



FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH GmbH

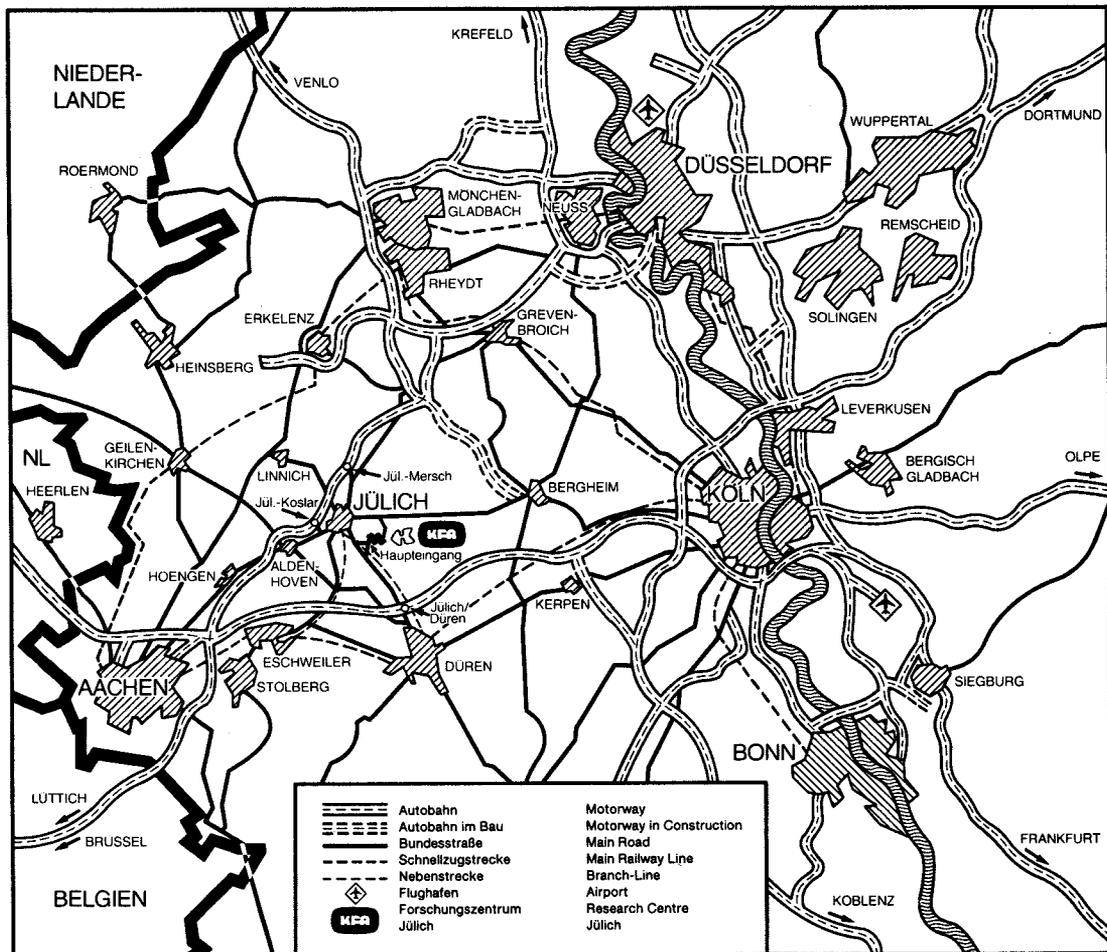
**Institut für Plasmaphysik
Assoziation EURATOM-KFA**

**Untersuchungen zur Zerstäubung
von Kupfer/Lithium-Legierungen**

von

Ralph P. Schorn

**Jül-2367
Juli 1990
ISSN 0366-0885**



Ais Manuskript gedruckt

Forschungszentrum Jülich: Berichte Nr. 2367

Institut für Plasmaphysik

Assoziation EURATOM-KFA Jül-2367

Zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK · Forschungszentrum Jülich GmbH

Postfach 1913 · D-5170 Jülich (Bundesrepublik Deutschland)

Telefon: 024 61/61-0 · Telefax: 024 61/61-6103 · Telex: 833556-70 kfa d

Untersuchungen zur Zerstäubung von Kupfer / Lithium-Legierungen

von

Ralph P. Schorn

D 294 (Diss. Uni. Bochum)

Abstract

The sputtering behavior of a copper based alloy containing 17 at-% of lithium has been studied under fusion relevant ion bombardment by D^+ , He^+ , Ne^+ , and Ar^+ with energies between 0.1 keV and 6 keV and flux densities of up to 10^{16} particles/cm²s. The main question was, whether surface segregation of the lithium component can balance the losses due to sputtering and evaporation, and whether this way a protective lithium surface layer can be maintained under high particle flux irradiation. To investigate time-dependent sputtering phenomena, laser-induced fluorescence spectroscopy (LIF) has been employed to detect atoms emitted from the multi-component material. With LIF, velocity distributions and absolute densities of Cu and Li have been measured, offering the possibility to calculate absolute partial sputtering yields.

At room temperature, the alloy target showed almost no reduction of the Cu sputtering yield under Argon bombardment, compared to pure copper. Under light ion irradiation by D^+ and He^+ reduction factors of up to two have been observed. The surface composition was deduced from measured velocity distributions of the two constituents by assuming a Thompson-distribution and fitting the resp. surface binding energies, as well as from the reduction factor of the Cu-sputtering. Under Ar^+ -irradiation, the surface showed the same composition as the bulk, while under bombardment by lighter ions the lithium concentration increased to a maximum of about 50 at-% (D^+) in the outmost atomic layer.

A sufficient protective lithium surface layer could be achieved at elevated temperatures above 400°C by heating up the sample for about two hours without ion irradiation. After a subsequent deposition of roughly 10^{19} Ar^+ /cm² of 6 keV energy, the thickness of the built-up layer has decreased considerably. Losses of lithium atoms due to high-flux sputtering dominate segregation also at elevated temperatures, although the ion dose being necessary to decrease the lithium surface content to its original value has risen by about four orders of magnitude with respect to room temperature.

The use of the present Cu/Li-material therefore seems useless in a continuously operating fusion reactor. The alloy can only maintain a protective lithium surface layer at elevated temperatures in a pulsed reactor concept, if the plasma is operated with a limited duty-cycle. Moreover, a relatively high rate of lithium evaporation was measured at temperatures above 400°C, which furthermore limits the application of Cu/Li-alloys in fusion devices.

Inhaltsverzeichnis	Seite
1. Einleitung	1
2. Überlegungen zur Zerstäubung von Cu/Li-Legierungen	8
2.1. Der physikalische Zerstäubungsprozeß bei reinen Metallen	8
2.2. Zerstäubung von Zweikomponentensystemen	14
2.3. Der Einfluß von Oberflächensegregation und Diffusion	15
2.4. Bisherige Untersuchungen an Kupfer/Lithium-Legierungen	21
2.5. Rechnergestützte Simulation der Zerstäubung von Cu/Li durch "TRIDYN"	24
3. Methoden zur Bestimmung von Ausbeuten und Geschwindigkeitsverteilungen bei der Zerstäubung von Zweikomponentensystemen	27
3.1. Laser-induzierte Fluoreszenz-Spektroskopie (LIF)	27
3.1.1. Physikalische Grundlagen der LIF	27
3.1.2. Der Einsatz von gepulsten Lasersystemen	33
3.1.3. Messung von Dichten und Geschwindigkeitsverteilungen	36
3.1.4. LIF angewandt auf Lithiumatome	42
3.1.5. LIF angewandt auf Kupferatome	48
3.2. Gewichtsverlustbestimmung und Auffängeranalyse	51
4. Beschreibung des experimentellen Aufbaus	54
4.1. Die Zerstäubungsanlage	55
4.1.1. Die Hochstromionenquelle "EVITA"	55
4.1.2. Die Targetkammer	56
4.2. Optische Aufbauten	57
4.2.1. Der Farbstofflaser	57
4.2.2. Frequenzverdopplung mit nichtlinearen Kristallen	59
4.2.3. Überlegungen zur Vermeidung von Laserfalschlicht	61
4.3. Optischer Aufbau zur Detektion der Fluoreszenzstrahlung	62
4.4. Datenerfassung und -verarbeitung	63
4.5. Präzise Bestimmung der Laserwellenlänge	65

5. Experimentelle Ergebnisse und ihre Diskussion	66
5.1. Geometrie-Effekte	66
5.2. Die Zerstäubung eines kalten Cu/Li-Targets	70
5.2.1. Geschwindigkeitsverteilungen von Cu und Li	70
5.2.2. Partielle Zerstäubungsausbeuten von Cu und Li	76
5.2.3. Oberflächenanalyse mit Auger-Spektroskopie und ISS	79
5.3. Verhalten der Legierung bei erhöhten Temperaturen	84
5.3.1. Verdampfung der Lithium-Komponente	84
5.3.2. Zerstäubung der Kupfer- und Lithiumkomponente	87
5.4. Diskussion der experimentellen Ergebnisse	91
6. Einsatz von Cu/Li-Legierungen in Tokamaks - Extrapolation der experimentellen Ergebnisse dieser Arbeit auf reaktorrelevante Umgebungen	98
7. Zusammenfassung	105
8. Literaturverzeichnis	110

1. Einleitung

Das Verständnis der Wechselwirkung eines heißen, magnetisch eingeschlossenen Plasmas mit der es umgebenden Wand ist ein Schlüsselproblem auf dem Weg zu einem effizienten Kernfusionsreaktor. Die Eigenschaften der ersten Festkörperstruktur, mit der das Fusionsplasma in Berührung kommt, können es in seinem Gesamtverhalten entscheidend beeinflussen. Hauptaugenmerk ist dabei der Grad der Verunreinigung des Plasmas mit fremden Atomen, die nicht selbst zu den Kernverschmelzungsprozessen beitragen. Verunreinigungen bewirken einen Energieverlust des Plasmas, der durch Brems-, Linien- und Rekombinationsstrahlung bedingt ist. Die Folge ist eine zum Teil erhebliche zusätzliche Strahlungskühlung des Plasmas. Die zu einer positiven Netto-Energiebilanz ("Zündung") notwendige Plasmatemperatur kann nur erschwert erreicht werden. Die Wand selbst und die Eigenschaften des wandnahen Plasmas bestimmen maßgeblich, womit und wie stark das Plasma verunreinigt wird. So kann man etwa durch geeignete Materialauswahl erreichen, daß Sauerstoff, der sich stets im Restvakuum befindet, chemisch an die Wandoberfläche gebunden und dem Plasmavolumen entzogen wird. Als Folge wird das Plasma weniger mit Sauerstoff dotiert sein. Neben chemischen Prozessen spielt die physikalische Zerstäubung eine wichtige Rolle bei der Plasma-Wand-Wechselwirkung. Hierbei löst der Beschuß der ersten Wand durch energiereiche Teilchen, die der Plasmarandschicht entstammen, eine Freisetzung von Wandatomen aus. Besonders ausgeprägt ist dieser Mechanismus auf den hochbelasteten Limiteroberflächen von Tokamaks zu beobachten. Abgestäubte Atome dringen je nach ihrem Ionisationspotential und den Eigenschaften der Plasmarandschicht mehr oder weniger tief ins Plasma ein und werden ionisiert. Als "Fremdatome" verteilen sie sich schließlich im gesamten Plasma. Atomsorten, aus denen die ersten festen Strukturen bestehen, mit denen das Plasma in Berührung kommt, sowie auf deren Oberflächen adsorbierte Gase stellen die Elemente dar, die zur Verunreinigung eines Fusionsplasmas beitragen können.

Die Optimierung des Plasma-Wand-Kontaktes hinsichtlich der Erzielung minimaler Energieverluste des Plasmas bedeutet zum einen, den Wandbeschuß selbst zu minimieren. Genauer heißt das, einen genügend guten Einschluß zu erzielen bzw. das Plasma in seiner Randschicht kühl zu halten. Zum anderen bedeutet es, eine Auswahl geeigneter Wandmaterialien zu treffen. Letzteren Aspekt wollen wir ausführlicher verfolgen. Unter welchen Gesichtspunkten hat man Wand- und Limitermaterialien auszusuchen? Der absolute Betrag der verunreinigungsbedingten Energieabstrahlung eines Fusionsplasmas skaliert im Falle von Bremsstrahlung mit dem Quadrat der Kernladungszahl der Verunreinigungsspezies - oder sogar mit einem noch größeren Exponenten im Falle von Linien- und Rekombinationsstrahlung. Eine detaillierte Untersuchung von Strahlungsverlusten in Tokamakplasmen muß die Besetzung sowohl der verschiedenen Ionisationsstufen

als auch die der elektronischen Zustände von Verunreinigungen berücksichtigen. In Übersichtsartikeln von H.Vernickel und J.Bohdansky [1] sowie K.Pinkau und U.Schumacher [2] ist unter Zugrundelegung eines Koronagleichgewichts für ein DT-Plasma abgeschätzt worden, wie groß die Konzentration einer Verunreinigungssorte mit Kernladungszahl Z sein darf, damit der Netto-Energiegewinn in einem hypothetischen Fusionsreaktor auf Null reduziert wird. In Abbildung <1.1> ist dies für eine zentrale Plasmatemperatur von 10 keV dargestellt [2]. Man erkennt deutlich die ausgeprägte Abhängigkeit der maximal erlaubten Konzentration von der Ordnungszahl der Verunreinigungsmaterialien. Eindeutig zu bevorzugen sind die "leichten" Elemente Kohlenstoff, Bor, Beryllium und Lithium. Für einen energiegewinnenden, wirtschaftlichen Reaktorbetrieb sind hier Konzentrationen der Größenordnung von einigen Prozent zulässig, während schwerere Metalle wie Eisen, Kupfer, Wolfram, Vanadium oder Molybdän nur zu einem recht geringen Anteil von 10^{-3} bis 10^{-4} vertreten sein dürfen.

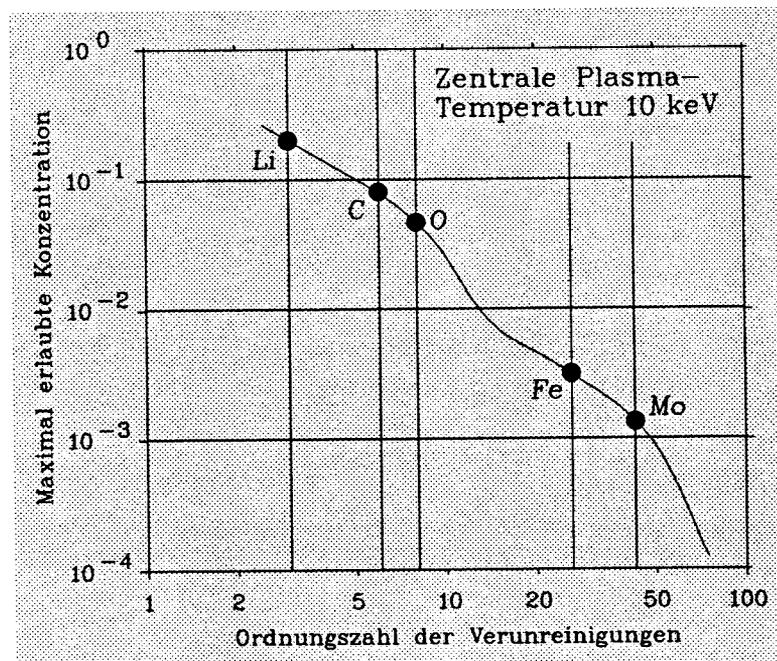


Abb. <1.1>: Maximal erlaubte Verunreinigungskonzentration im Koronagleichgewicht für die Zündung eines DT-Tokamakplasmas mit zentraler Temperatur von 10 keV als Funktion der Ordnungszahl der verunreinigenden Elemente [2]. Unter "Zündung" ist hierbei ein Netto-Energiegewinn von Null zu verstehen.

Bedingt durch diese Zusammenhänge ist der Weg vorgezeichnet: Wandmaterialien müssen gefunden bzw. entwickelt werden, die zumindest an ihrer Oberfläche ein möglichst leichtes Element haben, und die darüberhinaus unter fusionsrelevantem Teilchenbeschuss

eine möglichst kleine Zerstäubungsausbeute besitzen sollen.

Die in Frage kommenden Elemente mit kleiner Kernladungszahl haben entweder ungünstige mechanische Eigenschaften (Li und B) oder andere Nachteile wie schlechtes thermisches Verhalten (Li), schlechte Langzeitstabilität (Li) und Toxizität (Li, B und Be). Abgesehen von der Herstellung von Graphitlimitern ist das Fertigen von Strukturteilen aus diesen Materialien technologisch relativ schwierig und der Einsatz als reine Substanz daher unrealistisch. Ein Ausweg wäre das Aufbringen einer dünnen Schicht leichten Materials auf ein einfacher zu handhabendes, im allgemeinen schwereres Metall: Die Vorteile des Metalls (mechanische Stabilität, gute thermische Eigenschaften, gute Verarbeitbarkeit) und der Beschichtung (kleine Kernladungszahl und somit geringerer Energieverlust des Plasmas, kleine Zerstäubungsausbeuten) werden vereinigt, da durch Zerstäubung freigesetzte Atome zum allergrößten Teil nur aus den ersten atomaren Monolagen eines Festkörpers stammen. Bisher wurde mit großem Erfolg die in situ-Beschichtung von Tokamakoberflächen - oder besser "Innenflächen" - mit Kohlenstoff [3,4] und amorphem Bor/Kohlenstoff [5] erprobt. Außerdem wurde Beryllium als Limitermaterial mit guten Resultaten eingesetzt [6,7].

Es stellt sich die Frage, ob und wie das leichteste feste Element, Lithium ($Z=3$), als Beschichtungsmaterial eingesetzt werden kann. Eine plasmachemische Abscheidung von Lithium aus der Gasphase - analog zur Borierung und Karbonisierung von Oberflächen - ist bisher nicht in Betracht gezogen worden. Ein mögliches Verfahren zur Erzeugung einer Lithiumbedeckung, das auf einem völlig andersartigen Prinzip beruht, wurde in den Jahren 1981/82 von D.M.Gruen et al. vorgeschlagen [8-12]: Der Einsatz von schwach lithiumhaltigen Legierungen. Die Zusammensetzung der Oberfläche kann sich bei Legierungen erheblich von der im Inneren unterscheiden. Allgemein wird eine Legierung ihre Oberfläche immer derart gestalten, daß die freie Oberflächenenthalpie ein Minimum annimmt. Man spricht von "Gibbs'scher Segregation". Lithiumhaltige Legierungen haben oft die Eigenschaft, ihre Li-Komponente in Oberflächennähe deutlich anzureichern. Das ausgeprägte Segregationsverhalten von Lithium wird hervorgerufen durch seine im Vergleich zu anderen Metallen relativ kleine Oberflächenbindungsenergie und sein kleines Atomvolumen. Der Transport von Lithium an die Oberfläche kann durch Ionenbeschuß deutlich verstärkt werden ("Radiation Induced Segregation and Diffusion"). Die mit Lithium angereicherte Schicht kann somit die Eigenschaft haben, sich auch bei Teilchenbeschuß (d.h. Zerstäubung) unter gewissen Umständen, die im weiteren experimentell zu klären sind, durch Nachdiffusion aus dem Inneren der Legierung ständig aufrecht zu erhalten und zu erneuern.

Nach 1982 stellte die Gruppe um D.M.Gruen (Argonne National Laboratory, USA) erste

Untersuchungen an Kupfer/Lithium-Legierungen an. Die selbst hergestellten Cu/Li-Targets enthielten 4 at-% bis zu 18 at-% Lithium und wurden mit Helium- und Argonionen im Energiebereich von 0,7 keV bis 2 keV beschossen. Das Target konnte bis auf einige hundert Grad Celsius geheizt werden. Simultan zur Zerstäubung wurden diverse Methoden der Oberflächenanalyse (Auger-Elektronen-Spektroskopie -AES-, X-Ray-Photoelectron-Spectroscopy -XPS- und Secondary Ion Mass Spectroscopy -SIMS-) angewandt, um zeitaufgelöst die Oberflächenzusammensetzung zu bestimmen. Es zeigte sich, daß der Lithiumgehalt an der Oberfläche - wie erwartet - deutlich über der Volumenkonzentration liegt. Außerdem konnte eine ausgeprägte Zeit- und Temperaturabhängigkeit der Oberflächenbedeckung mit Lithium nachgewiesen werden. Bedingt durch die apparative Ausstattung unterlagen die untersuchten Proben jedoch nur einem Ionenbeschuß mit relativ zu einer fusionsrelevanten Umgebung kleinen Intensität von einigen $\mu\text{A}/\text{cm}^2$ entsprechend ca. 10^{12} bis 10^{13} Ionen/ cm^2s . Außerdem konnten keine Zerstäubungsausbeuten bestimmt werden.

Damit ist natürlich über die Tragfähigkeit des Konzepts einer sich selbst erneuernden Lithium-Schicht speziell bei höheren als den untersuchten Beschuß-Flußdichten noch keine verlässliche Aussage gewonnen. Dazu ist erforderlich, daß man sich Informationen über das Verhalten der Schicht und insbesondere über die Zerstäubungsausbeuten des Kupferanteils verschafft bei Beaufschlagung des Materials mit Teilchen(flüssen), die hinsichtlich ihrer Masse, Energie und Flußdichte vergleichbar sind mit den zu erwartenden Werten in einem Tokamakreaktor. In einem solchen Reaktor hat man gemäß dem derzeitigen Stand der Überlegungen zwei Hauptkomponenten zu unterscheiden, was die Teilchenflüsse betrifft: den sogenannten Limiter ("Begrenzer"), an dem das Plasma abgeschält wird und der dementsprechend hohen Belastungen ausgesetzt ist, und den Rest der Wand. Am Limiter rechnet man mit Flußdichten von bis zu $10^{19}/\text{cm}^2\text{s}$ und an der Wand mit 10^{16} - $10^{17}/\text{cm}^2\text{s}$. Neben den Wasserstoffisotopen D und T, die den Hauptbestandteil eines Fusionsplasmas bilden, werden He-Teilchen, leichte Fremdatome wie O, C und B sowie schwerere Fremdatome, die aus den Legierungsbestandteilen des Wandmaterials stammen, auftreten. Dabei ist für Sauerstoff, Kohlenstoff und Bor mit Prozentsätzen von etwa 1% und für die schwereren Teilchen mit Prozentsätzen von bis zu 0,1% zu rechnen. Da die Wechselwirkung leichter bzw. schwerer Ionen mit einem Festkörper verschiedenartig im Hinblick auf z.B. erzielte Zerstäubungsausbeuten ist, müssen die beiden Teilchengruppen gesondert untersucht werden.

Zur Zeit ist es nicht möglich, das dynamische Verhalten der oberflächennahen Schichten von Cu/Li-Legierungen abhängig von der Materialtemperatur mit Hilfe von Modellrechnungen zu beschreiben und vorherzusagen; dazu fehlen ein großer Teil der thermodynamischen Daten und das Verständnis der nichtlinearen Prozesse, wie z.B. die Abhängigkeit

von Diffusions- und Segregationsenergien von der lokalen Lithiumkonzentration und die schon erwähnte beschußbedingte Verstärkung des Segregationsvorganges ("Bombardment Induced Segregation"). Eine realistische Bewertung des oben beschriebenen Konzepts einer sich selbst regenerierenden Lithiumschicht ist also nur über systematische experimentelle Untersuchungen unter reaktorrelevanten Bedingungen zu erhalten. Es ist die Absicht dieser Arbeit, zu einer solchen experimentellen Studie einen wesentlichen Beitrag zu leisten. Entsprechend den Aufgaben des Instituts für Plasmaphysik der KFA Jülich, in dem diese Arbeit durchgeführt wird, sollen vor allem Fragen untersucht werden, die für den möglichen Einsatz des Materials in Tokamaks von Bedeutung sind. Von Interesse sind hier die Erosionsraten, die Zusammensetzung der emittierten Teilchenflüsse und die der Teilchenemission zugrunde liegenden Mechanismen, sowie der Zusammenhang dieser Größen mit der Zusammensetzung der oberflächennahen Schicht. Es soll nicht der Versuch unternommen werden, die komplexen oberflächenphysikalischen Prozesse zu separieren und zu analysieren. Eine Randbedingung der Arbeit ist ferner, vorwiegend solche Methoden einzusetzen und gegebenenfalls weiterzuentwickeln, die im Institut bereits zur Verfügung stehen.

Die konkreten Zielsetzungen dieser Arbeit lassen sich dementsprechend etwa folgendermaßen formulieren:

- Zeitaufgelöste Bestimmung der totalen und partiellen Zerstäubungsausbeuten von Cu/Li-Legierungen bei Beschuß durch Ionen, deren Masse, Energie und Flußdichte fusionsrelevante Werte aufweisen sollen.
- Messung der thermischen Verdampfungsraten der Lithium-Komponente bei fusionsrelevanten Materialtemperaturen.
- Herstellung der gewünschten Lithium-Bedeckungen unter wohldefinierten Bedingungen. Von Interesse sind vor allem die Optimierung der Materialtemperatur und die fortlaufende Überprüfung der Schichtzusammensetzung während der Zerstäubungsversuche.

Zu den für die Durchführung der Untersuchungen notwendigen experimentellen Methoden gehören einerseits eine vorhandene Hochstrom-Ionenquelle, mit deren Hilfe massenanalytisierte Ionenstrahlen im gewünschten Energie- und Stromdichtebereich erzeugt werden können. Andererseits soll neben der üblichen gravimetrischen Methode die Laser-induzierte Fluoreszenzspektroskopie zur Bestimmung der partiellen Zerstäubungsausbeuten eingesetzt werden. Letzteres Verfahren sollte insbesondere zeitaufgelöste Messungen hoher Empfindlichkeit ermöglichen. Als Nebenergebnis dieser Messungen erhalten wir die

Kenntnis der Geschwindigkeitsverteilung der abgestäubten Teilchen. Mit deren Hilfe kann man nach Bestimmung der Eindringtiefe der abgestäubten Teilchen in ein Plasma Aussagen über dessen Elektronendichte und eventuell auch über die Elektronentemperatur gewinnen. Die Messung der Geschwindigkeitsverteilungen beider abgestäubter Atomsorten einer Legierung läßt unter gewissen Annahmen auch Rückschlüsse auf die Zusammensetzung der zerstäubten Festkörperoberfläche zu: Aus Breite und Form der Verteilung läßt sich die mittlere Energie ableiten, mit der die abgestäubten Teilchen an die Oberfläche gebunden sind. Die mittlere Oberflächenbindungsenergie ist ihrerseits im allgemeinen eine Funktion der Oberflächenzusammensetzung und macht eine Aussage über die Lithiumkonzentration in Oberflächennähe.

Um jedoch genauere Kenntnisse über die Dicke der Li-Bedeckung und die Zusammensetzung der Schicht zu erlangen, sind oberflächenphysikalische Meßverfahren erforderlich, über die wir nicht verfügen, auf die wir jedoch auch nicht verzichten wollen. Deshalb ist eine Zusammenarbeit mit dem Max-Planck-Institut für Plasmaphysik vereinbart worden, in deren Rahmen (Dissertation von Frau B.Baretzky) diese Messungen in Garching durchgeführt werden.

Die vorliegende Arbeit gliedert sich wie folgt: Zunächst werden die physikalischen Grundlagen der Zerstäubung von reinen Metallen und von Zweikomponentensystemen unter Berücksichtigung von Diffusions- und Segregationserscheinungen behandelt. Danach wird, um ein Maß für die Güte der zu erwartenden Schutzfunktion einer dünnen Lithiumbedeckung zu bekommen, die Zerstäubung eines reinen Kupferblocks unter Zuhilfenahme des Computercodes TRIDYN modelliert. Dieser Block kann eine Schicht reinen Lithiums variabler Dicke tragen. Bei TRIDYN handelt es sich um einen im Max-Planck-Institut für Plasmaphysik in Garching von W.Möller und W.Eckstein speziell zur Modellierung der Zerstäubung von Mehrkomponenten-Targets entwickelten Code, der die für Zerstäubungsprozesse typischen atomaren Stoßprozesse in einem Festkörperrgitter im Rahmen von Zweierstoß-Approximationen mit Hilfe eines Monte-Carlo-Algorithmus nachvollzieht. TRIDYN ist eine zeitdynamische Erweiterung des von J.P.Biersack und W.Eckstein entwickelten TRIM-Codes. Absolute Zerstäubungsausbeuten beider an der Legierung beteiligten Elemente können mit der Hilfe von TRIDYN in Abhängigkeit von der angenommenen Schichtdicke reinen Lithiums berechnet werden. Diese Rechnungen werden eine Korrelation zwischen experimentell bestimmten Zerstäubungsausbeuten der Kupfer-Komponente und einer effektiven Dicke der Lithiumbedeckung ermöglichen.

Im folgenden werden die einzusetzenden experimentellen Methoden zur Bestimmung von partiellen Zerstäubungsausbeuten und von Geschwindigkeitsverteilungen abgestäubter Atome beschrieben: Laser-induzierte Fluoreszenz (LIF) und Gewichtsverlustmessung mit

anschließender Auffänger-Analyse. Speziell wird auf die Anwendung von LIF auf Kupfer- und Lithiumatome eingegangen. Eine detaillierte Beschreibung des experimentellen Aufbaus schließt sich an.

Im nächsten Kapitel werden die Ergebnisse von Zerstäubungsexperimenten mit einer Legierung, die aus Kupfer und 16,9 at-% Lithium besteht, beschrieben und diskutiert. Die Proben werden einem monoenergetischen Beschuß durch mehrere Ionenarten (D, He, Ne und Ar) mit Flußdichten bis zu fast 10^{16} Teilchen/cm²s und Strahlenergien zwischen 100 eV und 6 keV ausgesetzt. Dies entspricht einer Simulation der Belastung einer ersten Wand in einem Tokamak sowohl mit schweren und leichten Verunreinigungen als auch mit dem Wasserstoffplasma selbst. Zunächst wird das Verhalten der Legierung bei Raumtemperatur untersucht. Gemessen werden Geschwindigkeitsverteilungen und Zerstäubungsausbeuten beider Bestandteile mit LIF. In diesem Zusammenhang werden die wesentlichen Ergebnisse der in Garching durchgeführten Oberflächenuntersuchungen mit ISS ("Ion Scattering Spectroscopy" oder niederenergetische Ionenstreuung) und Auger-Elektronen-Spektroskopie (AES) diskutiert und mit den laserspektroskopischen Resultaten verglichen. Es schließt sich eine detaillierte experimentelle Untersuchung hinsichtlich Zerstäubung und Verdampfung bei erhöhten Materialtemperaturen bis zu 450°C an. Auf der Grundlage der dabei erhaltenen physikalischen Ergebnisse wird die Eignung der Legierung als Wandmaterial in Tokamak-Reaktoren diskutiert.

Basierend auf den gewonnenen Erkenntnissen über das Material Kupfer/Lithium bei Beaufschlagung mit Teilchenflüssen im Bereich von 10^{16} /cm²s wollen wir schließlich versuchen, die immer noch bestehende Lücke von ungefähr drei Größenordnungen hinsichtlich der auf Limiteroberflächen in Fusionsreaktoren anzutreffenden Teilchenflußdichten durch eine Extrapolation der Resultate zu füllen und die Grenzen der Verwendungsmöglichkeiten von Cu/Li in Tokamaks aufzuzeigen.

2. Überlegungen zur Zerstäubung von Cu/Li-Legierungen

2.1. Der physikalische Zerstäubungsprozeß bei reinen Metallen

Bereits im vorigen Jahrhundert beobachtete man bei Gasentladungsröhren, daß die Kathode nach einer gewissen Betriebsdauer Erosionserscheinungen zeigt. Man prägte den Begriff "Kathodenzerstäubung": Die zwischen den Elektroden bis auf Energien von einigen keV beschleunigten Ionen des Arbeitsgases verursachen beim Aufprall auf die Kathode eine atomare Emission des Kathodenmaterials in den Entladungsraum hinein. Allgemein treten Zerstäubungsprozesse immer dann auf, wenn ein Ionen- oder Atomstrahl mit einer Energie von mehr als ca. 30 eV auf eine Festkörperoberfläche trifft. Die Oberflächen von ersten Wänden und Limitern in Tokamak-Reaktoren sind der physikalischen Zerstäubung daher in heftiger Weise ausgesetzt. Die energiereichen Ionen dringen in das Festkörpergitter ein und übertragen ihre kinetische Energie durch i.a. mehrere elastische Stöße auf die Atome des Festkörpers. Einige Gitteratome erlangen dabei soviel Energie, daß sie ihren festen Platz verlassen können. Diese wiederum sind in der Lage, einen Teil ihrer so gewonnenen Energie an andere Atome weiterzugeben. Hierbei können weitere Gitteratome aus ihren Plätzen herausgeschlagen werden, wenn die ihnen übertragene Energie groß genug ist. Es entsteht bei hinreichend hoher primärer Ionenenergie eine "lineare Stoßkaskade", an deren Ende schließlich die gleichmäßige Aufteilung der primären kinetischen Energie des Ionenstrahls auf Atome des Targetmaterials steht. Erhält auf diese Weise ein oberflächennahes Atom einen Energiebetrag, der diejenige Energie übersteigt, mit der es an den Festkörper gebunden ist, dann kann es den Gitterverband verlassen: Es wird "abgestäubt". Die Entstehung und die Physik von linearen Stoßkaskaden ist z.B. von P.Sigmund in [13-15] ausführlich beschrieben worden.

Der physikalische Zerstäubungsprozeß kann quantitativ charakterisiert werden durch die **Zerstäubungsausbeute**

$$Y = \frac{\text{Anzahl der emittierten Atome}}{\text{Anzahl der einfallenden Ionen}} \quad (2.1)$$

jeweils bezogen auf gleiche Flächen- und Zeiteinheiten. Es handelt sich bei dieser Definition um eine totale Zerstäubungsausbeute, die abgestäubten Targetatome werden in ihrer Gesamtheit gezählt, unabhängig von der atomaren Spezies, Emissionsrichtung und Geschwindigkeit. Ihr Zahlenwert ist zunächst abhängig von der Art des beschossenen Materials. Hier skaliert die Zerstäubungsausbeute Y in erster Näherung invers zur Energie, mit der die Oberflächenatome an den Festkörper gebunden sind, also mit der Sublimati-

onsenergie des Materials [13,14,16]. Weiter gibt es aber noch starke Abhängigkeiten von der Ionenspezies, mit der zerstäubt wird, von der Energie und von der Aufprallrichtung des Ionenstrahls. Ein umfangreicher Überblick über bisher an reinen Elementen und einigen Verbindungen durch Beschuß mit monoenergetischen Ionenstrahlen gemessenen totalen Zerstäubungsausbeuten findet sich in [16] und [17].

Im folgenden sei etwas näher auf das kinetische Energiespektrum von abgestäubten Atomen eingegangen. Ein Atom, das einen Festkörper bedingt durch Zerstäubung verlassen soll, wird durch Kräfte an der Oberfläche beeinflusst. Es ist an die Gitterstruktur gebunden. Es existiert ein Potential, welches versucht, das Atom im Festkörper zurückzuhalten. Das einfachste Modell hierfür ist ein räumlich konstantes (planares) Oberflächenpotential U_0 . Interpretiert man dieses Potential so, daß das Atom den Energiebetrag U_0 beim Verlassen der Oberfläche verliert, dann ist U_0 mit der Sublimations- oder Oberflächenbindungsenergie der betreffenden Substanz identisch. Unter der Voraussetzung des linearen Stoßkaskadenmodells leitete M.W.Thompson in [18] eine Energie- bzw. Geschwindigkeitsverteilung für abgestäubte Atome her, die von der Energie des Ionenstrahls unabhängig ist. Danach läßt sich die Zerstäubungsausbeute energie- und winkelaufgelöst in differentieller Form wie folgt angeben:

$$Y(E, \vartheta) dE d\Omega \sim \frac{E}{(E+U_0)^3} \cos \vartheta dE d\Omega \quad (2.2)$$

Hierbei bedeutet E die Energie der abgestäubten Teilchen, ϑ ist der Winkel der emittierten Targetatome in Bezug auf die Oberflächennormale, Ω ist der Raumwinkel und U_0 stellt, wie schon gesagt, die Sublimationsenergie des zerstäubten Materials dar. Beziehung (2.2), die sogenannte "Thompson-Verteilung", kann umgeschrieben werden in eine reine Geschwindigkeitsverteilung:

$$Y(v) dv \sim \frac{v^2}{(v^2+v_0^2)^3} dv \quad (2.3)$$

v ist hier die Geschwindigkeit eines abgestäubten Atoms, und v_0 ist mit der Masse m des abgestäubten Atoms und der Sublimationsenergie verbunden durch

$$U_0 = mv_0^2/2 \quad (2.4)$$

Die wahrscheinlichste Energie bzw. die wahrscheinlichste Geschwindigkeit der Verteilungen (2.2) und (2.3) errechnet sich zu

$$E_w = U_0 / 2 \quad (2.5)$$

beziehungsweise

$$v_w = \sqrt{U_0/m} \quad (2.6)$$

Die mittlere Transportgeschwindigkeit der abgestäubten Teilchen ist, wie wir im weiteren noch sehen werden, von entscheidender Bedeutung. Sie ist das erste Moment der Verteilung (2.3) und berechnet nach sich nach

$$\langle v_{tr} \rangle = \frac{\int_0^{\infty} v Y(v) dv}{\int_0^{\infty} Y(v) dv} \quad (2.7)$$

für die Thompson'sche Geschwindigkeitsverteilung zu

$$\langle v_{tr} \rangle_{\text{Thompson}} = \frac{4}{\pi} \sqrt{2U_0/m} \quad (2.8)$$

Abbildung <2.1> zeigt das Geschwindigkeitsprofil, wie man es bei der Zerstäubung von reinem Lithium erwarten würde. Die Sublimationsenergie dieses Elements beträgt 1,67 eV [19]. Die Lage des Maximums einer Thompson-Verteilung sowie ihre Breite ist nur durch die Oberflächenbindungsenergie des betreffenden Materials bestimmt. Ein zerstäubtes Element kann durch die genaue Form der Geschwindigkeitsverteilung seiner abgestäubten Atome charakterisiert werden. Beziehung (2.3) wurde bisher in zahlreichen Experimenten verifiziert, unter anderem für Kohlenstoff in [20], für Eisen in [21], für Titan in [22], für Zirkon in [23], und schließlich für Kupfer in [24,25]. In allen Fällen handelte es sich um einen monoenergetischen Ionenbeschuß durch Deuterium, Helium- und/oder Argonionen im Energiebereich zwischen 1 und 10 keV. Die Gültigkeit der Thompson-Beziehung (2.3) ist also über einen weiten Parameterbereich hinweg für metallische Elemente experimentell gesichert.

Daher liegt es nahe, ihre Gültigkeit auch bei der Zerstäubung von metallischen Verbindungen und Legierungen vorauszusetzen. Hierbei ist unter der Sublimationsenergie U_0 diejenige Energie zu verstehen, mit der der jeweilige Legierungspartner im Mittel an der Oberfläche gebunden ist.

Umgekehrt betrachtet, bietet die Thompson-Beziehung die Möglichkeit, bei Substanzen, wo die Oberflächenbindungsenergien unbekannt sind (z.B. Legierungen), diese durch die Messung der Geschwindigkeitsverteilungen der beteiligten Elemente unter Zerstäubung zu messen: Der einzige, dann "freie" Parameter U_0 bzw. v_0 in (2.2) und (2.3) kann so angepaßt werden, daß die zugehörige Thompson-Kurve möglichst gut mit den experimentell ermittelten Daten übereinstimmt. Hieraus kann dann unter Umständen bei Einbeziehung makroskopischer thermodynamischer Materialkonstanten auf die Oberflächenzusammensetzung geschlossen werden. Auf diese Möglichkeit wollen wir im weiteren Verlauf der vorliegenden Arbeit noch ausführlicher eingehen.

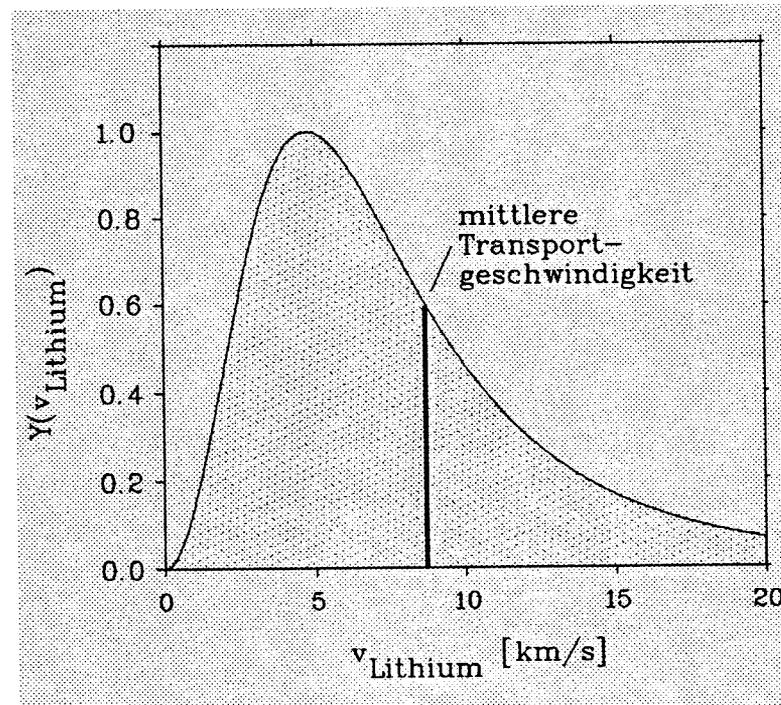


Abb. <2.1>: Geschwindigkeitsverteilung von abgestäubten Lithiumatomen, wie sie nach Thompson erwartet wird. Wichtiger und einziger Parameter der Kurve ist die Sublimationsenergie des Materials: hier 1,67 eV. Sie alleine bestimmt die Lage des Maximums sowie die Halbwertsbreite der Verteilung - und damit die mittlere Transportgeschwindigkeit der abgestäubten Atome. Für reines Lithium erwartet man ca. 8,7 km/s.

Es gibt jedoch einige Randbedingungen, die man bei der Anwendung des linearen Stoßkaskadenmodells beachten muß. So haben Untersuchungen von H.L.Bay und B.Schweer [26] deutliche Abweichungen von der oben angegebenen Thompson-Verteilung bei der Zerstäubung von Titan- und Eisentargets mit Wasserstoff-, Deuterium- und Heliumionen kleiner Energie (100 eV bis 1000 eV) gezeigt. Mit kleiner werdender Beschußenergie verschmälern sich die dort gemessenen Geschwindigkeitsverteilungen signifikant. Das lineare Stoßkaskadenmodell ist offenbar hier nicht mehr gültig. Stoßkaskaden können sich nicht mehr in hinreichender Zahl ausbilden. Zum einen kann der primäre Energiebetrag eines einfallenden Ions nicht groß genug sein, um einem Targetatom wesentlich mehr als seine Gitterbindungsenergie zu übertragen. Dies ist bei Strahlenergien mit $E < 100$ eV für die meisten Ion/Target-Kombinationen der Fall. Ein Modell, das den Energietransfer in einem Einzelstoß von Ionen auf Oberflächenatome nach einer Reflexion an tiefer gelegenen Targetatomen vorsieht, ist hier angebracht [27]. Weiterhin kann der beim elastischen Zweierstoß zwischen Ion und Targetatom maximal übertragbare Energiebetrag T_m zu klein sein, um in hinreichendem Maße Gitteratome aus ihren Plätzen zu entfernen. Dies ist bei einem großen Massenunterschied der beteiligten Stoßpartner der Fall. Auch hier ist ein Einzelstoßmodell angebracht. Die größte Abweichung von der Thompsonformel (2.3) erwartet man demnach für den Beschuß eines Targets hoher Massenzahl mit einem "leichten" Ionenstrahl kleiner Energie.

