslasers (0,04 cm^{-1}) entspricht. Dabei wurde vorausgesetzt, daß das Laserprofil Gauß-förmig ist. Bei einem H_2-Druck von 1000 mbar beträgt die Linienbreite der achten Anti-Stokes 0,56 pm bzw. 0,33 cm^{-1}.

*) Ein Amagat entspricht der Teilchendichte bei einem Druck von einer Atm. und bei T=273 K; 1 Amagat = $2{,}69 \cdot 10^{19}$ cm^{-3}. Für H_2 bei T=273 K gilt 1 Amagat ≈ 1000 mbar.

Literaturverzeichnis

/1/ R. Behrisch, J. Roth, G. Staudenmaier and H. Verbeek, *Sputtering in Fusion devices*, Nucl. Instr. and Meth. B18 (1987) 629-638

/2/ M. Keilhacker, *Neue Ergebnisse in JET - Gute Chancen für Break-even*, Phys. Bl. 46 (1990) 176-179

/3/ J. Winter, *Wandkonditionierung von Fusionsanlagen durch reaktive Plasmen*, Habilitationsschrift Universität Düsseldorf und KFA-Bericht Jül-2207 (1988)

/4/ V. von Bonin, *Massenspektroskopie zerstäubter Neutralteilchen während des Wachstums von a-C:H-Schichten*, Diplomarbeit Universität Bonn (1990)

/5/ J. Pillath, *Untersuchungen zum Transport von Wasserstoff und seiner Freisetzung an amorphen, wasserstoffhaltigen Kohlenstoffschichten (a-C:H)*, Dissertation Universität Düsseldorf und KFA-Bericht Jül-2292 (1989)

/6/ V. Philipps, E. Vietzke and M. Erdweg, *In-situ observation of the chemical erosion of graphite in the scrape-off-layer of TEXTOR*, J. Nucl. Mater. 162-164 (1989) 550-556

/7/ E. Vietzke, V. Philipps and K. Flaskamp, *Chemical reactivity of atomic hydrogen on graphite pre-irradiated by hydrogen and argon ions*, J. Nucl. Mater. 162-164 (1989) 898-903

/8/ Y. Hirooka et. al., *Deuterium pumping and erosion behavior of selected graphite materials under high flux plasma bombardment in PISCES-A- Effects of surface pores and machined grooves*, J. Nucl. Mater. 162-164 (1989) 1004-1012

/9/ Ph. Mertens and P. Bogen, *First results from Lyman-alpha fluorescence measurements in the plasma boundary of a tokamak*, 16th European Conference on Controlled Fusion and Plasma Physics, Venice March (1989)

/10/ H. Schmellenmeier, *Kohlenstoffschichten mit Diamantstruktur*, Z. Phys. Chem. 205 (1955-1956) 349-350

/11/ S. Aisenberg and R. Chabot, *Ion-beam deposition of thin films of diamondlike carbon*, J. Appl. Phys. 42 (1971) 2953-2958

/12/ J. Winter, *Carbonization in tokamaks*, J. Nucl. Mater. 145-147 (1987) 131-144

/13/ W. Eckstein, *Quantitative Predictions of Sputtering Phenomena*, Surface and Interface Analysis 14 (1989) 799-808

/14/ J.P. Biersack and W. Eckstein, *Sputtering Studies with the Monte Carlo Program TRIM.SP*, Appl. Phys. A 34(1984)73

/15/ W. Eckstein, *Energy distributions of sputtered particles*, Nucl. Instr. Meth. B18 (1987) 344-348

/16/ E.G. Spencer, P.H. Schmidt, D.C. Joy, F.J. Sansalone, *Ion-beam-deposited polycrystalline diamondlike film*, Appl. Phys. Lett. 29 (1976) 118-120

/17/ B. Dischler and G. Brandt, *Hard amorphous carbon films-a study*, Industrial Diamond Review 45 (1985) 131-133

/18/ J. Winter et al., *Boronization in TEXTOR*, J. Nucl. Mater. 162-164 (1989) 713-723

/19/ J. v. Seggern, Forschungszentrum Jülich, private Mitteilung

/20/ P. Sigmund, in: *Sputtering by Particle Bombardment I*, Springer Topics in Applied Physics, Vol. 47, ed. by R. Behrisch, Berlin (1981) 9-72

/21/ N. Matsunami, *Energy dependence of the ion-induced sputtering yields of monoatomic solids*, Atomic Data, Nucl. Data Tables 31 (1984) 1-80