In [26] kommt man nach der experimentellen Untersuchung mehrerer Metalle zu dem Schluß, daß ein reines Metall dann mit einer Thompson'schen Geschwindigkeitsverteilung gemäß (2.3) zerstäubt wird, wenn gilt:

$$T_m/U_0 > 30 \quad (2.9)$$

Hierbei ist U_0 wieder die Sublimationsenergie des Elements. T_m stellt den Energiebetrag dar, der bei einem zentralen elastischen Einzelstoß von einem Ion der Energie E_{Ion} und Masse M_{Ion} auf ein Targetatom der Masse M_{Target} übertragen wird. Er berechnet sich zu

$$T_m = \frac{4 M_{\text{Ion}} M_{\text{Target}}}{(M_{\text{Ion}} + M_{\text{Target}})^2} E_{\text{Ion}} \quad (2.10)$$

Setzt man die entsprechenden Werte für Kupfer und Lithium ein, dann ergeben sich aus (2.9) und (2.10) Minimalwerte für Ionenstrahlenergien, oberhalb derer die Gültigkeit der linearen Stoßkaskadentheorie anzunehmen ist. Für einige Beschußgase sind diese Energien in eV im folgenden in Kombination mit reinem Kupfer und reinem Lithium aufgelistet:

	D	He	Ne	Ar
Cu	890	470	145	110
Li	72	54	66	100 (eV)

(2.11)

Da im experimentellen Teil dieser Arbeit überwiegend Argon-Ionenstrahlen der Energie 6 keV zum Einsatz kommen werden, ist nach obiger Zusammenstellung zu erwarten, daß sowohl die Lithium-, als auch die Kupferatome der zu untersuchenden Legierung gemäß der Thompson'schen Geschwindigkeitsverteilung abgestäubt werden. Man wird experimentell bestimmte Verteilungen durch (2.3) modellieren können. In diesem Zusammenhang ist es wichtig festzustellen, daß der "freie" Parameter U_0 in Gleichung (2.3) bei bester Anpassung an eine Meßreihe dann tatsächlich die Oberflächenbindungsenergie darstellt.

Eine obere Gültigkeitsgrenze für die Energie des Ionenstrahls besteht ebenfalls. Ist die Strahlenergie derart hoch, daß aus ihren Gitterplätzen entfernte Targetatome ihrerseits nicht mehr ausschließlich auf andere ruhende (gebundene) Gitteratome treffen, sondern in zunehmendem Maße auf energiereiche (bereits freie) Atome treffen, dann sind die einzelnen entstehenden Stoßkaskaden nicht mehr linear, sie beeinflussen sich in Energie und Impuls gegenseitig. Dieser nichtlineare Bereich charakterisiert die Zerstäubung schwerer Targets durch schwere Ionen mit $E > 200$ keV [14]. Der Parameterbereich der nichtlinearen hochdichten Kaskaden ist für die Fusionsforschung jedoch nicht von Interesse.

2.2. Zerstäubung von Zweikomponentensystemen

Bei der Zerstäubung von Zweikomponenten-Targets (im allgemeinen sind es metallische Legierungen oder chemische Verbindungen) werden die beiden beteiligten Materialien in den meisten Fällen nach dem Einschalten des Ionenstrahls zunächst nicht im Verhältnis ihrer Konzentrationen, die sie in Oberflächennähe aufweisen, abgetragen werden. Eines der Metalle wird bevorzugt zerstäubt, es ist daher der Begriff der "präferentiellen Zerstäubung" geprägt worden [28]. Gründe dafür können unterschiedliche Oberflächenbindungsenergien sowie unterschiedliche Massen der beiden Atomsorten sein. Letzteres führt dazu, daß die Energieübertragung durch Stoßkaskaden vom eindringenden Ion auf die Targetatome eine Atomsorte bevorzugt. Als Konsequenz entsteht eine sich entmischende, oberflächennahe Schicht, in der sich die Zusammensetzung von der im Inneren der Legierung unterscheidet und zeitlich ändert. Ihre Dicke ist eine Funktion der Energie des Ionenstrahls [29] und entspricht maximal der Eindringtiefe des Ionenstrahls, sie ist i.a. aber deutlich kleiner. Man erreicht schließlich einen Gleichgewichtszustand, der dadurch charakterisiert ist, daß das Verhältnis der Flüsse der beiden abgestäubten Atomsorten der Volumenzusammensetzung (Konzentrationen c_A und c_B) entspricht. Der Ionenstrahl frißt sich dann quasi gleichförmig in die Legierung hinein, Schicht für Schicht abtragend, die modifizierte Schichtstruktur vor sich her schiebend, ohne die Tiefenprofile der beiden beteiligten Metalle A und B weiter zu ändern. Nimmt man an, daß sich die jeweiligen partiellen Zerstäubungsausbeuten (Y_A^{part} und Y_B^{part} , sie sind analog zu (2.1) definiert für jeweils eine der beteiligten Atomsorten) linear als Produkte der Oberflächenkonzentrationen (c_A^s und c_B^s) sowie der Ausbeuten der reinen Elemente ("Komponentenausbeuten" Y_A , Y_B) beschreiben lassen, dann kann man im Gleichgewichtszustand das Verhältnis von Oberflächen- und Volumenzusammensetzung folgendermassen angeben [30]:

$$\frac{Y_A}{Y_B} = \frac{c_A/c_B}{c_A^s/c_B^s} \quad (t \rightarrow \infty) \quad (2.12)$$

$$Y_i^{\text{part}} = c_i^s Y_i$$

Da es sich um ein Zweikomponenten-System handelt, ist die Summe der Konzentrationen von A und B überall gleich eins, und man kann (2.12) benutzen, um z.B. die Oberflächenkonzentration des Metalls A im Gleichgewicht der präferentiellen Zerstäubung zu berechnen:

$$\frac{1}{c_A^s} = 1 + \frac{Y_A}{Y_B} \frac{1-c_A}{c_A} \quad (t \rightarrow \infty) \quad (2.13)$$

In dieser Betrachtungsweise läßt sich im stationären Gleichgewicht keine überproportionale Herabsetzung der Zerstäubung einer Komponente erwarten. Eine Anreicherung einer Komponente in Oberflächennähe wird durch ihre bevorzugte Abtragung hinsichtlich der partiellen Zerstäubungsraten kompensiert. Die beiden partiellen Zerstäubungsausbeuten verhalten sich schließlich wie die atomare Volumenzusammensetzung der Legierung. Die Zeitkonstanten, die bis zum Erreichen dieser Stationarität vergehen, können jedoch je nach den experimentellen Gegebenheiten von erheblicher Größenordnung sein (\rightarrow Gleichung (2.17) und Ref. [29]). Wir halten noch einmal fest, daß wir den Begriff "präferentielle Zerstäubung" auf einen eventuellen Unterschied in den Zerstäubungsausbeuten der beteiligten reinen Elemente beziehen und nicht etwa auf den (im Gleichgewicht nicht vorhandenen) Unterschied der jeweiligen Verhältnisse von partiellen Zerstäubungsausbeuten und Volumenkonzentrationen.

2.3. Der Einfluß von Oberflächensegregation und Diffusion

J.W.Gibbs formulierte im vorigen Jahrhundert einen der Grundgedanken der Thermodynamik etwa wie folgt [31]:

"Im thermodynamischen Gleichgewicht wird ein Körper sich so anordnen, daß seine freie Enthalpie ein Minimum annimmt."

Dieses wohlbekannte Energieminimierungsprinzip bedeutet im Speziellen für die Oberfläche einer Legierung, daß sie sich derart zusammensetzen wird, daß die freie Oberflächenenthalpie minimal ist. Die Oberflächenzusammensetzung ist dann i.a. deutlich verschieden von der makroskopischen Volumen-Zusammensetzung des Materials. Wie die Oberfläche genau aussieht, hängt im wesentlichen von den Massen, Atomvolumina und Sublimationsenergien der beiden Partner, sowie von der Temperatur des Materials ab. Genau betrachtet, spielt sich dieser Vorgang der "Gibbs'schen Segregation" nur zwischen den beiden ersten atomaren Monolagen einer Legierung ab. Im stationären Fall läßt sich nach A.R.Miedema [32] und anderen Autoren [33-36] der Zusammenhang zwischen den Konzentrationen des Legierungspartners A in Oberfläche (c_A^s) und Volumen (c_A) so darstellen:

$$\frac{c_A^s}{1-c_A^s} = \frac{c_A}{1-c_A} \exp(Q/kT) \quad (2.14)$$

wobei T die absolute Temperatur des Materials ist. Q stellt eine Aktivierungsenergie für

den Segregationsprozeß dar. Für sie gibt es nach [33] eine empirische Korrelation mit den Verdampfungsenthalpien ΔH_A und ΔH_B der reinen Elemente A und B:

$$Q \approx 0,3 (\Delta H_B - \Delta H_A) \quad (2.15)$$

Für Kupfer/Lithium errechnet sich mit $\Delta H_{Li} = 1,54$ eV und $\Delta H_{Cu} = 3,16$ eV [37] eine Segregationsenergie von $Q_{Cu/Li} = 0,49$ eV. Wie man bei einer genaueren Diskussion der Gleichungen (2.14) und (2.15) erkennt, wird diejenige Komponente an der Oberfläche angereichert, die die geringere Verdampfungsenthalpie besitzt, hier also Lithium. Beziehung (2.14) kann benutzt werden, um für eine binäre Cu/Li-Legierung die erwartete Oberflächenzusammensetzung auszurechnen: Abbildung <2.2> zeigt Lithium-Oberflächenkonzentrationskurven für Volumenkonzentrationen zwischen 0 und 20 at-% sowie Temperaturen zwischen 500°C und 1000°C. Auffallend ist, daß die Lithiumanreicherung mit steigender Temperatur abnimmt. Dies kann mit einer Zunahme der Entropie des Systems mit steigender Temperatur erklärt werden.

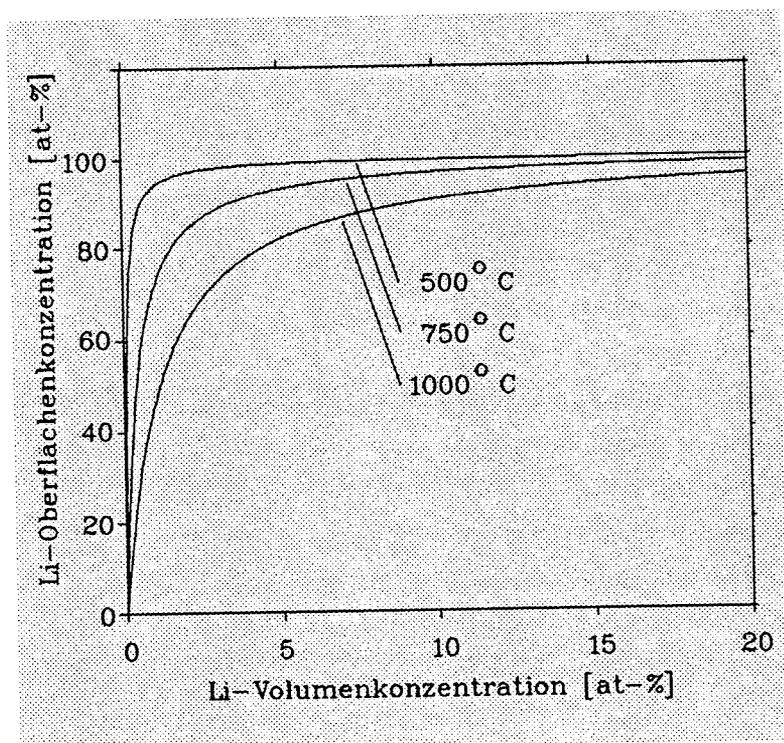


Abb. <2.2>:

Erwartete Oberflächenkonzentration der Lithiumkomponente einer Cu/Li-Legierung bei Zugrundelegung von Gleichung (2.14). Als Segregationsenergie wurde ein nach (2.15) berechneter Wert von 0,49 eV benutzt.

Man erkennt, daß bereits bei relativ kleinen Volumenkonzentrationen von Lithium die Oberflächenbedeckung bei Temperaturen unterhalb von 1000°C (das ist bei Cu/Li die gesamte feste Phase) nahezu vollständig sein dürfte. Da durch Zerstäubung freigesetzte Atome im wesentlichen aus den ersten zwei bis drei Monolagen eines Materials stammen, kann man eine deutliche Reduzierung der Kupferzerstäubung erwarten. Im folgenden ist nun zu erörtern, wie der Prozeß der Oberflächensegregation durch Zerstäubung unter Ionenbeschuß beeinflußt wird. Das Modell, das A.R.Miedema und andere entwickelt haben und das zu Oberflächenzusammensetzungen gemäß (2.14) führt, ist für den Fall eines thermodynamischen Gleichgewichtes hergeleitet worden. Es ist anzunehmen, daß es in seiner ursprünglichen Form bei Zerstäubung nicht mehr gültig ist. Eine Erweiterung des einfachen Gleichgewichtsmodells der Oberflächensegregation und auch der präferentiellen Zerstäubung auf zeitabhängige Vorgänge ist darüberhinaus notwendig.

Die oberflächennahe Konzentration der Lithiumkomponente einer Cu/Li-Legierung wird durch drei unterschiedliche, streng voneinander zu trennende Vorgänge beeinflußt:

- (präferentielle) Zerstäubung durch den Ionenstrahl
- Anreicherung von Lithium durch Gibbs'sche Segregation
- Abreicherung von Lithium durch thermische Rückmischung (Diffusion).

Die zeitliche Änderung der Oberflächenzusammensetzung einer Legierung, die allein durch Ionenbeschuß bedingt ist, kann man beschreiben, wenn man präferentielle Zerstäubung (siehe Kapitel 2.2) annimmt und gleichzeitig beachtet, daß die Oberfläche unter Zerstäubung mit einer gewissen Geschwindigkeit quasi diskret Schicht für Schicht abgetragen wird. Jede neu zu Tage tretende Oberflächenschicht wird eine andere Zusammensetzung haben. In [38] haben N.Itoh und K.Morita die entsprechenden Ionen- und Teilchenflüsse bilanziert. Die so entstehenden diskreten Differenzgleichungen lassen sich als Differentialgleichung für die zeitliche Entwicklung der Oberflächenzusammensetzung schreiben:

$$\frac{dc_A^s}{dt} \Big|_{\text{Zerstäubung}} = \frac{\Phi}{Nd} [Y_B c_A (1 - c_A^s) - Y_A c_A^s (1 - c_A)] \quad (2.16)$$

Y_A und Y_B stellen wieder die Zerstäubungsausbeuten der reinen Elemente dar, Φ ist die Teilchenflußdichte des Ionenstrahls, N ist die Teilchendichte der Legierung, und d ist die Dicke der entmischten oder modifizierten Schicht. c_A ist die atomare Konzentration des

Legierungspartners A im Volumen, während c_A^s seine Konzentration an der Oberfläche darstellt. Diese Gleichung stellt eine zeitabhängige Erweiterung von Beziehung (2.12) dar. Die Lösung dieser Differentialgleichung ist eine Exponentialfunktion in der Zeit, deren Zeitkonstante $\tau_{\text{prät}}$ ein Maß dafür ist, wie lange eine spezielle Legierung benötigt, um den in Kapitel 2.2 beschriebenen Gleichgewichtszustand der präferentiellen Zerstäubung zu erreichen:

$$\tau_{\text{prät}} = \frac{Nd}{\Phi [c_A(Y_A - Y_B) - Y_A]} \quad (2.17)$$

Bei einem Ionenstrahl der Flußdichte $10^{16}/\text{cm}^2\text{s}$ erhält man für eine lithiumhaltige Legierung mit typischen Parametern ($N_{\text{Cu}} = 8,4 \times 10^{22}/\text{cm}^3$, $d = 3 \text{ nm}$, $c_A = 20\%$, $Y_A = 5,4$ und $Y_B = 4,9$, → Abbildung <5.8>) eine Zeitkonstante von nur etwa 0,5 s. Der Anlaufeffekt der präferentiellen Zerstäubung alleine läßt in einer fusionsrelevanten Umgebung keine hinreichend lange Herabsetzung der Erosion der schweren Komponente erwarten.

Die zeitliche Entwicklung der Oberflächenzusammensetzung, die durch Gibbs'sche Segregation bedingt ist, also gleichsam das ungestörte zeitliche Entstehen der Li-anereicherten Schicht, kann man nach [38,39] beschreiben durch

$$\frac{dc_A^s}{dt} \Big|_{\text{Segregation}} = \frac{D}{d^2} c_A(1-c_A^s) \exp(-Q/kT) \quad (2.18)$$

wobei Q die Segregationsenergie der Legierung darstellt. D ist der thermische Diffusionskoeffizient von A in B. Bedingt durch die Anreicherung der Legierungskomponente A an der Oberfläche existiert ein Konzentrationsgefälle ins Innere. Diffusiver Transport wird versuchen, diesen Gradienten auszugleichen. Die dadurch ausgelöste Änderung der Oberflächenzusammensetzung (eine thermische "Rückmischung") läßt sich wiederum nach [38,39] beschreiben:

$$\frac{dc_A^s}{dt} \Big|_{\text{Diffusion}} = - \frac{D}{d^2} c_A^s(1-c_A) \quad (2.19)$$

Die Differentialgleichung, die die zeitliche Entwicklung der Oberflächenkonzentration des Elementes A unter Berücksichtigung aller drei Mechanismen beschreibt, lautet dann:

$$\frac{dc_A^s}{dt} = \frac{dc_A^s}{dt} \Big|_{\text{Zerst}} + \frac{dc_A^s}{dt} \Big|_{\text{Segr}} + \frac{dc_A^s}{dt} \Big|_{\text{Diff}} \quad (2.20)$$

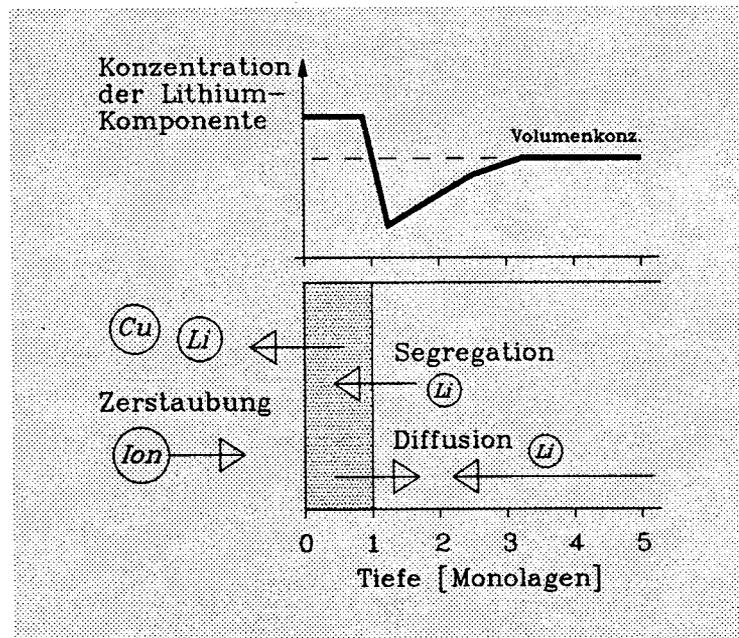


Abb. <2.3>: Typisches Tiefenprofil der segregierten Lithiumkomponente unter Ionenbeschuß. Abgestäubte Lithiumatome werden im Gleichgewicht durch einen Nachlieferungsstrom aus dem Inneren der Legierung (Diffusion/Segregation) kompensiert. Abhängig von der Ionenstromdichte stellt sich eine erhöhte Li-Oberflächenkonzentration ein. Nähere Ausführungen dazu finden sich in [29]. Bei erhöhten Temperaturen kommt als weiterer Verlustmechanismus noch die Verdampfung von Lithium hinzu.

Im Prinzip wäre es möglich, diese Differentialgleichung als Anfangswertproblem für c_A^s zu lösen. Notwendig dazu wäre die Kenntnis der folgenden Materialeigenschaften der verwendeten Legierung:

- Zerstäubungsausbeuten der beiden reinen Metalle A und B
- thermischer Diffusionskoeffizient von A in B
- Aktivierungsenergie Q für die Segregation von Metall A
- Teilchendichte der Legierung

- Dicke der durch Beschuß in ihrer Zusammensetzung modifizierten Schicht
- Volumenkonzentration von A in der Legierung
- Anfangszustand der Oberflächenzusammensetzung
- Teilchenflußdichte Φ des zerstäubenden Ionenstrahls

Über Kupfer/Lithium-Legierungen liegen jedoch sehr wenig, um nicht zu sagen, fast keine verlässlichen experimentellen thermodynamischen Daten vor, da diese Art von Legierungen bisher materialwissenschaftlich nicht hinreichend untersucht worden sind. Ein detailliertes Rechnen von (2.20) verbietet sich daher. Bis heute sind z.B. keine Zerstäubungsexperimente an elementarem Lithium durchgeführt worden, um etwa Ausbeuten zu bestimmen. Außerdem liegen keine verlässlichen experimentellen Daten über Diffusionskoeffizienten und Segregationsenergien vor.

Obiges Modell und obige Datenwünsche stellen darüberhinaus auch nur eine "Minimalforderung" dar. Es wird vorausgesetzt, daß die Legierung eine ideale Mischung ist, d.h. die Energie, um sie aus den reinen Metallen zu erzeugen, wird zu null angenommen. D.h. der Austausch von Kupferatomen durch Lithiumatome führt zu keiner Enthalpieänderung des Systems. Ferner wird ein lineares Verhalten von Diffusion und Segregation vorausgesetzt: Man vernachlässigt Abhängigkeiten der beteiligten Koeffizienten von der absoluten Höhe der Lithiumkonzentration. Weiterhin wird übergangen, daß Diffusion und Segregation von der Art, Energie und Intensität des Ionenbeschusses abhängig sein können. Man spricht hier von "Radiation Induced Segregation" (RIS) [40,41] und "Radiation Enhanced Diffusion" (RED) [42]. Tiefergehende Modelle, die obige Vorgänge berücksichtigen, sind in [43-48] aufgestellt worden. Erste Ansätze zur Bestimmung von Diffusionskoeffizienten und Segregationsenergien finden sich in [29] für verschiedene spezielle Beschußszenarios.

Es kann vorweg auf der Grundlage von bekannten Materialdaten nicht entschieden werden, ob unter einer konkreten Zerstäubungssituation genügend Lithium durch Segregation und Nachdiffusion aus dem Legierungsinernen herangeführt werden kann, um eine hinreichend hohe Oberflächenbedeckung dauerhaft zu sichern. Ein experimentelles Vorgehen ist unumgänglich. Der nächste Abschnitt soll kurz zusammenfassen, was bisher in dieser Hinsicht über Cu/Li-Legierungen bekannt ist.

2.4. Bisherige Untersuchungen an Kupfer/Lithium-Legierungen

Wie das Phasendiagramm von Kupfer/Lithium-Legierungen (Abbildung <2.4>, entnommen aus [49,50]) zeigt, läßt sich Lithium bei Temperaturen von unter 500°C bis zu 17 at-% in einer Kupfermatrix lösen. Die Legierung hat, genau wie Cu, eine fcc-Gitterstruktur, wobei die Li-Atome auf regulären Gitterplätzen sitzen. Der Schmelzpunkt einer 17 at-% Legierung liegt bei ca. 930°C, ist also nur wenig geringer als bei reinem Cu (1085°C). Wie schon in Kapitel 2.3 ausgeführt, sollte Lithium wegen seiner deutlich kleineren Verdampfungsenergie gegenüber Kupfer an der Oberfläche segregieren. Die Diffusion von Li in Cu sollte aufgrund des hohen Massen- und Atomvolumenunterschiedes auch von relevanter Größenordnung sein. Man kann demnach erwarten, daß eine hohe Li-Oberflächenbedeckung die Zerstäubung der schweren Cu-Komponente herabsetzen wird.

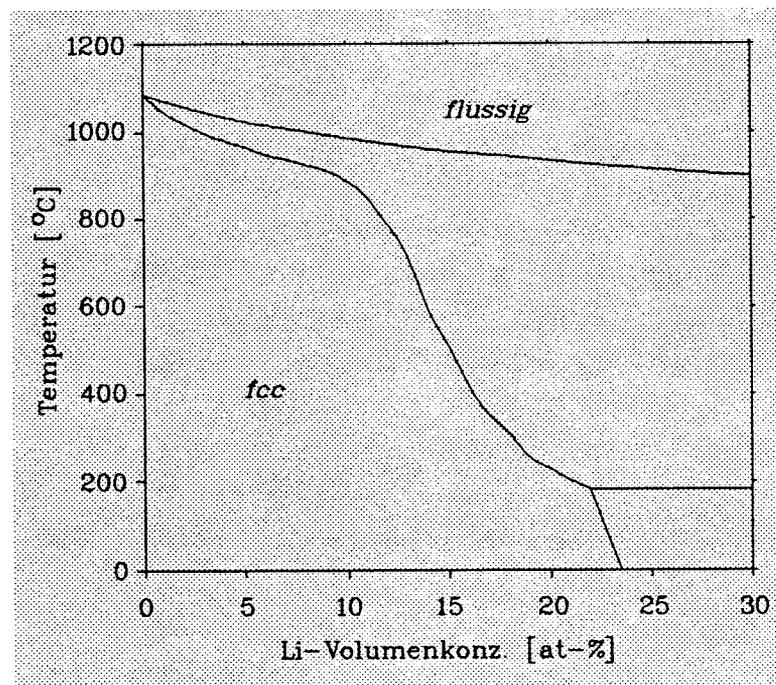


Abb. <2.4>: Ausschnitt aus dem Phasendiagramm von Kupfer/Lithium-Legierungen nach [49]. In dem mit "fcc" bezeichneteten Gebiet liegt die Legierung als kubisch-flächenzentrierte Gitterstruktur vor, wobei die Lithiumatome auf regulären Gitterplätzen sitzen ("Solid Solution").

Im Jahre 1981 haben D.M.Gruen et al. (Argonne National Laboratory, U.S.A.) vorgeschlagen, schwach lithiumhaltige Kupferlegierungen als Wandmaterial für Kernfusionsanlagen in Erwägung zu ziehen [8,9,12,51-55]. Entsprechende Targets wurden sowohl mit

Schmelz- als auch mit Diffusionsverfahren hergestellt. Ein genauerer Überblick über die Herstellungsmethoden und metallurgische Eigenschaften des Materials findet sich in [56].

Erste Zerstäubungsexperimente bei Targets, die zwischen 6 und 18 at-% Lithium enthielten, wurden mit relativ kleinen Ionenstromdichten durchgeführt. Es handelte sich um Helium- und Argonionenbeschuß von 0,2 bis 3 keV Energie und einer Flußdichte von ca. 5×10^{12} Ionen/cm²s ($1 \mu\text{A}/\text{cm}^2$) [8-10,57,58]. Die relativen Zerstäubungsraten von Cu und Li wurden zeitaufgelöst mit Auger-Spektroskopie und SIMS gemessen. Die wesentlichen Ergebnisse seien kurz zusammengefaßt:

- Bei Targettemperaturen oberhalb von ca. 300°C zeigt sich bei den angewendeten kleinen Argon- und Helium-Ionenflußdichten eine deutliche permanente Anreicherung von Lithium an der Oberfläche. Der Ionenbeschuß vermag hier nicht, die Lithiumschicht zu zerstören.
- Unterhalb von 200°C zeigen sich ebenfalls Segregationserscheinungen, die angereicherte Schicht wird jedoch durch eine Deposition von ca. 10^{17} Ionen/cm² völlig abgetragen. Die Legierung wird nach einer gewissen Zeit im Verhältnis ihrer Volumenzusammensetzung zerstäubt.
- Das Anlegen einer negativen Gegenspannung an das Target bewirkt eine deutliche Verlängerung der Lebensdauer der Lithiumschicht, was durch eine große Anzahl von abgestäubten Lithium-Ionen erklärt werden kann, die durch das angelegte elektrische Feld redeponiert werden können.

Die benutzten Ionenflußdichten waren in keiner Weise geeignet, die Wandbelastung in einem zukünftigen Fusionsreaktor zu simulieren. Daher wurden zusätzliche Experimente an PISCES [59,60] durchgeführt. Es handelt sich hierbei um eine Anlage der University of California (UCLA) in Los Angeles, die ein magnetisches Bogen-Plasma mit Strömen bis zu 600 A und Elektronentemperaturen von ca. 5 eV bis 25 eV benutzt, um die Plasma-Wand-Wechselwirkung in einem Tokamak zu simulieren. Durch Anlegen einer entsprechenden Spannung (25-500 V) an das Target kann die Energie der zerstäubenden Plasmateilchen gewählt werden. Der extrahierte Strahl ist jedoch nicht monoenergetisch. Es lassen sich Stromdichten von bis zu $1 \text{ A}/\text{cm}^2$ mit H, D, He, Ne und Ar erreichen. Dem entspricht eine Flußdichte von über 10^{18} Ionen/cm²s. Dieser Wert kommt der Belastung von Limiteroberflächen in Tokamaks nahe. Die bestrahlte Fläche kann bis zu 80 cm^2 groß sein.

Cu/Li-Targets mit 3, 6 und 12 at-% Lithium wurden bei PISCES einem Beschuß von

Helium-Ionen (100 eV, $10^{17}/\text{cm}^2\text{s}$) ausgesetzt. Zerstäubungsausbeuten wurden mittels optischer Emissionsspektroskopie der Resonanzlinien bei 670,8 nm (Li) und 324,8 nm (Cu) gemessen. Es wurde anschließend der Gewichtsverlust des Targets bestimmt. Je nach Zusammensetzung der Legierung, je nach Targettemperatur und Ionenflußdichte wurden totale Ausbeuten gefunden, die von reinem Kupfer bis zu reinem Lithium (?) reichten. Die Ergebnisse seien kurz zusammengefaßt [61-63]:

- Bei hohen Temperaturen (450°C) wurde eine Unterdrückung der Kupferzerstäubung um Faktoren von ca. 6 beobachtet, während gleichzeitig Lithium in nicht zu vernachlässigender Menge in Form neutraler Atome zerstäubt wurde.
- Bei tieferen Temperaturen (<400°C) steigt die Ausbeute von Cu deutlich an, während Lithium zunehmend als Ion zerstäubt wird, was auf eine Abnahme der Dicke der angereicherten Schicht schließen läßt.
- Es scheint möglich zu sein, die Oberfläche durch eine geeignete Aufheiz- und Ionenbeschußprozedur konditionieren zu können. Die Lebensdauer dieses Anreicherungszustands ist jedoch nicht unbegrenzt. Sie konnte nicht exakt bestimmt werden, liegt aber in der Größenordnung einer Deposition von einigen 10^{21} He-Ionen/cm² bei einer Targettemperatur von 450°C und einer mittleren Strahlenergie von ca. 300 eV.

Erste im IPP Garching durchgeführte Zerstäubungsexperimente [64] konnten die von Gruen et al. gefundene Emission von Lithium vornehmlich in ionisierter Form ebenfalls nicht bestätigen. Im fusionsrelevanten Temperaturbereich > 400°C wurde die Lithiumkomponente ausschließlich in Form neutraler Atome zerstäubt. Das Anlegen eines elektrischen Gegenfeldes beeinflusste weder Zerstäubungsausbeuten noch das Energiespektrum von Lithium.

Das Verhalten von Kupfer/Lithium-Legierungen scheint unter fusionsrelevantem Teilchenbeschuß nicht eindeutig geklärt zu sein. Zum Teil liegen sogar widersprüchliche experimentelle Ergebnisse vor. Wünschenswert wäre eine Vereinigung der Vorteile der bisher angewandten Untersuchungsverfahren. Die Bereitstellung von monoenergetischen Ionenstrahlen hoher Stromdichte und adäquater Methoden zur Diagnostik der abgestäubten Teilchen (Laserfluoreszenz, Auffängertechniken) sowie der Targetoberfläche (SIMS, Auger-Spektroskopie und ISS) ist anzustreben.

Es ist das Ziel der vorliegenden Arbeit, dazu einen experimentellen Beitrag zu leisten. Insbesondere bedarf der bei PISCES gefundene Prozeß der Oberflächenkonditionierung

einer Präzisierung. Notwendig ist dazu die zeitabhängige Bestimmung von Zerstäubungsausbeuten von Kupfer und Lithium unter intensivem, monoenergetischem Beschuss durch leichte (D und He) sowie schwere (Ne und Ar) Ionenstrahlen.

2.5. Rechnergestützte Simulation der Zerstäubung von Cu/Li durch "TRIDYN"

Die Simulation von atomaren Stoßprozessen durch Computercodes ist in den letzten Jahren in vielen Anwendungsgebieten erfolgreich eingesetzt worden. TRIDYN ist ein spezieller Code, der die Zerstäubung von mehrkomponentigen Festkörpertargets im Rahmen der linearen Stoßkaskadentheorie modellieren kann. Er wurde im Max-Planck-Institut für Plasmaphysik in Garching von W.Möller und W.Eckstein entwickelt und basiert auf dem von J.P.Biersack erstellten TRIM-Code [65].

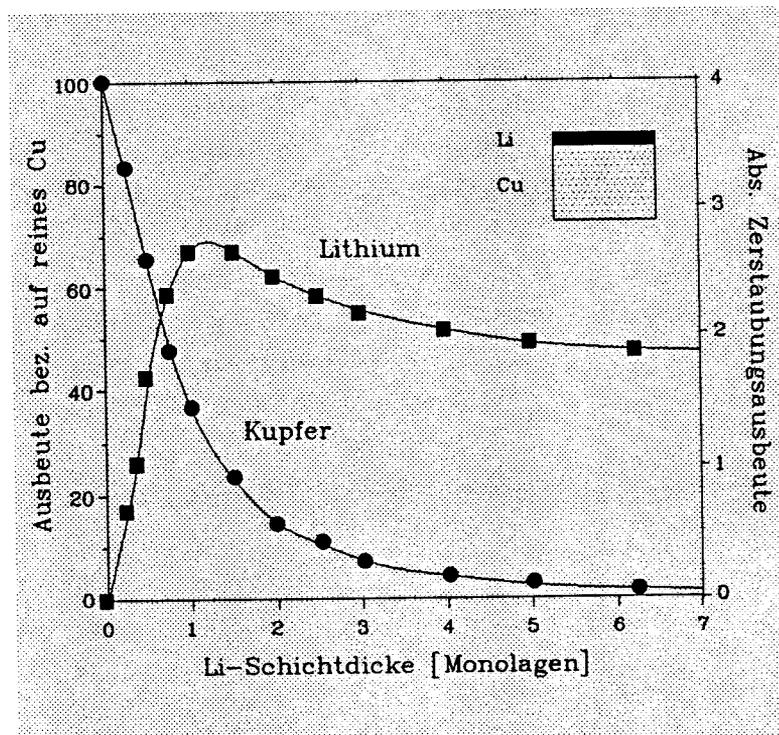


Abb. <2.5>:

Mit TRIDYN statisch gerechnete absolute partielle Zerstäubungsausbeuten von Cu und Li bei einem reinen Kupferblock, der eine dünne Schicht reinen Lithiums variabler Dicke trägt. Angenommen wurde hier die Zerstäubung durch einen senkrecht auftreffenden 6 keV Argon-Ionenstrahl.

TRIDYN ist eine zeitdynamische Erweiterung von TRIM und verfolgt das Schicksal von einzelnen in einen Festkörper geschossenen Ionen. Dabei werden Zweierstoßprozesse zwischen dem eindringenden Ion, den Gitteratomen sowie bereits aus ihren Gitterplätzen entfernten Targetatomen angenähert. Mit Hilfe eines Monte-Carlo-Algorithmus werden einzelne Streuvorgänge in einem amorphen Festkörpergitter nachvollzogen. Der Weg jedes einzelnen Ions und jedes aus dem Gitterverband herausgelösten Atoms läßt sich im Detail verfolgen. TRIDYN zählt schließlich diejenigen Atome, die den Festkörper abgestäubt verlassen. Da ihre Energie sowie ihr Emissionswinkel relativ zur Oberflächennormalen bekannt sind, lassen sich Zerstäubungsausbeuten energie- und winkelaufgelöst berechnen.

TRIDYN ist in der Lage, auch aus mehreren Komponenten zusammengesetzte Festkörper zu modellieren. Ferner kann der Zerstäubungsvorgang zeitaufgelöst gerechnet werden, um transiente Effekte und beschußbedingte Oberflächenmodifikationen zu untersuchen. Wir werden von dieser zeitdynamischen Programmversion im folgenden aber keinen Gebrauch machen. Das Programmpaket ist auf der Cray-XMP des Max-Planck-Instituts für Plasmaphysik in Garching installiert. Je nach Problemstellung benötigt man, um eine gute Zählstatistik zu bekommen, einige 10^4 bis 10^5 Ionen, was auch auf einer Cray CPU-Zeiten von bis zu einigen Stunden bedeuten kann. Für eine sehr detaillierte Beschreibung des Codes - teilweise einschließlich des vektorisierten FORTRAN-Quellcodes selbst - sei auf [29,66-68] verwiesen.

Um a priori abschätzen zu können, wie stark eine mit Lithium angereicherte Schicht die Zerstäubung der Kupferkomponente unterdrücken kann, betrachten wir einen reinen Kupferblock, der mit einer dünnen Schicht von einigen atomaren Monolagen reinen Lithiums bedeckt ist. Wir stellen uns eine mit Lithium angereicherte oberflächennahe Schicht so vor, als wären alle dort angesiedelten Lithium-Atome in einer Schicht reinen Lithiums komprimiert. Ihre Dicke wollen wir "effektive Schichtdicke" einer Lithiumanreicherung nennen.

Für diese Schichtstruktur wird ein senkrechter Beschuß durch 6 keV Argon-Ionen mit TRIDYN modelliert. Die Lithium-Schichtdicke ist dabei als Variable angenommen. Abbildung <2.5> zeigt das Ergebnis. Die über den Halbraum integrierten partiellen Zerstäubungsausbeuten von Lithium und Kupfer sind als Funktion der Li-Schichtdicke dargestellt. Es fällt auf, daß die Lithiumausbeute bei kleinen Schichtdicken deutlich über der von reinem Lithium liegt, ein "Matrix-Effekt", der durch eine bessere Impulsübertragung durch Stöße von schweren mit leichten Atomen erklärt werden kann. Weiter fällt auf, daß selbst bei Schichtdicken von mehr als fünf Monolagen noch Kupfer zerstäubt wird. Anscheinend gibt es auch in dieser Tiefe noch Gitteratome, die genug Energie aufnehmen können, um die Lithiumschicht zu durchdringen und den Gitterverband

schließlich zu verlassen. Aber andererseits können schon einige wenige Monolagen Lithium die Ausbeute von Kupfer um mehr als eine Größenordnung reduzieren.

Abbildung <2.5> korreliert die Dicke der die Oberfläche des Kupferblocks bedeckenden Lithiumschicht mit der zugehörigen partiellen Zerstäubungsausbeute der Kupferkomponente. Wir werden später diese Kurve benutzen, um von experimentell ermittelten Reduktionsfaktoren in der Kupfer-Zerstäubung auf die effektive Dicke der lithiumangereicherten Schicht schließen zu können. Im übrigen liefert diese Modellrechnung im Grenzfalle einer dicken Lithiumschicht einen theoretischen Wert für die bisher experimentell nicht bestimmte Zerstäubungsausbeute von reinem Lithium. Er beträgt ca. 1,8 für die hier angenommene Zerstäubung durch einen 6 keV-Argonstrahl. Der TRIDYN-Wert für reines Kupfer - er beläuft sich auf 4 - korreliert recht gut mit experimentell bestimmten Werten, die um einen Mittelwert von etwa 5 streuen [16,69].

3. Methoden zur Bestimmung von Ausbeuten und Geschwindigkeitsverteilungen bei der Zerstäubung von Zweikomponentensystemen

3.1. Laserinduzierte Fluoreszenz-Spektroskopie (LIF)

3.1.1. Physikalische Grundlagen der LIF

Zur Bestimmung von Zerstäubungsraten bei Mehrkomponententargets benötigt man Meßmethoden, die selektiv die beteiligten Atomsorten detektieren können. Laserinduzierte Fluoreszenzspektroskopie, kurz LIF genannt, eignet sich für diese Aufgabe in besonderer Art. Ihr Grundprinzip: Ein Laserstrahl geeigneter Frequenz regt einen elektronischen Resonanzübergang einer abgestäubten Atomspezies an. Die in Folge entstehende Relaxations- oder Fluoreszenzstrahlung kann optisch beobachtet werden. LIF ist, wie wir noch genauer ausführen werden, in der Lage, sowohl Dichten als auch Geschwindigkeitsverteilungen abgestäubter Atome zu bestimmen. Die Dichte ist zusammen mit der mittleren Geschwindigkeit der abgestäubten Atome ein Maß für die partielle Zerstäubungsausbeute des betreffenden Elements. Der ausgesprochen erfolgreiche Einsatz von LIF bei Zerstäubungsexperimenten wurde in einem Übersichtsartikel von H.L.Bay in [70] geschildert. LIF kann unterscheiden zwischen

- verschiedenen Atomsorten samt deren Ionisationsstufen und Anregungszuständen (→ Auswahl der Resonanzlinie)
- verschiedenen Isotopen eines Elements (→ Isotopieverschiebung von Resonanzlinien)
- verschiedenen Geschwindigkeiten der abgestäubten Teilchen (→ Dopplerverschiebung von Resonanzlinien)

Darüberhinaus birgt LIF im Hinblick auf Zerstäubungsexperimente eine ausgesprochen gute Zeitauflösung in sich - sie ist bestimmt durch die Repetitionsrate bei Pulslasern bzw. durch die zur Verfügung stehende Leistung bei CW-Lasern und ist um Größenordnungen besser als bei den bisher verwendeten Techniken der Auffängeranalyse (→ Kapitel 3.2). Daher fällt die Wahl auf LIF, um in der vorliegenden Arbeit die partiellen Zerstäubungsausbeuten von Kupfer- und Lithiumatomen, sowie deren Geschwindigkeitsverteilungen zu messen. LIF ist in der Lage, die erwarteten zeitlichen Veränderungen von Zerstäubungsraten und somit von Oberflächenzusammensetzungen der Cu/Li-Targets aufzulösen. Die Grundlagen und Vorteile der LIF sind bereits mehrfach ausführlich dargelegt worden, z.B. in [21,71-75]. Der Vollständigkeit halber sollen deshalb nur in kurzer Form die

wesentlichen Prinzipien vorgestellt werden, soweit sie für die vorliegende Arbeit relevant sind. Wir machen im folgenden Gebrauch von einem vereinfachten Modell. Wir nehmen an, daß

- der zu untersuchende Strahl aus abgestäubten Atomen optisch dünn ist,
- sich die zu registrierenden Atome zwischen Targetoberfläche und Fluoreszenzvolumen stoßfrei bewegen, d.h. sie sich nicht stoßbedingt in höhere Niveaus anregen lassen und keine stoßinduzierten Übergänge aus den oberen Niveaus heraus stattfinden,
- die spektrale und räumliche Verteilung der Laserenergiedichte im Streuvolumen homogen und isotrop sowie daß die Strahlung unpolarisiert ist,
- während der Dauer des Laserpulses keine Atome in das Streuvolumen hinein oder aus ihm heraus wandern.

Abbildung <3.1> zeigt den einfachsten Fall eines Modellatoms, nämlich ein Zweiniveausystem. Das angeregte Niveau 2 kann ausschließlich wieder durch Strahlungsprozesse zum Ausgangsniveau 1 relaxieren. Niveau 1 ist i.a. der Grundzustand des betrachteten Atoms. Das Atom befindet sich in einem homogenen Strahlungsfeld der spektralen Energiedichte $u(\nu)$, B_{12} sei der Einsteinkoeffizient des Übergangs $1 \rightarrow 2$ für die Absorption, B_{21} der entsprechende Koeffizient für induzierte Emission, und A_{21} charakterisiere die spontane Emission von Lichtquanten; g_1 und g_2 seien schließlich die statistischen Gewichte der beiden Niveaus.

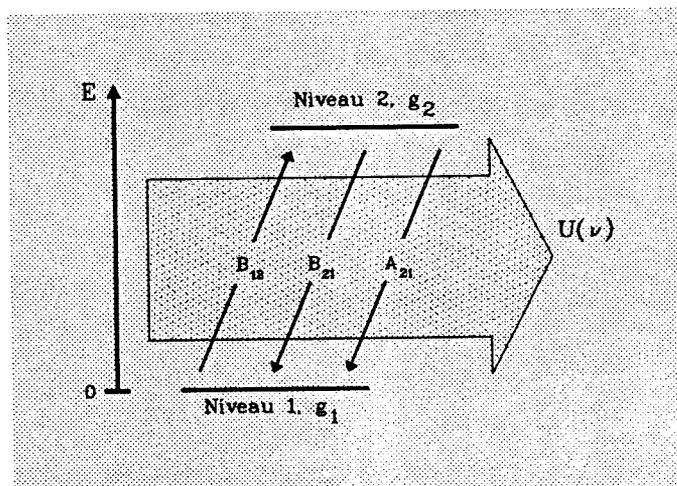


Abb. <3.1>: Schematische Darstellung eines Zweiniveausystems in einem homogenen Strahlungsfeld $u(\nu)$: A_{21} , B_{12} und B_{21} sind die Einsteinkoeffizienten und g_1 sowie g_2 die statistischen Gewichte des Übergangs $1 \leftrightarrow 2$.

Für die zeitliche Änderung der Besetzungsdichte n_2 im angeregten Niveau läßt sich mit den oben eingeführten Größen ein System von Ratengleichungen aufstellen:

$$\frac{dn_2}{dt} = u(\nu) (B_{12}n_1 - B_{21}n_2) - A_{21}n_2 \quad (3.1)$$

$$n = n_1 + n_2$$

wobei n_1 die Besetzungsdichte im Grundzustand und n die Gesamteilchendichte darstellt. Diese Differentialgleichung läßt sich für einen sprunghaft einsetzenden Laserpuls mit der Anfangsbedingung $n_2(t=0) = 0$ lösen:

$$\frac{n_2}{n} = \frac{g_2}{g_1 + g_2} \frac{S}{S+1} [1 - \exp\{-(S+1)A_{21}t\}] \quad (3.2)$$

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

$$S := u(\nu) (B_{12} + B_{21}) / A_{21} \quad (3.3)$$

Aus praktischen Gründen ist es jedoch einfacher, die Energiedichte des Strahlungsfeldes nicht auf ein Frequenz-, sondern auf ein Wellenlängenintervall zu beziehen. Macht man Gebrauch von der allgemeinen Beziehung

$$g_1 B_{12} = g_2 B_{21} = g_2 A_{21} \frac{c^3}{8\pi h \nu^3} \quad (3.4)$$

dann läßt sich der Sättigungsparameter S auch folgendermaßen ausdrücken:

$$S = \Phi_L(\lambda) / \Phi_0(\lambda) \quad (3.5)$$

$\Phi_L(\lambda)$ bedeutet hierbei die Leistungsdichte der Laserstrahlung, bezogen auf die Flächen-

und Wellenlängeneinheit. $\Phi_0(\lambda)$ ist die "Sättigungsleistungsdichte". Sie ist ein Maß dafür, wie hoch die Laserleistungsdichte sein muß, um die Besetzungsdichte des angeregten Zustands (Niveau 2) hinreichend zu sättigen, was man durch einen Wert von $S=1$ definieren kann. Dabei wird das angeregte Niveau zur Hälfte des maximal möglichen besetzt (\rightarrow Gleichung (3.2)). Mit Beziehung (3.4) berechnet sich die Sättigungsleistungsdichte zu

$$\Phi_0(\lambda) = \frac{g_1}{g_1+g_2} \frac{8\pi hc^2}{\lambda^5} \quad (3.6)$$

Man erkennt, daß die Leistung, die zur Sättigung eines Resonanzüberganges notwendig ist, extrem stark von der Wellenlänge dieses Übergangs abhängt. Es ist mit abnehmender Wellenlänge nicht nur immer schwieriger, hohe Laserpulsenergien zu erzeugen, es steigen die zur Fluoreszenz notwendigen Sättigungsleistungen dazu noch stark an. Eine Diskussion der Gleichung (3.2) zeigt, daß es zwei wesentliche Gründe gibt, den Sättigungsparameter S so hoch wie möglich zu machen, wenn es um die Messung der Besetzung des oberen der beiden Niveaus geht:

- Die Zeit, die bis zur Stationarität in der Besetzungsdichte n_2 benötigt wird, entspricht dem Ausdruck $1/[(S+1)A_{21}]$. Sie soll klein gegenüber der Laserpulslänge sein.
- Die Besetzungsdichte n_2 selbst ist proportional zu $S/(S+1)$.

Bei einem Zweiniveausystem ist (vorausgesetzt der Laserpuls ist länger als $1/[(S+1)A_{21}]$) die während eines Laserpulses detektierte Anzahl von Fluoreszenzphotonen immer direkt proportional zur Länge des Pulses und zur Anzahl der Atome im Wechselwirkungsvolumen. Anders sieht es dagegen bei Atomen aus, bei denen das angeregte Niveau nicht nur direkt zum Grundzustand relaxieren kann, sondern wo es zusätzliche Strahlungsübergänge zu anderen tieferliegenden, oft metastabilen Niveaus gibt. Abbildung <3.2> zeigt den einfachsten Fall, ein Dreiniveausystem mit einem metastabilen Zustand 3, wie es für viele Metalle typisch ist. Auch hier läßt sich für die Besetzungsdichten der nunmehr drei Niveaus ein gekoppeltes Ratengleichungssystem aufstellen:

$$\begin{aligned} \frac{dn_1}{dt} &= u(\nu) (B_{21}n_2 - B_{12}n_1) + A_{21}n_2 \\ \frac{dn_2}{dt} &= u(\nu) (B_{12}n_1 - B_{21}n_2) - (A_{21} + A_{23}) n_2 \\ \frac{dn_3}{dt} &= A_{23} n_2 \\ n &= n_1 + n_2 + n_3 \end{aligned} \quad (3.7)$$

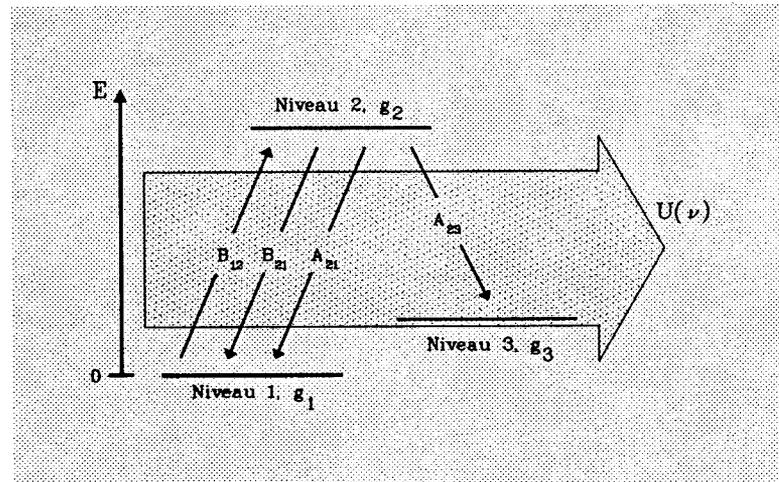


Abb. <3.2>: Schematische Darstellung eines Dreiniveausystems in einem homogenen Strahlungsfeld $u(\nu)$: A_{ij} und B_{ij} stellen die Einsteinkoeffizienten und g_k die statistischen Gewichte dar. Niveau 3 ist metastabil.

Wobei hier, wie auch schon beim Zweiniveausystem, die Gesamtdichte n von anregbaren Atomen im Fluoreszenzvolumen während der Dauer des Laserpulses als zeitlich konstant vorausgesetzt ist. Eine exakte, aber recht komplizierte analytische Lösung dieses Ratengleichungssystems läßt sich für einen Anfangszustand, wo sich zu Beginn des Laserpulses alle Atome im Grundniveau befinden, angeben [72]. Für den Fall eines hinreichend langen Laserpulses ($\tau_L \gg [(A_{21}+A_{23})(S+1)]^{-1}$) und einer hinreichend hohen Laserleistungsdichte ($S \gg 1$) gibt es eine Näherungslösung für die Besetzungsdichte des die Anzahl der Fluoreszenzphotonen bestimmenden oberen Niveaus 2:

$$\frac{n_2}{n} = \frac{g_2}{g_1+g_2} \exp\left(-\frac{g_2}{g_1+g_2} A_{23} t\right) \quad (3.8)$$

Die Sättigungsleistungsdichte $\Phi_0(\lambda)$ muß für ein Dreiniveausystem leicht modifiziert definiert werden, da es nun zwei Relaxationswege für Strahlungsübergänge gibt:

$$\Phi_0(\lambda) = \frac{g_1}{g_1+g_2} \frac{A_{21}+A_{23}}{A_{21}} \frac{8\pi hc^2}{\lambda^5} \quad (3.9)$$

Der Sättigungsparameter S wird in diesem Falle durch das Verzweigungsverhältnis der möglichen Relaxationswege bei gleicher Laserleistungsdichte gegenüber einem Zweiniveausystem erniedrigt. Man muß also, um anfangs den gleichen Sättigungsgrad des Anregungsübergangs $1 \rightarrow 2$ zu erreichen, eine höhere Laserleistung einsetzen. Im Gegensatz zu einem Zweiniveausystem, wo die Intensität des Fluoreszenzsignals bei hohen Laserleistungen und langen Pulszeiten recht schnell in einen Gleichgewichtszustand übergeht, der nur noch von den statistischen Gewichten der beiden Niveaus bestimmt ist, wird bei einem Dreiniveausystem der Grundzustand nach endlich langer Zeit praktisch völlig entleert. Wie Gleichung (3.8) zeigt, fällt die Besetzungsdichte des angeregten Niveaus 2 exponentiell mit der Dauer des Laserpulses. Der Anstieg von n_2 unmittelbar nach Beginn des Pulses wird hingegen von der Näherungslösung (3.8) nicht beschrieben.

Die Nichtstationarität in der Besetzung des angeregten Niveaus 2 bedingt bei einem Dreiniveausystem, daß die Anzahl der detektierten Fluoreszenzphotonen des Übergangs $2 \rightarrow 3$ nicht mehr in jedem Fall proportional zur Dichte der Atome im Wechselwirkungsvolumen ist. Nach [70] entscheidet das Verhältnis aus Laserpulslänge τ_L und der Transportzeit τ_{Tr} , die ein abgestäubtes Atom sich auf seinem Weg bis zum Detektionsvolumen geometrisch im Laserstrahl befindet, darüber, ob das Fluoreszenzsignal proportional zur Dichte oder zum Fluß der Atome ist.

Für $\tau_L/\tau_{Tr} \ll 1$ ist die Wegstrecke, die die Atome während der Dauer eines Laserpulses zurücklegen, klein gegenüber der Länge der Transportstrecke und der des Beobachtungsvolumens. In diesem Falle spielt sich der Vorgang des Überpumpens eines Atoms in den metastabilen Zustand und die damit verbundene Photonenemission auf einer Weglänge ab, die klein gegenüber der Länge des Beobachtungsvolumens ist. Transportprozesse in das Beobachtungsvolumen hinein und aus ihm heraus brauchen dann nicht berücksichtigt zu werden. Die Meßgröße der LIF ist dann, genau wie bei einem Zweiniveausystem, die Dichte der untersuchten Atome im Beobachtungsvolumen. Diese Situation liegt bei der Zerstäubung von gängigen metallischen Elementen und typischen Laserpulsdaten vor: Mit $\tau_L = 0,5 \mu\text{s}$ und mittleren Transportgeschwindigkeiten von einigen km/s sowie Wegstrecken von einigen cm ist das Verhältnis $\tau_L/\tau_{Tr} < 0,1$.

Bei einem Dreiniveausystem ist das über die Dauer des Laserpulses integrierte Fluoreszenzsignal (d.h. die gesamte Anzahl der Fluoreszenzphotonen pro Laserpuls) praktisch unabhängig von der Laserleistung und der Pulslänge, sofern beide hinreichend groß sind: Fast alle Atome im Wechselwirkungsvolumen sind nach einer Zeit, die dem Ausdruck $(g_1+g_2)/g_2A_{23}$ entspricht, in den metastabilen Zustand 3 übergepumpt worden und können zur Fluoreszenz nicht mehr beitragen. Der exakte Überpumpgrad kann nach [22] in Abhängigkeit von Pulslänge und Leistungsdichte der Strahlung berechnet werden.

Die Beziehungen (3.2) und (3.8), die die Gesamteilchendichte mit der Dichte im angeregten Niveau verknüpfen, erlauben schließlich bei geeigneter Absolutkalibration (→ Kapitel 3.1.3) die gewünschte Bestimmung der Dichte der untersuchten Atomsorte am Ort des Wechselwirkungsvolumens.

3.1.2. Der Einsatz von gepulsten Lasersystemen

Um hinreichende Sättigungsleistungsdichten und damit Nachweisempfindlichkeiten zu erreichen, werden zur Detektion von abgestäubten Atomen fast ausschließlich gepulste Farbstofflaser eingesetzt [70]. Die in Kapitel 3.1.1 gemachten Annahmen bezüglich räumlicher, spektraler und zeitlicher Homogenität der Laserstrahlung werden daher nicht zutreffen. Zunächst wird ein realer Laserpuls immer endliche Anstiegs- und Abfallzeiten haben, er ist nicht ideal rechteckförmig. Weiter bedingt eine endliche Resonatorlänge Longitudinalmoden im Spektrum der Strahlung, sie ist daher spektral inhomogen. Außerdem können transversale Lasermoden ein Abweichen von der räumlichen Homogenität des Strahls bedingen. Die meiste Aufmerksamkeit muß der spektralen Struktur der Laserstrahlung geschenkt werden. In einem Laserresonator der Länge L bildet sich eine longitudinale Modenstruktur aus. Der spektrale Abstand der einzelnen Moden ist

$$\Delta\lambda_{LM} = \lambda^2 / 2L \quad (3.10)$$

wobei λ die zentrale Laserwellenlänge bedeutet. Ist dieser Modenabstand kleiner als die Summe der natürlichen spektralen Breite γ_{Linie} des anzuregenden atomaren Übergangs und der spektralen Breite γ_{LM} einer Longitudinalmode, mit anderen Worten:

$$\Delta\lambda_{LM} < \gamma_{LM} + \gamma_{Linie} \quad (3.11)$$

dann behalten die Überlegungen in Kapitel 3.1.1 ihre Gültigkeit: Die verschiedenen Moden überlappen sich genügend bzw. das Profil der Resonanzlinie umschließt so viele Lasermoden, daß keine nennenswerte Abweichung von einer homogenen spektralen Leistungsdichte vorhanden ist. Die natürliche Breite einer Spektrallinie berechnet sich im übrigen aus der Lebensdauer des angeregten Zustands [71] zu

$$\gamma_{Linie} = \lambda^2 A_{ij} / 2\pi c \quad (3.12)$$

wobei A_{ij} der Einsteinkoeffizient der spontanen Emission der betreffenden Linie ist. Setzt man in erster Näherung einen zeitlich rechteckförmigen Puls der Länge τ_L voraus, dann berechnet sich die Breite einer Longitudinalmode mittels Fouriertransformation des Pulses in erster Näherung zu

$$\gamma_{LM} = \lambda^2 / 2\pi c \tau_L \quad (3.13)$$

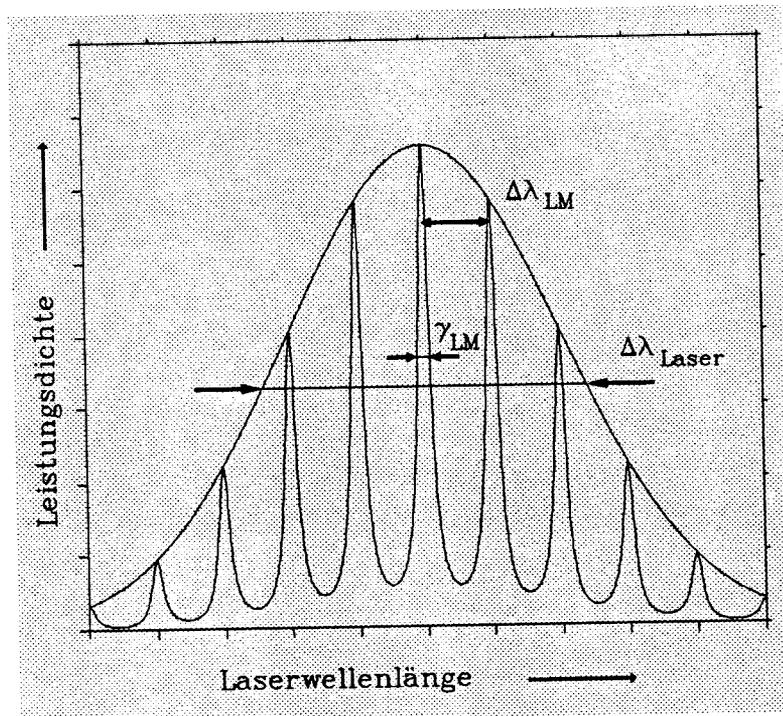


Abb. <3.3>: Typische Longitudinalmodenstruktur eines gepulsten Farbstofflasers: Der spektrale Abstand der einzelnen Moden ($\Delta\lambda_{LM}$) ist deutlich größer als ihre Halbwertsbreite γ_{LM} . Das gesamte spektrale Profil der Laserstrahlung ($\Delta\lambda_{Laser}$) umfaßt i.a. mehrere Longitudinalmoden.

Bei gepulsten Farbstofflasersystemen (Blitzlampe, Excimer, YAG) ist (3.11) nicht erfüllt, d.h. es gibt nicht zu vernachlässigende Lücken zwischen den einzelnen Moden. Typische Werte für einen blitzlampengepumpten Farbstofflaser sind (gerechnet für die Lithiumresonanz bei 670,8 nm):

- Pulslänge $\tau_L = 0,5 \mu s$ bis $1 \mu s$
- Resonatorlänge $L = 70 \text{ cm}$
- Gesamtlinienbreite $\Delta\lambda_{Laser} = 1 \text{ pm}$ bis zu 30 pm
- Modenabstand $\Delta\lambda_{LM} = 0,3 \text{ pm}$

- Breite einer einzelnen Mode $\gamma_{LM} = 0,0005 \text{ pm}$
- Natürliche Breite der Lithium-Resonanzlinie $\gamma_{Linie} = 0,01 \text{ pm}$

Die Longitudinalmodenstruktur ist demnach zu berücksichtigen: Die Lasermoden, deren spektrale Breite ca. 20 mal kleiner ist als das Absorptionsprofil der nicht Doppler-verbreiterten Resonanzlinie, regen nur einen kleinen Teil des Absorptionsspektrums an und sättigen den Übergang stark frequenzselektiv. Anschaulich betrachtet, muß man in erster Näherung die Laserleistung etwa um das Verhältnis aus dem Modenabstand $\Delta\lambda_{LM}$ und der Summe der beiden Linienbreiten ($\gamma_{LM} + \gamma_{Linie}$) erhöhen, um insgesamt denselben Sättigungsgrad zu erreichen wie ohne Modenstruktur. Genauer betrachtet [22,76,77] muß die Laserleistung um den Faktor

$$m = \coth [\pi (\gamma_{LM} + \gamma_{Linie}) / 2\Delta\lambda_{LM}] \quad (3.14)$$

erhöht werden. Für den oben angesprochenen bei 670,8 nm betriebenen Farbstofflaser errechnet sich ein Wert von $m=18$. Man führt einen über die Modenstruktur gemittelten Sättigungsparameter S_m ein, der sich von S durch diesen Faktor unterscheidet:

$$S_m := S / m \quad (3.15)$$

Eine weitere Modellabweichung betrifft die räumliche Homogenität der Strahlung. Man kann zwar durch geeignete Blenden im Laserresonator bewirken, daß nur die TEM_{00} -Mode anschwingt, man kann aber nicht völlig verhindern, daß die Leistungsdichte zum Rand des Strahlprofils hin kontinuierlich abfällt. Ein räumlich nicht konstanter Sättigungsparameter ist die Folge. Bei einem Dreiniveausystem werden über den Strahlquerschnitt betrachtet verschieden viele Atome pro Zeiteinheit in den metastabilen Zustand übergepumpt. Damit das über die Dauer des Laserpulses integrierte Fluoreszenzsignal trotzdem proportional zur Anzahl der Atome im Wechselwirkungsvolumen ist, muß der Laserpuls hinreichend lang sein, um über den gesamten Strahlquerschnitt hinweg auch außen alle Atome überzupumpen. Damit bei einem Zweiniveausystem ebenfalls eine Proportionalität zwischen Atomdichte und integriertem Fluoreszenzsignal besteht, muß zusätzlich zu einer Mindestpulslänge (Erreichen der Stationarität der Besetzung des oberen Niveaus) auch die Laserleistungsdichte hoch sein ($S_m \gg 1$), weil ansonsten das angeregte Niveau über den Strahlquerschnitt gesehen im stationären Fall verschieden stark besetzt wäre, und damit die Fluoreszenzintensität eine Radialabhängigkeit besitzen würde.

Mit verfügbaren Lasersystemen wie Excimer- und blitzlampengepumpten Farbstofflasern lassen sich Pulse von genügend langer Dauer und Intensität sowohl im sichtbaren als auch im ultravioletten Spektralbereich erzeugen, sodaß von allen oben genannten Abweichungen vom Idealmodell nur die Longitudinalmodenstruktur berücksichtigt werden muß. Dies äußert sich aber nur in einer recht einfachen Modifikation des Sättigungsparameters.

3.1.3. Messung von Dichten und Geschwindigkeitsverteilungen

Die Breite einer anzuregenden Spektrallinie kann, über eine große Zahl von Atomen gemittelt, erheblich gegenüber der natürlichen Linienbreite vergrößert sein. Bei Zerstäubungsexperimenten überwiegt bei weitem die Doppler-Verbreiterung. Abgestäubte Metallatome haben nach Verlassen der Oberfläche im Mittel Energien von einigen eV, was gemäß

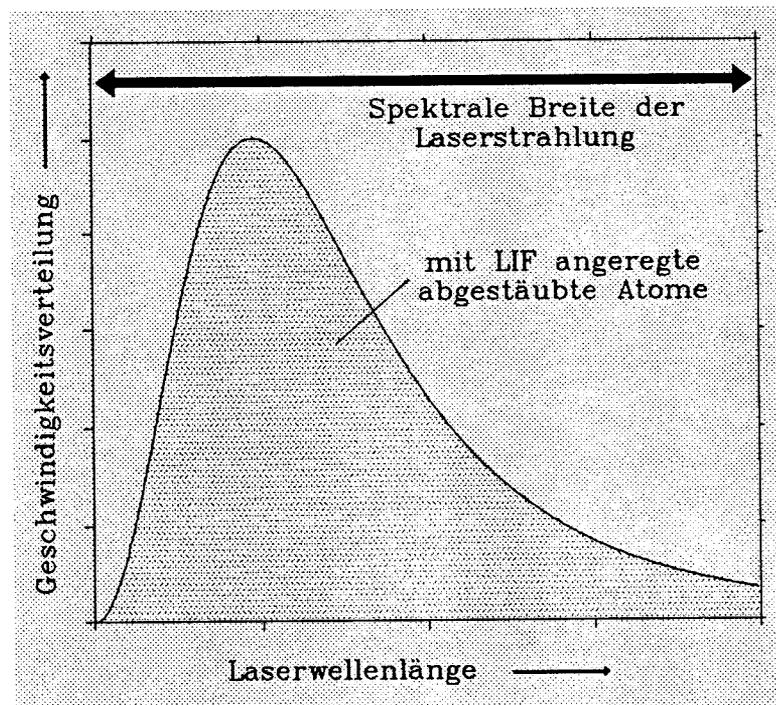


Abb. <3.4>: Spektrales Laserprofil und Dopplerverbreitertes Profil der Absorptionslinie des zerstäubten Elements (Thompson'sche Geschwindigkeitsverteilung) bei einer Dichtenmessung mit einem parallel zum abgestäubten Atomstrahl justierten Laserstrahl.

$$\Delta\lambda_D \approx \lambda \langle v_{tr} \rangle / c \quad (3.16)$$

je nach zerstäubtem Element zu Linienbreiten von einigen 10 pm führen kann, wenn der Laserstrahl parallel (d.h. koaxial) zum Strahl der abgestäubten Atome orientiert ist. $\langle v_{tr} \rangle$ ist hierbei die mittlere Transportgeschwindigkeit der abgestäubten Atome nach (2.8), λ ist die zugehörige Resonanzwellenlänge. Sollen in dieser Geometrie Teilchendichten mit LIF gemessen werden, so ist sicherzustellen, daß alle Atome mit ihren verschiedenen Geschwindigkeiten angeregt werden können, d.h. die spektrale Breite der Laserlinie muß größer sein als die Dopplerbreite der Resonanzlinie:

$$\Delta\lambda_{\text{Laser}} > \Delta\lambda_D \quad (3.17)$$

Nur unter dieser Voraussetzung und den in Kapitel 3.1.1 gesetzten Randbedingungen ist das zeitlich über die Dauer des Laserpulses integrierte Fluoreszenzsignal proportional zur Anzahl, d.h. zur Dichte der abgestäubten Atome im Wechselwirkungsvolumen, die sich im angeregten Zustand befinden. Eine Absolutkalibration des Fluoreszenzsignals ist möglich durch Rayleigh-Streuung des Laserstrahls an einem bekannten Gas [78]:

Ein definierter Druck eines Gases (z.B. Argon oder Stickstoff) wird in dieselbe Vakuumkammer eingelassen, in der auch das Zerstäubungsexperiment stattfindet. Das optische System, das die Fluoreszenzphotonen zu detektieren hat, wird unverändert auch hier benutzt. Der nun in ein thermisches Gas injizierte Laserstrahl wird an den Gasatomen gestreut (Rayleigh-Streuung). Mit Hilfe von tabellierten Rayleigh-Streuquerschnitten kann berechnet werden, wieviele Photonen den Detektor (i.a. ein Photomultiplier) erreichen:

$$X_{\text{Rayleigh}} = \frac{3}{2} K P_{\text{Laser}} \sigma_{\text{Rayleigh}} V n_{\text{Gas}} \tau_{\text{Laser}} \quad (3.18)$$

Hierbei ist

- P_{Laser} die auf die Strahlquerschnittsfläche bezogene Laserleistungsdichte
- σ_{Rayleigh} der Streuquerschnitt für das jeweilige Gas
- V das vom optischen Detektionssystem gesehene Streuvolumen
- n_{Gas} die Füllichte des Gases

- τ_{Laser} die Länge des Laserpulses
- K ein Proportionalitätsfaktor, der die Eigenschaften des optischen Detektionssystems berücksichtigt, wie Transmissionsgrad von Fenstern, Reflexionsgrad von Spiegeln, Empfindlichkeit des Detektors, Öffnungsverhältnis, etc.
- $3/2$ ein Faktor, der berücksichtigt, daß es sich bei der Rayleigh-Streuung um polarisierte Dipolstrahlung handelt. Der Wert $3/2$ gilt nach [79] für eine optische Beobachtungsgeometrie senkrecht zum Laserstrahl.

Die Anzahl von Fluoreszenzphotonen in einem Zweiniveausystem kann analog berechnet werden:

$$X_{\text{Fluoreszenz}} = K V n_2 h\nu A_{21} \tau_{\text{Laser}} \quad (3.19)$$

Es bedeuten

- n_2 die Anzahldichte der Atome im angeregten Niveau
- $h\nu$ die Energie eines Fluoreszenzphotons
- A_{21} der Einsteinkoeffizient der spontanen Emission der Resonanzlinie
- V und τ_{Laser} haben dieselbe Bedeutung wie bei der Rayleigh-Streuung.

Von besonderer Bedeutung ist, daß K in beiden Fällen derselbe Proportionalitätsfaktor ist, da das optische Beobachtungssystem nicht geändert wird. Hier gehen unter anderem die Transmission von Fenstern, die Reflektivität von Spiegeln und die absolute Empfindlichkeit des Photomultipliers ein. Durch Quotientenbildung kann man die angeregte Teilchendichte n_2 bestimmen, wobei alle Größen, die das Beobachtungssystem und das Wechselwirkungsvolumen betreffen, herausfallen:

$$n_2 = \frac{3/2 \sigma_{\text{Rayleigh}} P_{\text{Laser}}}{h\nu A_{21}} \frac{n_{\text{Gas}}}{X_{\text{Rayleigh}}} X_{\text{Fluoreszenz}} \quad (3.20)$$

Der linke Bruchterm enthält nur Daten, die die Resonanzlinie, den Streuvorgang und den verwendeten Laser betreffen. Der Wert des zweiten Bruchterms wird im Rayleigh-Streuexperiment ermittelt. Da bei nicht zu hohen Fülldrucken das Streusignal X_{Rayleigh} proportional zur Gasdichte n_{Gas} ist, läßt er sich bei Variation des Fülldrucks durch lineare Ausgleichsrechnung relativ genau ermitteln. Der Streuquerschnitt σ_{Rayleigh} läßt sich aus dem Brechungsindex μ , den das Streugas bei einer Dichte von n_0 hat, berechnen [78,80]:

$$\sigma_{\text{Rayleigh}} = \frac{8\pi^3}{3n_0^2} \frac{(\mu^2-1)^2}{\lambda^4} \quad (3.21)$$

μ findet sich in diversen Tabellenwerken, unter anderem in [37,81]. Für die Resonanzwellenlänge von Lithium (670,8 nm) ergibt sich z.B. für das Füllgas Argon ein Wert von $\sigma_{\text{Rayleigh}} = 1,8 \times 10^{-31} \text{ m}^2$. Die größte Unsicherheit bei der Absolutkalibration mit Rayleigh-Streuung resultiert aus der Bestimmung der Querschnittsfläche des Laserstrahls im Wechselwirkungsvolumen. Sie ist zusammen mit der Kenntnis der Pulsenergie notwendig, um P_{Laser} zu berechnen. Die Hauptschwierigkeit liegt darin, daß es eigentlich kein exakt abgegrenztes Volumen gibt. Die Laserintensität fällt am Rand des Strahls radial nur allmählich ab. Die nichtlineare Abhängigkeit der Fluoreszenzintensität von der Laserleistung einerseits und der lineare Zusammenhang zwischen Laserpulsenergie und Rayleigh-Streusignal andererseits bedingen einen kaum zu vermeidenden absoluten Fehler. Die Begrenzung des Wechselwirkungsvolumens geschieht i.a. durch Abbildung eines Spaltes vor dem Detektor in den zu untersuchenden Atomstrahl. Unschärfen bei dieser Abbildung sind eine weitere Fehlerquelle.

Die absolute Dichte der Atome insgesamt kann aus der im angeregten Niveau gemessenen Dichte mittels (3.2) im Zweiniveausystem bzw. zeitliche Integration von (3.8) im Dreiniveausystem bestimmt werden.

Bei der Messung von Geschwindigkeitsverteilungen abgestäubter Atome mittels LIF muß im Gegensatz zu Dichtemessungen (siehe Abb. <3.4>) die spektrale Breite der Laserstrahlung klein gegenüber der Dopplerbreite der Absorptionslinie sein, damit eine scheinbare Verbreiterung des zu messenden Profils vermieden wird. Der Laserstrahl wird, um den Dopplereffekt maximal auszunutzen, koaxial zum abgestäubten Atomstrahl justiert.

Um die gesamte Geschwindigkeitsverteilung zu erhalten, muß die Wellenlänge des Lasers über das Dopplerprofil der Absorptionslinie variiert werden. Außer einer oberen Grenze für die spektrale Breite der Strahlung existiert hier im Gegensatz zu den Dichtemessungen auch eine obere Grenze für die Laserpulsleistungsdichte, d.h. den Sättigungsparameter S . In Kapitel 3.1.1 wurde gezeigt, daß die Fluoreszenzintensität nichtlinear von S abhängt, siehe Gleichung (3.2) für ein Zweiniveausystem. Genauer betrachtet, haben wir es hier mit einem spektral veränderlichen Sättigungsparameter zu tun, der dem spektralen Energiedichteprofil der Laserstrahlung proportional ist. Bei hohen Laserleistungsdichten werden Atome, die sich spektral gesehen durch Dopplerverschiebung bedingt in den Linienflügeln der Pumpstrahlung befinden, überproportional angeregt. Wir betrachten

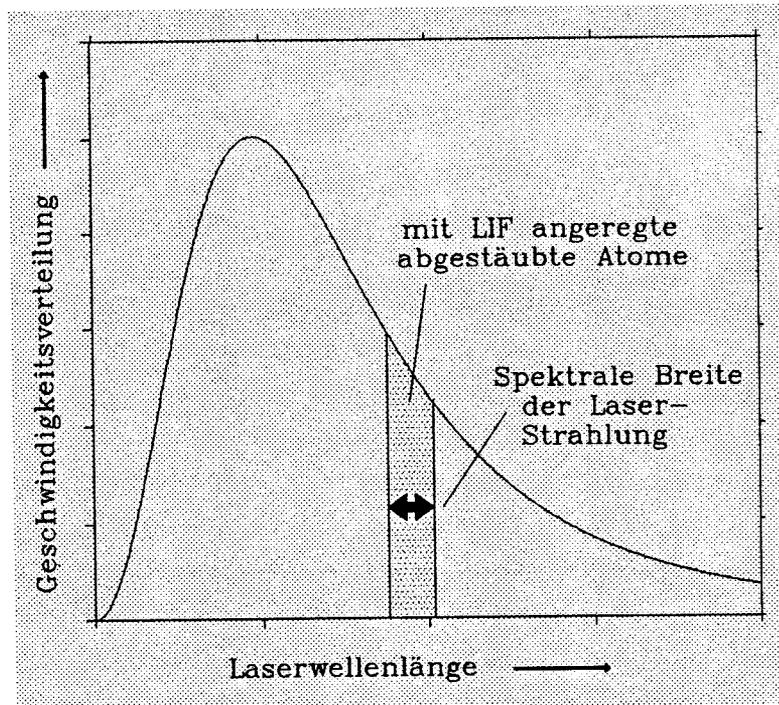


Abb. <3.5>: Spektrale Laserbreite und Dopplerverbreitertes Absorptionslinienprofil bei der Messung von Geschwindigkeitsverteilungen abgestäubter Atome.

dazu zunächst in Anlehnung an W. Demtröder [71] eine einzelne Lasermode, deren Halbwertsbreite sehr klein gegenüber der natürlichen Linienbreite des betrachteten atomaren Übergangs sein soll. Tastet man das Lorentzförmige Absorptionsprofil der Resonanzlinie mit dieser Einzelmode ab, dann erhält man nach [71] ein gemessenes, "sättigungsverbreitertes" Linienprofil, das ebenfalls Lorentzform besitzt und durch die folgende volle Halbwertsbreite charakterisiert werden kann:

$$\gamma_{S, \text{Lorentz}} = \gamma_{\text{Linie}} (1+S_0)^{1/2} \quad (3.22)$$

γ_{Linie} ist dabei die natürliche Linienbreite gemäß (3.12). S_0 ist der Sättigungsparameter bezogen auf die Leistung und die spektrale Breite der Einzelmode. Diese Situation läßt sich ausschließlich für Dauerstrich-Farbstofflaser realisieren und trifft für gepulste Lasersysteme, wie in 3.1.2 gezeigt, nicht zu. Um abzuschätzen, welche Konsequenzen die Sättigungsverbreiterung bei der Verwendung von PulsLasern hat, gehen wir von Beziehung (3.2) aus (sie beschreibt die Gleichgewichtsbesetzung des oberen Zustands in einem Zweiniveausystem) und erweitern sie im Hinblick auf einen spektral variablen Sättigungsparameter $S(\lambda)$:

$$n_2(\lambda) = \frac{n g_2}{g_1 + g_2} \frac{S(\lambda)}{1 + S(\lambda)} \quad (3.23)$$

n_2 bedeutet wieder die Dichte von angeregten Atomen im oberen Niveau und n die Gesamtdichte. $S(\lambda)$ soll hierbei die Form eines Gaußprofils annehmen und stellt die einhüllende Kurve der Sättigungsparameter der im spektralen Profil eines Laserpulses beteiligten Einzelmoden dar (→ Abbildung <3.3>):

$$S(\lambda) = S_z \exp [-((\lambda - \lambda_0)/b)^2] \quad (3.24)$$

$$b = \Delta\lambda_{\text{Laser}} / 2 (\ln 2)^{1/2}$$

S_z bedeutet den - nicht über die Modenstruktur gemäß (3.15) gemittelten - Sättigungsparameter im Zentrum der Laserstrahlung bei einer Wellenlänge von λ_0 . $\Delta\lambda_{\text{Laser}}$ ist die volle Halbwertsbreite des gesamten spektralen Profils. Berechnet man nun die Breite von Verteilung (3.23) unter Zugrundelegung des Profils (3.24), dann erhält man die volle Halbwertsbreite des gemessenen Absorptionsprofils der Resonanzlinie:

$$\gamma_{S, \text{Gauß}} = \Delta\lambda_{\text{Laser}} [\ln(2 + S_z) / \ln 2]^{1/2} \quad (3.25)$$

S_z ist etwas größer anzusetzen als der im allgemeinen spektral gemittelt gemessene "globale" Sättigungsparameter S . Die scheinbare Breite der Laserstrahlung erhöht sich demnach um den Faktor $[\ln(2 + S_z) / \ln(2)]^{1/2}$. Verlangt man z.B., daß sie sich um nicht mehr als 50% erhöhen soll, dann darf S_z höchstens den Wert 2,8 annehmen. Zur experimentellen Bestimmung einer Geschwindigkeitsverteilung abgestäubter Atome muß die Breite des Dopplerverbreiterten Absorptionsprofils der Resonanzlinie groß gegenüber $\gamma_{S, \text{Gauß}}$ sein. Eine experimentelle Überprüfung, ob eine nicht zu tolerierende Sättigungsverbreiterung vorliegt, ist unerlässlich. Die Laserpulsenergie muß ggf. so weit abgeschwächt werden, daß mehrere Geschwindigkeitsprofile, die mit verschiedenen Pulsenergien gemessen wurden, sich in ihrer Form und Breite nicht mehr unterscheiden [21].

3.1.4. LIF angewandt auf Lithiumatome

Abbildung <3.6> zeigt einen Ausschnitt aus dem Termschema des neutralen Lithiumatoms. Vom Grundniveau $2^2S_{1/2}$ gibt es zwei Resonanzübergänge zum nächst höheren $2^2P_{3/2,1/2}$ Niveau. Dieser Zustand spaltet in zwei Doublett-Niveaus auf. Da es kein von dort aus zugängliches metastabiles Niveau gibt, bleibt nur die Relaxation in den Grundzustand, wir haben es bei der Li-Resonanzfluoreszenz mit einem Zweiniveausystem zu tun. Fluoreszenzwellenlänge und Anregungswellenlänge sind gleich, was zu erheblichen Falschlichtproblemen im Detektionssystem führen kann.

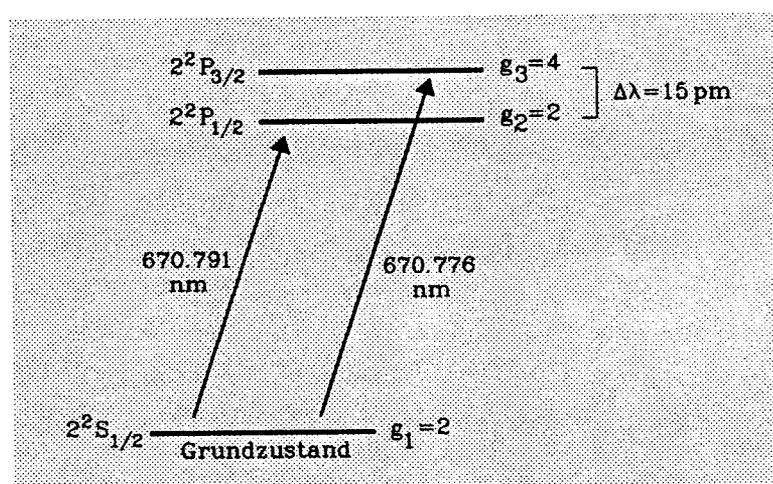


Abb. <3.6>: Ausschnitt aus dem Termschema von LiI: Die Doublett-Linie bei 671 nm entspricht dem Übergang vom Grundniveau zum nächst höheren. Die Einsteinkoeffizienten der spontanen Emission (A_{21} und A_{31}) haben für beide Linien den Wert $3,7 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$, die statistischen Gewichte der Niveaus (g_1 , g_2 und g_3) sind eingezeichnet.

Mit bei 671 nm leicht erzielbaren Laserpulsenergien von über 1 mJ und 1 μs Pulslänge ist, wie eine Berechnung des Sättigungsparameters zeigt, obiger LiI-Resonanzübergang ohne weiteres zu sättigen. Der Abstand der beiden Spektrallinien beträgt $\Delta\lambda_{\text{Doublett}} = 15 \text{ pm}$. Dem entspricht, wenn man mit der Dopplerformel (3.16) auf die Geschwindigkeit eines Lithiumatoms umrechnet, ein Wert von ca. 6,8 km/s oder eine kinetische Energie von 1,7 eV. Der Linienabstand ist von der gleichen Größenordnung wie die Dopplerbreite, die durch die Thompson'sche Geschwindigkeitsverteilung der abgestäubten Li-Atome bedingt ist. Bei der Messung von Geschwindigkeitsprofilen mit LIF wird man daher eine Doppelstruktur erhalten, die durch die teilweise Überlappung beider Doublettlinien hervorgerufen wird.

Das modifizierte, aus den beiden Anteilen zusammengesetzte Absorptionsprofil von Lithium kann geschrieben werden als

$$f^{\Sigma}(\lambda) = a_3 f(\lambda) + a_2 f(\lambda + \Delta\lambda_{\text{Doublett}}) \quad (3.26)$$

f stellt das Dopplerverbreiterte Absorptionsprofil (Thompson-Verteilung) einer einzelnen Linie dar. Die Wichtungsfaktoren a_2 und a_3 berücksichtigen die durch unterschiedliche statistische Gewichte bedingten verschiedenen Besetzungsdichten der beiden Doublett-

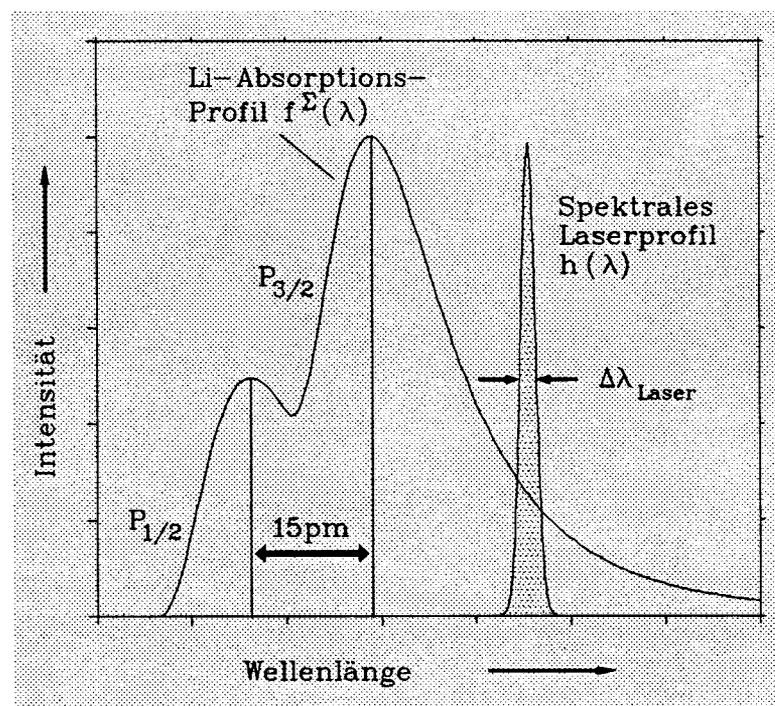


Abb. <3.7>: Auswirkungen der Doublettstruktur der Li-Resonanzlinie auf die zu messende Geschwindigkeitsverteilung abgestäubter Atome. $f^{\Sigma}(\lambda)$ ist das Dopplerverbreiterte Absorptionsprofil und $h(\lambda)$ das spektrale Profil der Laserstrahlung.

Niveaus. Sie ergeben sich aus (3.2) im Besetzungsgleichgewicht zu

$$\begin{aligned} a_2 &= S_{3/2} / (3 + 2S_{3/2}) \\ a_3 &= 2 S_{3/2} / (3 + 3S_{3/2}) \end{aligned} \quad (3.27)$$

$S_{3/2}$ ist der einheitlich auf den Übergang $2^2S_{1/2} \rightarrow 2^2P_{3/2}$ bezogene Sättigungsparameter. Die Tatsache, daß sich für die beiden Linien bei gleicher Laserleistung unterschiedliche Sättigungsparameter ergeben, ist in (3.27) berücksichtigt. Der auf den Übergang $2^2S_{1/2} \rightarrow 2^2P_{1/2}$ bezogene Parameter ist

$$S_{1/2} = 2/3 S_{3/2} \quad (3.28)$$

Für kleine Sättigungsparameter, wie sie zur Messung von Geschwindigkeiten notwendig sind, verhalten sich die beiden Linienintensitäten wie 1:2, bei $S \rightarrow \infty$ dagegen ist ihr Verhältnis 3:4.

Die spektrale Bandbreite der Laserstrahlung sollte bei der Messung von Geschwindigkeitsverteilungen zwar klein gegenüber der Dopplerbreite des Absorptionsprofils sein, in der Realität sind aber kleinere Breiten als ca. 1/20 der Dopplerbreite kaum sinnvoll, da das absolute Fluoreszenzsignal u.a. proportional zur spektralen Breite der Strahlung ist. Deshalb ist es notwendig, die endliche spektrale Laserbreite bei der Analyse von experimentell ermittelten Geschwindigkeitsverteilungen zu berücksichtigen. Dies kann geschehen, indem man das spektrale Profil der Laserlinie mit dem Profil der Absorptionslinie faltet:

$$f(\lambda)_{\text{gemessen}} = \int_0^{\infty} f^{\Sigma}(\lambda^*) h(\lambda, \lambda^*) d\lambda^* \quad (3.29)$$

Für das Laserprofil h nimmt man in guter Näherung ein Gaußprofil an:

$$h(\lambda, \lambda^*) = \exp [- ((\lambda - \lambda^*)/b)^2] \quad (3.30)$$

$$b = \Delta\lambda_{\text{Laser}} / 2 (\ln 2)^{1/2}$$

Der direkte Weg, nämlich die Entfaltung des gemessenen Profils, liefe auf eine Integralgleichung hinaus, die nur numerisch gelöst werden könnte. Da der Integrand dieser Gleichung aus einer Funktion mit diskreten Meßpunkten besteht, wäre die Ungenauigkeit der numerisch bestimmten Entfaltungsfunktion zu hoch. Man geht daher so vor, daß man den freien Parameter in der Geschwindigkeitsverteilung (die Oberflächenbindungsenergie in der Thompson-Formel) solange variiert und obige Faltung (3.29)

durchführt, bis beste Anpassung an die Messung erreicht ist.