/22/ J. Roth, J. Bohdansky, W. Ottenberger, *Data on low energy light ion sputtering*, IPP-Bericht 9/26, Garching, Mai 1979

/23/ H.H. Anderson, H.L. Bay, in: *Sputtering by Particle Bombardment I*, Springer Topics in Applied Physics, Vol. 47, ed. by R. Behrisch, Berlin (1981) 145-218

/24/ M.W. Thompson, *The Energy Spectrum of Ejected Atoms during the High Energy Sputtering of Gold*, Phil. Mag. 18 (1968) 377-414

/25/ Ph. Mertens, *Nachweis von atomarem Wasserstoff und Kohlenstoff im vakuum-ultravioletten Spektralbereich mit einem frequenzverdreifachten Laser*, Dissertation Ruhr-Universität Bochum, und KFA-Bericht Jül-2154, (1987)

/26/ B. Schweer, *Untersuchungen zur Bestimmung der Flußdichte von zerstäubtem Eisen mitteis Laser induzierter Fluoreszenz*, Dissertation Ruhr-Universität Bochum, und KFA-Bericht Jül-1876 (1983)

/27/ E. Dullni, *Fluoreszenzspektroskopische Bestimmung der Flußdichte von zerstäubtem Titan bei reinen und oxidierten Oberflächen*, Dissertation Ruhr-Universität Bochum, und KFA-Bericht Jül-1936 (1984)

/28/ W. Berres, *Fluoreszenzspektroskopische Messung der Geschwindigkeitsverteilungen verdampfter und zerstäubter Zr-Atome mit Hilfe eines Dauerstrich-Farbstofflasers*, Dissertation Ruhr-Universität Bochum, und KFA-Bericht Jül-1828 (1983)

/29/ R. Schorn, *Untersuchungen zur Zerstäubung von Kupfer/Lithium-Legierungen*, Dissertation Ruhr-Universität Bochum , und KFA-Bericht Jül-2367 (1990)

/30/ M. Röwekamp, *VUV-Fluoreszenzdiagnostik von niedrig-Z-Materialien und Anwendung auf die Messung der Geschwindigkeitsverteilung zerstäubter Karbide*, Dissertation Universität GH Essen, (1991)

/31/ P. Hucks et. al., *Energy and angular distribution of gold and copper atoms sputtered with either 15- or 30-keV H^+, He^+ and Ar^+ ions*, J. Nucl. Mat. 76&77 (1978) 136-142

/32/ R. B. Wright, M. J. Pellin and D. M. Gruen, *Velocity distribution of sputtered Zr atoms as determined by laser induced fluorescence spectroscopy*, Surface Science 110 (1981) 151-178

/33/ H. L. Bay and B. Schweer, *The velocity distribution of sputtered atoms for light-ion irradiation at low energies*, KFA Bericht Jül-2032 (1985)

/34/ W. Demtröder, *Grundlagen und Techniken der Laserspektroskopie*, Hochschultext, Springer Verlag (1977)

/35/ A. Einstein, *Zur Quantentheorie der Strahlung*, Physik. Zeitschr. 18 (1917) 121-128

/36/ J. D. Jackson, *Classical Elektrodynamics* (Second Edition), Wiley (1975)

/37/ G.I. Chashchina, V.I. Gladushchak, E. Ya. Shreider, *Determination of the Refractive Index of Argon and the Oscillator Strength of its Resonance Lines*, Opt. Spektrosk., 24 (1968) 1008-1010

/38/ A.C.G. Mitchel, M. W. Zemansky, *Resonance radiation and excited atoms*, Cambridge Univ. Press (1961)

/39/ P. P. Feofilov, *The Physical Basis of Polarized Emission* (Authorized translation from the Russian), Consultants bureau, New York (1961)

/40/ A. Unsöld, *Physik der Sternatmosphären* (2. Auflage) Springer (1955)

/41/ Bergmann-Schäfer, *Lehrbuch der Experimentalphysik* (Band IV, Teil 1), de Gruyter, Berlin (1981)

/42/ F. Zernicke, J. E. Midwinter, *Applied Nonlinear Optics* Wiley, New York & London (1973)

/43/ Y. R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics*, Wiley (1984)

/44/ D. C. Hanna, M. A. Yuratich and D. Cotter, *Nonlinear optics of free atoms and molecules*, Springer Verlag (1979)

/45/ R. Mahon, T. J. McIlrath, V. P. Myerscough, D. W. Koopman, *Third-Harmonic Generation in Argon, Krypton, and Xenon: Bandwidth Limitations in the Vicinity of Lyman-alpha*, IEEE J. Quant. Electron., 15/6 (1977) 129-141