Bei Dichtemessungen mit anschließender Absolutkalibration von Lithium-Fluoreszenzsignalen muß man berücksichtigen, daß die spektrale Breite der Laserstrahlung in diesem Falle beide Doublettlinien überdeckt. Es werden im selben Strahlungsfeld gleichzeitig zwei Übergänge angeregt, die unterschiedliche statistische Gewichte haben. Es reicht hier nicht mehr aus, eine einzige Ratengleichung wie (3.1) zu betrachten. Vielmehr muß für jeden der beiden Doublett-Übergänge eine entsprechende Gleichung aufgestellt werden. Die Lösung des entstehenden gekoppelten linearen Differentialgleichungssystems liefert die Besetzungsdichten des angeregten Doublett-Niveaus. Nachstehende Gleichungen (3.31) treffen für einen hohen Sättigungsparameter ($S \gg 1$) und eine große Länge des Laserpulses ($\tau_L \gg 1/(S+1)A_{21}$) zu. Sie ergeben die stationäre Dichte der angeregten Lithiumatomen im $2^2P_{1/2}$ und $2^2P_{3/2}$ -Zustand:

$$\begin{aligned} n_{1/2} &= n g_2 / (g_1 + g_2 + g_3) = n/4 && \{ \text{LiI } 2^2P_{1/2} \} \\ n_{3/2} &= n g_3 / (g_1 + g_2 + g_3) = n/2 && \{ \text{LiI } 2^2P_{3/2} \} \end{aligned} \quad (3.31)$$

wobei n wieder die Gesamtdichte aller Lithiumatome im Fluoreszenzvolumen ist. Mit LIF wird bei gleichzeitiger Anregung beider 2^2P -Feinstruktur-niveaus die Summe $n_{1/2} + n_{3/2}$ bestimmt. Ausgehend von (3.31) kann man schließlich die mit Rayleigh-Kalibration ermittelte Summendichte in beiden oberen Niveaus mittels

$$n = 4/3 (n_{1/2} + n_{3/2}) \quad (3.32)$$

in die Gesamtdichte n der Lithiumatome im Wechselwirkungsvolumen umrechnen.

Bei der Ableitung des Zusammenhanges zwischen Fluoreszenzintensität und der absoluten Dichte der Lithiumatome im Streuvolumen haben wir, wie am Anfang dieses Kapitels schon gesagt, stets eine unpolarisierte Laserstrahlung vorausgesetzt. Eine Gleichbesetzung der bei Abwesenheit eines äußeren Magnetfeldes entarteten Unterniveaus (magnetische Quantenzahl m) der beiden 2^2P -Feinstruktur-niveaus führt unter obiger Annahme zu einer ebenfalls unpolarisierten Fluoreszenzstrahlung. Ihre Intensität wäre unabhängig von der Richtung, unter der die Strahlung relativ zur Position des Streuvolumens beobachtet wird. Der in der vorliegenden Arbeit benutzte Farbstofflaser besitzt jedoch eine ausgeprägte

Linearpolarisation (\rightarrow Kapitel 4.2.1). Für linear polarisierte elektromagnetische Strahlung gilt bei der Absorption von Lichtquanten durch Atome die Auswahlregel $\Delta m = 0$ (" π -Übergänge"). In Folge wird das angeregte 2^2P -Niveau unterschiedliche Besetzungsdichten in seinen magnetischen Unterniveaus annehmen, da nicht alle Niveaus durch die Laserstrahlung gepumpt werden können. Dies wiederum bedingt ein geändertes Sättigungsverhalten des atomaren Übergangs [79]. Bei der Berechnung der absoluten Lithiumdichte muß somit in Gleichung (3.32) ein Korrekturfaktor p angebracht werden, der diese Abweichung berücksichtigt:

$$n = 4/3 p (n_{1/2} + n_{3/2}) \quad (3.33)$$

Wir wollen kurz abschätzen, welchen Fehler ein Nichtbeachten der Polarisation der Laserstrahlung bedingen kann. In der Dissertation von E. Dullni [22] ist eine Möglichkeit beschrieben worden, den Wert von p aus der Anisotropie der Fluoreszenzstrahlung nach [79] zu bestimmen. Er ergibt sich aus dem Quotient α der Fluoreszenzintensitäten, die man parallel und senkrecht zum elektrischen Feldvektor der Laserstrahlung mit Hilfe eines Polarisationsfilters mißt, zu

$$p = (2 + \alpha) / 3 \quad (3.34)$$

mit

$$\alpha = I_{\text{Fluo}}(0^\circ) / I_{\text{Fluo}}(90^\circ)$$

α wurde für den betrachteten Lithiumübergang $2^2S \rightarrow 2^2P$ experimentell durch ein LIF-Experiment an einem thermischen Lithiumstrahl in Sättigung bestimmt. Beide Feinstruktur-Niveaus ($2^2P_{1/2}$ und $2^2P_{3/2}$) werden gleichzeitig vom Laser angeregt. Abbildung <3.8> zeigt das gemessene Polarisationsdiagramm der Fluoreszenzstrahlung. Man errechnet für α einen Wert von 0,55. Somit ergibt sich ein Polarisationsfaktor von $p = 0,85$. Absolutdichten von Lithium, die mittels Kalibration durch Rayleigh-Streuung aus Fluoreszenzintensitäten ohne Berücksichtigung der Polarisation des Laserlichtes gewonnen werden, weisen einen durch diese Vernachlässigung bedingten Fehler der Größenordnung von 20% auf.

Zum Schluß sei noch angemerkt, daß Hyperfeinaufspaltungen für das Lithiumatom beim Resonanzübergang $2^2S \rightarrow 2^2P$ gegenüber der Feinstruktur dieser Linie ($\Delta\lambda = 15$ pm) zu vernachlässigen sind und bei der Auswertung von gemessenen Absorptionsprofilen nicht

berücksichtigt zu werden brauchen. In [82] wurde die Hyperfeinstruktur der 670,8 nm-Linie des Lithiumatoms mit Hilfe eines CW-Farbstofflasers in einem Fluoreszenzexperiment bestimmt. Der Grundzustand spaltet demnach mit einem Frequenzunterschied von 228,2 MHz bei ${}^6\text{Li}$ und 803,5 MHz bei ${}^7\text{Li}$ auf. Dem entsprechen Wellenlängendifferenzen von 0,34 pm bzw. 1,21 pm. Die beiden angeregten 2^2P -Zustände spalten nur mit maximal etwa 0,1 pm auf.

Die Isotopieverschiebung der Resonanzwellenlängen (natürliches Lithium enthält etwa 7% ${}^6\text{Li}$ und 93% ${}^7\text{Li}$) wurde in [82] zu 15 pm bestimmt. Sie ist damit genauso groß wie die Feinstruktur-Aufspaltung der Linie. Wegen des relativ geringen Anteils von ${}^6\text{Li}$ kann aber auf eine Berücksichtigung der Isotopieverschiebung verzichtet werden.

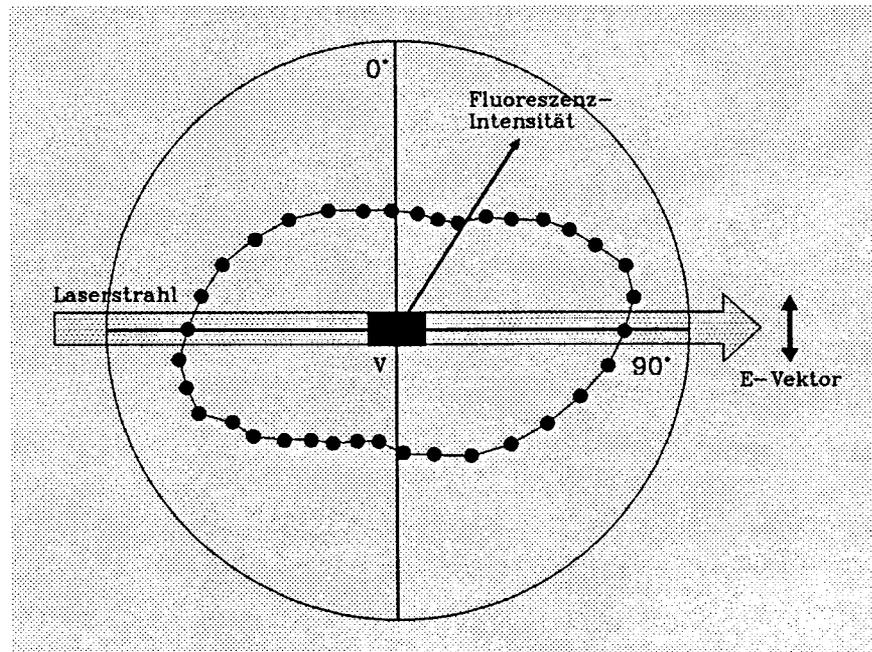


Abb. <3.8>: Polarisation der Fluoreszenzstrahlung beim Lithiumatom in Sättigung. Beide anregbaren Doublett-Niveaus ($2^2\text{P}_{1/2}$ und $2^2\text{P}_{3/2}$) werden gleichzeitig gepumpt. Der Vektor des elektrischen Laserfeldes liegt in der Zeichenebene, die Beobachtung der Strahlung geschieht senkrecht zur Zeichenebene. Eine detaillierte Darstellung der benutzten Geometrie findet sich in Abbildung <4.7>. V: Streu- oder Fluoreszenzvolumen.

3.1.5. LIF angewandt auf Kupferatome

Im Gegensatz zu Lithium, wo es kein passendes metastabiles Niveau für ein Dreiniveausystem gibt, liegt beim neutralen Kupferatom das 4^2D -Doublett energiemäßig zwischen dem Grundzustand-Singulett 4^2S und dem Doublett 4^2P . Abbildung <3.9> zeigt den betreffenden Ausschnitt aus dem Termschema von CuI und die für die Resonanzfluoreszenz ausgewählten Übergänge:

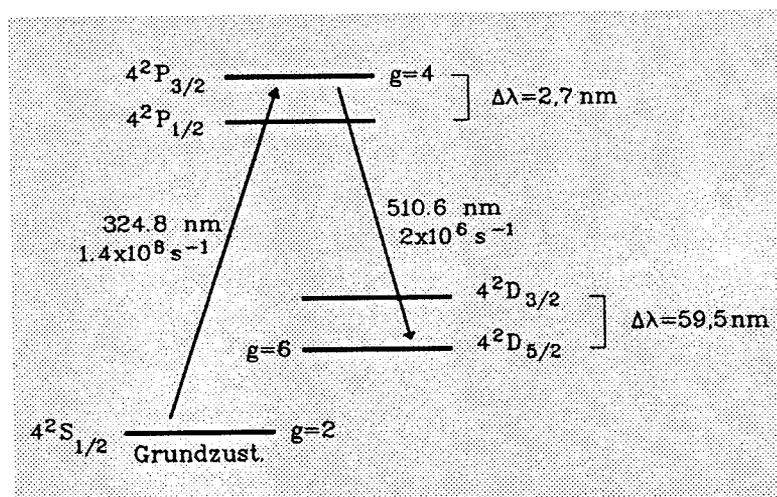


Abb. <3.9>: Ausschnitt aus dem Termschema von CuI. Resonanzwellenlängen, statistische Gewichte und Einsteinkoeffizienten der spontanen Emission sind eingezeichnet.

Vom Grundzustand $4^2S_{1/2}$ wird mittels Laserstrahlung bei 324,8 nm das $4^2P_{3/2}$ -Niveau angeregt. Zur Beobachtung der Fluoreszenzstrahlung wird die Relaxation zum metastabilen $4^2D_{5/2}$ -Niveau bei 510,6 nm herangezogen. Von Vorteil ist hierbei, daß erstens die Laserstrahlung selbst durch geeignete optische Filter unterdrückt werden kann, sodaß keine Falschlichtprobleme entstehen, und zweitens keine Quarzoptik für das Beobachtungssystem benutzt werden muß. Da sich die Einsteinkoeffizienten für spontane Emission der beiden Linien um ca. einen Faktor 100 unterscheiden, ist das Verzweungsverhältnis bei der Entleerung des angeregten Niveaus sehr ungünstig für die Beobachtungslinie. Notwendig ist hier ein Laserpuls von hinreichender Länge und Intensität. Die Länge sollte in der Größenordnung der Lebensdauer des Zerfalls zum metastabilen Niveau hin liegen: $\tau_{\text{Laser}} > 1/A_{23} = 500 \text{ ns}$. Nach Ref. [22,77] kann man bei einer Pulslänge von $1 \mu\text{s}$ und einem Sättigungsparameter von $S=1,5$ (im Experiment benutzter Laser, siehe Kapitel 4.2.1) einen Überpumpgrad von etwas mehr als 65% erreichen. Man erkennt, daß hier blitzlampengepumpte Farbstofflaser wegen ihrer relativ großen Pulslängen deutlich im Vorteil sind gegenüber lasergepumpten Systemen. Eine Absolutkalibration von Cu-Fluoreszenzsignalen

geschieht am einfachsten durch Vergleich mit der Zerstäubung eines reinen Kupfer-Referenztargets mit wohlbekannter Zerstäubungsausbeute. Eine Rayleigh-Kalibration würde die Schwierigkeit bedingen, den Laser zusätzlich auf der von der Anregungswellenlänge deutlich verschiedenen Beobachtungslinie bei 510,6 nm betreiben zu müssen.

Die Feinstruktur des angeregten 4^2P -Niveaus spielt bei Cu keine Rolle, da die beiden Doublett-Linien hier einen Abstand von 2,7 nm haben, was groß ist gegen die Doppelbreite des zu messenden Geschwindigkeitsprofils. Aber ungestört kann man auch bei Kupfer kein Profil messen. Hier ist es die Hyperfeinstruktur des Grundniveaus, die die Messung deutlich beeinflusst.

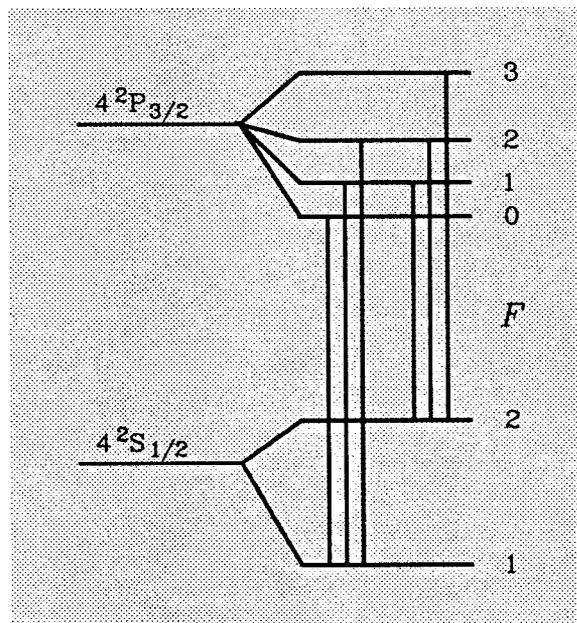


Abb. <3.10>: Hyperfeinstruktur des CuI-Resonanzübergangs $4^2S_{1/2} \rightarrow 4^2P_{3/2}$. F ist die Gesamtdrehimpulsquantenzahl. Erlaubte Übergänge sind durch die Auswahlregel $\Delta F = 0, \pm 1$ bestimmt.

Die Hyperfeinstruktur einer Linie entsteht durch die Wechselwirkung des Drehimpulses eines Elektrons J mit dem Drehimpuls des Atomkerns I [83]. Ein Niveau spaltet sich auf in $2I+1$ Hfs-Niveaus, wenn $J > I$ ist und entsprechend in $2J+1$ Hyperfeinniveaus, wenn $J < I$ ist. Beide natürlichen Isotope von Kupfer (^{63}Cu und ^{65}Cu) haben einen Kerndrehimpuls von $I_{\text{Cu}}=3/2$. Demnach spaltet sich der Grundzustand ($J=1/2$) in zwei Hfs-Komponenten und der angeregte Zustand ($J=3/2$) in vier Hfs-Niveaus auf. Die Auswahlregel für erlaubte Übergänge zwischen diesen Niveaus ist $\Delta F = 0, \pm 1$, wobei

$$F := I + J \quad (3.35)$$

die Gesamtdrehimpulsquantenzahl bedeutet. Es entstehen so zwei Gruppen von je drei Linien (siehe Abbildung <3.10>), die von den beiden Hfs-Zuständen des Grundniveaus ausgehen. Nach [84,85] ist die Aufspaltung im 4^2S -Niveau weitaus größer als im 4^2P -Niveau. Spektral gesehen resultieren zwei Gruppen von dicht benachbarten Linien. Der Abstand dieser beiden Gruppen wurde in [84] zu 4 pm gemessen. Diese Größenordnung ist mit einem gepulsten Farbstofflaser (Bandbreite ≈ 1 pm) ohne weiteres auflösbar, während die Einzelkomponenten der Gruppen nicht zu trennen sind. Abbildung <3.11> zeigt, welche Auswirkungen die Hyperfeinaufspaltung auf ein zu messendes Geschwindigkeitsprofil von abgestäubten Kupferatomen haben wird:

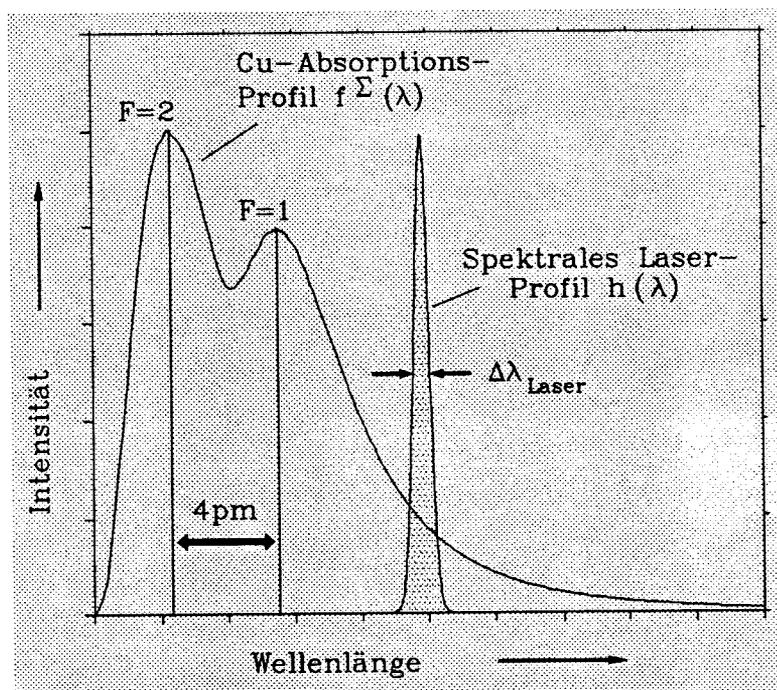


Abb. <3.11>: Auswirkung der Hyperfeinstruktur der CuI-Anregungslinie bei 324,8 nm auf eine zu messende Geschwindigkeitsverteilung abgestäubter Atome. $f^{\Sigma}(\lambda)$ ist das Dopplerverbreiterte Absorptionsprofil des Übergangs $4^2S_{1/2} \rightarrow 4^2P_{3/2}$. $h(\lambda)$ ist das spektrale Laserprofil.

Analog zu (3.29) und (3.30) wird auch bei Kupfer eine Faltung mit dem spektralen Laserprofil vorgenommen werden müssen, da die Laserbreite auch hier nicht vollständig gegenüber der Dopplerbreite des Absorptionsprofils zu vernachlässigen ist. Das Verhältnis der Intensitäten der beiden Hfs-Liniengruppen läßt sich nicht wie im Falle der Feinstruktur der Resonanzlinie des Lithiumatoms vorweg berechnen. Es muß mit LIF in Dopplerfreier Geometrie experimentell bestimmt werden (\rightarrow Kapitel 5.2.1).

3.2. Gewichtsverlustbestimmung und Auffängeranalyse

Eine weitere Möglichkeit, die Zerstäubung von Mehrkomponententargets elementselektiv zu untersuchen, ist in [86] beschrieben worden. Das Target befindet sich dabei im Mittelpunkt eines halbkreisförmigen Auffängerstreifens. Die verschiedenen abgestäubten Atomsorten werden im Verhältnis ihrer über die Meßdauer gemittelten partiellen Zerstäubungsausbeuten auf der Oberfläche dieses Auffängers deponiert.

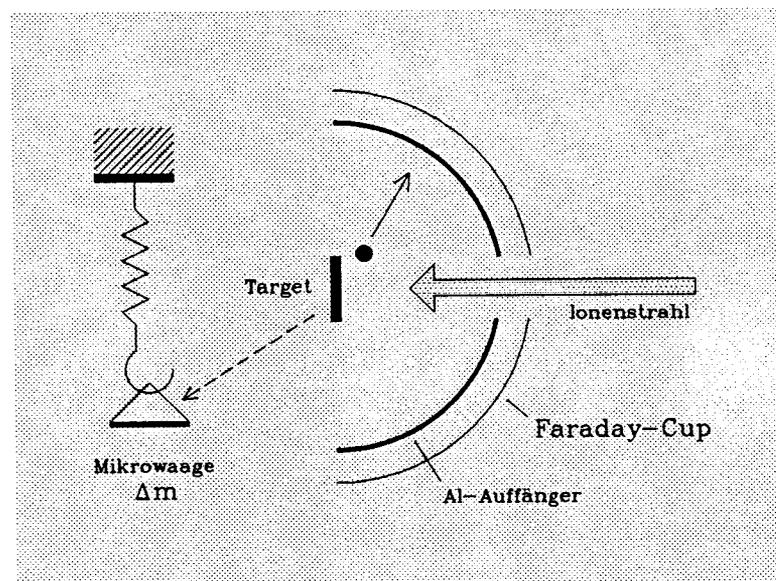


Abb. <3.12>: Messung von partiellen Zerstäubungsausbeuten durch Bestimmung des Massenverlusts von Targets und der anschließenden Analyse eines Auffängerstreifens.

Bestimmt wird zunächst mit Hilfe einer Mikrowaage der Massenverlust Δm , den das Target während der Zerstäubung erleidet. Er liegt bei typischen Bestrahlungsdauern- und Strahlstromdichten in der Größenordnung von einigen $10 \mu\text{g}$ bis zu einigen $100 \mu\text{g}$. Hieraus ergibt sich die totale Zerstäubungsausbeute aller beteiligten Komponenten in Summe. Der Auffängerstreifen (meistens eine dünne Aluminium-Folie) wird anschließend mit z.B. RBS (Rutherford-Backscattering) oder NRA (Nuclear Reaction Analysis) untersucht. Hierbei wird festgestellt, wieviel von jeder Komponente absolut pro Flächeneinheit auf dem Auffängerstreifen deponiert worden ist. Eine Kalibration mit einem zerstäubten reinen Referenztarget aus einem der beteiligten Materialien liefert dann die partielle Zerstäubungsausbeute dieses Elements. Unter Zuhilfenahme des gesamten Massenverlusts oder einer zweiten Reinelementkalibration kann dann die partielle Ausbeute des anderen Materials bestimmt werden. Außerdem kann man mit dieser Technik die Winkelverteilung abgestäubter Atome messen, da der Auffängerstreifen i.a.

halbkreisförmig um das zu untersuchende Target angeordnet wird.

Die partielle Zerstäubungsausbeute der Lithiumkomponente eines Cu/Li-Targets berechnet sich gemäß

$$Y_{\text{Li, partiell}} = \frac{\Delta m - \Delta m_{\text{Cu}}}{m_{\text{Li}}} \frac{e}{Q} \quad (3.36)$$

Hierbei bedeuten

- Δm der gesamte Massenverlust des Targets
- Δm_{Cu} der Massenverlust der Kupferkomponente des Targets
- m_{Li} die Masse eines Lithiumatoms ($1,15 \times 10^{-26}$ kg)
- e die elektrische Elementarladung, und
- Q die während des Zerstäubungsvorgangs auf dem Target durch den Ionenstrahl insgesamt deponierte elektrische Ladung.

Der Massenverlust, den die Kupferkomponente erlitten hat, berechnet sich zu

$$\Delta m_{\text{Cu}} = m_{\text{Cu}} Q Y_{\text{Cu, partiell}} / e \quad (3.37)$$

wobei

- m_{Cu} die Masse eines Kupferatoms ($1,05 \times 10^{-25}$ kg), und
- $Y_{\text{Cu, partiell}}$ die partielle Zerstäubungsausbeute der Cu-Komponente

bedeuten. Die partielle Kupferausbeute schließlich bestimmt man durch Vergleich zweier Auffängerstreifen, die zum einen mit Cu/Li und zum anderen mit reinem Kupfer beaufschlagt werden:

$$Y_{\text{Cu, partiell}} = Y_{\text{Cu, rein}} C_{\text{Cu, Legierung}} / C_{\text{Cu, rein}} \quad (3.38)$$

Hier sind

- $Y_{\text{Cu, rein}}$ die Zerstäubungsausbeute von reinem Kupfer, sowie
- $C_{\text{Cu, Legierung}}$ und $C_{\text{Cu, rein}}$ die auf den Auffängerstreifen deponierten Flächendichten von Kupfer, das aus der Zerstäubung eines reinen Targets und eines Cu/Li-Legierungstargets stammt. Sie werden durch Analyse der Auffängeroberflächen mit RBS bestimmt.

Auffängermethoden haben gegenüber der Laserfluoreszenz einen entscheidenden Nachteil. Sie benötigen, um eine hinreichende Nachweisempfindlichkeit sicherzustellen, recht lange Zerstäubungsdauern, die bis zu einigen Stunden betragen können. Anlaufeffekte, wie z.B. sich schnell ändernde Oberflächens Zusammensetzungen, lassen sich durch LIF mit um Größenordnungen besserer Zeitauflösung messen. Wir werden im weiteren die Auffänger-methode benutzen, um die in einem stationären Gleichgewicht mit Hilfe der Laserfluoreszenz gemessenen und mit Rayleigh-Streuung absolut kalibrierten Zerstäubungsausbeuten durch eine zweite unabhängige Methode zu überprüfen.

4. Beschreibung des experimentellen Aufbaus

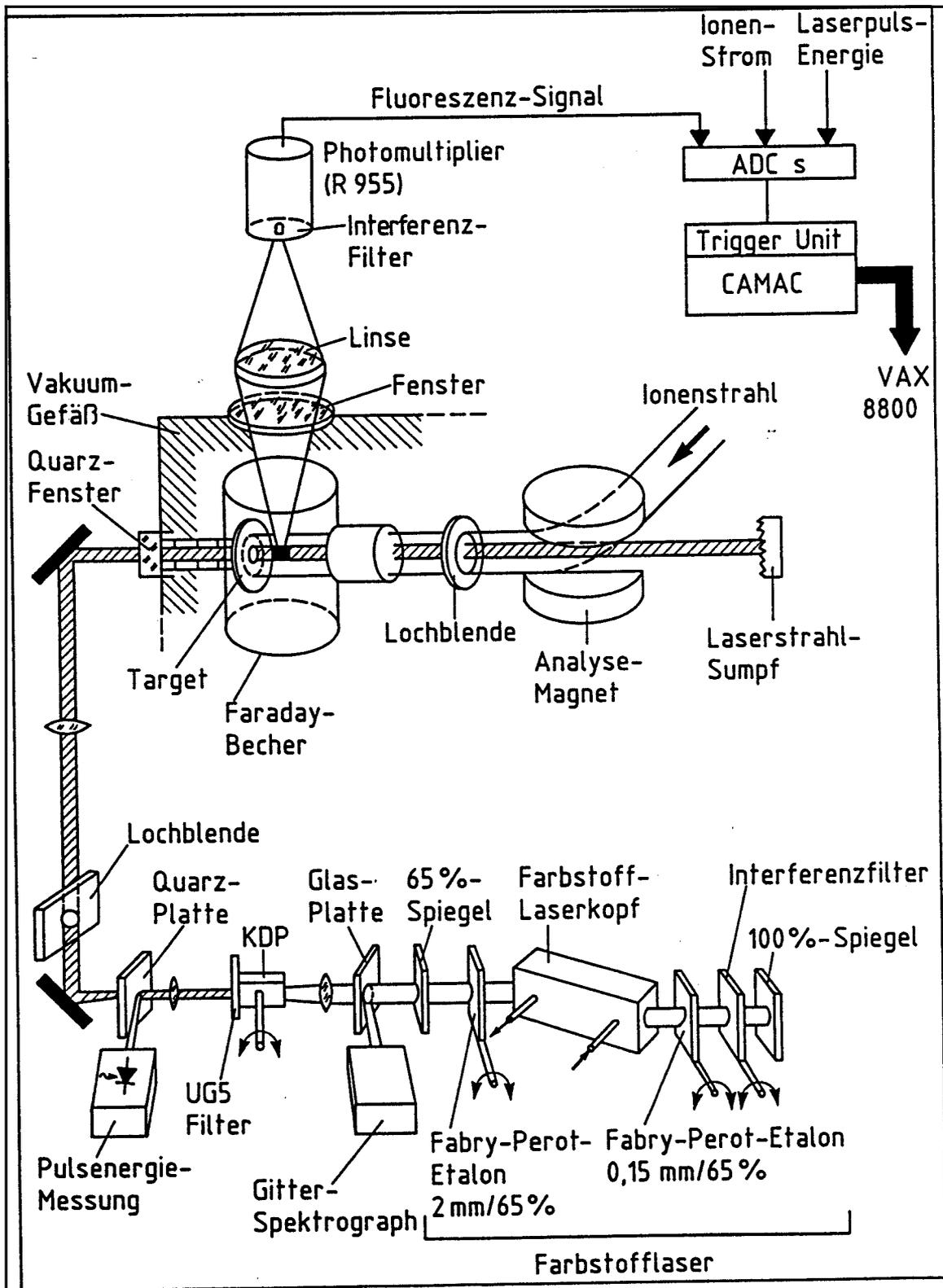


Abb. <4.1>: Experimenteller Aufbau in Übersicht.

4.1. Die Zerstäubungsanlage

4.1.1. Die Hochstromionenquelle "EVITA"

Die Simulation der Plasma-Wand-Wechselwirkung in einem Tokamak erfordert die Bereitstellung eines Ionenstrahls hinreichender Intensität und Energie. Die Hochstromionenquelle "EVITA" in Jülich, die für die Messungen an Cu/Li-Targets benutzt wurde, arbeitet nach dem Duopigatronprinzip und ist in [21,87] näher beschrieben. Um die Beaufschlagung von Targets sowohl mit schnellen ($E > 1 \text{ keV}$) und langsamen ($E < 1 \text{ keV}$) Ionenstrahlen realisieren zu können, wurde das Extraktionsgittersystem für eine Beschleunigungsspannung von 6 keV optimiert. Es besteht aus drei Elektroden, die eine Gitterstruktur in Form von je etwa 100 gleichmässig verteilten Löchern mit 1,6 mm Durchmesser enthalten. Der aktive Gesamtdurchmesser der Lochgitter beträgt ca. 3 cm. Das System kann bei einer Extraktionsspannung von 6 keV mittlere Stromdichten von bis zu 10 mA/cm^2 bei gängigen Arbeitsgasen permanent extrahieren. Kleinere Strahlenergien bis herunter zu 100 eV können bei Aufrechterhaltung der hohen Stromdichte realisiert werden, indem das zu zerstäubende Target mit einem entsprechenden positiven Bremspotential versehen wird. Abbildung <4.2> zeigt den schematischen Aufbau der Ionenquelle:

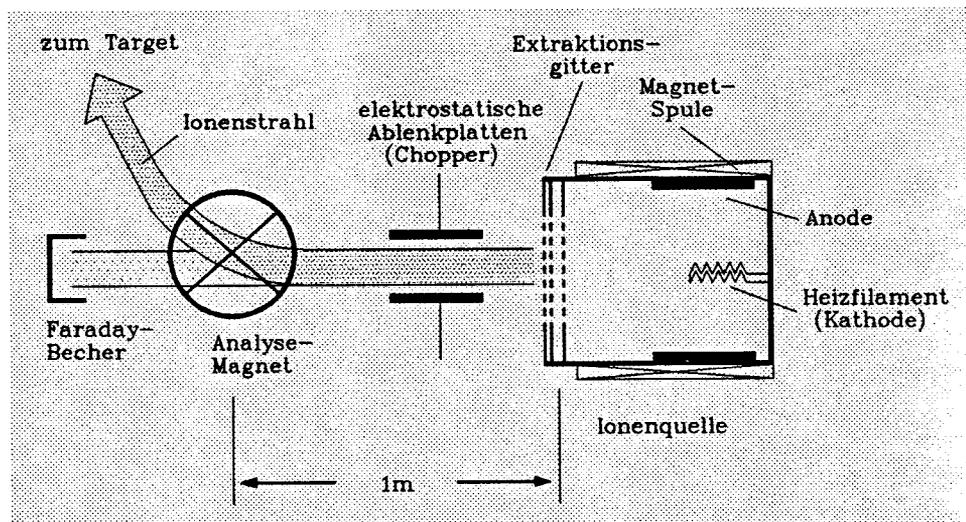


Abb. <4.2>: Schematischer Aufbau der Hochstromionenquelle "EVITA".

Nach dem Verlassen der Extraktionsgitter durchläuft der Ionenstrahl ein elektrostatisches Ablenkplattenpaar. Mit dessen Hilfe ist es möglich, den Strahl durch Anlegen einer Spannung zu pulsen. Anschließend trifft der Ionenstrahl im Gitterabstand von einem

Meter auf ein homogenes magnetisches Sektorfeld, welches zur Massenselektion dient. Gerade bei der Zerstäubung mit leichten Ionen wie Deuterium und Helium ist es wichtig, daß der Strahl ausschließlich aus der gewünschten Ionensorte besteht, und nicht zusätzlich schwerere Ionen enthält, wie z.B. Sauerstoff, Stickstoff und OH^+ (unzureichendes Vakuum in der Ionenquelle) oder Metalle (Zerstäubung metallischer Ionenquellenkomponenten in den Entladungsraum der Quelle hinein). Die zusätzliche Anwesenheit schwererer Verunreinigungsionen würde, bedingt durch deren deutlich höhere Zerstäubungsausbeuten gegenüber leichten Beschußionen, eine Fehlmessung vortäuschen.

4.1.2. Die Targetkammer

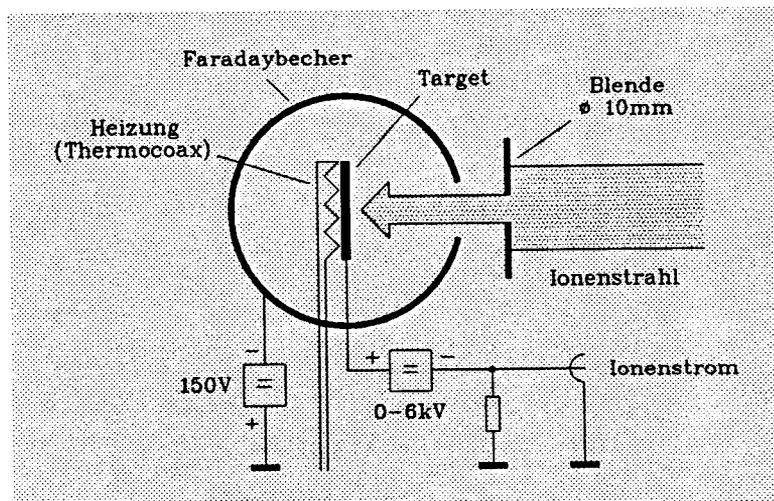


Abb. <4.3>: Schematische Darstellung der Targetkammer.

Der massenanalytierte Ionenstrahl durchläuft nach Verlassen des Analysemagneten zunächst eine Blende, die aus dem Strahl einen Durchmesser von 10 mm herauschneidet. Dieser innere Teil hat ein sehr homogenes radiales Stromdichteprofil, das eine maximale Variation von nur 3% aufweist. Das Target befindet sich auf einem Manipulator im Zentrum eines Faradaybeckers. Dieser hohlzylinderförmige Becher wird mit einem konstanten Potential von -150 V gegenüber dem Target versehen, um die durch Ionenbeschuß freigesetzten Sekundärelektronen im Target zurückzuhalten. Fehlmessungen des Ionenstroms werden so vermieden. Der Ionenstrom wird im übrigen bestimmt, indem man zwischen Target und Erddpotential ein geeignetes Meßgerät bzw. einen Meßwiderstand in Reihe mit einem potentialfreien Netzgerät (Erzeugung der abbremsenden Gegenspannung) legt. Um die Temperaturabhängigkeit von Segregations- und Diffusionsvorgängen

beobachten zu können, ist das Target bis zu ca. 500°C heizbar. Die Targettemperatur wird mit Hilfe eines Zweipunktreglers auf ± 1 K stabilisiert. Der Basisdruck in der Targetkammer beträgt weniger als 10^{-7} hPa. Während der Zerstäubungsexperimente steigt er - bedingt durch austretendes Arbeitsgas der Ionenquelle - auf etwa 10^{-5} hPa an.

4.2. Optische Aufbauten

4.2.1. Der Farbstofflaser

Das Prinzip eines Farbstofflasers findet sich an vielen Stellen in der Literatur, z.B. in [88,89]. Es soll daher als bekannt vorausgesetzt werden. In der vorliegenden Arbeit wurde ein blitzlampengepumpter Farbstofflaser benutzt, ein modifiziertes Exemplar des Typs Zeiss FL3C. Zwei lineare Blitzlampen, die sich in einem doppeltelliptischen Reflektor befinden, pumpen eine im gemeinsamen Brennpunkt gelegene lineare Farbstoffküvette. Das Lasersystem, das in [72] ausführlich beschrieben worden ist, kann charakterisiert werden durch:

- Repetitionsrate maximal 0,3 Hz
- Pulslänge ca. 1 μ s
- Strahldurchmesser ca. 4 mm
- Resonatorlänge 70 cm
- Linearpolarisation der Laserstrahlung durch Brewsterfenster der Farbstoffküvette
- Pulsenergie ca. 1 mJ bei 671 nm (Li-Resonanz) mit Kresyl-Violett Perchlorat (60 mg/l, gelöst in Methanol)
- Pulsenergie ca. 10 μ J bei 325 nm (Cu-Resonanz) mit Rhodamine 640 (110 mg/l, gelöst in Methanol) nach Frequenzverdopplung in einem KDP-Kristall
- 65% Reflektivität des Auskoppelspiegels
- Pulsspannung der Blitzlampen von 15 kV bis 20 kV wählbar.

Die geforderte spektrale Breite der Laserstrahlung (\rightarrow Kapitel 3.1.3) wird realisiert, indem man geeignete frequenzselektive Komponenten in den Resonator einbringt. Eine grobe Vorabselektion geschieht mittels eines Interferenzfilters der Halbwertsbreite 0,5 nm. Zur Messung von Dichten wird zusätzlich ein Fabry-Perot Etalon in den Resonator gebracht (Dicke 0,1 mm, Reflektivität 65%). Die erzielte spektrale Breite ist hierbei 20 pm. Zur Messung von Geschwindigkeitsverteilungen wird ein zweites Etalon zur weiteren Einengung benötigt (Dicke 4 mm, Reflektivität 65%). Nun wird eine spektrale Breite von

ca. 1 μm erzielt. Die Wellenlänge kann durch Kippen eines oder ggf. beider Etalons verändert und auf den Resonanzübergang abgestimmt werden [21]. Eine Blende im Resonator verhindert, daß außer der TEM_{00} -Mode noch weitere Transversalmoden anschwingen. Das räumliche Strahlprofil wird so hinreichend homogen. Abbildung <4.4> zeigt schematisch den Laseraufbau:

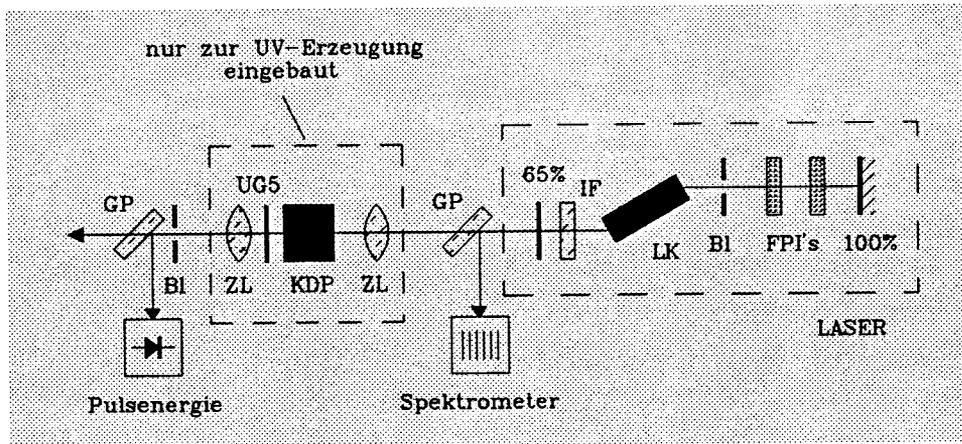


Abb. <4.4>: Aufbau des blitzlampengepumpten Farbstofflasersystems FL3C. FPI's: Fabry-Perot-Interferometer, BI: Blenden ϕ 4mm, LK: Laserkopf, IF: Interferenzfilter, ZL: Zylinderlinse, KDP: Frequenzverdopplerkristall, UG5: Filter zum Unterdrücken der sichtbaren Strahlung, GP: Glasplatte (Quarz).

Nach dem Verlassen des Resonators wird ein kleiner Teil der Strahlung (ca. 4%) mit einer Quarzscheibe ausgekoppelt, um die genaue Wellenlänge mit einem Gitterspektrometer zu bestimmen (Beschreibung in Kapitel 4.5). Danach wird wiederum ein Teil der Strahlung auf eine schnelle Photodiode ausgekoppelt, um die relative Pulsenergie zeitaufgelöst zu bestimmen. Eine (zeitintegrierte) Absolutkalibration kann hier mit thermischen Energiemeßköpfen erreicht werden. Eine Lochblende sondert schließlich den homogenen inneren Teil des Laserstrahls aus, der Durchmesser beträgt hier 4 mm.

Zur Frequenzverdopplung in den ultravioletten Spektralbereich hinein wird der sichtbare Laserstrahl mit einer Zylinderlinse von 20 cm Brennweite in einen KDP-Kristall fokussiert (\rightarrow Kapitel 4.2.2). Eine weitere Zylinderlinse gleicher Brennweite stellt nach der Verdopplung das ursprüngliche Strahlprofil wieder her. Ein Kantenfilter (Schott UG5) läßt nur den frequenzverdoppelten UV-Anteil der Strahlung durch. Schließlich wird auch hier der homogene Innenteil des UV-Laserstrahls durch eine Blende herausgeschnitten. Eine UV-empfindliche Photodiode dient zur Messung der Laser-Pulsenergie.

4.2.2. Frequenzverdopplung mit nichtlinearen Kristallen

Mit Lasern lassen sich derart hohe Strahlungsleistungsdichten und somit elektrische Feldstärken erzeugen, daß die lineare Beziehung zwischen der Polarisation \mathbf{P} und der elektrischen Feldstärke \mathbf{E} bei einigen Festkörpern nicht mehr gegeben ist. Ein in einem von der quadratischen Form abweichenden Potential zu Schwingungen angeregte Elektron strahlt neben der Fundamentalfrequenz zusätzlich ganzzahlige Vielfache dieser Frequenz, sogenannte Oberwellen, ab. Soll dieser Effekt in einem Festkörper zur Frequenzverdopplung gezielt ausgenutzt werden, so sind viele Elektronen in einem ausgedehnten Gebiet beteiligt, in dem die elektrische Feldstärke hinreichend groß ist. Jedes dieser Elektronen erzeugt nun Oberwellen. Damit sich die einzelnen Wellenzüge nicht gegenseitig auslöschen, muß als Bedingung zur konstruktiven Interferenz gelten, daß Fundamental- und Oberwelle die gleiche Phasengeschwindigkeit aufweisen [90], d.h. gleiche Brechungsindizes sind bei der Grundfrequenz ω und bei 2ω verlangt. Diese Forderung kann für optisch isotrope Materialien aufgrund ihres Dispersionsverhaltens niemals erfüllt werden. **Doppelbrechende Kristalle** hingegen, bei denen die Brechzahl u.a. von der Einfallrichtung des Strahls abhängt, erfüllen sie.

Abbildung <4.5> zeigt typische Brechungsindizes eines optisch einachsigen Kristalls für die Wellenlänge des einfallenden (ordentlichen) Strahls sowie für die halbierte Wellenlänge (ordentlicher- und außerordentlicher Strahl) in Abhängigkeit von der Einfallrichtung des primären Lichtstrahls. Ist der einfallende Laserstrahl genau um den Winkel ϑ gegen die optische Achse des Kristalls geneigt, dann sind die Brechzahlen von einfallender Welle und außerordentlicher Welle doppelter Frequenz gleich. Man kann die Bedingung der Phasenanpassung erfüllen, indem man den nichtlinearen Kristall relativ zu seiner optischen Achse dreht, bis diese Anpassung erreicht ist. Die Leistung der frequenzverdoppelten Strahlung kann nach Ref. [91] angegeben werden:

$$P_{UV} \sim \frac{L P^2}{n_o(2\omega) n_o^2(\omega) \lambda_s^2 A} \frac{\sin^2 x}{x^2} \quad (4.1)$$

wobei

- L die Länge des Lichtweges im Kristall
- P die Laserleistung im sichtbaren Spektralbereich (Fundamentalfrequenz)
- A die Querschnittsfläche des Strahls im Kristall
- λ_s die Wellenlänge im Sichtbaren
- $n_o(2\omega)$ und $n_o(\omega)$ die jeweiligen Brechzahlen und
- $x := L/2 (k(2\omega) - k(\omega))$ (k : Wellenzahl)

bedeuten. Auch aus (4.1) geht die Bedingung der Phasenanpassung hervor: P_{UV} wird maximal für $x=0$, d.h. gleiche Phasengeschwindigkeit der beiden Wellen. Der Verdopplungswirkungsgrad ist proportional zum Quadrat der Leistung der einfallenden Welle und

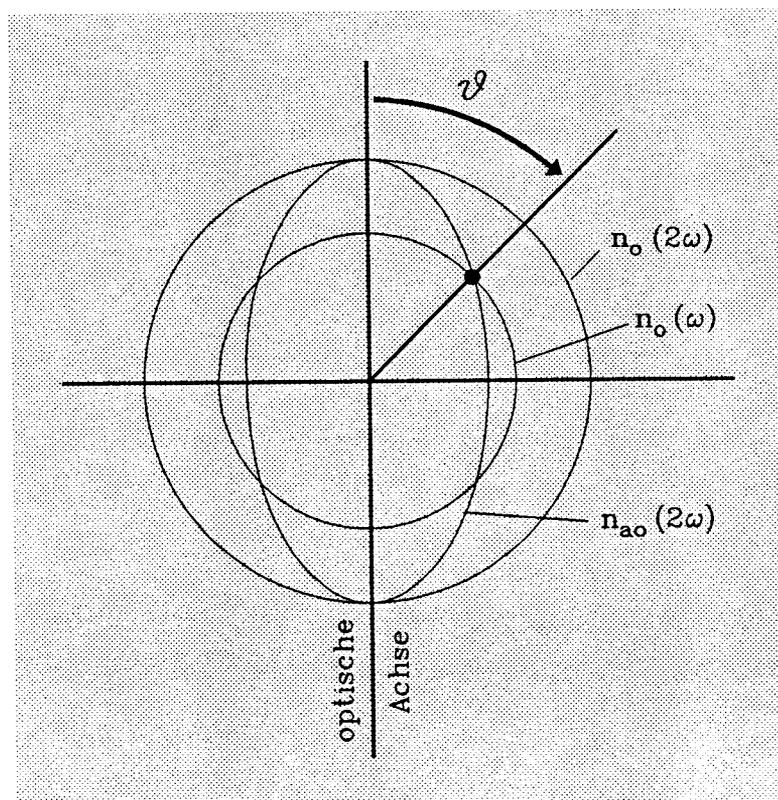


Abb. <4.5>: Brechzahl-ellipsoid für einen optisch einachsigen Kristall. Die Brechzahl des ordentlichen Lichtstrahls (n_o) ist größer als die des außerordentlichen (n_{ao}). ϑ ist der Winkel, den der einfallende Laserstrahl mit der optischen Achse des doppelbrechenden Kristalls bilden muß, um Phasenanpassung zu erzielen: $n_o(\omega) = n_{ao}(2\omega)$.

invers proportional zur Querschnittsfläche des Laserstrahls. Einer beliebigen Erhöhung der Energiedichte im Kristall steht jedoch die Gefahr von thermischen Zerstörungen entgegen. Man fokussiert daher zweckmäßigerweise den Primärstrahl nur in einer Ebene mit einer Zylinderlinse.

Ein Kristall, der geeignet ist, die zur Kupferresonanz notwendige Wellenlänge von 324,8 nm zu erzeugen, ist KDP (Kaliumdihydrogenphosphat, KH_2PO_4). Die Fundamentallwellenlänge von 649,6 nm wird hierzu mit einer Zylinderlinse von 200 mm Brennweite in einen solchen Kristall hineinfokussiert. Dabei wird ein Verdopplungswirkungsgrad von

ca. 1% erreicht. Die erzielten UV-Pulsenergien von $10 \mu\text{J}$ sind ausreichend, um Sättigung bei der Kupferfluoreszenz zu erreichen.

4.2.3. Überlegungen zur Vermeidung von Laserfalschlicht

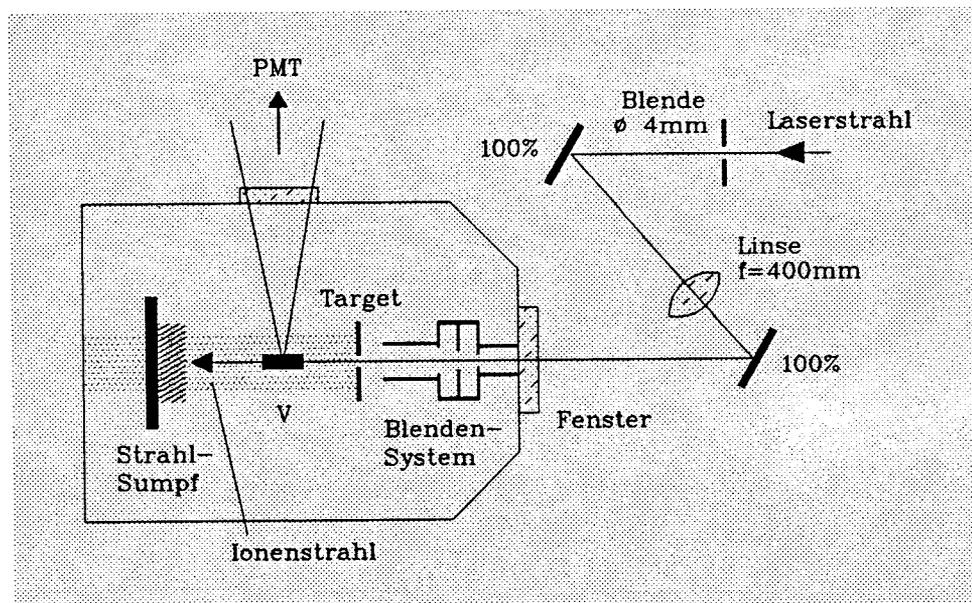


Abb. <4.6>: Optischer Aufbau zur Unterdrückung von Falschlicht. V: Fluoreszenzvolumen.

Speziell bei der Resonanzfluoreszenz an Lithium taucht eine Schwierigkeit auf: Bedingt dadurch, daß nur ein Zweiniveausystem zugänglich ist, haben Fluoreszenz- und Laserstrahlung dieselbe Wellenlänge. Beide unterscheiden sich in ihrer Intensität aber um viele Größenordnungen. Es muß daher mit viel Sorgfalt verhindert werden, daß ein nennenswerter Teil der Laserstrahlung durch Reflexion, Streuung und Beugung in das optische Fluoreszenz-Detektionssystem gelangt. Abbildung <4.6> zeigt den dazu gewählten optischen Aufbau. Eine Lochblende (Durchmesser 4 mm) schneidet den homogenen Innenteil aus dem Laserstrahl heraus. Dieser wohldefinierte Strahlquerschnitt wird mit einer Linse (Brennweite 400 mm) im Verhältnis 1:1 ins Fluoreszenzvolumen (V) abgebildet. Um die Streustrahlung, die vom Eintrittsfenster der Vakuummkammer stammt, zu unterdrücken, wurde ein System aus drei konzentrischen Blenden eingesetzt (Durchmesser 3 mm, 4 mm und 5 mm). Ein innen geschwärztes Metallrohr, das vom Ende der letzten Blende bis kurz vors Target reicht, unterdrückt Beugungsstrahlung vom Rand

dieser Blenden. Der Laserstrahl darf hinter dem Fluoreszenzvolumen keinesfalls auf eine reflektierende oder streuende Fläche treffen. Ein geeigneter Strahlsumpf besteht aus einigen hundert parallel zueinander angeordneten hochreflektierenden Rasierklingen. Der Laserstrahl wird auf die Stirnfläche (die Schneiden) der Klingen justiert und wird schließlich zum allergrößten Teil durch Vielfachreflexion zwischen den Klingen absorbiert. Durch die Summe der Maßnahmen konnte der Anteil des Laserfalschlichtes auf deutlich unter 1% des Fluoreszenz-Meßsignals gebracht werden. Ein Beobachtungssumpf erübrigte sich daher.

4.3. Optischer Aufbau zur Detektion der Fluoreszenzstrahlung

Abbildung <4.7> zeigt den gewählten Aufbau zur Zerstäubung und zur Detektion der Fluoreszenzstrahlung im Detail:

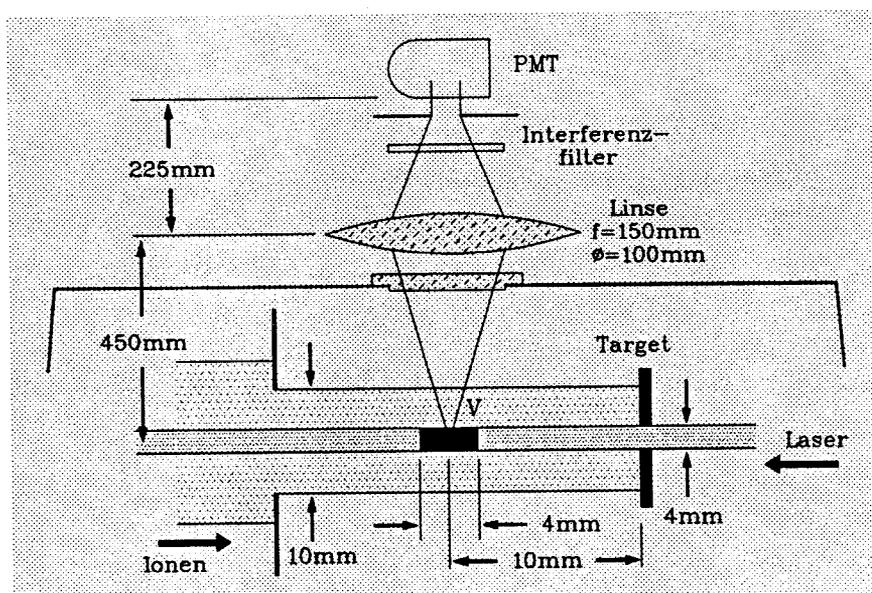


Abb. <4.7>: Detaillierte Fluoreszenz- und Zerstäubungsgeometrie sowie optischer Aufbau zur Detektion der Fluoreszenzphotonen. V: Fluoreszenzvolumen.

Der Ionenstrahl wird in 20 cm Abstand vor dem Target mit einer Blende auf einen Durchmesser von 10 mm eingengt. Dieser Wert bestimmt die Größe der Zerstäubungsfläche auf der Targetoberfläche. Der Laserstrahl wird gegenläufig durch ein 4 mm großes Loch von hinten koaxial zum Ionenstrahl durch das Target geführt. Position und Abmessungen des Fluoreszenzvolumens werden zum einen durch den Durchmesser des Laserstrahls (4 mm) sowie durch eine rechteckige Schlitzeblende bestimmt, die sich vor

einem Photomultiplier (Hamamatsu R955) befindet. Diese Blende wird mit einer Linse ($f = 150$ mm, Durchmesser 100 mm, Öffnungsverhältnis 1:4,5) im Maßstab 1:2 quer über den Laserstrahl abgebildet. Es entsteht so ein zylinderförmiges Fluoreszenzvolumen. Mit den im Experiment gewählten Einstellungen ergab sich eine Länge dieses Volumens von ebenfalls 4 mm sowie ein Targetabstand von 10 mm. Vor dem Photomultiplier befindet sich schließlich ein Interferenzfilter, das Fremdlicht (z.B. Tageslicht oder Emissionslinien der Beschüßionen) unterdrücken soll. Benutzt wurden die beiden folgenden Filter der Firma Schott:

- Lithiumresonanz: Typ MA 7-0.5
volle Halbwertsbreite 5,6 nm
Transmission 32% bei der Resonanzwellenlänge 670,8 nm
- Kupferresonanz: Typ MA 7-0.5
volle Halbwertsbreite 6,8 nm
Transmission 47% bei der Beobachtungswellenlänge 510,6 nm

4.4. Datenerfassung und -verarbeitung

Die Erfassung von Meßwerten sowie die Ablaufsteuerung des Experiments wird mit Hilfe eines Camac-Systems durchgeführt [92]. Das von einem Photomultiplier detektierte Fluoreszenzsignal sowie das Laserpulsenergie-Signal (Photodiode) werden während der Dauer eines Laserpulses integriert und mit einem schnellen AD-Wandler vom Typ LeCroy 2249W digitalisiert. Die Gatezeit (Integrationslänge) beträgt hierbei einheitlich $1,5 \mu\text{s}$, um einen vollständigen Laserpuls zu überdecken. Der Ionenstrom wird zeitgleich zum Laserpuls mit einem Datalogger vom Typ LeCroy 8212AH digitalisiert. Die Meßwertfassung wird gesteuert von einem Mikrocomputer (Borer Macamac, Type 1521). Zur Herabsetzung von statistischen Schwankungen der Meßsignale ist in der Regel für jeden Meßpunkt über eine Anzahl von 50 Laserschüssen gemittelt worden.

Zur weiteren Auswertung werden die Rohdaten auf einen Großrechner (VAX 8800) kopiert. Hier wird u.a. eine Normierung des Fluoreszenzsignals auf den Ionenstrom und die Laserpulsenergie vorgenommen. Für die Stromnormierung wird ein linearer Zusammenhang zwischen Zerstäubungsrate und Ionenflußdichte angenommen. Die Beziehung zwischen Fluoreszenzintensität und Laserpulsenergie ist wegen des Sättigungsverhaltens von Resonanzübergängen (\rightarrow Gleichung (3.2)) nichtlinear. Man bestimmt zunächst experimentell die Beziehung zwischen I_{Fluo} und E_{Laser} und fittet die Meßwerte an

eine geeignete Funktion. In guter Näherung ergibt eine Entwicklung von (3.2) nach dem Sättigungsparameter S bzw. der Laserpulsenergie eine quadratische Abhängigkeit:

$$E_{\text{Laser}} = a I_{\text{Fluo}}^2 + b I_{\text{Fluo}} + c \quad (4.2)$$

a , b und c sind die Fitparameter des Polynoms. Mit Hilfe dieses Ausdrucks kann dann durch Auflösung nach I_{Fluo} auf die Pulsenergie normiert werden. Abbildung <4.8> zeigt als Beispiel eine experimentelle Bestimmung obigen Zusammenhanges für den Fall der Fluoreszenz am Kupferatom.

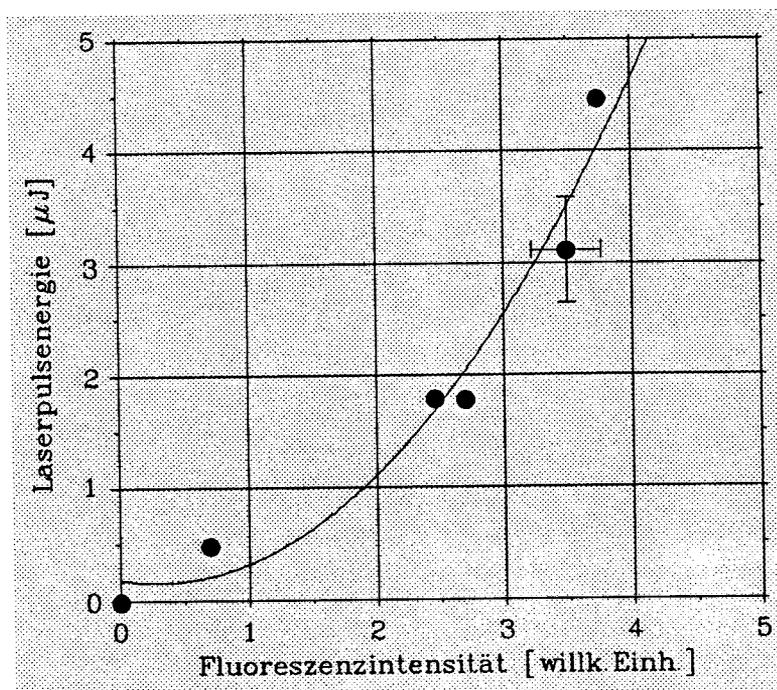


Abb. <4.8>: Quadratisches Fitpolynom zur Korrelation der Fluoreszenzintensität mit der Energie des Laserpulses. Hier ist als Beispiel eine Messung an Kupferatomen dargestellt.

Die VAX 8800 übernimmt ferner die Aufgabe, gemessene Absorptionsprofile an Geschwindigkeitsverteilungen abgestäubter Atome anzupassen (→ Variation der Oberflächenbindungsenergien in der Thompsonformel, Faltung von spektralem Laserprofil und dem Absorptionsprofil des Atoms, Berücksichtigung von Linienaufspaltungen).

4.5. Präzise Bestimmung der Laserwellenlänge

Zur Messung einer Geschwindigkeitsverteilung abgestäubter Atome wird der Laserstrahl spektral über das Dopplerverbreiterte Absorptionsprofil geführt. Dabei ist es notwendig, die jeweilige Laserwellenlänge so genau zu bestimmen, daß der Fehler höchstens in der Größenordnung der Laserlinienbreite liegt. Das bedeutet z.B. für die Lithiumresonanz ($\lambda_0 = 670,8 \text{ nm}$, $\Delta\lambda = 1 \text{ pm}$) ein gefordertes Auflösungsvermögen von besser als 2×10^{-6} . Im Institut für Plasmaphysik der KFA Jülich wurde von D.Rusbüldt ein Gitterspektrometer entwickelt, das dieser Anforderung gerecht wird [93].

Zur Absolutkalibration der Laserwellenlänge dient eine Neon-Spektrallampe, deren Linien hinsichtlich ihrer Wellenlängen mit hoher Genauigkeit bekannt sind. Die Strahlung dieser Lampe wird zusammen mit einem kleinen ausgekoppelten Bruchteil der Laserpulsenergie auf den Eintrittspalt des Spektrometers abgebildet. Um das notwendige Auflösungsvermögen zu erreichen und genügend viele Neon-Referenzlinien im Sichtfeld zu haben, wird bei diesem Spektrometer in 30. und höherer Ordnung gearbeitet. Dazu wird ein Echelle-Gitter mit einer Gitterkonstanten von 79,015 Linien/mm und einem Blazewinkel von 70° eingesetzt. Die spektral zerlegte Strahlung gelangt zur Auswertung entweder auf einen Film (Polaroid-Kamera) oder auf eine lineare Zeile von 1024 Photodioden der Gesamtlänge 25 mm. Das Signal dieser Diodenzeile kann entweder auf einem Oszillographen sichtbar gemacht werden oder von einem Rechner ausgelesen werden. Die spektrale Lage der Laserlinie kann durch lineare Interpolation zwischen den Neonlinien ermittelt werden. Das genaue Verfahren der Auswertung der Spektren ist in [21] ausführlich beschrieben.

5. Experimentelle Ergebnisse und ihre Diskussion

Die in diesem Kapitel vorgestellten experimentellen Ergebnisse beziehen sich auf eine Cu/Li-Legierung, die von D.M.Gruen und Mitarbeitern (Argonne National Laboratory, USA) zur Verfügung gestellt wurde. Sie hat einen nominellen Lithiumanteil von 16,9 at-% und befindet sich damit nahe an der Löslichkeitsgrenze, wie man aus dem Phasendiagramm in Abb. <2.4> entnehmen kann. Es handelt sich um dieselbe Art von Legierung, an der auch die in Kapitel 2.4 vorgestellten Experimente in Argonne und an PISCES gemacht worden sind. Ein Vergleich der in Rahmen dieser Arbeit erzielten Resultate mit den "alten" Ergebnissen ist somit möglich und interessant.

Die zu untersuchenden Kupfer/Lithium-Proben wurden vor dem Ionenbeschuß jeweils einem einheitlichen Polierverfahren unterzogen: Zunächst wurden sie mit einem SiC-Naßschleifpapier (Körnung 1000) mit Methanol als Schmiermittel vorbehandelt. Die Endpolitur erfolgte mit einer Diamantpaste (Körnung 6 μm). Die Diamantpaste und das hierbei benutzte Lösungsmittel sind auf Ölbasis hergestellt, um die eventuell heftigen chemischen Reaktionen der lithiumhaltigen Oberfläche mit Wasser auszuschliessen.

5.1. Geometrie-Effekte

Durch Ionenbeschuß abgestäubte Atome haben eine Thompson'sche Energie- bzw. Geschwindigkeitsverteilung, die sich mit Gleichung (2.2) beschreiben läßt. Sie sei an dieser Stelle noch einmal in Erinnerung gerufen:

$$Y(E,\vartheta) dE d\Omega \sim \frac{E}{(E+U_0)^3} \cos \vartheta dE d\Omega \quad (5.1)$$

Diese Beziehung gilt streng genommen nur für eine Punktquelle: Jeder Punkt der Targetoberfläche emittiert abgestäubte Atome in Richtungen und Geschwindigkeiten gemäß (5.1). Betrachtet man die Geschwindigkeitsverteilung auf der Symmetrieachse ("z-Achse") eines runden Targets, so läßt sich das Ergebnis mit (5.1) nur dann beschreiben, wenn man sich in einer Entfernung vom Target befindet, die groß gegenüber dessen Durchmesser ist. Bei nahen Abständen wird das Meßvolumen in zunehmendem Maße von Atomen durchkreuzt, die sich schräg zur z-Achse bewegen und somit eine geringere Geschwindigkeitskomponente in z-Richtung haben. Die Breite einer in dieser Richtung gemessenen Verteilung wird dementsprechend gegenüber (5.1) abnehmen. Im folgenden soll kurz dargelegt werden, in wieweit die Thompson-Verteilung (5.1) durch Geometrieef-

fekte beeinflusst wird.

Abbildung <5.1> zeigt die in der vorliegenden Arbeit verwendete Geometrie: Die zerstäubte Oberfläche ist kreisringförmig mit einem inneren Radius von R_1 (gegeben durch den Laserstrahl) und einem äußeren Radius von R_2 (gegeben durch den Ionenstrahl). Jedes infinitesimale Flächenelement dA auf der Targetoberfläche emittiert abgestäubte Atome gemäß (5.1) in den Raumwinkel $d\Omega$. Eine geeignete Integration dieser Quellverteilung über die Targetoberfläche und den Emissionswinkel ϑ liefert die Flußdichte abgestäubter Atome, welche den Beobachtungsort (Flächenelement dA^* an der Stelle z) durchqueren.

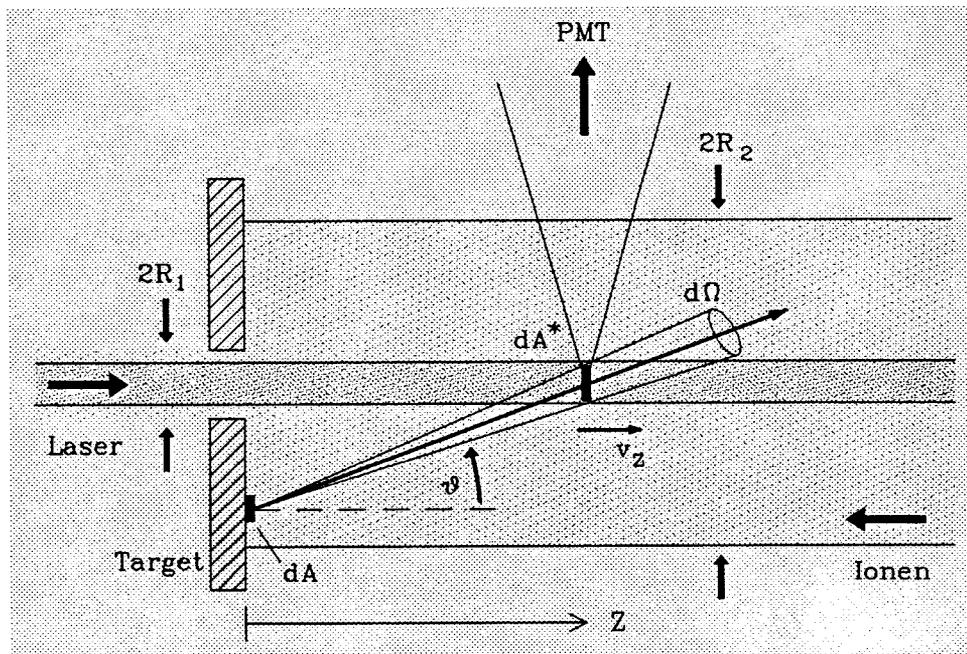


Abb. <5.1>: Zur Geometriebeeinflussung der Messung von Geschwindigkeitsverteilungen abgestäubter Atome mit LIF im Abstand z von der Targetoberfläche. R_1 ist der Radius des Laserstrahls und R_2 der Radius des Ionenstrahls.

Für die mit LIF (Laserstrahl senkrecht zur Targetoberfläche und koaxial zum Ionenstrahl) an dieser Stelle zu messende Geschwindigkeitsverteilung ergibt sich nach [21,22] bei der vorliegenden Lochtarget-Geometrie:

$$Y(v_z, z) \sim \frac{1}{[v_z^2(1+R_1^2/z^2)+v_0^2]^2} - \frac{1}{[v_z^2(1+R_2^2/z^2)+v_0^2]^2} \quad (5.2)$$

Hierbei ist v_0 - wie gehabt - mit der Masse und der Sublimationsenergie der abgestäubten Atomsorte gemäß (2.4) verknüpft. Eine Diskussion von Gleichung (5.2) zeigt [21], daß es eine nennenswerte Abweichung von der Thompson-Verteilung für den Fall $z/R_2 < 2$ gibt. In der vorliegenden Situation ($z = 10$ mm und $R_2 = 5$ mm) liegt man gerade an der Grenze, wo Geometrieeffekte beginnen, eine Rolle zu spielen. Entsprechend sind alle weiter unten dargestellten mit LIF gemessenen Verteilungen durch (5.2) angepaßt worden.

Mittels laserinduzierter Fluoreszenz wird die Dichte $n(z)$ der abgestäubten Atome in einem Abstand von $z = 10$ mm von der Targetoberfläche gemessen. Zur Bestimmung einer Zerstäubungsausbeute wird aber die Flußdichte $\Phi(0)$ der betreffenden Atome an der Targetoberfläche benötigt. Der Zusammenhang zwischen Dichte und Fluß im Meßvolumen ist

$$\Phi(z) = n(z) \cdot \langle v_{tr} \rangle \quad (5.3)$$

wobei $\langle v_{tr} \rangle$ die mittlere Transportgeschwindigkeit der abgestäubten Atome darstellt. Am Meßort bei $z = 10$ mm wird, ohne einen allzu großen Fehler zu machen, für die mittlere Transportgeschwindigkeit der abgestäubten Atome der Thompson'sche Wert aus Gleichung (2.8) angenommen.

Bedingt durch die endliche Breite der Winkelverteilung der emittierten Atome erniedrigt sich deren lokale Flußdichte Φ mit zunehmendem Targetabstand. Diese Abhängigkeit wurde für eine kreisrunde Targetgeometrie in [21,22] hergeleitet. Bei einer Lochtargetgeometrie, wie sie in unserem Fall vorliegt, ergibt sich für einen Meßort auf der z -Achse

$$\Phi(z) = \Phi_0 \left[\frac{1}{1+R_1^2/z^2} - \frac{1}{1+R_2^2/z^2} \right] / 2 \quad (5.4)$$

wobei R_1 wieder der innere und R_2 der äußere (von Ionenstrahl getroffene) Radius des Targets ist. Φ_0 bedeutet eine fiktive, räumlich isotrope Quellflußdichte auf der Targetoberfläche, um von der Winkelverteilung der emittierten Atome unabhängig zu sein. Bei einer cos-Verteilung, wie sie für Zerstäubungsvorgänge typisch ist, beträgt die in den Halbraum zerstäubte Flußdichte an der Targetoberfläche

$$\Phi(z=0) = \Phi_0 / 2 \quad (5.5)$$

Sie wird zur Berechnung von Zerstäubungsausbeuten benötigt. Abbildung <5.2> stellt diese Abhängigkeit für die hier verwendete Geometrie ($R_2 = 5 \text{ mm}$, $z = 10 \text{ mm}$) mit Loch ($R_1 = 2 \text{ mm}$) und zum Vergleich ohne Loch ($R_1 = 0$) im Target dar.

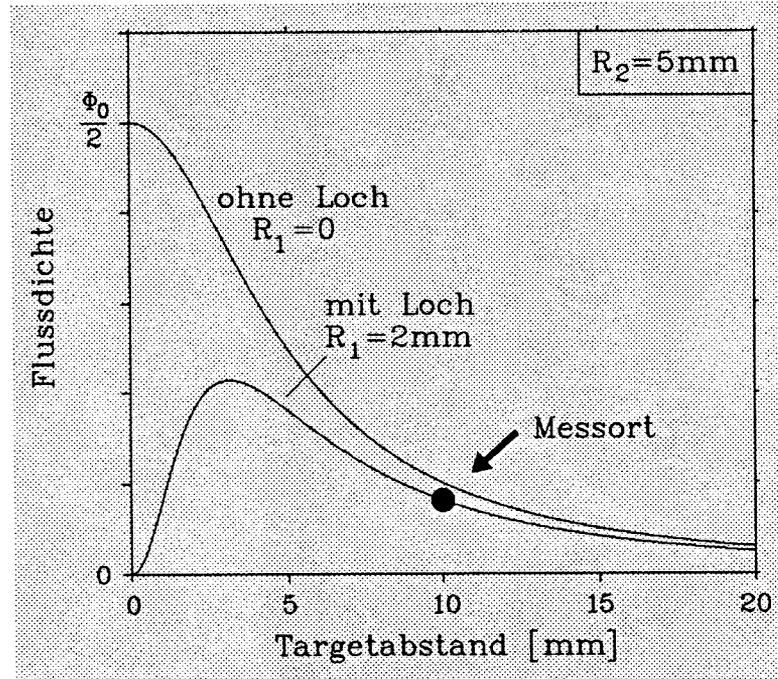


Abb. <5.2>: Geometriebeeinflussung der Flußdichte abgestäubter Atome auf der Symmetrieachse eines kreisrunden Targets mit und ohne Loch. An der Oberfläche ist die Flußdichte in beiden Fällen $\Phi_0/2$. In dieser Arbeit wird ausschließlich bei $z=10\text{mm}$ und mit Loch gemessen.

Die partielle Zerstäubungsausbeute der Komponente i berechnet sich schließlich aus der Flußdichte der abgestäubten Atome an der Oberfläche gemäß

$$Y_i^{\text{part}} = \Phi(z=0) / \Phi_{\text{Ionen}} \quad (5.6)$$

Φ_{Ionen} ist dabei die Teilchenflußdichte des Ionenstrahls, die sich aus der gemessenen Stromstärke und der Fläche des bestrahlten Kreistrings errechnen läßt.

5.2. Die Zerstäubung eines kalten Cu/Li-Targets

5.2.1. Geschwindigkeitsverteilungen von Cu und Li

Zunächst wurde die spektrale Breite der Laserstrahlung experimentell bestimmt, indem ihre Longitudinalmodenstruktur mit einem Fabry-Perot-Interferometer (Plattenabstand 25,034 mm, Reflektivität 97% und Auflösungsvermögen 0,05 pm bei $\lambda = 660$ nm) vermessen wurde. Aus dem Abstand der Moden, der sich zum einen aus der Resonatorlänge errechnen läßt (\rightarrow Gleichung (3.10)), und zum anderen aus der FPI-Aufnahme hervorgeht, läßt sich die volle spektrale Halbwertsbreite berechnen. Es ergab sich für die beiden im Experiment benutzten Wellenlängen (670,8 nm und 649,6 nm) bei einem mittleren Modenabstand von 0,3 pm (Resonatorlänge 70 cm) ein Wert von

$$\Delta\lambda_{\text{Laser, exp}} = (0,99 \pm 0,04) \text{ pm} \quad (5.7)$$

Während bei Lithium der Abstand und die Wichtungsfaktoren der Intensitäten für die beiden Doublett-Linien gut bekannt sind (siehe Kapitel 3.1.4), liegen für die Hyperfeinaufspaltung der CuI-Linie bei 324,8 nm nur wenige experimentelle Daten vor [84,85]. In [84] wurde der Abstand der beiden Hfs-Liniengruppen zu 4 pm gemessen. Man analysierte damals die betreffende Linie in Emission mit einem Fabry-Perot-Interferometer. Laserspektroskopische Untersuchungen zur Hfs-Aufspaltung dieser Linie sind nicht verfügbar. Um das Wichtungsverhältnis der Liniengruppen bei Laseranregung zu bestimmen (was notwendig zur quantitativen Interpretation der gemessenen Geschwindigkeitsprofile ist), wurde der schmalbandige Laserstrahl im Abstand von 10 mm parallel an der Oberfläche eines reinen Kupfertargets vorbeigeführt (d.h. senkrecht zum Strahl der abgestäubten Cu-Atome), um die Dopplerbreite des Absorptionsprofils zu minimieren. Ein Verstimmen der Laserwellenlänge über die gesamte Absorptionslinie liefert mit hinreichender Auflösung Abstand und Intensitäten der beiden Hfs-Gruppen (siehe Abbildung <5.3>).

Der Gruppenabstand wurde in Übereinstimmung mit [84] zu 4 pm bestimmt, die Wichtungsfaktoren ergeben sich zu 0,48 bzw. 0,98. Zusätzlich sind in Abb. <5.3> zum Vergleich die Ergebnisse der damaligen Emissionsmessungen eingezeichnet. Die Lagen und Intensitäten der zwölf Linien oberhalb der Abszisse (je sechs von beiden Cu-Isotopen) decken sich sehr gut mit den durch LIF gefundenen Ergebnissen.

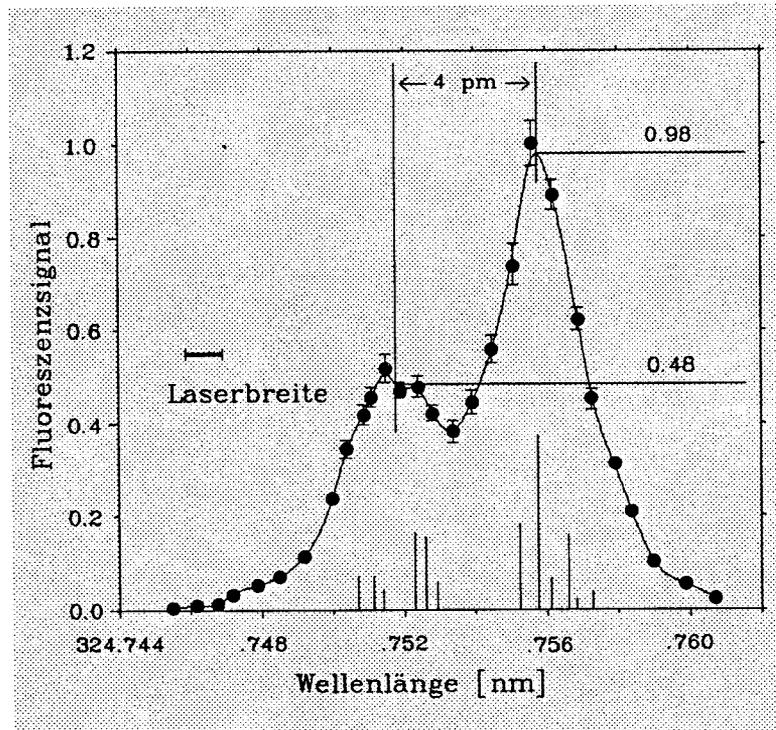


Abb. <5.3>: Hyperfeinstruktur der CuI-Linie $4^2S_{1/2} \rightarrow 4^2P_{3/2}$ bei 324,8 nm, gemessen in Dopplerminimierter Geometrie mit LIF. Die zwölf Linien oberhalb der Abszisse repräsentieren Ergebnisse der Messungen aus [84].

Die 16,9 at-%ige Cu/Li-Legierung wurde zur Messung der Geschwindigkeitsverteilungen ihrer beiden Bestandteile mit Argonionen beschossen. Die Energie der Ionen betrug 6 keV bei einer Flußdichte von $3 \times 10^{15} \text{ Ar}^+/\text{cm}^2\text{s}$. Nachdem sich ein Gleichgewicht der Zerstäubungsraten eingestellt hatte, wurden beide Verteilungen mit LIF gemessen (\rightarrow Abbildungen <5.4> und <5.5>).

Durch Anpassen des einzigen "freien" Parameters in der Geschwindigkeitsverteilung (v_0 bzw. U_0) wurde die Bindungsenergie der Lithiumkomponente zu 2,2 eV bestimmt. Dieser Wert liegt deutlich über der Sublimationsenergie von reinem Lithium (1,67 eV [19,81]). Dies ist ein Hinweis darauf, daß die Oberfläche bei Raumtemperatur unter intensivem Argonionenbeschuß nicht sehr stark mit Lithium angereichert sein kann. Die entsprechende mit Beziehung (2.8) berechnete mittlere Transportgeschwindigkeit der abgestäubten Lithiumatome beträgt 9,7 km/s. Mittlere Geschwindigkeiten von abgestäubten Li-Atomen wurden erstmals bereits im Jahre 1939 von H.Sporn in einer Glimmentladung mit lithiumbeschichteter Kathode bestimmt [94]. Aus der spektroskopisch gemessenen Steilheit des Intensitätsabfalls der Leuchtzone angeregter LiI-Atome vor der Kathode ermittelte er mit Hilfe der Lebensdauer des 2^2P -Zustands einen Wert von 14 km/s.

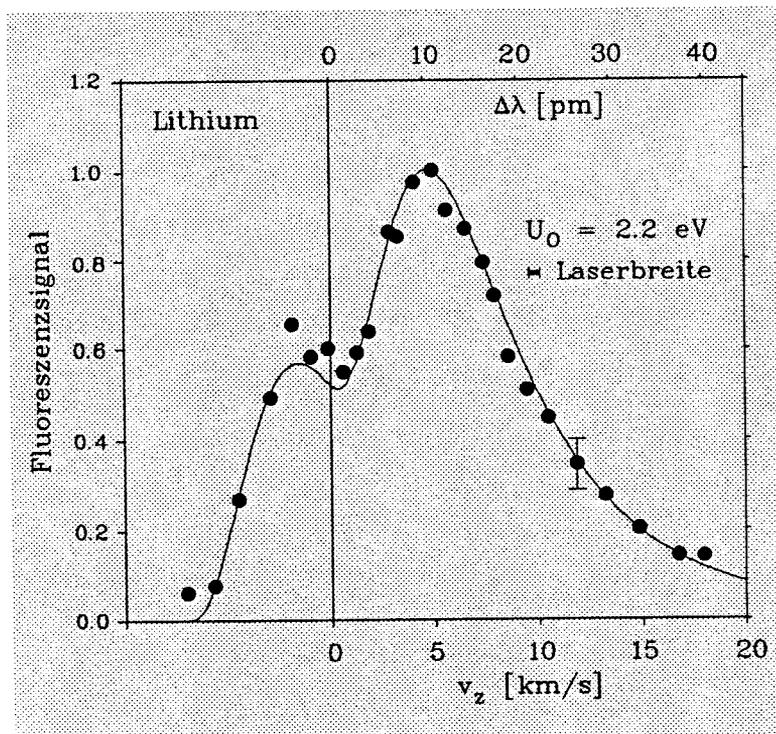


Abb. <5.4>: Mit LIF gemessenes Absorptionsprofil bzw. Geschwindigkeitsverteilung der zerstäubten Lithiumkomponente bei Raumtemperatur. Durch Anpassen einer Thompson-Verteilung erhält man eine Bindungsenergie von $U_0 = 2,2$ eV. Grund für die Doppelstruktur des gemessenen Absorptionsprofils ist die Doublettform der Li-Resonanzlinie bei 670,8 nm.

Eine weitere Information bezüglich der Oberflächenzusammensetzung kann die Geschwindigkeitsverteilung der zerstäubten Kupferkomponente liefern. Zunächst wurde ein elementares Cu-Target zerstäubt, dessen Sublimationsenergie sehr genau bekannt ist. Sie beträgt 3,51 eV [19,81]. Anschließend wurde das Legierungstarget zerstäubt. Abbildung <5.5> zeigt beide Verteilungen: Die Meßpunkte reinen Kupfers lassen sich gut mit dem Tabellenwert von 3,51 eV anpassen. Diejenigen Kupferatome, die aus der Legierung stammen, haben dagegen eine schmalere Geschwindigkeitsverteilung, sie zeigen die deutlich geringere Oberflächenbindungsenergie von 2,4 eV. Die zugehörigen mittleren Transportgeschwindigkeiten betragen 4,2 km/s bzw. 3,4 km/s. Bei der Auswertung und Anpassung der Geschwindigkeitsverteilungen wurden berücksichtigt:

- Fein- bzw. Hyperfeinstruktur der Absorptionslinien
- Modifikation der Thompson'schen Geschwindigkeitsverteilung durch Geometrieeffekte
- die endliche spektrale Breite, Modenstruktur und Intensität der Laserstrahlung.

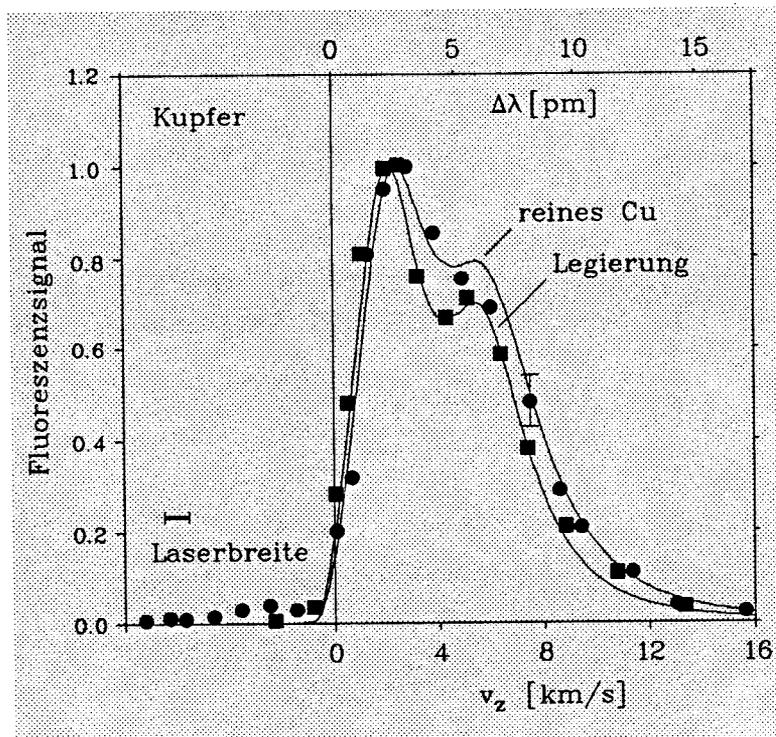


Abb. <5.5>: Mit LIF gemessene Absorptionsprofile bzw. Geschwindigkeitsverteilungen von abgestäubten Cu-Atomen aus der Legierung und aus einem reinen Kupfertarget. Durch Anpassen der Meßwerte an eine Thompson-Verteilung erhält man als Oberflächenbindungsenergien die Werte $U_0^{\text{rein}} = 3,51 \text{ eV}$ und $U_0^{\text{Leg}} = 2,4 \text{ eV}$. Grund für die Doppelstruktur ist hier die Hfs-Aufspaltung des $4^2S_{1/2}$ -Niveaus von CuI.