/46/ M. Born, E. Wolf, *Principles of Optics*, Pergamon Press (1980)

/47/ J. A. R. Samson, *Techniques of vacuum ultraviolet spectroscopy*, Wiley (1967)

/48/ H.R. Kaufman, J.M.E. Harper, J.J. Coumo, *Focused ion beam designs for sputter deposition*, J. Vac. Sci. Technol., 16 (1979) 899-905

/49/ P. Bogen, E. Hintz, *Plasma Edge Diagnostics using Optical Methods*, in Physics of Plasma-Wall Interactions in Controlled Fusion. D. E. Post & R. Behrisch Eds., NATO ASI Series, B: Physics, 131 (1986) 211-280

/50/ S. Bashkin, J. O. Stoner, *Atomic Energy Levels and Grotrian Diagrams*, North-Holland (1975)

/51/ F. Jansen, I. Chen, and M. A. Machonkin, *On the thermal dissociation of hydrogen*, J. Appl. Phys. 66 (1989) 5749-5755

/52/ W. Möller and J. Roth, *Implantation, retention and release of hydrogen isotopes in solids*, in Physics of Plasma-Wall Interactions in Controlled Fusion. D. E. Post & R. Behrisch Eds., NATO ASI Series, B: Physics, 131 (1986) 439-494

/53/ R. L. Kurucz, *The fourth positive system of carbon monoxide*, Smithsonian Astrophysical Observatory, Special Report No. 374 (1976)

/54/ Ph. Mertens and P. Bogen, *Densities and velocity distributions of atomic hydrogen and carbon, measured by laser-induced fluorescence with frequency tripling into the vacuum-UV*, Appl. Phys. A47 (1987) 197-204

/55/ A. Goehlich, M. Röwekamp and H. F. Döbele, *VUV fluorescence diagnostics of sputtered oxygen and carbide materials*, J. Nucl. Mater. 176&177 (1990) 1055-1058

/56/ M. Szymonski, A. E. de Vries, *Beam induced decomposition and sputtering of LiI and RbI*, Proceedings of the symposium on sputtering, Perchtoldsdorf/Vienna, Austria (1980)

/57/ L. Valyi, *Atom and Ion Sources*, Wiley (1977)

/58/ W. K. Bischel and M. J. Dyer, *Temperature dependence of the Raman linewidth and line shift for the Q(1) and Q(0) transitions in normal and para-H_2*, Phys. Rev. A 33/5 (1986) 3113-3123

Danksagung

Die vorliegende Arbeit wurde im Rahmen einer Zusammenarbeit zwischen der Universität GH Essen und dem Forschungszentrum Jülich im Institut für Plasmaphysik des Forschungszentrums Jülich durchgeführt.

Mein Dank gilt Herrn Prof. Dr. H.F. Döbele für die Knüpfung des Kontaktes nach Jülich, sowie für zahlreiche Anregungen bei der Durchführung der Experimente.

Dem Institutsleiter, Herrn Prof. Dr. E. Hintz, danke ich für die Möglichkeit, diese Arbeit im Institut für Plasmaphysik der KFA durchführen zu können. Er hat mich stets gefördert und die Laborversuche mit großem Interesse verfolgt.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Dr. P. Bogen, der mich während der Experimente betreute und durch die vielen Diskussionen auch zum Verständnis des theoretischen Hintergrundes beitrug.

Herrn Dr. Ph. Mertens danke ich für die Unterstützung insbesondere in Fragen der Datenübertragung und -verarbeitung.

Für viele Diskussionen und Unterstützung möchte ich meinen Kollegen Dr. Y. Lie, Dr. G. Mank, Dr. A. Pospieszczyk, Dr. R.P. Schorn und Dr. B. Schweer meinen Dank aussprechen.

Bei den Herren Dr. G. Esser, L. Grobusch, Dr. P. Wienhold und Dr. J. Winter bedanke ich mich für die Herstellung der a-C:H und a-C/B:H Schichten.

Mein Dank gilt auch allen Kollegen und Mitarbeitern des Instituts für Plasmaphysik der KFA-Jülich und der Universität GH Essen, die zum Gelingen dieser Arbeit beitrugen. Insbesondere möchte ich mich bei Herrn K. Klören und Herrn S. Musso für Ihre stete Hilfsbereitschaft und technische Unterstützung bedanken.

FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH GmbH

KFA

Jül-2647
Juli 1992
ISSN 0366-0885