Sowohl bei Lithium als auch bei Kupfer fällt die Störung durch Mehrfachstrukturen der Absorptionslinien auf. Die endliche Laserlinienbreite bedingt lediglich eine minimale Verbreiterung des gemessenen Profils, da der Laser hinreichend schmal gegen das Dopplerverbreiterte Absorptionsprofil ist. Die quasi "negativen" Geschwindigkeiten sind jedoch auf die spektrale Breite der Laserstrahlung zurückzuführen.

Man kann unter gewissen Näherungen und Annahmen aus einer experimentell bestimmten Oberflächenbindungsenergie einer Legierungskomponente auf die Oberflächenzusammensetzung schließen. In [95] wird eine solche Möglichkeit beschrieben: "The Quasichemical Approach to Solid Solutions". Diese Theorie betrachtet eine Legierung als ideale metallische Kristallgitterstruktur, in der beide Partner statistisch regellos auf die Gitterplätze verteilt sind (= solid solution), und berücksichtigt nur chemische Bindungskräfte zwischen den einzelnen Atomen. Alle weiteren Wechselwirkungsarten werden

vernachlässigt. Auch werden nur die Kräfte zwischen direkt benachbarten Atomen mit einbezogen.

Betrachtet man ein Mol der Legierung (es soll $P_{\text{Cu/Li}}$ Bindungen zwischen Kupfer- und Lithiumatomen enthalten), dann läßt sich die Mischungsenthalpie ΔH_m (das ist die Energiedifferenz, die man aufbringen muß, bzw. die freigesetzt wird beim Formen der Legierung aus den reinen Elementen) nach [95] wie folgt berechnen:

$$\Delta H_m = P_{\text{Cu/Li}} [H_{\text{Cu/Li}} - (H_{\text{Cu}} + H_{\text{Li}})/2] \quad (5.8)$$

wobei $H_{\text{Cu/Li}}$ die Bindungsenergie einer einzelnen Cu/Li-Bindung darstellt. H_{Cu} und H_{Li} sind die Bindungsenergien zwischen gleichen Partnern, wie sie z.B. aus den Sublimationsenergien der beiden Elemente berechnet werden können. Vorausgesetzt wird, daß die Legierung und beide reinen Elemente dieselbe Gitterstruktur besitzen. Die Bindungsenergie einer Cu/Li-Bindung ist demnach

$$H_{\text{Cu/Li}} = \Omega_{\text{Cu/Li}} + (H_{\text{Cu}} + H_{\text{Li}})/2 \quad (5.9)$$

mit

$$\Omega_{\text{Cu/Li}} = \Delta H_m / P_{\text{Cu/Li}} \quad (5.10)$$

Bisher liegt keine direkte experimentelle Bestimmung des Enthalpiefaktors $\Omega_{\text{Cu/Li}}$ vor. In [29] ist jedoch ein Weg aufgezeigt worden, seinen Wert aus dem Tiefenprofil der segregierenden Komponente im beschußlosen Gleichgewicht abzuleiten: Weicht eine Legierung vom Zustand einer idealen Mischung ab, d.h. $\Omega_{\text{Cu/Li}} \neq 0$, dann muß beim Miedema'schen Segregationsmodell (\rightarrow Kapitel 2.3) die Aktivierungsenergie Q in Gleichung (2.14) modifiziert werden. An ihre Stelle tritt

$$Q_\Omega = Q + 2\Omega_{\text{Cu/Li}} (c_{\text{Li, seg}}^S - c_{\text{Li}}^{\text{Volumen}}) \quad (5.11)$$

In [29] wurde Q_Ω für die untersuchte Legierung zu 18,25 kJ/mol nach [47,48] bestimmt. D.M.Gruen et al. berechneten in [10] die "ideale" Aktivierungsenergie Q nach Miedema [32] zu 0,63 eV entsprechend 60,8 kJ/mol. Nimmt man ferner eine vollständige Lithiumbedeckung im Segregationsgleichgewicht ($c_{\text{Li, seg}}^S = 1$, siehe Kapitel 5.2.3) und die nominelle

Volumenkonzentration an ($c_{\text{Li}}^{\text{Volumen}} = 0,169$), dann läßt sich der Enthalpiefaktor $\Omega_{\text{Cu/Li}}$ aus (5.11) berechnen:

$$\Omega_{\text{Cu/Li}} = -25,6 \text{ kJ/mol} \quad (5.12)$$

entsprechend $-0,27 \text{ eV}$. Wenn man annimmt, daß die Legierung dieselbe Oberflächenkoordinationszahl besitzt wie die reinen Elemente, dann kann man mit (5.9) die Energie berechnen, mit der ein einzelnes Lithiumatom in einer Kupfermatrix, bzw. mit der ein einzelnes Kupferatom in einem Lithiumkristall gebunden ist:

$$U_0^{\text{Cu/Li}} = 2,32 \text{ eV} \quad (5.13)$$

Lithiumatome, die nur an eine Kupfermatrix gebunden sind, würden demnach bei Zerstäubung ein Geschwindigkeitsspektrum aufweisen, das mit einer Oberflächenbindungsenergie von $2,32 \text{ eV}$ in der Thompsonformel beschrieben werden könnte. Dieser Fall würde auftreten bei einer äußerst geringen Li-Konzentration an der Oberfläche, im Grenzfalle $c_{\text{Li}}^{\text{S}} \rightarrow 0$. Eine reine Li-Oberfläche, die aus mehreren Atomlagen besteht, würde dagegen den Wert von elementarem Lithium ($U_0^{\text{Li}} = 1,67 \text{ eV}$) zeigen. Eine lineare Interpolation zwischen diesen Extremwerten liefert für die gemessene Oberflächenbindungsenergie der Lithiumkomponente von $2,2 \text{ eV}$ eine Oberflächenkonzentration im stationären Zustand (6 keV Argonbeschuß) von

$$c_{\text{Li, Ar}}^{\text{S}} (\text{aus Bindung}) = 18 \text{ at-\%} \quad (5.14)$$

Eine analoge Überlegung für die Kupfer-Komponente (gemessene Bindungsenergie $2,4 \text{ eV}$) liefert jedoch eine weitaus höhere Lithiumkonzentration. Ein Vergleich der beiden Abbildungen <5.4> und <5.5> zeigt, daß die Unsicherheit in der Wellenlängenbestimmung relativ zur Breite der Geschwindigkeitsverteilung gesehen bei Kupfer wesentlich größer anzusetzen ist als bei Lithium. Das Geschwindigkeitsprofil von Cu ist deutlich schmaler als das von Li. Weiterhin ist der relative Unterschied zwischen einer Thompson-Verteilung mit $3,51 \text{ eV}$ Bindungsenergie und einer mit $2,4 \text{ eV}$ bei Kupfer nicht bedeutend groß, wie man aus Abbildung <5.5> erkennt. Beides ist mit der vergleichsweise großen Masse des Kupferatoms zu begründen. Der absolute Fehler bei der Bestimmung der Oberflächenbindungsenergie der Cu-Legierungskomponente befindet sich in der Größenordnung von

$\pm 0,5$ eV, während er für die Li-Zerstäubung bei ca. $\pm 0,1$ eV anzusetzen ist. Mehr als die Information, daß die Lithium-Oberflächenbedeckung nicht vollständig ist, läßt sich aus der Kupfer-Zerstäubung nicht gewinnen.

5.2.2. Partielle Zerstäubungsausbeuten von Cu und Li

Mit laserinduzierter Fluoreszenzspektroskopie wurden absolute Teilchendichten der zerstäubten Lithiumkomponente unter Beschuß durch Deuterium-, Helium-, Neon- und Argonionen der Energie 6 keV und der Flußdichte $3 \times 10^{15}/\text{cm}^2\text{s}$ gemessen. Unter Zuhilfenahme der in Kapitel 5.2.1 mit LIF gemessenen mittleren Transportgeschwindigkeit der Lithiumatome von 9,7 km/s konnten partielle Zerstäubungsausbeuten bestimmt werden. Die in Abbildung <5.6> gezeigten absoluten Ausbeuten beziehen sich auf einen erreichten zeitlichen Gleichgewichtszustand in den Zerstäubungsraten beider Komponenten.

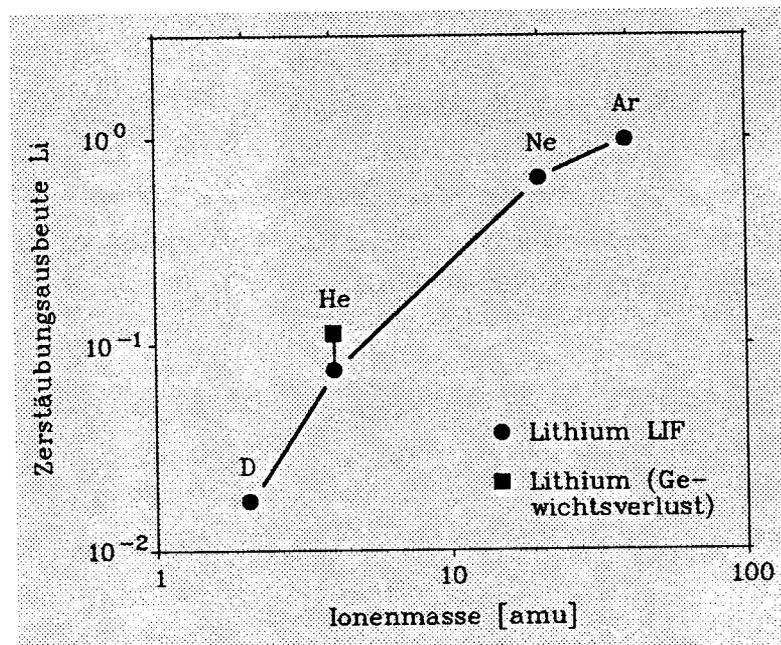


Abb. <5.6>: Mit LIF gemessene und durch Rayleigh-Streuung kalibrierte partielle absolute Zerstäubungsausbeuten der Li-Komponente unter Beschuß durch verschiedene Ionenarten mit 6 keV Energie. Eine weitere Absolutkalibration wurde unter He-Beschuß mit der Gewichtsverlust-Methode vorgenommen.

Zur Absicherung der Absolutkalibration obiger Werte, die durch Rayleigh-Streuung in Argon vorgenommen wurde, haben wir die Zerstäubungsausbeute von Li zusätzlich bei demselben Target mit der Methode der Gewichtsverlustmessung und Auffängeranalyse (→ Kapitel 3.2) für Heliumbeschuß bestimmt. Die Diskrepanz der beiden Absolutwerte beträgt 40%. Die Werte sind im Rahmen der Fehlergrenzen der beiden verschiedenen experimentellen Methoden als gleich zu bezeichnen. Der Laserfluoreszenz sind z.B. Lithiumcluster (etwa Li_2) und Lithiumionen nicht zugänglich. Die Absolutkalibration von Fluoreszenzintensitäten durch Rayleigh-Streuung kann Fehler von bis zu $\pm 50\%$ aufweisen (→ Kapitel 3.1.3 und 3.1.4).

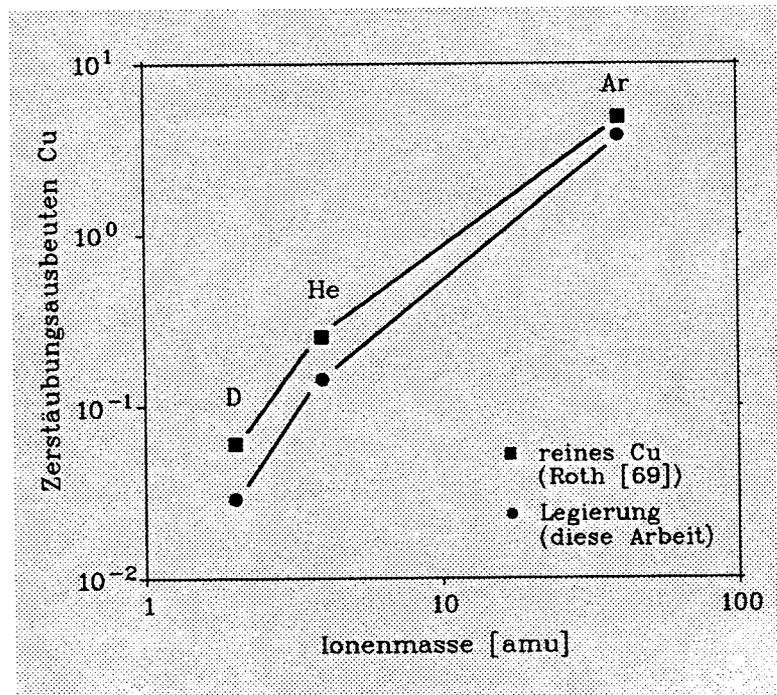


Abb. <5.7>: Ausbeuten von Kupfer unter Ionenbeschuß von 6 keV Energie und $3 \times 10^{15}/\text{cm}^2$ s Flußdichte: Reines Cu (Gewichtsverlustmethode, [69]) und die Cu-Komponente der Legierung (LIF, diese Arbeit).

Partielle Zerstäubungsausbeuten der Kupfer-Komponente der Legierung wurden ebenfalls mit LIF gemessen. Ihre Absolutwerte erhält man, indem ein reines Cu-Target, das sich auf demselben Target-Halter befindet, als Kalibrierstandard zerstäubt wird. Die Ausbeuten von elementarem Kupfer sind gut bekannt, sie sind u.a. von J.Roth in [16,69] veröffentlicht worden. Dieser Datensatz ist bei der Kalibration der Fluoreszenzintensitäten zugrundegelegt worden, wobei der Unterschied in den mittleren Transportgeschwindigkeiten der Kupferatome (Element↔Legierung, siehe Kapitel 5.2.1) berücksichtigt wurde.

Das Target wurde wieder mit Argon-, Helium- und Deuteriumionen der Energie 6 keV beschossen. Abbildung <5.7> zeigt die erhaltenen partiellen Zerstäubungsausbeuten der Legierung sowie die Ausbeuten für reines Kupfer aus [69].

Die Ausbeuten unterscheiden sich nicht um einen bedeutenden Faktor. Im Mittel ist die Zerstäubung der Kupfer-Legierungskomponente nur um ca. 40% geringer als beim reinen Target. Man kann aus dem Verhältnis der beiden gemessenen Zerstäubungsausbeuten in linearer Weise auf die Oberflächenzusammensetzung schließen. Beziehung (2.12), die die Oberflächenkonzentration der Kupfer-Komponente mit ihrer partiellen Zerstäubungsausbeute in Relation setzt, ergibt die folgenden Werte für die Konzentration von Lithium an der Oberfläche ($c_{\text{Li}}^{\text{S}} = 1 - c_{\text{Cu}}^{\text{S}}$):

c_{Li}^{S} (aus Cu-Ausbeuten):	Argon ⁺	—	21 at-% Li
	Helium ⁺	—	43 at-% Li
	Deuterium ⁺	—	52 at-% Li

Zusammenfassend kann über die Messung von Zerstäubungsausbeuten bei Raumtemperatur geurteilt werden, daß die Lithium-Oberflächenbedeckung durchweg recht gering ist. Sie liegt zwischen einem Wert von 21 at-% (Ar⁺), der sich nahe an der Volumenkonzentration von etwa 17 at-% befindet, und maximal ca. 52 at-% bei Beschuß durch Deuteriumionen. Diese Werte sind insgesamt zu niedrig, um eine hinreichende Unterdrückung der Cu-Zerstäubung für Fusionsanwendungen zu gewährleisten. Wie wir im weiteren sehen werden, ergibt eine Aufheizung des Targets bedeutend befriedigendere Resultate.

Die Zerstäubungsausbeute eines reinen Lithiumtargets läßt sich errechnen, indem man wieder die lineare Beziehung (2.12) zwischen der Komponenten-Zerstäubungsausbeute, der partiellen Ausbeute und der Oberflächenkonzentration eines Elements benutzt. Nimmt man dazu die oben angegebenen Lithium-Oberflächenkonzentrationen, dann stellt man im Rahmen der Meßgenauigkeit eine weitgehende Gleichheit der Größenordnung der Komponenten-Ausbeuten von Kupfer und Lithium fest. Abbildung <5.8> zeigt beide in einer gemeinsamen Darstellung. Für den Fall des Argon-Beschusses sind sie nahezu identisch: $Y_{\text{Li}} = 5,4$ ist etwas größer als $Y_{\text{Cu}} = 4,9$. Bei den anderen Beschüßionen ist es genau umgekehrt, hier dominiert die Zerstäubung von Kupfer. Aus der Literatur sind keine Zerstäubungsmessungen an reinen Lithiumtargets bekannt, mit denen man die erhaltenen Werte vergleichen könnte.

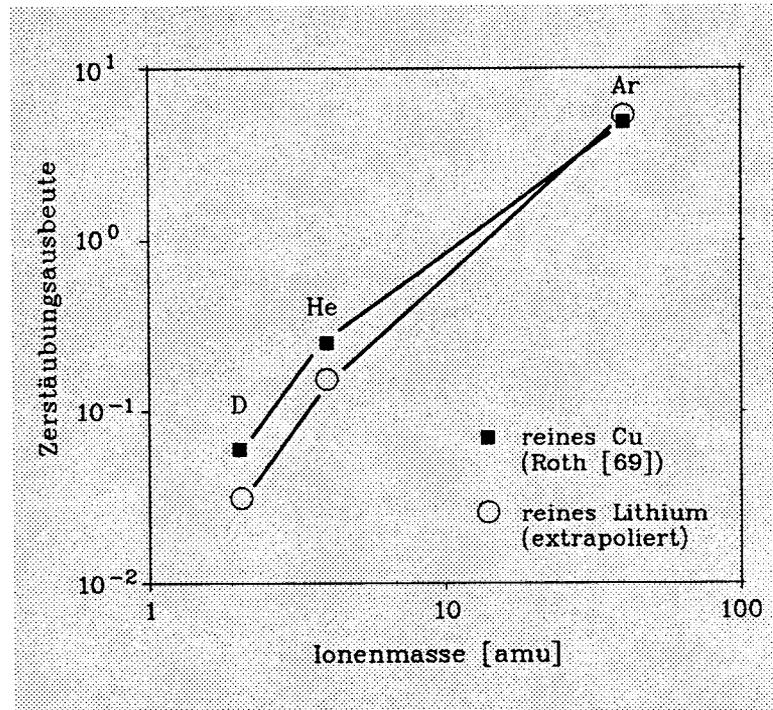


Abb. <5.8>: Zerstäubungsausbeuten der reinen Substanzen Kupfer [69] und Lithium. Die Werte für das elementare Lithium wurden durch lineare Extrapolation aus den partiellen Zerstäubungsausbeuten der Li-Komponente der Legierung und deren Oberflächenkonzentration gewonnen.

5.2.3. Oberflächenanalyse mit Auger-Spektroskopie und ISS

Dieselbe Kupfer/Lithium-Legierung, die Gegenstand der Experimente der vorliegenden Arbeit ist, wurde im Rahmen der Dissertation von Frau B. Baretzky [29] (Max-Planck-Institut für Plasmaphysik in Garching) mit Meßmethoden untersucht, die der Oberflächenanalytik entstammen und ein direktes Abbild der Zusammensetzung der oberflächennahen Schichten ergeben: AES (Auger-Elektronen-Spektroskopie) und ISS (Ion Scattering Spectroscopy). Einige wichtige Resultate ihrer Arbeit seien im folgenden kurz geschildert und werden mit den Messungen der vorliegenden Arbeit verglichen. Ausführlichere Darstellungen u.a. der verwendeten Meßmethoden und des experimentellen Aufbaus finden sich in [29,96-98].

ISS liefert eine Meßgröße, welche die Zusammensetzung allein der ersten Monolage der Legierung repräsentiert [99,100]. Die Information, die man aus Auger-Signalen entnehmen kann, ist durch die mittlere freie Weglänge der Elektronen im Metall gegeben [101]. Diese Weglänge ist gleichzusetzen mit der Austrittstiefe der ungestörten Auger-Elektronen. Die "Informationstiefe" bei AES entspricht im allgemeinen einigen wenigen atomaren Monolagen. Für die hier benutzte Auger-Linie von Cu bei 60 eV ergibt sich nach [101] eine Informationstiefe von zwei Monolagen, während die 920 eV-Cu-Linie eine Informationstiefe von ca. sechs Monolagen hat. Mit den so erhaltenen Daten über Kupferkonzentrationen in drei verschiedenen Tiefen läßt sich zum einen ein Tiefenprofil der Kupferkomponente bestimmen, zum anderen läßt sich die zeitliche Auflösung der Meßverfahren ausnutzen, um An- und Abreicherungsvorgänge der Lithiumschicht zu untersuchen.

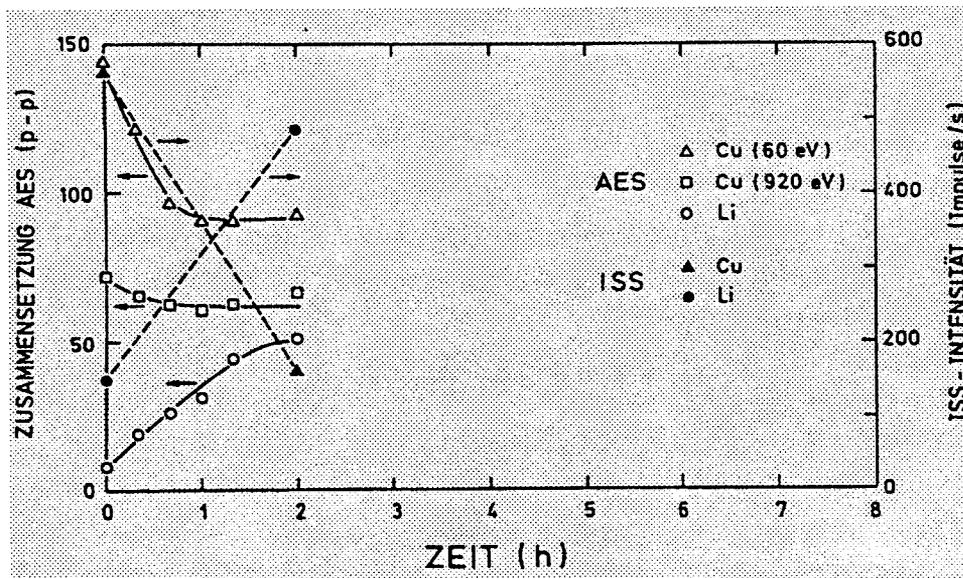


Abb. <5.9>: Die zeitliche Entstehung einer mit Lithium angereicherten Schicht bei Raumtemperatur nach [29]: Auger-Signale der Lithiumkomponente (43 eV-Linie) und der Kupferkomponente (60 eV- und 920 eV-Linie). Lithium segregiert mit einer Zeitkonstanten von ungefähr ein bis zwei Stunden. Die dargestellten Signalintensitäten von AES und ISS (peak-peak bzw. Impulse/s) sind jeweils proportional zur Oberflächenkonzentration.

Abbildung <5.9> zeigt die Zeitabhängigkeit von AES-Signalen der Lithium- und der Kupferkomponente eines Targets bei Raumtemperatur. Vorangegangen war ein Beschuß der Oberfläche mit 1 keV-Argonionen der Gesamtfluenz $10^{17} \text{ Ar}^+/\text{cm}^2$, um eine eventuell vorhandene angereicherte Schicht vorweg abzutragen. Man erkennt deutlich, daß bei

Raumtemperatur ohne Ionenbeschuß ein thermischer Segregationsprozeß der Lithiumkomponente stattfindet, dessen typische Zeitkonstante ca. ein bis zwei Stunden beträgt. So hat sich der Lithiumgehalt in Oberflächennähe in dieser Zeit etwa verfünffacht. Geht man davon aus, daß Li zu Beginn auch an der Oberfläche in Volumenkonzentration vorlag (siehe unten), dann bedeutet dies das Erreichen einer vollständigen Lithiumbedeckung der Oberfläche nach mehr als einer Stunde.

Die in Garching benutzte Ionenquelle stellt bei einer Strahlenergie von 1 keV eine Flußdichte von ca. $6 \times 10^{13}/\text{cm}^2\text{s}$ (bei Ar^+) und ca. $1,3 \times 10^{14}/\text{cm}^2\text{s}$ (bei He^+) auf der Targetoberfläche zur Verfügung. Die volle Halbwertsbreite des radialen Ionenstrahlprofils beträgt dort 1,34 mm. Die Abtragung der Lithium-Anreicherung kann, da es sich im Vergleich zum Jülicher Experiment um recht geringe Flußdichten handelt, mit guter zeitlicher Auflösung gemessen werden. In Abbildung <5.10> ist das Verhältnis der mit AES und ISS bestimmten Oberflächenkonzentrationen von Cu und Li als Funktion der insgesamt deponierten Fluenz für Helium- und Argonbeschuß dargestellt. Vorgegangen war der in Abbildung <5.9> dokumentierte "freie" Segregationsvorgang ohne Ionenbeschuß.

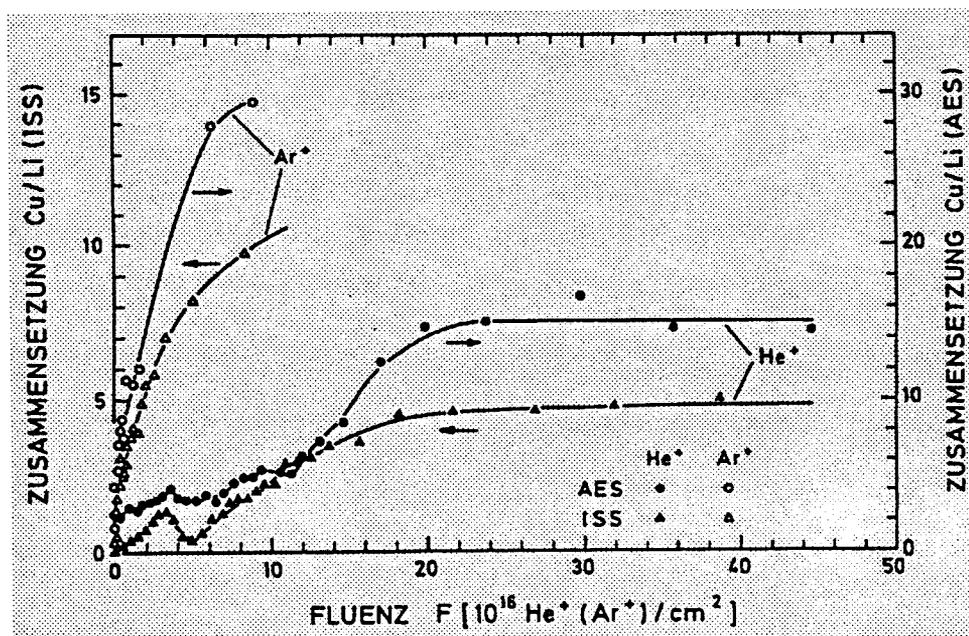


Abb. <5.10>: Abtragung der mit Lithium angereicherten Schicht unter 1 keV Argon- und Heliumbeschuß bei Raumtemperatur nach [29]. Die Zusammensetzung der oberflächennahen Schichten ist als Verhältnis der AES- und ISS-Intensitäten als Funktion der deponierten Fluenz in willkürlichen Einheiten dargestellt.

Man erkennt, daß die Lithiumschicht nach einer Deposition von ca. 2×10^{16} Argonionen/cm² der Energie 1 keV deutlich abgereichert ist. Bei der Jülicher Ionenquelle wäre dies schon nach wenigen Sekunden der Fall. Ein Beschuß durch Heliumionen vermag dagegen nicht, die angereicherte Schicht vollständig zu verarmen. Nach ca. 2×10^{17} He⁺/cm² erreicht man einen Gleichgewichtszustand, wobei die Lithiumkonzentration in Oberflächennähe etwa halb so groß ist, wie unter permanentem Argonbeschuß.

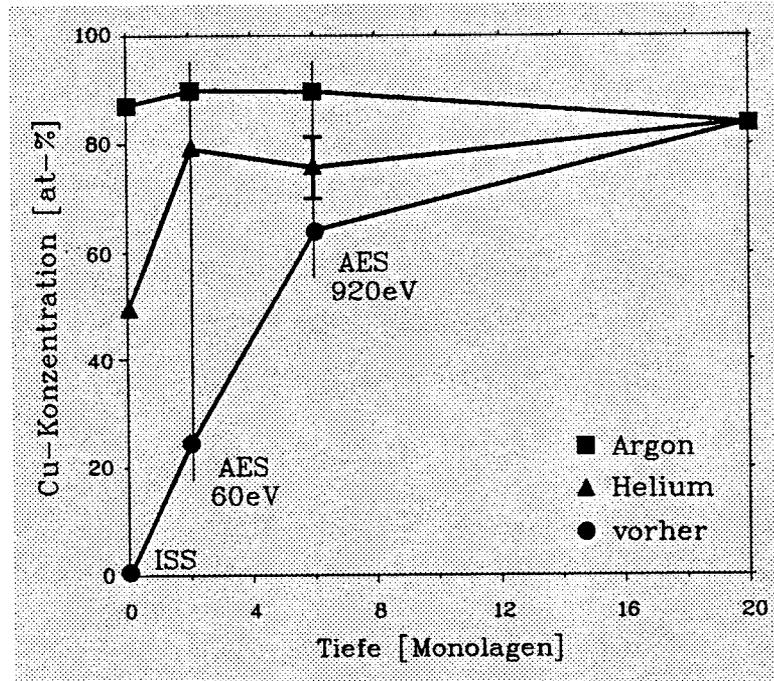


Abb. <5.11>: Mit ISS und AES bestimmte Tiefenprofile der Kupferkomponente bei Raumtemperatur (nach [29]): Vor der Zerstäubung, nach einer Deposition von 10^{17} Heliumionen/cm² und nach 10^{17} Argonionen/cm² jeweils der Energie 1 keV. Eine Monolage Lithium entspricht einer Tiefe von etwa 0,4 nm.

Abbildung <5.11> zeigt aus den Datensätzen der beiden vorigen Darstellungen abgeleitete Kupfer-Tiefenprofile vor und nach einem Helium- und Argonbeschuß von 1 keV Energie und einer Gesamtfluenz von jeweils 10^{17} Ionen/cm². Die 20. Monolage wurde hierbei willkürlich der Volumenkonzentration von 16,9 at-% zugeordnet. Man erkennt auch hier deutlich, daß nach einem Argon-Beschuß dieser Größenordnung bei Raumtemperatur keine Lithium-Anreicherung mehr vorhanden ist. Außerdem ist eine leichte bevorzugte Zerstäubung der Lithiumkomponente zu beobachten: Die Konzentration von Cu steigt in Oberflächennähe geringfügig über den Volumenwert an. Dies kann durch die mit Laserfluoreszenz gefundene Zerstäubungsausbeute reinen Lithiums (→ Abbildung <5.8>)

erklärt werden, die bei Argonbeschuß etwas größer ist als die entsprechende Kupferausbeute. Bei Helium ist, bedingt durch seine generell geringeren Komponenten-Zerstäubungsausbeuten, im Gleichgewicht noch eine deutlich sichtbare Li-Anreicherung vorhanden. Die Lithiumkonzentration beträgt hier ca. 50 at-% in Oberflächennähe. In Übereinstimmung mit dem Wert der elementaren Lithiumausbeute, der bei He^+ -Beschluß kleiner ist als die entsprechende Kupferausbeute (\rightarrow Abbildung <5.8>), läßt sich im Tiefenprofil hier keine bevorzugte Zerstäubung von Lithium erkennen.

In [29] wurde ferner das Segregationsverhalten von Cu/Li-Legierungen bei einer Proben temperatur von 230°C untersucht. Nach einem Reinigungsbeschuß durch 1 keV Argonionen wurde die zeitliche Änderung der Oberflächenzusammensetzung des Targets mit AES untersucht:

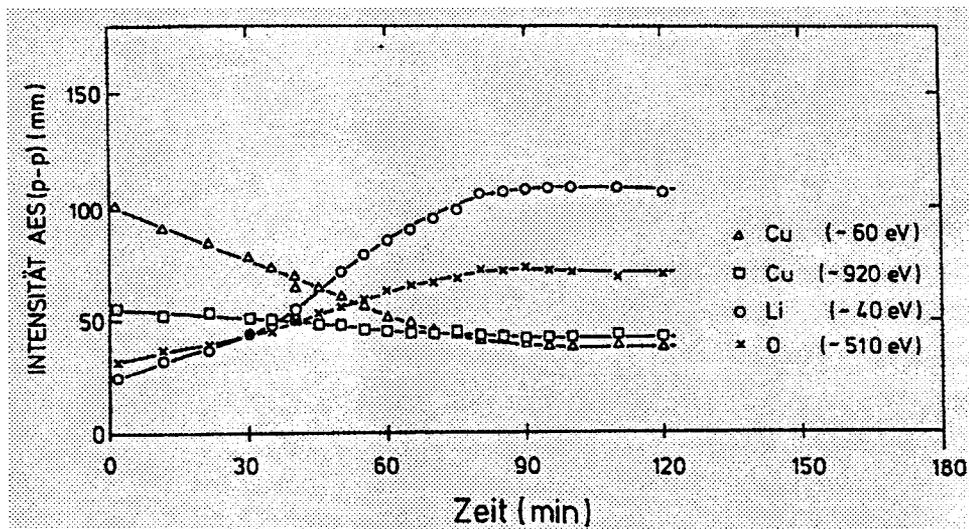


Abb. <5.12>: Zeitliches Anwachsen einer mit Lithium angereicherten Schicht bei einer Substrattemperatur von 230°C (nach [29]). Außer diversen AES-Signalen für Li und Cu ist der zeitliche Anstieg von Sauerstoff dargestellt. Näheres dazu findet sich in Ref. [98].

Man stellt fest, daß auch bei dieser deutlich gegenüber Raumtemperatur erhöhten Targettemperatur die Zeitkonstante der Segregation unverändert ca. 90 Minuten beträgt. Allein der Quotient aus Lithiumintensität (40 eV-Linie) und Kupferintensität (60 eV-Linie) ist gegenüber Raumtemperatur (\rightarrow Abb. <5.9>) um einen Faktor fünf angestiegen. Da die beiden Auger-Linien hinsichtlich ihres Informationsgehaltes über die ersten zwei bis drei atomaren Monolagen der Legierung mitteln und außerdem schon bei Raumtemperatur eine vollständige Lithiumbedeckung erreicht wird, kann man den Schluß ziehen, daß mit steigender Materialtemperatur die Dicke der lithiumangereicherten Schicht wächst.

5.3. Verhalten der Legierung bei erhöhten Temperaturen

5.3.1. Verdampfung der Lithium-Komponente

Beim Aufheizen des nominell 16,9 at-%igen Kupfer/Lithium-Targets fiel zunächst auf, daß das Material seine Lithium-Komponente oberhalb von etwa 250°C aus dem Festkörper heraus verdampft, man spricht demnach besser von Sublimation. Gleiches wurde schon früher bei Aluminium/Lithium-Legierungen gefunden [102]. Dieses Verhalten ist in den ersten Veröffentlichungen über Cu/Li von D.M.Gruen et al. nicht erwähnt worden. Mittels LIF wurden die Abdampfraten des Materials temperaturabhängig mit und ohne die Anwesenheit eines zerstäubenden Ionenstrahls gemessen. Wie man es erwartet, folgt der Fluß der verdampften Li-Atome einer Arrhenius-Beziehung:

$$\Phi_{\text{evap}}(T) \sim \exp(-\Delta E/kT) \quad (5.15)$$

wobei ΔE die Verdampfungsenergie darstellt. Ionenbeschuß beeinflusst im untersuchten Temperaturbereich von 280°C bis 450°C abgesehen von einer lokalen Aufheizung der Oberfläche die Li-Abdampfraten nicht. Abbildung <5.13> zeigt die auf die Targetoberfläche unter Annahme einer cosinusförmigen Winkelverteilung rückgerechneten Abdampfraten in Arrhenius-Darstellung. Die Verdampfungsenergie ergab sich mittels linearer Regression zu $\Delta E = 1,60$ eV. Im Vergleich dazu hat reines Lithium eine Verdampfungsenergie von 1,54 eV [37,103]. Beide Werte sind im Rahmen der Meßunsicherheit als gleich zu betrachten. Die absoluten Werte der Raten unterscheiden sich jedoch um recht genau eine Größenordnung. Die thermische Abdampfrate eines Elements läßt sich aus dem Dampfdruck p_s bei einer gegebenen Temperatur nach [103] berechnen:

$$\Phi_{\text{evap}}(T) = \frac{1,84 \times 10^{22}}{(MT)^{1/2}} p_s(T) \quad \left[\frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2 \text{s}} \right] \quad (5.16)$$

wobei M die Masse des betreffenden Atoms in amu bedeutet und p_s in hPa zu nehmen ist. Der Dampfdruck von elementarem Lithium bestimmt sich nach der folgenden empirischen Beziehung. Es handelt sich um ein quadratisches Fitpolynom an den Datensatz aus [37]:

$$\lg(p_s) = -\frac{51786}{T^2} - \frac{7914,9}{T} + 7,975 \quad [\text{hPa}] \quad (5.17)$$

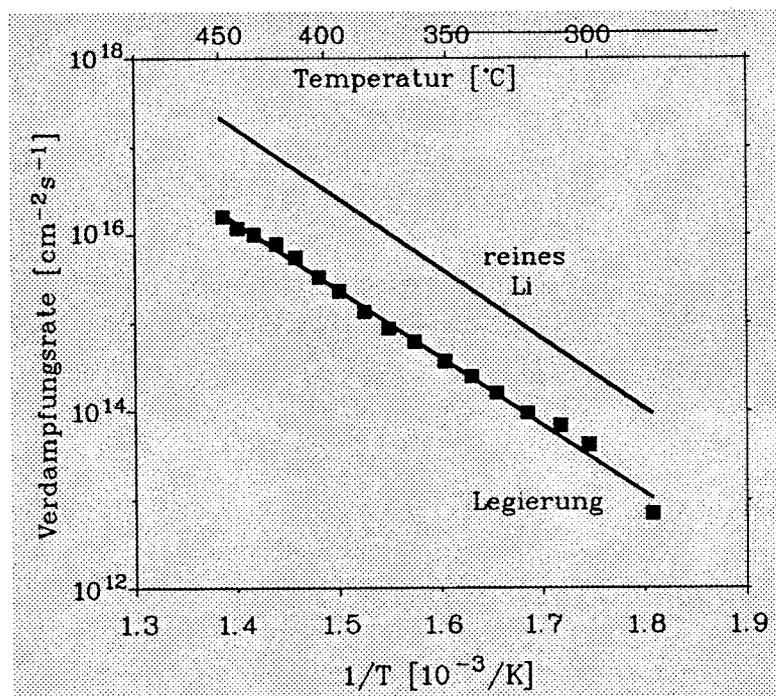


Abb. <5.13>: Verdampfungsrate der Lithium-Komponente der Legierung ($\Delta E=1,6$ eV) im Vergleich zu der von reinem Lithium, die nach (5.16) und [37,103] ($\Delta E=1,54$ eV) berechnet wurde. Die mit LIF gemessenen Raten sind im gesamten dargestellten Temperaturbereich unabhängig von einem Ionenbeschuß.

Die Steilheit der Arrhenius-Geraden bzw. die daraus abgeleitete Verdampfungsenergie eines Elements wird durch die Bindungsstärke bestimmt, mit der die Atome beim Verlassen des Festkörpers an seine Oberfläche gebunden sind. Aus der Gleichheit der mit LIF ermittelten Verdampfungsenergie der Lithiumkomponente der Legierung mit der tabellierten der reinen Substanz kann man schließen, daß die sublimierenden Lithiumatome fast ausschließlich Bindungen mit weiteren Lithiumatomen eingegangen sind. Cu/Li-Bindungen würden eine deutlich steilere Arrhenius-Gerade liefern (\rightarrow (5.13), 2,32 eV). Man kann daraus folgern, daß das Material im gesamten betrachteten Temperaturbereich mit und ohne Ionenbeschuß durch mindestens ein bis zwei atomare Monolagen bedeckt ist, die zum größten Teil aus Lithium bestehen.

Mit Hilfe der Fluoreszenz-Spektroskopie ist nur das monoatomare neutrale Lithiumatom zugänglich. Nach [104] ist jedoch der Anteil von Li_2 und größeren Clustern bei Verdampfung zu vernachlässigen. Er liegt bei einer Oberflächentemperatur von 700 K in der Größenordnung von 1%. Außerdem können mit LIF ionisierte Lithium-Atome nicht erfaßt werden. Ihr Anteil an der Verdampfung hängt im wesentlichen von der Dicke der

angereicherten Schicht und deren Bedeckung mit Sauerstoff ab und dürfte hier bei mindestens ein bis zwei vollständigen Lithiumschichten und einem Restgasdruck im Rezipienten von $< 5 \times 10^{-8}$ hPa unter 10% liegen. Quantitative Untersuchungen und Modelle, die den deutlich größeren Unterschied zur aus dem Sättigungsdampfdruck errechneten Abdampftrate reinen Lithiums erklären können, liegen nicht vor.

Die Tatsache, daß Lithium in erheblicher Menge aus einem Festkörper verdampft bzw. sublimiert, wird ausgenutzt, um einen sehr kompakten, leicht handhabbaren und in jeder räumlichen Lage zu verwendenden Atomstrahlafen zu konstruieren, der die Nachteile der Verwendung von flüssigem Lithium nicht hat. Eine wichtige Anwendung ist z.B. die Diagnostik von Fusionsplasmen durch einen thermischen Lithium-Atomstrahl. Hiermit können in der Randschicht von Tokamaks Elektronendichteprofile orts- und zeitaufgelöst gemessen werden. Eine detaillierte Beschreibung eines Ofens, der eine im Handel erhältliche Al/Li-Legierung benutzt, findet sich in [105].

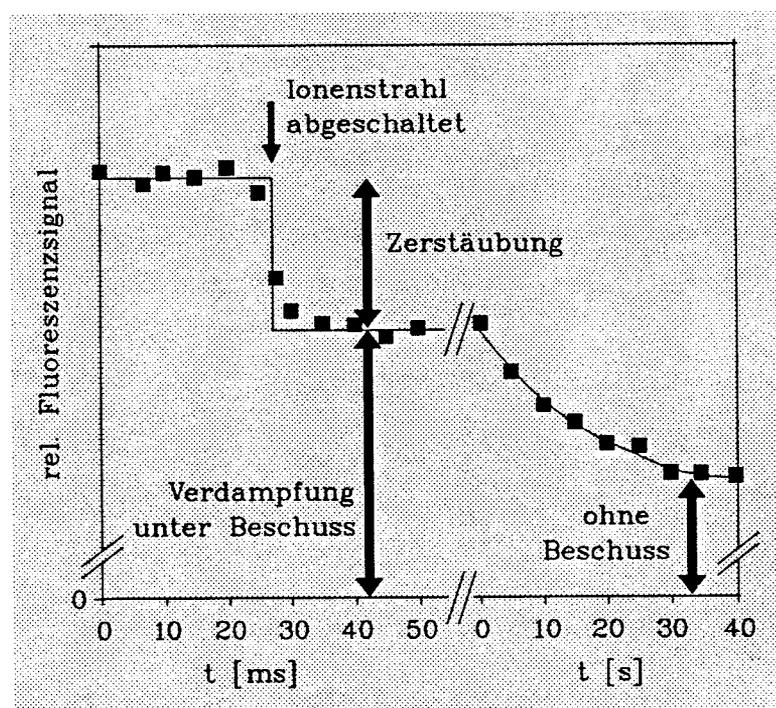


Abb. <5.14>: Trennung der Verdampfungs- und Zerstäubungskomponente von Lithium durch kurzzeitiges schnelles elektrostatisches Ablenken des Ionenstrahls vom Target auf eine Prallplatte. Hier ist als Beispiel eine Messung an einem 380°C heißen Target unter 6 keV Ar⁺-Beschuss dargestellt.

Das stetige Verdampfen von Lithium stellt bei hohen Temperaturen hinsichtlich der

gleichzeitig erforderlichen Messung von Lithium-Zerstäubungsraten ein Problem dar. Bedingt durch die deutlich niedrigere mittlere Transportgeschwindigkeit von thermischen im Vergleich zu abgestäubten Atomen ist die Meßgröße der LIF, nämlich die Dichte der Li-Atome im Fluoreszenzvolumen, bei ansonsten vergleichbaren Flußdichten erheblich höher. Mit steigender Targettemperatur gibt es einen immer größer werdenden Sockelbetrag im Fluoreszenzsignal, der auf Verdampfung zurückzuführen ist. Es wird daher bei hohen Temperaturen immer schwieriger, den Anteil zu messen, den abgestäubte Atome zur Fluoreszenz beitragen. Es konnten aus diesem Grund Geschwindigkeitsverteilungen abgestäubter Lithiumatome bei hohen Temperaturen nur mit stark reduzierter Genauigkeit gemessen werden. Die Maxwellverteilung der thermischen Teilchen dominiert die Thompsonverteilung der abgestäubten um mehr als eine Größenordnung, sodaß der Meßfehler bei einer Bestimmung von Bindungsenergien abgestäubter Li-Atome keine verlässliche Aussage über deren Größe mehr möglich macht.

Abbildung <5.14> zeigt, wie die beiden Anteile meßtechnisch getrennt werden können. Der Ionenstrahl wird dazu schnell ($< 0,1$ ms) mittels zweier paralleler Platten elektrostatisch vom Target weggelenkt. Dargestellt ist hier der Verlauf des Fluoreszenzsignals vor, während und nach einer schnellen Abschaltung eines Argon-Ionenstrahls der Energie 6 keV bei einem 380°C heißen Cu/Li-Target. Der momentane Abfall des Meßsignals entspricht dem Zerstäubungsanteil, der verbleibende Sockelbetrag dem Verdampfungsanteil. Es stellt sich heraus, daß das Signal nach der Strahlabschaltung mit einer relativ großen Zeitkonstante von ca. 10 bis 20 Sekunden weiter absinkt. Dies ist auf eine zusätzliche lokale Aufheizung der Targetoberfläche durch den Ionenstrahl zurückzuführen. Sie wird von einem Thermoelement, das sich auf der Rückseite des Targets befindet und zur Temperaturregelung dient, nicht wahrgenommen. Aus der Differenz zwischen Abdampftrate mit und ohne Beschuß kann errechnet werden, daß das 2 mm dicke Target z.B. bei 6 keV Argon-Beschuß durch ca. 3×10^{15} Ionen/cm²s (entsprechend einer Energiedeposition von 3 W/cm^2) einen Temperaturgradienten von bis zu 30 K zwischen seiner Oberfläche und der Rückseite aufweisen kann.

5.3.2. Zerstäubung der Kupfer- und Lithiumkomponente

Wie die Ergebnisse aus Kapitel 5.2 gezeigt haben, ist bei einer Targettemperatur, die nahe Raumtemperatur liegt, keine nennenswerte Herabsetzung der Cu-Zerstäubung beobachtet worden. Da die Theorie eine deutliche Beschleunigung von Diffusions- und Segregationsprozessen mit steigender Temperatur erwarten läßt, ist eine Untersuchung der Zerstäubungseigenschaften bei erhöhten Materialtemperaturen notwendig. Das Cu/Li-Target

wurde zunächst unter permanentem Beschuss durch 6 keV-Argonionen der Flußdichte 3×10^{15} Teilchen/cm²s innerhalb von einer Stunde zeitlinear von Raumtemperatur bis auf 475°C aufgeheizt. Die Anstiegszeit der Temperaturrampe wurde so langsam gewählt, daß sich stets ein Gleichgewicht in den Zerstäubungsraten einstellen konnte. Die partiellen Zerstäubungsausbeuten der beiden Bestandteile Kupfer und Lithium wurden währenddessen mit LIF in Abhängigkeit von der Oberflächentemperatur gemessen (Abb. <5.15>).

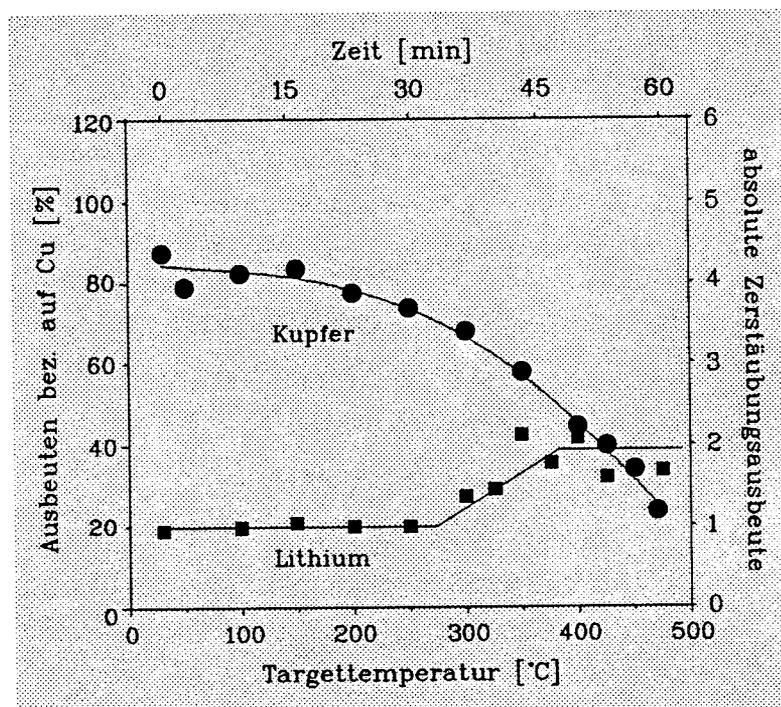


Abb. <5.15>: Zeitlicher Verlauf der mit LIF gemessenen partiellen Zerstäubungsausbeuten von Cu und Li bei langsamer zeitlinearer Targetaufheizung unter permanentem Argon-Ionenbeschuss der Energie 6 keV und der Flußdichte 3×10^{15} /cm²s.

Die Kupferflüsse lassen sich hierbei ausgehend von etwa 83% (Volumenkonzentration bei Raumtemperatur) um einen Faktor von etwa vier auf 20% der Raten eines reinen Kupfertargets reduzieren (475°C). Die Lithiumzerstäubung steigt ausgehend von einer der Oberflächenkonzentration von 18% entsprechenden partiellen Ausbeute von etwa eins (Raumtemperatur, → Abbildung <5.6>) um einen Faktor von ca. zwei an (475°C). Nach der TRIDYN-Simulationsrechnung für ein Cu/Li-Schichtsystem aus Kapitel 2.5 (siehe Abbildung <2.5>) entspräche dies einem Li-Schichtdickenwachstum von 0,2 auf 1,65 Monolagen. Der Verlustmechanismus Ionenzerstäubung ist offensichtlich auch bei erhöhten Targettemperaturen noch zu intensiv gegenüber dem Nachlieferungsmechanismus Segregation, um die Kupfer-Zerstäubung dauerhaft und hinreichend zu reduzieren.

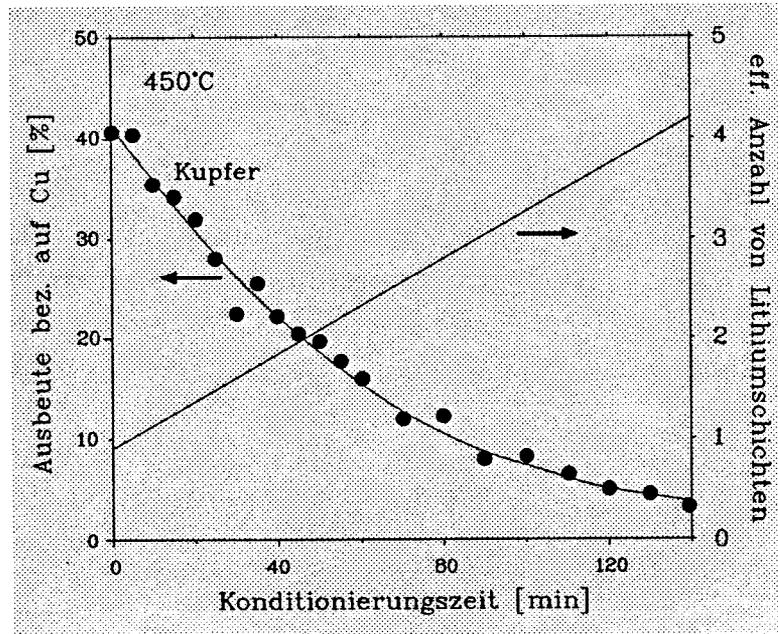


Abb. <5.16>: Anwachsen der Li-Schicht bei einer Temperatur von 450°C. Die effektive Anzahl der oberflächennahen Atomlagen wurde unter Zuhilfenahme der TRIDYN-Modellierung (siehe Abb. <2.5>) gerechnet.

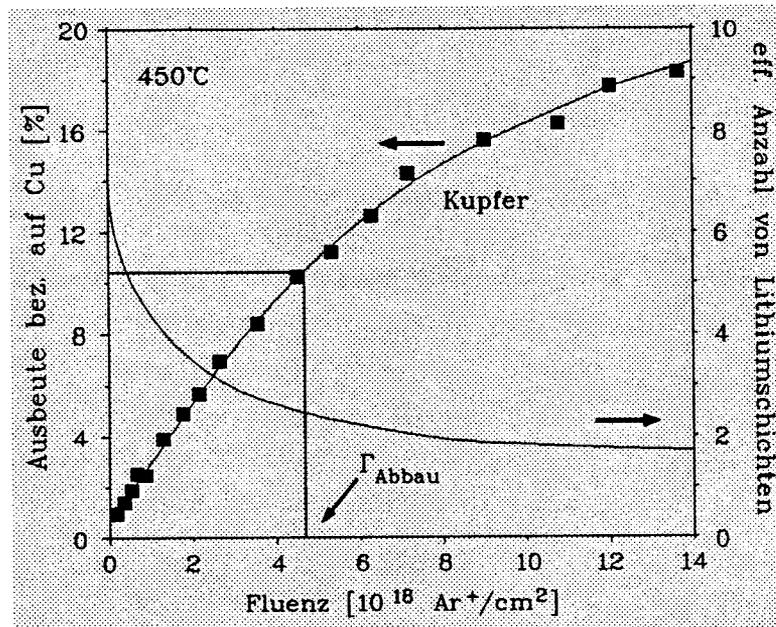


Abb. <5.17>: Abtragung der Schicht bei 450°C unter Ar^+ -Beschluß von 6 keV. Die Li-Schichtdicke wurde wieder unter Zuhilfenahme von TRIDYN aus der relativen Herabsetzung der Cu-Zerstäubung gerechnet. Die charakteristische Abbaufluenz Γ_{Abbau} beträgt $4,7 \times 10^{18} \text{ Ar}^+/\text{cm}^2$.

Unter Heliumbeschuß wurde bei kaltem Target im Gleichgewicht eine höhere Lithiumkonzentration in Oberflächennähe gefunden als unter Argonbeschuß (→ Kapitel 5.2.3, Abbildung 5.17>). Grund hierfür ist die geringere Komponenten-Zerstäubungsausbeute von Li unter He⁺-Bombardement, die Legierung erleidet bei ansonsten unwesentlich verändertem Segregationsstrom weniger Verluste an Lithiumatomen. Es liegt daher nahe, den Verlustmechanismus Zerstäubung (d.h. den Argon-Ionenstrahl) für eine gewisse Zeit ganz auszuschalten, in der Hoffnung, daß sich so die Lithiumschicht an der Oberfläche vergrößert und die Cu-Ausbeute sinkt. Um ein Maß für den eventuellen Schichtaufbau und somit für die Anreicherung von Lithium zu bekommen, wird der Ionenstrahl alle fünf Minuten kurzzeitig für 10 Sekunden als "Testsonde" aktiviert, um in regelmässigen Abständen mittels Laserfluoreszenz die noch verbliebene Kupferzerstäubung messen zu können. Da die Pulsdauer des Ionenstrahls mit 10 Sekunden kurz gegenüber der Repetitionsrate von fünf Minuten ist, wird das Anwachsen der Lithiumschicht nicht wesentlich durch die Zerstäubung beeinflusst.

Wie Abbildung <5.16> zeigt, läßt sich die Kupferzerstäubung nach zwei Stunden derartiger "Konditionierung" um mehr als einen Faktor 20 gegenüber einem reinen Target herabsetzen. Eine Korrelation des Unterdrückungsfaktors mit der Dicke einer angenommenen reinen Schicht Lithiums durch TRIDYN (→ Abbildung <2.5>) zeigt, daß diese an der Oberfläche währenddessen von mehr als einer atomaren Monolage auf über vier Monolagen anwächst. Es ist interessant anzumerken, daß auch bei einer Targettemperatur von 450°C die Zeitkonstante der Schichtanreicherung unverändert gegenüber tieferen Temperaturen ca. 90 Minuten beträgt.

Nach dauerhaftem Wiedereinschalten des Ionenstrahls stellt man eine Abtragung der aufgewachsenen Schicht fest. Man kann die Abtragung der konditionierten Lithiumschicht durch eine Fluenz Γ_{Abbau} charakterisieren, die notwendig ist, um die über den Beschußgleichgewichtswert hinaus erreichte Unterdrückung der Kupferzerstäubung wieder zu halbieren. Bei einer Targettemperatur von 450°C ergibt sich (→ Abbildung <5.17>) $\Gamma_{\text{Abbau}}(450^\circ\text{C}) = 4,7 \times 10^{18} \text{Ar}^+/\text{cm}^2$. Nach einer deponierten Gesamtfuenz von etwa $2 \times 10^{19} \text{Ar}^+/\text{cm}^2$ ist der Ausgangs- und Gleichgewichtswert von 35% des reinen Elements entsprechend einer effektiven Bedeckung durch 1,1 Monolagen Lithium wieder erreicht.

In Abbildung <5.18> wurde die charakteristische Abbaufuenz für eine Targettemperatur von 350°C in gleicher Weise bestimmt. Vorangegangen war ein Konditionieren der Schicht bei dieser Temperatur von zwei Stunden ohne Ionenbeschuß. Ausgehend von einer maximal erreichten Unterdrückung der Kupferzerstäubung auf 20% des elementaren Wertes (entsprechend einer Schichtdicke von 1,65 Lagen) gelangt man nach etwa $1 \times 10^{17} \text{Ar}^+/\text{cm}^2$ zum Beschußgleichgewicht von 60% (entsprechend 0,6 Lagen) zurück. Die

charakteristische Abbaufluenz beträgt hier $\Gamma_{\text{Abbau}}(350^\circ\text{C}) = 9,5 \times 10^{16} \text{ Ar}^+/\text{cm}^2$.

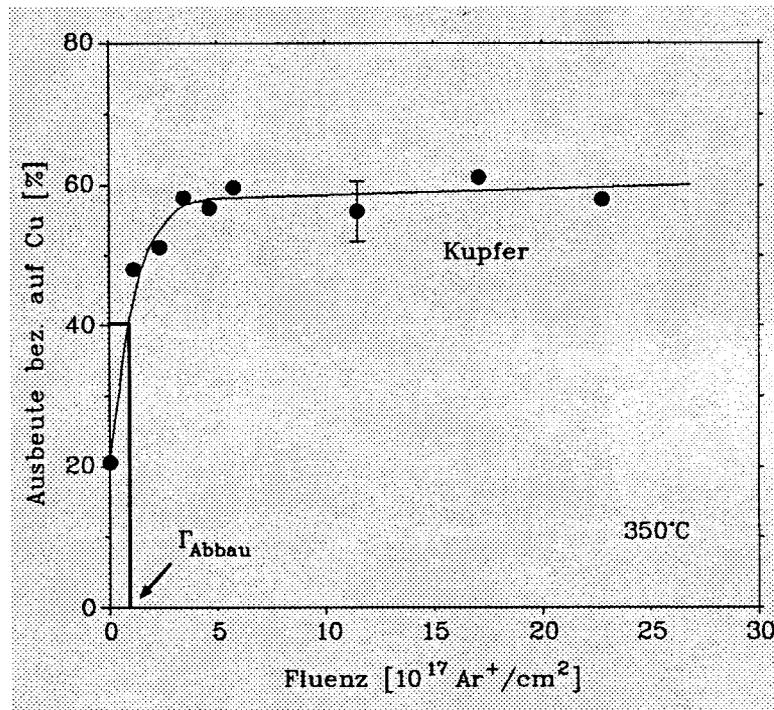


Abb. <5.18>: Abtragung der konditionierten Lithiumschicht bei 350°C unter Beschuß durch Ar^+ der Energie 6 keV. Die charakteristische Abbaufluenz Γ_{Abbau} beträgt hier $9,5 \times 10^{16} \text{ Ar}^+/\text{cm}^2$.

5.4. Diskussion der experimentellen Ergebnisse

Die Zerstäubungsexperimente an einem kalten Cu/Li-Target mit Ionenstrahlen der Energien 6 keV und 1 keV sowie Flußdichten von einigen $10^{15}/\text{cm}^2\text{s}$ haben gezeigt, daß eine Oberflächenanreicherung der Lithiumkomponente je nach Beschußion entweder nicht vorhanden ist oder im Gleichgewicht höchstens einer Bedeckung durch eine 50 at-%ige Lithiumlage entspricht. So ergibt für Argonbeschuß die Abschätzung der Li-Konzentration aus der Oberflächenbindungsenergie von Li den Wert der Volumenkonzentration (ca. 18 at-%) auch an der Oberfläche. Eine unabhängige Berechnung der Li-Oberflächenkonzentration aus der Reduzierung der Kupferzerstäubungsausbeute gegenüber einem elementarem Target ergibt einen vergleichbar großen Wert von 21 at-%. Auch die Bestimmung eines Tiefenprofils der Kupferkomponente mit ISS und AES bestätigt, daß eine eventuell vorhandene Segregation bei Raumtemperatur unter Argonzerstäubung durch stoßinduzierte Verlustprozesse dominiert wird. Andererseits ist sie dennoch vorhanden,

wie ein Tiefenprofil im beschußlosen Segregations-Gleichgewicht zeigt. Ein Bombardement mit leichteren Ionen, die generell geringere Zerstäubungsausbeuten als Argon hervorrufen, läßt dann auch ein leichtes Segregieren von Lithium unter Beschuß erkennen, wie man etwa dem Tiefenprofil von Kupfer unter Heliumbeschuß in Abbildung <5.11> entnimmt. Hier findet man ungefähr 50 at-% Lithium in der ersten atomaren Monolage der Legierung. Man erhält auch für die beiden leichteren Ionenarten aus der Reduzierung der Kupferausbeuten (→ Abbildung <5.7>) vergleichbare Werte für die Lithiumkonzentration: 43 at-% für He⁺ und 52 at-% für D⁺. Die Erosion der Cu-Komponente läßt sich bei derart niedrigen Lithiumbedeckungen höchstens um einen Faktor zwei unterdrücken. Für fusionsorientierte Anwendungen des Materials ist dieser Wert bei weitem unzureichend. Es scheint daher der Einsatz von Cu/Li bei Raumtemperatur in Fusionsanlagen sehr unwahrscheinlich zu sein.

Die Untersuchung des Materials bei erhöhten Temperaturen ergab überraschend, daß die Zeitkonstante, mit der sich, ausgehend von der Volumenkonzentration, eine lithiumangereicherte Schicht im beschußfreien Zustand aufbaut, bei 230°C und 450°C übereinstimmend etwa 90 Minuten beträgt. Diesen Wert findet man darüberhinaus auch bei Raumtemperatur (→ Abbildungen <5.10>, <5.12> und <5.16>). Die zeitliche Entstehung einer segregierten Li-Schicht ist im beschußlosen thermischen Gleichgewicht (rein "Gibbs'scher" Fall) nahezu temperaturunabhängig.

Die Dicke der segregierten Schicht wächst jedoch mit der Materialtemperatur deutlich an. Im beschußlosen Segregations-Gleichgewicht haben die AES- und ISS-Messungen bei Raumtemperatur ergeben, daß nur die erste atomare Monolage aus fast reinem Lithium besteht, während die zweite schon deutliche Mengen an Kupfer enthält. Bei 230°C hat sich das Verhältnis der AES-Signale von Lithium und Kupfer im Vergleich zu Raumtemperatur bereits um einen Faktor fünf erhöht. Da AES über die ersten zwei bis drei Monolagen mittelt und die erste Lage schon aus fast reinem Lithium besteht, kann dies nur als ein Anwachsen der Schichtdicke interpretiert werden.

Die Konstanz der Schichtanwachszeit kann zumindest tendenziell durch die mit der Temperatur steigende Schichtdicke erklärt werden. Betrachtet man nur die erste komplett angereicherte Monolage, so wird diese sicher mit steigender Materialtemperatur immer schneller aufgebaut werden. Einem sich eventuell beschleunigenden Schichtwachstum wirkt außerdem die Verdampfung der Lithiumkomponente stark entgegen.

Die Bestimmung der Herabsetzung der Kupferzerstäubung bezogen auf ein reines Target (→ LIF, Abbildungen <5.16> und <5.18>) erlaubt bei Zuhilfenahme der TRIDYN-Modellierung (→ Kapitel 2.5) die Bestimmung von effektiven Schichtdicken einer

hypothetischen reinen Lithiumbedeckung, die sich auf einem reinen Kupfersubstrat befindet. Auf diese Weise konnten für beschußlose Segregation bei einer Targettemperatur von 350°C eine Schichtdicke von 1,65 Lagen und bei 450°C eine von 4,2 Lagen gefunden werden. Auch die Kupferzerstäubung unter Argon-Dauerbeschuß (\rightarrow Abbildung <5.15>) läßt sich ausnutzen, um eine Gleichgewichtsbedeckung unter Ionenbeschuß auf dieselbe Art und Weise zu errechnen. Ausgehend von einem der Volumenzusammensetzung entsprechenden Wert von ca. 0,2 Atomlagen wächst die Bedeckung schließlich auf 1,65 Monolagen Lithium bei 475°C an. Abbildung <5.19> zeigt die so gewonnene effektive Anzahl von bedeckenden Lithiumlagen als Funktion der Temperatur mit und ohne Ar^+ -Beschuß, jeweils im Gleichgewichtszustand. Für Temperaturen oberhalb von etwa 350°C steigt die Lithiumbedeckung in beiden Fällen deutlich an.

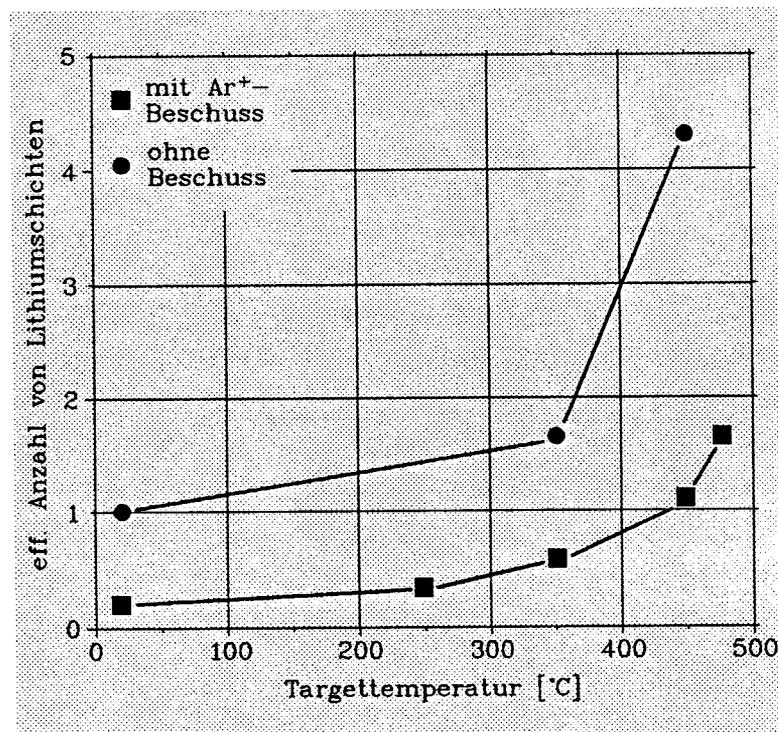


Abb. <5.19>: Effektive Dicke der angereicherten Lithiumschicht auf einem reinen Kupfersubstrat in Abhängigkeit von der Materialtemperatur, berechnet mit Hilfe der TRIDYN-Korrelation. Dargestellt sind die Gleichgewichtswerte der freien beschußlosen Segregation und die Gleichgewichtsbedeckung unter permanentem Argon-Beschuß (6 keV, $3 \times 10^{15}/\text{cm}^2\text{s}$).

Abbildung <5.20> zeigt die in Kapitel 5.3.2 definierte charakteristische Abbaufizienz Γ_{Abbau} für drei verschiedene Targettemperaturen: 25°C, 350°C und 450°C. Der Wert für

Raumtemperatur entstammt einer Messung mit AES und ISS (\rightarrow Abbildung <5.10>), während die anderen beiden Werte aus LIF-Messungen (\rightarrow Abbildungen <5.17> und <5.18>) entnommen wurden. Diese Fluenz, die notwendig ist, um eine durch beschußlose Segregation hervorgerufene Herabsetzung der Cu-Zerstäubung zur Hälfte wieder rückgängig zu machen, wächst mit der Materialtemperatur gewaltig an. Sie läßt sich im betrachteten Temperaturbereich um mehr als drei Größenordnungen steigern. Die Dicke der segregierten Lithiumschicht dagegen wächst im selben Intervall nur um einen Faktor von etwas mehr als vier. Würde man diese Schichtstruktur in Gedanken ohne das Mitwirken einer Segregation zerstäuben, d.h. kämen keine über ein einfaches Zurückweichen der Oberfläche hinausgehenden ("statischen") Nachlieferungsmechanismen für Li in Betracht, dann wären unter der Annahme einer Elementzerstäubungsausbeute von $Y_{Li} \approx 5$ (\rightarrow Abbildung <5.8>) alle in Abbildung <5.19> dargestellten Schichten schon nach einer Deposition von einigen $10^{15} \text{ Ar}^+/\text{cm}^2$ vollständig abgetragen. Bei Raumtemperatur hat dies sicher seine Richtigkeit. Bei Temperaturen oberhalb von etwa 200°C jedoch muß Lithium in vermehrtem Maße durch segregative Nachlieferung zur Aufrechterhaltung der Schicht herbeigebracht werden, um die beobachteten hohen Abbaufluenzen zu erklären.

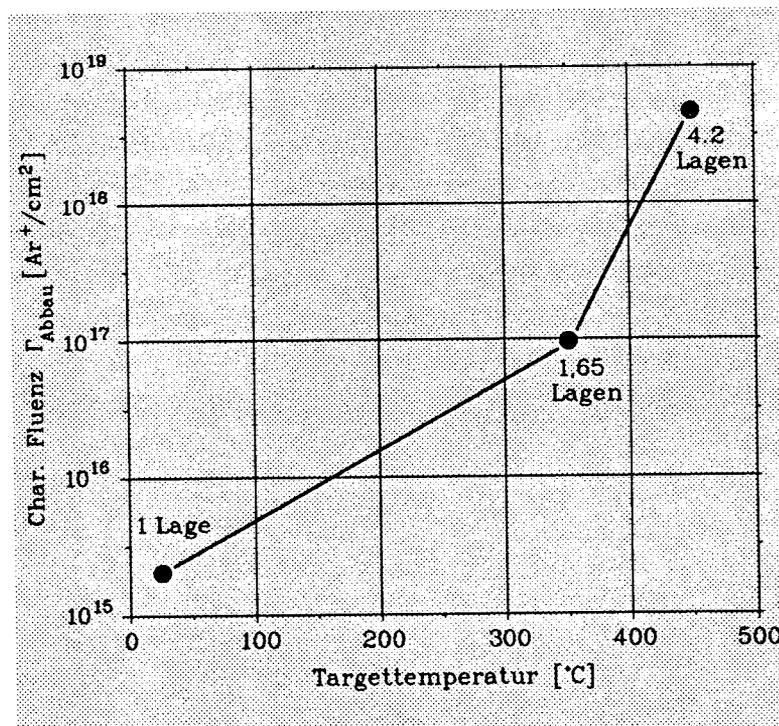


Abb. <5.20>: Charakteristische Abbaufluenz einer konditionierten Lithiumschicht (Γ_{Abbau}) als Funktion der Targettemperatur. Eingezeichnet ist ferner die effektive Dicke der lithiumangereicherten Schicht im beschußlosen Gleichgewicht, d.h. vor Beginn der Abtragung.

Da die Zeitkonstante der freien Segregation temperaturunabhängig mit 90 Minuten bei weitem zu klein ist [29], um einen Segregationsstrom der erforderlichen Größenordnung zu erzeugen, muß man zur Erklärung obiger Werte das Vorhandensein strahlungsinduzierter Diffusionsvorgänge annehmen. In [43,47] wird ein Modell beschrieben, das aufgrund von beschußbedingter Fehlstellenproduktion im Metallgitter und quasi-thermischer Prozesse einen um mehrere Größenordnungen gegenüber dem "normalen" thermischen Wert erhöhten Diffusionskoeffizienten enthält. Die "treibende Kraft", also die Segregation, hat es damit unter Ionenbeschuß leichter, Lithiumatome als Nachschub heranzuschaffen, da deren Mobilität durch eine nun mögliche Zwischengitterdiffusion deutlich angewachsen ist.

So postuliert B.Baretzky in ihrer Dissertation [29] schon bei Raumtemperatur eine beschußinduzierte Segregation: Ein von J. du Plessis in [48] aufgestelltes Mehrschichtenmodell der Segregation, das derartige Prozesse berücksichtigt, ergibt bei Anpassung an das in [29] gemessene Cu-Tiefenprofil unter He^+ -Beschuß (\rightarrow Abbildung <5.11>) einen Diffusionskoeffizienten von $5,1 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{s}$. Dieser Wert liegt tatsächlich ungefähr sechs Größenordnungen über typischen thermischen Diffusionskoeffizienten bei Raumtemperatur (z.B. $2,6 \times 10^{-26} \text{ m}^2/\text{s}$ für Al/Li [106]).

Wenngleich die beschußinduzierte Segregation mit zunehmender Materialtemperatur deutlich ansteigt, so läßt sich langfristig eine befriedigende Unterdrückung der Kupferzerstäubung selbst bei 450°C nicht erzielen. Der Ionenstrahl beschleunigt zwar erheblich die Nachlieferung von Lithium aus dem Legierungsinernen, die zerstäubungsbedingten Verluste sind jedoch stets größer. Im untersuchten Temperaturbereich gewinnt letztlich die Zerstäubung immer die Oberhand.

Die Ergebnisse dieser Arbeit zeigen eine weitgehende Übereinstimmung mit den vorausgegangenen Arbeiten von D.M.Gruen et al. und den Hochfluß-Zerstäubungsmessungen an PISCES (\rightarrow Kapitel 2.4). So wurde die Möglichkeit einer Schichterzeugung und deren endliche Lebensdauer bei Temperaturen über 400°C auch bei PISCES gefunden. Weiterhin stehen die dort ermittelten Unterdrückungsfaktoren der Kupferzerstäubung (Faktor 6 bei 450°C) in keinem Widerspruch zu der vorliegenden Arbeit. Die von Gruen et al. gefundene Lebensdauer einer angereicherten Schicht von ca. $10^{17} \text{ Ar}^+/\text{cm}^2$ unterhalb von 200°C steht in guter Übereinstimmung mit der in [29] bei Raumtemperatur gefundenen Schichtlebensdauer. Es gibt jedoch auch einige abweichende Resultate. Die von Gruen et al. gemessene permanente Anreicherung von Lithium oberhalb von etwa 300°C konnte nicht verifiziert werden. Vermutlich war die von der Argonner Gruppe benutzte Ionenflußdichte zu gering (sie ist drei Größenordnungen kleiner als die in Jülich benutzte), um die angereicherte Schicht zu zerstören. Unterhalb einer gewissen

Stromdichte ist offenbar der Segregationsprozeß bei hohen Temperaturen dominant. Auch konnte im Rahmen der vorliegenden Arbeit nicht verifiziert werden, daß Lithium vorwiegend als Ion abgestäubt wird. Ein Vergleich zwischen Messungen mit Laserfluoreszenz und Messungen mit Auffängertechnik zeigen, daß Lithium auch bei geringen Bedeckungen (\rightarrow Raumtemperatur) überwiegend als neutrales Atom die Targetoberfläche verläßt.

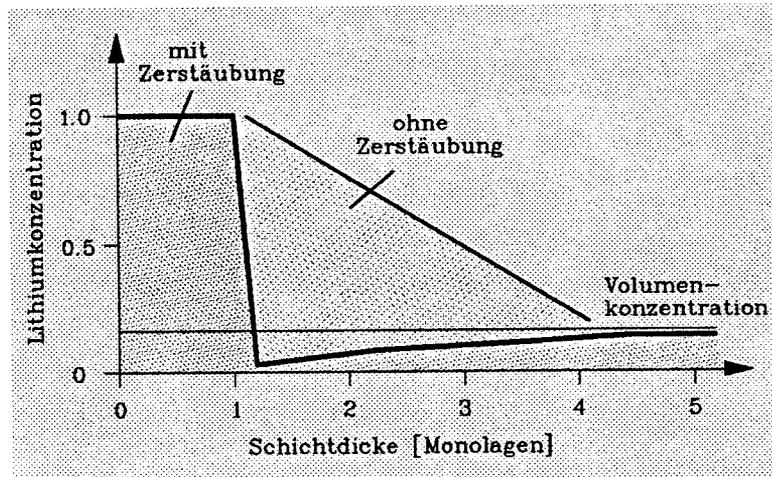


Abb. <5.21>: Typische Tiefenprofile der Lithiumkomponente bei hohen Materialtemperaturen im beschußlosen Gleichgewicht und im Gleichgewicht des Ionenbeschusses. Die erste Atomlage, welche die Verdampfung von Lithium bestimmt, wird durch Ionenbeschuß in ihrer Zusammensetzung bei Temperaturen oberhalb von etwa 350°C kaum geändert.

Schließlich sei noch die Unabhängigkeit der Lithium-Verdampfung von der Ionenzerstäubung kurz angesprochen. Im beschußlosen Segregations-Gleichgewicht kann sich ein ungestörtes Tiefenprofil der Lithiumkomponente ausbilden, das nicht durch eindringende Ionen aufgrund von Stoßvorgängen beeinflusst wird. Es fällt von der Oberfläche ($c_{\text{Li}}^s = 1$) bis hin zu einigen Monolagen Tiefe monoton auf den Wert der Volumenkonzentration ab. Bei Zerstäubung hingegen fordern gängige Modelle der Segregation (\rightarrow Kapitel 2.3, Abbildung <2.3>) ein Absinken der Li-Konzentration unter den Volumenwert in den sich unter der Oberfläche befindenden Atomlagen. Abbildung <5.21> zeigt typische Tiefenprofile für beide Fälle. Die erste atomare Monolage bestimmt mit ihrer Zusammensetzung das Verdampfungsverhalten von Lithium. Sie besteht bei Temperaturen oberhalb von etwa 350°C unabhängig von einem eventuellen Beschuß nahezu vollständig aus Lithium (\rightarrow Abbildung <5.19>). Die Unabhängigkeit der Verdampfung vom Ionenbeschuß ist demnach dadurch zu erklären, daß der die Verdampfung beeinflussende Schichtbereich in seiner Zusammensetzung nicht deutlich

durch Ionenbeschuß beeinflußt wird. Die oben abgeleitete und näher begründete beschußinduzierte Beschleunigung der Lithiumdiffusion ermöglicht darüberhinaus den Li-Atomen ein schnelleres Durchqueren der lithiumverarmten Zone während eines Ionenbombardements.

6. Einsatz von Cu/Li-Legierungen in Tokamaks – Extrapolation der experimentellen Ergebnisse dieser Arbeit auf reaktorrelevante Umgebungen

In einem Tokamak-Reaktor unterscheidet man zwei wesentliche Arten von Komponenten, die mit dem Plasma in Berührung kommen. Da sind zum einen die sogenannten Limiter. Sie begrenzen den Stromquerschnitt der Entladung und ziehen dadurch den Hauptteil der Plasma-Wand-Wechselwirkung auf sich. Ihre Oberflächen, die bei heutigen Maschinen aus Graphit oder Beryllium bestehen, werden mit Flußdichten von 10^{18} bis $10^{19}/\text{cm}^2\text{s}$ beaufschlagt. Auf der anderen Seite gibt es die "erste Wand", die innere Oberfläche des Torus. Sie besteht aus einem Metall, z.B. Inconel oder Edelstahl. Die erste Wand ist weiter vom Plasmarand entfernt als die Limiter und wird daher während einer Entladung mit wesentlich geringeren Flußdichten von ca. $10^{16}/\text{cm}^2\text{s}$ belastet. Ihre Gesamtfläche liegt jedoch Größenordnungen über der von Limiteroberflächen.

Die auf beide Oberflächen treffenden Flüsse gliedern sich grob in zwei Kategorien: Die "eigentlichen" leichten Plasmateilchen selbst (D, He und später T), und schwerere Verunreinigungsatome oder -ionen wie etwa Bor, Kohlenstoff, Sauerstoff und in geringem Maße Metallatome der ersten Wand. Letztere sind durch Zerstäubung von Strukturmaterialien (\rightarrow Selbsterstäubung) bzw. Desorptionsvorgänge ins Plasma gelangt. Das Geschwindigkeitsspektrum der auftreffenden Teilchen reicht von einigen 10 eV (Randschichtatome und -Ionen) bis hin zu einigen keV (Umladungsneutrale aus dem Plasmakern). Man findet bei heutigen Tokamaks mittlere Beschußenergien von ca. 100 eV bis 300 eV.

Die im letzten Kapitel vorgestellten experimentellen Ergebnisse wurden fast ausschließlich mit 6 keV Ar^+ erzielt und repräsentieren hinsichtlich Energie und Flußdichte des verwendeten Ionenstrahls den Beschuß der ersten Wand mit hochenergetischen schweren Plasmaverunreinigungen. Um sie auf den Parameterbereich kleinerer Beschußenergien und leichter Ionen skalieren zu können, wurde das Cu/Li-Target mit Helium-Ionen variabler Energie (100 eV bis 6 keV) zerstäubt. Die Ionenquelle selbst ist hierbei stets mit einer Extraktionsspannung von 6 kV betrieben worden, für welche ihre Beschleunigungsgitter optimiert sind. Niedrigere Aufprallenergien wurden dadurch erreicht, daß das Target mit einem entsprechenden positiven Potential versehen wurde, welches den 6 keV- He^+ -Strahl abbremst (\rightarrow Kapitel 4.1.2). Daher konnte eine über den ganzen Energiebereich konstante Stromdichte von $8 \times 10^{15} \text{He}^+/\text{cm}^2\text{s}$ aufrecht erhalten werden. Diese Parameter entsprechen der mittleren Beaufschlagung der ersten Wand durch typische Randschichtflüsse und Energien.

Das Kupfer/Lithium-Target wurde vor dem Beschuß durch zweistündiges Aufheizen auf 450°C mit einer schützenden Lithiumschicht versehen, es wurde gemäß dem in Kapitel 5.3.2 vorgestellten Verfahren konditioniert. Anschließend wurden bei dieser Temperatur die partiellen Zerstäubungsausbeuten der Kupfer- und der Lithiumkomponente unter He⁺-Beschuß mit laserinduzierter Fluoreszenz in Abhängigkeit von der Strahlenergie gemessen. Abbildung <6.1> zeigt das Resultat. Bei einer He⁺-Energie von 6 keV beträgt die Kupferausbeute $Y_{6\text{keV}} = 5,3 \times 10^{-3}$. Das bedeutet gegenüber der entsprechenden Ausbeute von reinem Kupfer ($2,3 \times 10^{-1}$, [69]) eine Herabsetzung um einen Faktor von mehr als 40. Für in einem Tokamak typische Randschicht-Energien von 200 eV findet man bei Cu im Mittel eine partielle Zerstäubungsausbeute von $Y_{200\text{ eV}}^{\text{part}} = 2 \times 10^{-3}$. Verglichen mit dem zugehörigen Wert für reines Kupfer (2×10^{-1} , [69]) bedeutet das eine Reduzierung um den Faktor 100. Die partielle Ausbeute von Lithium zeigt dagegen nur eine schwache Energieabhängigkeit. Sie steigt von 0,1 bei 100 eV auf 0,15 bei 6 keV.

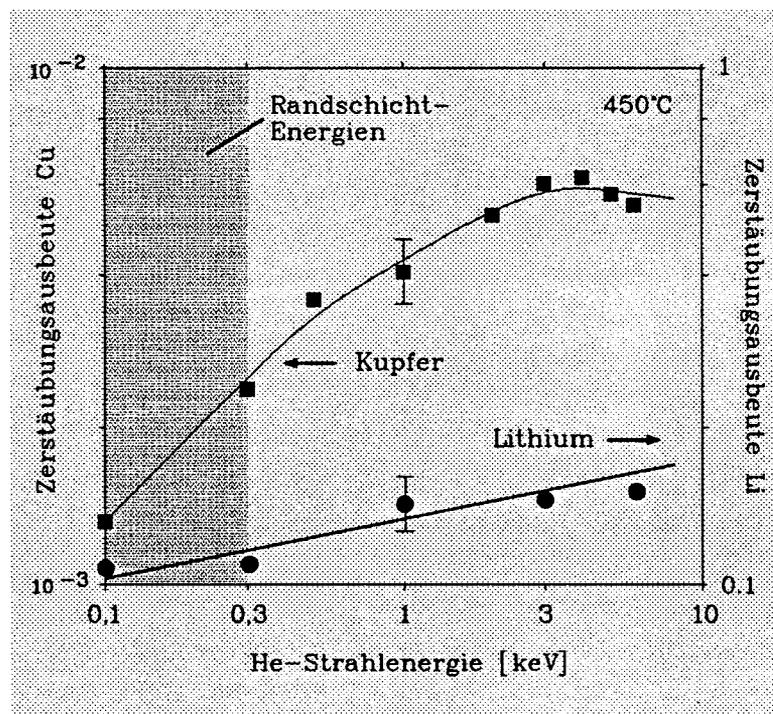


Abb. <6.1>: Mit LIF gemessene partielle Zerstäubungsausbeuten der Kupfer- und Lithiumkomponente eines Cu/Li-Targets unter Heliumbeschuß variabler Energie bei einer Targettemperatur von 450°C. Das Material wurde vorher durch Aufheizen konditioniert, d.h. mit einer schützenden Lithiumschicht versehen.

Im folgenden soll versucht werden, die Lebensdauer der lithiumangereicherten Schicht bei 450°C unter einem Beschuß durch Heliumpartikel mit typischen Randschichtenergien von

200 eV aus den vorliegenden Ergebnissen zu extrapolieren. Man definiert dazu, daß eine "schutzfähige" Lithiumschicht die Kupferzerstäubung um mindestens einen Faktor 10 gegenüber einem reinen Target herabsetzen soll. Diejenige Fluenz, die eine konditionierte, "noch bessere" Schicht bis genau zu diesem Schwellwert wieder abträgt, wollen wir als Beschußresistenz F^* bezeichnen. Man kann im vorigen Kapitel aus Abbildung <5.17> entnehmen, daß sie bei Beschuß durch 6 keV Ar^+ insgesamt $F^*_{\text{Ar, 6keV}} = 5 \times 10^{18} \text{ Ar}^+/\text{cm}^2$ beträgt. Extrapoliert man diesen Wert in linearer Weise auf den Fall von Helium-Beschuß der Energie 200 eV, so erhält man einen Ausdruck für die zugehörige Beschußresistenz:

$$F^*_{\text{He, 200 eV}} = F^*_{\text{Ar, 6 keV}} \times \frac{Y^{\text{part}}_{6 \text{ keV}}}{Y^{\text{part}}_{200 \text{ eV}}} \times \frac{Y_{\text{Cu rein, 6 keV Ar}}}{Y_{\text{Cu rein, 6 keV He}}} \quad (6.1)$$

Mit den teilweise bereits oben aufgeführten numerischen Werten

- $F^*_{\text{Ar, 6 keV}} = 5 \times 10^{18} \text{ Ar}^+/\text{cm}^2$ { Beschußresistenz bei 6 keV Ar^+ }
- $Y^{\text{part}}_{6 \text{ keV}} = 5,3 \times 10^{-3}$ { part. Cu-Ausbeute bei 6 keV He^+ }
- $Y^{\text{part}}_{200 \text{ eV}} = 2 \times 10^{-3}$ { part. Cu-Ausbeute bei 200 eV He^+ }
- $Y_{\text{Cu rein, 6 keV Ar}} = 5$ { reine Cu-Ausbeute bei 6 keV Ar^+ }
- $Y_{\text{Cu rein, 6 keV He}} = 0,23$ { reine Cu-Ausbeute bei 6 keV He^+ }

ergibt sich eine Resistenz der angereicherten Lithiumschicht von typisch $3 \times 10^{20} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ der mittleren Energie von 200 eV. Die bei Experimenten an PISCES (siehe Kapitel 2.4, [59,60]) gefundene Beschußresistenz von einigen $10^{21} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ der Energie 100 eV korreliert ziemlich gut mit diesem Wert. Im Gegensatz zu den damaligen Experimenten kann jetzt die Prozedur der Schichtkonditionierung quantitativ recht genau angegeben werden. Auch läßt sich das Verhalten einer Schicht mit Hilfe der Ausbeuten aus Abbildung <6.1> und Gleichung (6.1) im Prinzip für jede Helium-Strahlenergie bestimmen. Weiterhin kann die Auswirkung eines nicht monoenergetischen Heliumflusses, etwa die Beaufschlagung mit einem Maxwell-verteilten Randschichtplasma, berechnet werden.

Die zeitliche Überlebensdauer einer angereicherten Li-Schicht ist von der Flußdichte der Teilchen abhängig, die aus dem Tokamakplasma heraus das Cu/Li-Material zerstäuben. Für in heutigen Maschinen übliche Limiterflüsse von 10^{18} bis $10^{19}/\text{cm}^2\text{s}$ ergäbe sich eine Standzeit von weniger als 100 Sekunden. Der Einsatz von Cu/Li als Limiteroberfläche in einem (hypothetischen) kontinuierlich arbeitenden Tokamakreaktor ist somit auszuschließen, da das Material nach etwa einer Minute Plasmabetrieb eine Regenerationsphase von ein bis zwei Stunden (\rightarrow Abbildung <5.16>) benötigen würde.

Seine Verwendung bei einem gepulsten Tokamak-Konzept ist dagegen erfolgversprechender. Hier kann sich die Lithium-Oberflächenschicht zwischen einzelnen Plasmaentladungen ganz oder teilweise regenerieren. Von entscheidender Bedeutung für das Regenerationsvermögen ist dabei das "Tastverhältnis" η aus Entladungsdauer t_{Puls} und zeitlichem Abstand des Beginns zweier Entladungen, t_{Rep} :

$$\eta := t_{\text{Puls}} / t_{\text{Rep}} \quad (6.2)$$

$\eta=1$ würde demnach kontinuierlicher Betrieb bedeuten. Im folgenden soll untersucht werden, welches maximale Puls/Pausenverhältnis η_{max} in Abhängigkeit von der zerstäubenden Plasmaflußdichte Φ_{Plasma} toleriert werden kann, ohne eine fortschreitende Abtragung der Lithiumschicht zu bewirken. Dazu definieren wir, daß eine "vollständige Li-Schutzschicht" eine Dicke von mindestens vier Atomlagen haben soll. Weiter soll eine Dicke von zwei atomaren Monolagen Lithium als untere Grenze für das "Funktionieren" der Schicht betrachtet werden. Dem entspricht in etwa der weiter oben geforderte minimale Unterdrückungsfaktor 10 in der Cu-Zerstäubung.

Aus Abbildung <5.16> geht hervor, daß die Zeit, um die Schicht bei einer Targettemperatur von 450°C von zwei auf vier Monolagen anwachsen zu lassen, $\Delta t_{\text{Aufbau}} = 85$ Minuten beträgt. Weiter geht aus Abbildung <5.17> hervor, daß man eine Gesamtfluenz von $6,3 \times 10^{18} \text{ Ar}^+/\text{cm}^2$ benötigt, um die Schicht von vier wieder auf zwei Lagen zu reduzieren. Dem entspricht nach (6.1) eine Helium-Fluenz von $\Delta \Gamma_{\text{Abbau}} = 3,8 \times 10^{20} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ bei einer Energie von 200 eV. Die entsprechende Zeit, die dazu benötigt wird, ist

$$\Delta t_{\text{Abbau}} = \Delta \Gamma_{\text{Abbau}} / \Phi_{\text{Plasma}} \quad (6.3)$$

Diese Zeitspanne entspricht der maximal zu tolerierenden Pulslänge einer einzelnen Tokamakentladung, ohne die Funktionsfähigkeit der Lithiumschicht anzutasten. Die verbleibende Konditionierungs- oder Schichtaufbauzeit ist die Pausenlänge zwischen zwei Entladungen und läßt sich durch

$$\Delta t_{\text{Aufbau}} = t_{\text{Rep}} - t_{\text{Puls}} \quad (6.4)$$

beschreiben. Mit Hilfe dieser Beziehung sowie (6.2) und (6.3) läßt sich jetzt das maximal hinzunehmende Verhältnis aus Pulsdauer und Pulsabstand der Entladungen berechnen:

$$\eta_{\max} = \frac{\Delta\Gamma_{\text{Abbau}}}{\Delta t_{\text{Aufbau}} \Phi_{\text{Plasma}} + \Delta\Gamma_{\text{Abbau}}} \quad (6.5)$$

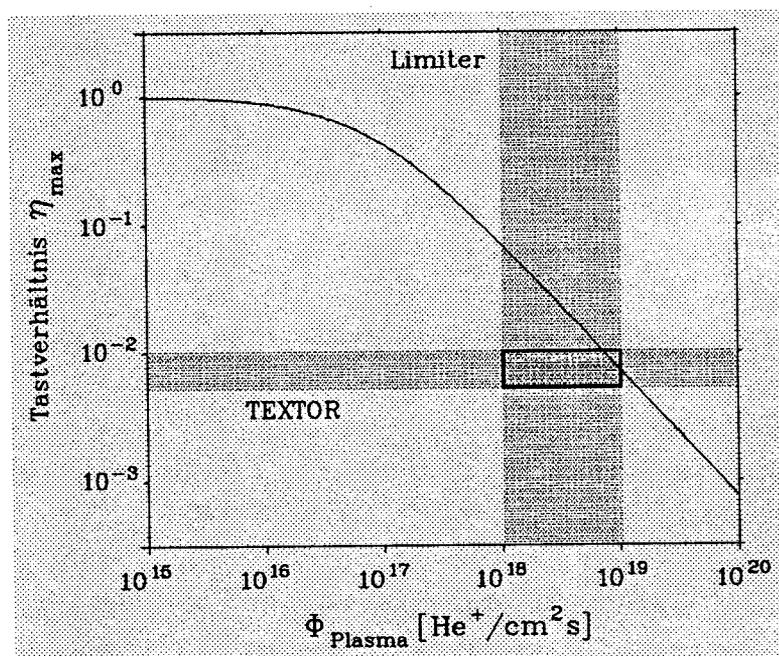


Abb. <6.2>: Graphische Darstellung von Beziehung (6.5). Zur Berechnung des maximalen Puls/Pausenverhältnisses η_{\max} wurden die Werte $\Delta\Gamma_{\text{Abbau}} = 3,8 \times 10^{20} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ und $\Delta t_{\text{Aufbau}} = 85$ Minuten benutzt. Der Parameterbereich typischer Limiterflüsse heutiger Tokamaks sowie das typische Puls/Pausenverhältnis des Jülicher Tokamaks TEXTOR sind eingezeichnet.

Abbildung <6.2> zeigt diesen Zusammenhang für Plasmaflüsse zwischen 10^{15} und $10^{20} \text{ He}^+/\text{cm}^2\text{s}$. Das wichtigste Ergebnis scheint zu sein, daß für typische Flußdichten, wie sie bei heutigen Maschinen auf Limiteroberflächen anzutreffen sind (10^{18} bis $10^{19}/\text{cm}^2\text{s}$) ein Puls/Pausenverhältnis von 1:100 nicht überschritten werden darf. Im Jülicher Tokamak TEXTOR, für den im Normalfall genau $\eta=10^{-2}$ gilt (3 Sekunden Pulsdauer bei mindestens 5 Minuten Pause), ist diese Bedingung knapp erfüllt. Es liegt daher nahe, dort Cu/Li-Material z.B. als Oberflächenbeschichtung auf Limiterköpfen zu testen. Man hätte bei normaler Schußfolge nach einer voranzugehenden zweistündigen Konditionierungsphase (Aufheizen ohne Plasmakontakt) ständig eine hinreichende Lithiumbedeckung zur Verfügung, welche die Kupfer-Zerstäubung um mindestens das zehnfache herabsetzt. Die

in dieser Arbeit vorgestellten laserspektroskopischen Verfahren eignen sich in besonderem Maße auch für die Anwendung im Tokamak. Sie ermöglichen eine lokale Bestimmung von Dichten und Geschwindigkeitsverteilungen beider Legierungspartner, ohne die Plasmaeigenschaften durch den Meßvorgang zu beeinflussen.

Bei Flußdichten unterhalb von $10^{16} \text{ He}^+/\text{cm}^2\text{s}$ ist ein fast kontinuierlicher Betrieb möglich. Hier liegt η nahe bei eins. Der Einsatz als Material für die erste Wand scheint also zunächst auch für ununterbrochenen Plasmakontakt machbar zu sein. Die thermische Verdampfung der Lithium-Komponente ist dafür jedoch ein ernstzunehmendes Hindernis.

In Kapitel 5.3.1 wurde die Verdampfungsrate der Lithium-Komponente bestimmt. Bei einer Materialtemperatur von 450°C beträgt sie $2 \times 10^{16} \text{ Li}^0/\text{cm}^2\text{s}$. Der entsprechende Massenverlust beläuft sich auf 20 mg pro Tag und cm^2 . Bei einem Einsatz als Limitermaterial ist die Oberfläche, die aus Cu/Li besteht, sehr klein im Vergleich zur gesamten Innenfläche eines Tokamak-Torus. Man kann daher kein thermisches Gleichgewicht zwischen der heißen Cu/Li-Oberfläche und dem kühleren Rest der Torus-Innenfläche annehmen. Dies bedeutet, daß die abgedampften Lithiumatome für die Legierung unwiederbringlich verloren sind und nicht redeponiert werden. Eine 3 mm dicke und 16,9 at-%ige Cu/Li-Beschichtung eines Limiters enthält ca. 60 mg Lithium pro cm^2 . Ihr Li-Inventar wäre demnach schon nach drei Tagen alleine durch Verdampfung aufgezehrt.

Anders verhält es sich, wenn etwa die gesamte Innenfläche einer ersten Wand mit der Legierung überzogen werden sollte. Wenn sich die innere Oberfläche des Torus in ihrer Gesamtheit auf einer Temperatur von 450°C befindet, kann man ein thermodynamisches Gleichgewicht zwischen der Wand und dem Innenvolumen annehmen. Es wird dann im Mittel genausoviel Lithium verdampft wie redeponiert. Im Volumen stellt sich als Folge ein konstanter Lithium-Partialdruck ein. Bei 450°C und der oben genannten Verdampfungsrate von $2 \times 10^{16}/\text{cm}^2\text{s}$ errechnet er sich nach Beziehung (5.16) zu

$$p_{\text{Li}, 450^\circ\text{C}} = 7,7 \times 10^{-5} \text{ hPa} \quad (6.6)$$

Der Deuterium-Fülldruck kurz vor einer Tokamak-Entladung ist bei TEXTOR in der Größenordnung von 10^4 hPa . Das zu zündende Gasmisch bestünde also schon von vorneherein im wesentlichen aus Lithium ! Dieser Wert ist deutlich zu hoch. Die recht intensive thermische Verdampfung der Lithium-Komponente dürfte ein großflächiges Aufheizen des Materials unmöglich machen.

Die Perspektiven hinsichtlich eines Einsatzes der untersuchten 16,9 at-%igen Cu/Li-Legierung in Tokamaks können in einigen kurzen Sätzen zusammengefaßt werden:

- notwendig ist eine dem Plasmabetrieb vorausgehende Konditionierung des Materials durch mehrstündiges Aufheizen auf 450°C. Zur weiteren Aufrechterhaltung der Schutzfunktion der Lithiumschicht muß die Temperatur auch bei Plasmakontakt weiterhin 450°C betragen.
- der Einsatz in einem Dauerstrichreaktor ist nicht möglich.
- bei gepulsten Tokamaks darf das Puls/Pauseverhältnis den Wert von 1:100 nicht überschreiten, wenn das Material als Limiteroberfläche Verwendung finden soll.
- bei einem kleinflächigen Gebrauch als Limiteroberfläche ist das Lithiuminventar einer 3 mm dicken Cu/Li-Beschichtung nach drei Tagen durch Verdampfung aufgebraucht. Es hat sich im Torus auf kältere Strukturkomponenten verteilt.
- eine großflächige Verwendung als Wandmaterial ist nicht möglich, da wegen der starken Verdampfung der Lithium-Komponente bei 450°C ein deutlich zu hoher Li-Partialdruck im Torusvolumen entsteht.

Man kann den Schluß ziehen, daß das vorliegende Material nur sehr begrenzt einen sinnvollen Einsatz als Limiteroberfläche in gepulsten Tokamaks haben kann. Sollte man ernsthaft die Verwendung in zukünftigen Tokamak-Generationen erwägen, so sind noch erhebliche materialwissenschaftliche Anstrengungen notwendig, um die Eigenschaften von Cu/Li-Legierungen zu verbessern. Im Vordergrund steht dabei wohl eine deutliche Reduzierung der Verdampfungsrate von Lithium. Ein weiterer Aspekt ist die Entwicklung von Legierungen, die ihre Oberfläche erheblich schneller als die untersuchte unter Teilchenbeschuß erneuern können. Eine gewisse Rolle spielt hierbei die Anwesenheit von Sauerstoff sowohl bei der Herstellung der Legierung (Einbau von O₂ ins Metallgitter) als auch beim späteren Einsatz unter Zerstäubung (O₂ im Restgas) [98]. Die gegenüber kohlenstoffbeschichteten Maschinen deutlich verbesserten Plasmaeigenschaften bei borierten Tokamaks [107] lassen die Entwicklung eines optimierten Oberflächenmaterials mit noch kleinerer Kernladungszahl sehr wünschenswert erscheinen.

7. Zusammenfassung

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden die Eigenschaften von schwach lithiumhaltigen Kupferlegierungen hinsichtlich der Zerstäubung durch monoenergetische Ionenstrahlen, die in Energie und Flußdichte fusionsrelevante Werte aufweisen, untersucht. Dabei stand das Konzept einer sich unter Beschuß ständig durch Segregation und Diffusion selbst erneuernden Lithiumbedeckung im Mittelpunkt des Interesses. Eine Legierung aus Kupfer und 16,9 at-% Lithium wurde dem Beschuß mehrerer Ionenspezies (Deuterium, Helium, Neon und Argon) ausgesetzt. Zerstäubt wurden Targets zum einen bei Raumtemperatur und zum anderen bei erhöhten Materialtemperaturen von 350°C und 450°C. Die Strahlenergie betrug übereinstimmend bei allen Gasarten 6 keV bei einer Teilchenflußdichte zwischen 3×10^{15} und $8 \times 10^{15}/\text{cm}^2\text{s}$. Bei Heliumbeschuß wurde die Energie zusätzlich im Bereich von 0,1 keV bis 6 keV variiert. Dabei zeigte die Legierung in den untersuchten Temperaturbereichen ein deutlich unterschiedliches Verhalten.

Die wesentlichen Ergebnisse dieser Arbeit seien im folgenden kurz zusammengefaßt: Das aus der Theorie der Legierungen und früheren experimentellen Untersuchungen anderer Gruppen zu erwartende Oberflächen-Segregationsverhalten der Li-Komponente konnte schon bei Raumtemperatur nachgewiesen werden. Die Anwendung oberflächenspezifischer Meßmethoden (ISS, "Ion Scattering Spectroscopy" und Auger-Elektronen-Spektroskopie, AES) ermöglichte bei kalten Targets die Bestimmung der Zusammensetzung der Oberfläche und der oberflächennahen Schichten in Abhängigkeit von der Zeit und der Bestrahlungsdosis. Es zeigte sich, daß vor einem Beschuß die erste atomare Monolage im thermischen Segregationsgleichgewicht nahezu vollständig aus Lithium besteht. Die zweite Lage besteht im Mittel etwa noch zu 75 at-% und die sechste Lage zu 35 at-% aus Lithium. Ein Bombardement mit einer Gesamtdosis von 10^{17} Argonionen/ cm^2 der Energie 1 keV läßt die Lithiumkonzentration jedoch überall wieder auf den Volumenwert von ca. 17 at-% zurückgehen, mehr noch: Eine leicht präferentielle Zerstäubung von Lithium gegenüber Kupfer läßt die Li-Konzentration teilweise unter den Volumenwert absinken. Nach einer Deposition von 10^{17} Heliumionen/ cm^2 hingegen zeigt allein die erste Monolage noch eine leichte Li-Anreicherung von ungefähr 50 at-%. Der Zeitraum, der nach Beendigung des Ionenbeschusses zur Erneuerung des Anreicherungsprofils durch Segregation benötigt wird, wurde ebenfalls bestimmt. Er liegt bei Raumtemperatur in der Größenordnung von ein bis zwei Stunden. Prozesse, die Lithium als "Nachschub" aus dem Inneren der Legierung heranschaffen (Segregation und Diffusion), laufen offensichtlich bei derart niedrigen Temperaturen nicht schnell genug ab, um eine hinreichende Lithiumbedeckung unter Ionenbeschuß aufrecht zu erhalten. Diese Messungen wurden im Rahmen einer Zusammenarbeit mit Frau Dr. B.Baretzky (Max-Planck-Institut für

Plasmaphysik in Garching) durchgeführt.

Zerstäubungsexperimente mit der Jülicher Hochstromionenquelle "EVITA" an nicht geheizten Cu/Li-Targets ergaben ebenfalls, daß das Material im Raumtemperaturbereich bei Ionenbeschuß keine dauerhafte Lithiumanreicherung in Oberflächennähe aufweist: Mit laserinduzierter Fluoreszenzspektroskopie (LIF) wurden zunächst die Geschwindigkeitsverteilungen der beiden beteiligten Legierungspartner unter 6 keV-Argonbeschuß gemessen. Durch Anpassen einer Thompson-Verteilung ergab sich für Lithium eine mittlere Oberflächenbindungsenergie von 2,2 eV. Dieser gegenüber einer Energie von 1,67 eV für elementares Lithium deutlich erhöhte Wert ist darauf zurückzuführen, daß Lithiumatome bei kleinen Oberflächenbedeckungen in großer Zahl an Kupferatome gebunden sind. Für die Kupferkomponente ergab sich analog eine Bindungsenergie von 2,4 eV. Aus diesen Werten konnte unter Zuhilfenahme der aus segregierten Tiefenprofilen gewonnenen Mischungsenthalpie der Legierung eine Lithiumkonzentration an der Oberfläche von 18 at-% errechnet werden. Ferner wurden aus den gemessenen Geschwindigkeitsverteilungen mittlere Transportgeschwindigkeiten von 9,7 km/s für Li und 3,4 km/s für Cu bestimmt.

Die laserspektroskopische Messung von absoluten Kupfer- und Lithiumdichten im Strahl abgestäubter Atome bei Beschuß mit Deuterium-, Helium- und Argonionen der Energie 6 keV und Flußdichten zwischen 10^{15} und $10^{16}/\text{cm}^2$ ergab bei nicht geheiztem Target, daß die Zerstäubungsausbeuten der Kupfer-Komponente je nach Beschußion nur um einen Faktor von 1,3 (Ar^+) bis zu 2,1 (D^+) gegenüber einem reinen Kupfer-Target reduziert waren. Abgestäubte Kupfer- als auch Lithiumflüsse sind in diesem Temperaturbereich stets zeitlich konstant. Bei zeitlicher Konstanz von Zerstäubungsausbeuten erlaubt die lineare Beziehung zwischen der partiellen Zerstäubungsausbeute eines Elements, seiner Oberflächenkonzentration und seiner Komponentenzerstäubungsausbeute die Bestimmung z.B. der Oberflächenkonzentration von Lithium. Durch Vergleich der mit LIF bestimmten reinen und partiellen Cu-Ausbeuten ergeben sich Werte von $c_{\text{Li}}^s = 21$ at-% (Ar^+), 43 at-% (He^+) und 52 at-% (D^+). Zusammengefaßt liefern verschiedene Meßverfahren vergleichbare Werte für die Konzentration der Lithiumkomponente in Oberflächennähe: Sie liegt im Bereich von 18 at-% bis 21 at-% (nahezu Volumenkonzentration unter Argonbeschuß) bis zu 52 at-% (leichte Anreicherung unter Deuteriumbeschuß). Auch sind diese mit LIF gemessenen Konzentrationen konsistent mit den von B.Baretzky mit oberflächenanalysierenden Methoden ermittelten Tiefenprofilen von Lithium unter Helium- und Argonbeschuß. Es gibt demnach bei Raumtemperatur keine dauerhaft angereicherte Lithiumschicht unter intensivem Beschuß sowohl mit leichten als auch mit schwereren Ionen des Energiebereichs 1 keV bis 6 keV. Der Nachlieferungsprozess der Segregation läuft bei "kalten" Temperaturen zu langsam ab.

Anschließend wurden Messungen mit einem auf 450°C geheizten Target durchgeführt. Sie ergaben, daß die Lithium-Komponente bei dieser Temperatur in erheblichem Maße aus der festen Legierung heraus verdampft bzw. sublimiert wird. Im Temperaturbereich von 280°C bis 450°C wurden mit LIF Verdampfungsraten bestimmt. Sie gehorchen einer Arrhenius-Beziehung mit einer Verdampfungsenthalpie von 1,6 eV. Dieser Wert kommt dem von reinem Lithium (1,54 eV) recht nahe. Bei 450°C beträgt die Abdampftrate ca. 2×10^{16} Li-Atome/cm²s. Die Raten sind unabhängig von der Anwesenheit eines zerstäubenden Ionenstrahls und bei allen Temperaturen zeitlich konstant. Die Zerstäubung der untersuchten Legierung zeigte bei einer Temperatur von 450°C neben einer ungefähren Verdopplung der Erosionsrate der Li-Komponente nur eine unbefriedigende Herabsetzung der Cu-Zerstäubung um etwas mehr als einen Faktor zwei, bezogen auf zum Vergleich ebenfalls zerstäubtes reines Kupfer. Das Target unterlag auch hier einem Dauerbeschuß durch Argon-Ionen der Energie 6 keV und einer Teilchenflußdichte von einigen 10^{15} /cm²s. Die Eigenschaften der Legierung hinsichtlich der Erzeugung und Aufrechterhaltung einer permanenten Lithiumbedeckung sind in Konsequenz auch bei erhöhten Materialtemperaturen als mangelhaft zu bezeichnen, wenn das Material einem Dauerbeschuß unterliegt.

Im Gegensatz zur Verdampfung und Zerstäubung der Lithiumkomponente zeigt die partielle Zerstäubungsausbeute der Kupferkomponente bei einer Substrattemperatur von 450°C eine ausgeprägte zeitliche Abhängigkeit, bevor Stationarität erreicht wird. Nach dem Abschalten einer kontinuierlichen Ionenbestrahlung konnte ein deutliches Anwachsen der Oberflächenbedeckung mit Lithium nachgewiesen werden. Die Messung von Cu-Zerstäubungsraten mit LIF ergab, daß sich die Kupfer-Zerstäubungsausbeute nach etwa zwei Stunden Konditionierungszeit um mehr als das 40-fache unterdrücken ließ, wieder bezogen auf die Zerstäubung eines reinen Cu-Targets. Gemäß der Computer-Modellierung der Zerstäubung eines Kupferblocks mit variabler Lithiumschicht durch den Code "TRIDYN" entspricht dies einer Bedeckung durch eine effektive Schichtdicke von mehr als vier atomaren Monolagen reinen Lithiums. Im Vergleich zu Raumtemperatur ist die Anwachs-Zeitkonstante mit 85 Minuten in etwa unverändert geblieben. Bei erneutem Einschalten des Ionenstrahls wird die Schicht - erwartungsgemäß - wieder abgetragen. Ein auf diese Art und Weise konditioniertes Lithium-Anreicherungsprofil widersteht einer Gesamtdosis von 5×10^{18} Argonionen/cm² bei einer Teilchenenergie von 6 keV, bevor der alte Gleichgewichtszustand wieder hergestellt ist. Die Messung von Geschwindigkeitsverteilungen abgestäubter Lithiumatome gelang mit LIF bei derart hohen Targettemperaturen nicht, da die thermische Komponente aufgrund ihrer großen Dichte am Meßort stets dominierte. ISS- und Auger-Oberflächenanalysen konnten bei 450°C bedingt durch mangelnde apparative Voraussetzungen ebenfalls nicht durchgeführt werden.

Charakteristische Abbaufloenzen konnten für im freien Segregationsgleichgewicht aufgebaute Lithiumschichten bei Materialtemperaturen von 25°C, 350°C und 450°C bestimmt werden. Ihr Vergleich mit den zugehörigen Schichtdicken vor Abtragungsbeginn sowie der Zeitkonstanten der beschußlosen thermischen Segregation führt zu dem Ergebnis, daß sowohl bei Raumtemperatur als auch bei erhöhten Materialtemperaturen Lithium dominant durch beschuß- oder strahlungsinduzierte Segregation zur Oberfläche transportiert wird.

Die zeitliche Konstanz der Lithiumverdampfung einerseits und die ausgeprägte Zeitabhängigkeit der Kupferzerstäubung andererseits lassen sich durch eine Modifikation des Tiefenprofils der Li-Komponente durch den Ionenstrahl erklären: Die Zusammensetzung der ersten und teilweise auch der zweiten atomaren Monolage der Legierung ist unabhängig von der Anwesenheit eines Strahls - sie bestimmt Abdampfzeiten und Verdampfungsenthalpie. Diese Lagen bestehen nahezu vollständig aus Lithium. Die Zerstäubung erniedrigt den Lithiumgehalt nur in den darunterliegenden Monolagen im Laufe der Bestrahlungszeit in nennenswerter Weise. Kupferatome werden in zunehmendem Maße aus der zweiten, dritten und noch tieferen Lagen heraus abgestäubt und erhöhen mit steigender Bestrahlungsdosis die partielle Zerstäubungsausbeute der Kupferkomponente. Der durch Ionenbeschuß beschleunigte Segregationsprozeß ermöglicht es den Lithiumatomen, diese während des Bombardements Li-verarmte Zone schneller zu durchqueren.

Um das Verhalten des Materials in fusionsrelevanten Umgebungen weiter zu untersuchen, wurde die wie oben beschrieben mit einer Lithium-Schutzschicht versehene Legierung mit Heliumionen variabler Energie (0,1 bis 6 keV) beschossen. So konnte Anschluß an die mit Argonbeschuß erzielten Resultate gewonnen werden. Die Messung von Zerstäubungsausbeuten der Kupfer-Komponente erlaubte eine lineare Umrechnung der Schichtlebensdauer von 6 keV Ar⁺-Beschuß auf Heliumbeschuß mit kleineren Energien. Die Lebensdauer der Schicht kommt einem Heliumbeschuß von insgesamt 3×10^{20} Ionen/cm² einer Energie von 200 eV gleich, was typischen mittleren Randschichtenergien in Tokamaks entspricht. Die partielle Zerstäubungsausbeute von Cu beträgt hier bei einer konditionierten Schicht 2×10^{-3} . Ein Gegenüberstellen des Puls/Pauseverhältnisses einer periodischen Belastung durch Ionenbeschuß und typischen, Limiteroberflächen beaufschlagenden Plasmaflüssen zeigt, daß man die untersuchte Cu/Li-Legierung nur dann als Limitermaterial in einem Tokamak einsetzen kann, wenn dessen Entladungen mit einem Puls/Pauseverhältnis von weniger als 1:100 betrieben werden. Dies ist bei heutigen Maschinen zwar gerade eben der Fall, es ist aber bei zukünftigen Generationen von Tokamaks bestimmt nicht für einen wirtschaftlichen Betrieb ausreichend.

Die vorliegende Arbeit konnte zu einem wesentlichen Beitrag zum Verständnis des Verhaltens der Legierung unter intensivem Ionenbeschuss bei Raum- und erhöhten Temperaturen beitragen, sie hat zum anderen aber deutliche Probleme hinsichtlich des Einsatzes von Kupfer/Lithium-Legierungen in Tokamak-Reaktoren aufgezeigt. Vor allem die hohe Verdampfungsrate der Lithium-Komponente, die durch eine zur Erzeugung hinreichend dicker Lithium-Bedeckungen und hinreichend langer Standzeiten notwendig hohe Betriebstemperatur bedingt ist, bereitet ernsthafte Schwierigkeiten. Nicht zuletzt ist das unzureichende Li-Anreicherungsverhalten unter anhaltender Hochflußzerstäubung ein gravierendes Hindernis.

Inspiziert durch eine wesentliche Verbesserung der Plasmaeigenschaften, die durch den Ersatz von Kohlenstoffbeschichtungen durch amorphe Bor-Kohlenstoff-Schichten an TEXTOR und ASDEX erzielt worden sind, sollte man den Weg zu einem "noch leichteren" Wandmaterial dennoch nicht aus den Augen verlieren. Die hier untersuchte Cu/Li-Legierung ist in ihren Materialeigenschaften sicher noch nicht optimal ausgelegt. In metallurgischer Hinsicht scheint eine Verbesserung der oben angesprochenen Eigenschaften möglich und sicher auch notwendig. Die vorliegende Arbeit zeigt dabei einen Weg auf, die Eignung solcher Materialien experimentell zu beurteilen.

8. Literaturverzeichnis

- [1] H.Vernickel, J.Bohdansky, Nucl.Fusion (Letters) 18 (1978) 10
- [2] K.Pinkau, U.Schumacher, Kernfusion mit magnetisch eingeschlossenen Plasmen, Physik in unserer Zeit 13 (1982) 138
- [3] J.Winter, J.Nucl.Mat. 145-147 (1987) 131
- [4] J.Winter, Habilitationsschrift an der Universität Düsseldorf, und KFA-Bericht Jül-2207, Juni 1988
- [5] F.Waelbroeck et al.: Presented at the 15th European Conference on Controlled Fusion and Plasma Physics, Dubrovnik May 1988, and Plasma Phys. Cont. Fus. 31 (1989) 185
- [6] J.Hackmann, J.Uhlenbusch, J.Nucl.Mat. 128&129 (1984) 418
- [7] M.Bessenrodt-Weberpals, J.Hackmann, C.Nieswand, J.Uhlenbusch, J.Nucl.Mat. 162-164 (1989) 435
- [8] D.M.Gruen, A.R.Krauss, M.H.Mendelsohn, S.Susman, J.Nucl.Mat. 111&112 (1982) 831
- [9] A.B.DeWald, J.N.Davidson, A.R.Krauss, D.M.Gruen, J.Nucl.Mat. 111&112 (1982) 448
- [10] D.M.Gruen, A.R.Krauss, S.Susman, M.Venugopalan, M.Ron, J.Vac.Sci.Technol. A 1 (1983) 924
- [11] A.R.Krauss, D.M.Gruen, A.B.DeWald, in: Proceedings of the '9th Symposium on Engineering Problems of Fusion Research', Chicago 1981
- [12] A.R.Krauss, D.M.Gruen, J.Nucl.Mat. 103&104 (1981) 239
- [13] P.Sigmund, Phys. Rev. 184 (1969) 383

-
- [14] P.Sigmund, in: **Sputtering by Particle Bombardment I**, Springer Topics in Applied Physics, Vol. 47, ed. by R.Behrisch, Berlin 1981, pp 9-72
- [15] P.Sigmund, in: **Inelastic Ion-Surface Collisions**, ed. by N.H.Tolk et al., Academic Press, New York 1977, pp 121-152
- [16] J.Roth, J.Bohdansky, W.Ottenberger, IPP-Bericht 9/26, Garching, Mai 1979
- [17] H.H.Andersen, H.L.Bay, in: **Sputtering by Particle Bombardment I**, Springer Topics in Applied Physics, Vol. 47, ed. by R.Behrisch, Berlin 1981, pp 145-218
- [18] M.W.Thompson, Phil. Mag. **18** (1968) 377
- [19] K.A.Gschneidner, Jr., in: **Solid State Physics**, Vol.16, ed. by F.Seitz, D.Turnbull (Academic, New York 1964), p 344
- [20] Ph.Mertens, Dissertation Ruhr-Universität Bochum, und KFA-Bericht Jül-2154, August 1987
- [21] B.Schweer, Dissertation Ruhr-Universität Bochum, und KFA-Bericht Jül-1876, November 1983
- [22] E.Dullni, Dissertation Ruhr-Universität Bochum, und KFA-Bericht Jül-1936, Juli 1984
- [23] W.Berres, Dissertation Ruhr-Universität Bochum, und KFA-Bericht Jül-1828, Februar 1983
- [24] J.Dembowski, H.Oechsner, Y.Yamamura, M.Urbassek, Nucl.Instr.Meth. B **18** (1987) 464
- [25] H.Oechsner, Z.Physik **238** (1970) 433
- [26] H.L.Bay, B.Schweer, KFA-Bericht Jül-2032, Dezember 1985
- [27] U.Littmark, S.Fedder, Nucl.Instr.Meth. **194** (1982) 607

-
- [28] H.H.Andersen, J.Vac.Sci.Technol. 16 (1979) 770
- [29] B.Baretzky, Dissertation LMU München, Dezember 1989,
und IPP-Bericht 9/76, Garching, Februar 1990
- [30] G.Betz, G.K.Weher, in: **Sputtering by Particle Bombardment II**,
Springer Topics in Applied Physics, Vol. 52, ed. by R.Behrisch,
Berlin 1983, pp 11-90
- [31] J.W.Gibbs, Trans.Connecticut Acad.Sci. 3 (1875/76) 108
- [32] A.R.Miedema, Z.Metallkunde 69 (1978) 455
- [33] J.Kirschner, Nucl.Instr.Meth. B 7/8 (1985) 742
- [34] R.Kelly, in: **Proceedings of the Symposium on Sputtering**,
ed. by P.Varga, G.Betz, F.P.Viehböck, Perchtoldsdorf/Austria, April 1980
- [35] R.A.van Santen, M.A.M.Boersma, J.Catal. 34 (1974) 13
- [36] D. McLean, **Grain Boundaries in Metals**, Clarendon, Oxford 1957
- [37] F.Kohlrausch, **Praktische Physik, Vol 3**, Teubner, Stuttgart 1986
- [38] N.Itoh, K.Morita, Rad.Effects 80 (1984) 163
- [39] S.Hofmann, J.Erlewein, Surf.Sci. 77 (1978) 591
- [40] R.A.Johnson, N.Q.Lam, Phys.Rev. B13 (1976) 4364
- [41] R.A.Johnson, N.Q.Lam, J.Nucl.Mat. 69-70 (1978) 424
- [42] R.Sizmann, J.Nucl.Mat. 69-70 (1978) 386
- [43] N.Q.Lam, H.Wiedersich, Nucl.Instr.Meth. B 18 (1987) 471
- [44] N.Q.Lam, G.K.Leaf, H.Wiedersich, J.Nucl.Mat. 85&86 (1979) 1085
- [45] F.L.Williams, D.Nason, Surf.Sci. 45 (1974) 377

-
- [46] A.R.Krauss, A.B.DeWald, D.M.Gruen, N.Q.Lam,
Rad.Effects 89 (1985) 129
- [47] D.G.Swartzfager, S.B.Ziemecki, M.J.Kelley,
J.Vac.Sci.Technol. 19(2) (1981) 185
- [48] J. du Plessis, G.N. van Wyk, E.Taglauer,
Surf. Sci. 220 (1989) 381
- [49] **Binary Alloy Phase Diagrams, Volume 1, p 930,**
American Society for Metals, Metals Park, Ohio
- [50] A.D.Pelton, Bull.Alloy Phase Diagrams 7 (1986) 2
- [51] D.M.Gruen, A.R.Krauss, M.H.Mendelsohn, S.Susman,
J.Nucl.Mat. 111&112 (1982) 831
- [52] A.B.DeWald, J.N.Davidson, A.R.Krauss, D.M.Gruen,
J.Nucl.Mat. 111&112 (1982) 448
- [53] D.M.Gruen, A.R.Krauss, S.Susman, M.Venugopalan, M.Ron,
J.Vac.Sci.Technol. A 1 (1983) 924
- [54] A.R.Krauss, D.M.Gruen, A.B.DeWald, in:
**Proceedings of the '9th Symposium on Engineering Problems
of Fusion Research', Chicago 1981**
- [55] A.R.Krauss, D.M.Gruen, J.Nucl.Mat. 103&104 (1981) 239
- [56] M.H.Mendelsohn, D.M.Gruen, A.R.Krauss,
J.Nucl.Mat. 141-143 (1986) 184
- [57] A.R.Krauss, D.M.Gruen, N.Q.Lam, A.B.DeWald,
J.Nucl.Mat. 128&129 (1984) 570
- [58] A.R.Krauss, D.M.Gruen, M.Venugopalan,
J.Nucl.Mat. 122&123 (1984) 1425
- [59] D.M.Goebel, G.A.Campbell, R.W.Conn, J.Nucl.Mat. 121 (1984) 277

-
- [60] D.M.Goebel, R.W.Conn, J.Nucl.Mat. 128&129 (1984) 249
- [61] A.R.Krauss, R.W.Conn, J.Bohdansky et al.,
Nucl.Instr.Meth. B 23 (1987) 511
- [62] D.M.Goebel et al., J.Nucl.Mat. 145-147 (1987) 61
- [63] A.R.Krauss, R.W.Conn et al., J.Nucl.Mat. 145-147 (1987) 401
- [64] H.J.Barth, E.Mühling, W.Eckstein, IPP-Bericht 9/58, Garching 1986,
und Verhandl. DPG (VI) 4 (1985), Seite 968
- [65] J.P.Biersack, L.G.Haggmark, Nucl.Instr.Meth. 174 (1980) 257
- [66] W.Möller, W.Eckstein, IPP-Bericht 9/64, Garching, Mai 1988
- [67] W.Möller, W.Eckstein, Nucl.Instr.Meth. B 2 (1984) 814
- [68] W.Möller, W.Eckstein, Nucl.Instr.Meth. B7/8 (1985) 645
- [69] J.Roth, in **Proceedings of the 'Symposium on Sputtering'**,
Perchtoldsdorf, Österreich 1980, Seite 773
- [70] H.L.Bay, Nucl.Instr.Meth. B 18 (1987) 430
- [71] W.Demtröder, **Grundlagen und Techniken der Laserspektroskopie**,
Springer, Berlin 1977
- [72] A.Elbern, Dissertation Ruhr-Universität Bochum,
und interner KFA-Bericht, März 1977
- [73] P.Bogen, E.Hintz, in **Physics of Plasma-Wall Interactions in
Controlled Fusion**, ed. by D.E.Post and R.Behrisch,
NATO ASI Series B (Physics), Vol. 131, Plenum 1986, p 211-280
- [74] R.Koppmann, Dissertation Ruhr-Universität Bochum, und
KFA-Bericht Jül 2219, Juli 1988
- [75] P.Bogen, E.Hintz, **Comments Plasma Phys. Cont. Fusion** 4 (1978) 115

-
- [76] P.Bogen, D.Rusbüldt, **JET Fluorescence Workshop**, Culham, 22nd November 1982, D.S. 14.1
- [77] E.Hintz et al., *J.Nucl.Mat.* **93&94** (1980) 656
- [78] H.J.Kunze, in: **Plasma Diagnostics**, ed. by W.Lochte-Holtgreven, North-Holland Publishing, Amsterdam 1968, p 568
- [79] C.G.Mitchell, M.W.Zemansky, **Resonance Radiation and Excited Atoms**, Cambridge University Press, 1961, Seiten 258 ff.
- [80] A.Unsöld, **Physik der Sternatmosphären**, Springer, Berlin 1955, Seite 180
- [81] **Handbook of Chemistry and Physics**, 60th Edition, CRC Press, Boca Raton 1981
- [82] L.Windholz, H.Jäger, M.Musso, G.Zerza, zur Veröffentlichung vorgesehen in *Z.Phys.D*
- [83] U.Gradmann, H.Wolter, **Grundlagen der Atomphysik**, Akademische Verlagsgesellschaft, Frankfurt/M. 1971
- [84] P.Brix, W.Humbach, *Z.Physik* **128** (1950) 506
- [85] N.L.Moise, *Astrophys. J.* **144** (1966) 774
- [86] H.L.Bay, J.Bohdansky, W.O.Hofer, J.Roth, *Appl.Phys.* **21** (1980) 327
- [87] H.L.Bay, B.Schweer, P.Bogen, E.Hintz, *J.Nucl.Mat.* **111&112** (1982) 732
- [88] F.P.Schäfer, **Dye Lasers**, Springer Topics in Applied Physics, Vol.1, Berlin 1974
- [89] P.P.Sorokin, *IBM Journal* **11** (1967) 130
- [90] Bergmann-Schäfer, **Lehrbuch der Experimentalphysik**, (Band IV, Teil 1), de Gruyter, Berlin 1981
- [91] F.Zernicke, J.E.Midwinter, **Applied Nonlinear Optics**, Wiley, New York & London 1973

-
- [92] G.Brandenburg, H.Halling, G.Lech, H.Ringel,
Interner KFA-Bericht ZEL-500177, und
W.Hopmann, B.Schweer, interner KFA-IPP-Bericht Juli 1981
- [93] D.Rusbüldt, persönliche Mitteilung
- [94] H.Sporn, Z.Physik 112 (1939) 278
- [95] R.A.Swalin, **Thermodynamics of Solids**, Wiley, New York 1962
- [96] B.Baretzky, in: **Materials Modification by High-Fluence Ion Beams**,
ed. by R.Kelly and M.Fernanda da Silva, NATO ASI Series E
(Applied Science), Vol. 155, Kluwer Academic Publishers,
Dordrecht 1989, p 329
- [97] R.P. Schorn et al., Proceedings of the 8th International
Conference on 'Plasma Surface Interactions in Controlled Fusion
Devices', Jülich Mai 1988 und J.Nucl.Mat. 162-164 (1989) 924
- [98] B.Baretzky, E.Taglauer, W.Möller, R.P.Schorn,
Proceedings of the 8th International Conference on
'Plasma Surface Interactions in Controlled Fusion Devices',
Jülich Mai 1988 und J.Nucl.Mat. 162-164 (1989) 920
- [99] E.Taglauer, W.Heiland, Appl.Phys. 9 (1976) 261
- [100] E.Taglauer, Appl.Phys. 38 (1985) 161
- [101] G.Ertl, H.Küppers, **Low Energy Electrons and Surface Chemistry**,
Verlag Chemie, 1974
- [102] R.P.Schorn, H.L.Bay, B.Schweer, E.Hintz, Appl.Phys. A 43 (1987) 147
- [103] R.Behrisch, J.Nucl.Mat. 93&94 (1980) 498
- [104] W.H.Evans, R.Jacobson, T.R.Munson, D.D.Wagman,
J.Res.Natl.Bureau of Standards 55 (1955) 83
- [105] R.P.Schorn, E.Hintz, S.Musso, B.Schweer, Rev.Sci.Instrum. 60 (1989) 3275

- [106] C.J.Wen, Dissertation, Stanford University, 1980.
- [107] J.Winter et al., J.Nucl.Mat. 162-164 (1989) 713

Danksagung

Die vorliegende Arbeit wurde im Rahmen der Assoziation EURATOM-KFA im Institut für Plasmaphysik der KFA Jülich GmbH durchgeführt. Mein besonderer Dank gilt daher dem Institutsleiter, Herrn Prof. Dr. E. Hintz, für die Möglichkeit, meine Dissertation in seinem Hause unter seiner Anleitung und Anregung anzufertigen zu können. Er hat meine Laborversuche stets mit großem Interesse verfolgt.

Herrn Prof. Dr. H.J. Kunze, Ruhr-Universität Bochum, danke ich für die Übernahme des Korreferats meiner Arbeit und sein stets großes Interesse am Fortgang der Experimente.

Für viele Diskussionen und tatkräftige Unterstützung möchte ich meinen Kollegen Dr. B. Schweer, Dr. H.L. Bay, Dr. P. Bogen und Dr. D. Rusbüldt (IPP der KFA Jülich), sowie Dr. J. Bohdansky, Dr. J. Roth, Prof. Dr. W. Möller, Dr. W. Eckstein und Dr. E. Taglauer (IPP Garching) meinen Dank aussprechen. Ganz besonders möchte ich die Zusammenarbeit mit Frau Dr. B. Baretzky hervorheben. Unsere langen und intensiven Diskussionen über das Zerstäubungsverhalten von Zweikomponentensystemen haben sehr viel dazu beigetragen, den Schleier um die "mysteriösen" Cu/Li-Legierungen etwas zu lüften. Unsere beiden Dissertationen haben sich quasi symbiotisch fortentwickelt. Nur so konnte ein Maximum an verfügbaren experimentellen Methoden aus verschiedenen Teilbereichen der Physik eingesetzt werden.

Herrn Prof. Dr. W. Möller und Dr. W. Eckstein (IPP Garching) bin ich sehr zum Dank für die Zusammenarbeit bei den TRIDYN-Simulationsrechnungen verpflichtet. Herrn Dr. J. Bohdansky und Herrn W. Ottenberger, sowie Herrn Dr. J. Roth und Frau Dr. Wang Wen Min möchte ich für die Zusammenarbeit bei den Garchinger Zerstäubungsexperimenten herzlich danken.

Mein Dank gilt in besonderem Maße allen Kollegen und Mitarbeitern des Instituts für Plasmaphysik der KFA Jülich, die zum Gelingen der Arbeit beigetragen haben. Speziell möchte ich den Herren S. Musso und G. Herpers für ihre wertvolle technische Hilfe beim Aufbau wesentlicher Teile des Experiments meinen Dank aussprechen.

Nicht zuletzt gebührt Dr. D.M. Gruen und seiner Gruppe (Argonne National Laboratory) Dank für die Überlassung der Cu/Li-Targets, ohne die meine Arbeit in der vorliegenden Form sicher nicht möglich gewesen wäre.