

**Entwicklung einer In-situ-Meßmethode
zur Bestimmung des Wasserstoffgehalts
amorpher Kohlenwasserstoffschichten in Fusionsanlagen**

Inaugural-Dissertation
zur
Erlangung des Doktorgrades der
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Heinrich-Heine-Universität Düsseldorf

vorgelegt von

Florian Irrek

aus Neustrelitz

Mai 2008

Aus dem Institut für Plasmaphysik
des Forschungszentrums Jülich

Gedruckt mit der Genehmigung der
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät der
Heinrich-Heine-Universität Düsseldorf
Referent: Prof. Dr. U. Samm
Korreferent: Prof. Dr. G. Pretzler
Tag der mündlichen Prüfung: 17.06.2008

Für meinen Vater, Dr. med. Wolfgang Irrek,

14. Mai 1948 – 23. Januar 2006

Kurzfassung

Die Verwendung von Kohlenstoff für plasmabegrenzende Komponenten in ITER wird vermutlich zum Überschreiten der Sicherheitsgrenze von 350 g Tritium im Reaktorgefäß führen. Tritium wird vor allem in amorphen Kohlenwasserstoffschichten eingeschlossen. In dieser Arbeit wird die laserinduzierte thermische Desorptionsspektroskopie (LDS) entwickelt, mit der das Wasserstoffinventars in der Oberfläche plasmabegrenzender Komponenten in einem Fusionsexperiment gemessen werden kann. Diese Diagnostik wird an TEXTOR getestet.

Bei der LDS wird während einer Plasmaentladung eine Stelle auf einer plasmanahen Oberfläche durch Laserbestrahlung bis in eine Tiefe von 100 μm auf 1400 bis 2100 K aufgeheizt. Der in der Oberfläche gefangene Wasserstoff wird dabei freigesetzt. Das infolgedessen im Plasma emittierte H_α -Leuchten wird quantitativ gemessen; mittels Konversionsfaktoren (S/XB) wird die freigesetzte Wasserstoffmenge ermittelt.

Das Laserlicht (Nd:YAG, 1064 nm) wird durch Lichtleiter geführt und erzeugt einen 5 mm² großen homogenen Laserfleck. Ein Laserpuls von typischerweise 1.5 ms Dauer und 5 J Energie führt zur Desorption von bis zu 1 mm³ des Graphitsubstrats unterhalb des Laserflecks. Die erzielten Temperaturen wurden durch numerische Simulationen berechnet sowie indirekt durch die bewirkten Oberflächenveränderungen ermittelt. Es wurden a-C:H-Schichten von bis zu 0.5 μm Dicke untersucht. Je nach Entstehungsbedingungen der Schicht variieren die Anteile der freigesetzten Moleküle (H_2 , CH_4 , C_2H_4). Wasserstoffreiche Schichten setzen mehr Kohlenwasserstoffe frei. In der Erosionszone exponierter Graphit setzt dagegen vor allem H_2 frei. Die Freisetzung atomaren Wasserstoffs durch die Laserdesorption wurde nicht beobachtet.

Die Messung des Emissionsleuchtens erfolgt mit schmalbandigen H_α -Interferenzfiltern und einer CCD-Kamera. Durch Simulation des Emissionsleuchtens mit Hilfe des Neutralteilchentransportcodes EIRENE wird der nichtbeobachtete Anteil des Emissionsleuchtens für die einzelnen freigesetzten Molekülsorten abgeschätzt. Konversionsfaktoren (S/XB)_{eff} wurden in verschiedenen Referenz-Randschichtplasmen (22–30 eV, $1\text{--}11 \times 10^{18} \text{ m}^{-3}$ und 50–74 eV, $1\text{--}5 \times 10^{18} \text{ m}^{-3}$) bei der Desorption präparierter Graphitproben gemessen, die eine bekannte Wasserstoffmenge mit einer bekannten molekularen Verteilung freisetzen.

Es wurden LDS-Messungen an Schichten durchgeführt, die in TEXTOR innerhalb von bis zu 3 Minuten kumulierter Plasmaexposition aufgewachsen waren, was etwa 40% der Dauer einer ITER-Plasmaentladung entspricht. Die mit der LDS ermittelten Wasserstoffinventare wurden im Rahmen von Nachuntersuchungen der desorbierten Schichten bestätigt.

Erstmals ermöglichte die LDS die In-situ-Messung des H-Inventars in der Erosionszone eines Graphitlimiters während einer Plasmaentladung. Dabei zeigte sich, daß das Inventar während der Plasmaentladung größer ist als zwischen den Plasmaentladungen. Es konnte ein dynamisches H-Inventar während der Plasmaentladung von $1\text{--}8 \times 10^{20}$ Atomen/m² bestimmt werden, abhängig von den Plasmabedingungen (H^+ -Flußdichte, Plasmatemperatur). Diesem Inventar entspricht eine mittlere Aufenthaltszeit des Wasserstoffs in der Oberfläche von 1.9 bis 3.6 ms.

Es wurde gezeigt, daß die LDS eine empfindliche Messung (Nachweisgrenze $< 10^{20} \text{ m}^{-2}$) des Wasserstoffinventars plasmanaher Oberflächen während einer Plasmaentladung ermöglicht.

Abstract

The use of carbon for plasma-facing components in ITER is assumed to cause the safety limit of a maximum of 350 g tritium in the reactor vessel to be exceeded. Tritium is trapped primarily in amorphous hydrocarbon layers on the reactor vessel's surfaces. Within this paper a diagnostic method, the laser-induced thermal desorption spectroscopy (LDS), will be developed to measure in situ the hydrogen inventory in the surface of plasma-facing components in fusion experiments. Its capabilities will be demonstrated in TEXTOR.

In LDS, during the plasma discharge a laser beam is used to heat a spot on a surface close to the plasma to a temperature of 1400 to 2100 K to a depth of 100 μm . Trapped hydrogen will be released into the plasma where it emits line radiation. The emitted H_α -light is quantitatively measured. The amount of released hydrogen is calculated from the intensity of this emission using conversion factors $(S/XB)_{\text{eff}}$.

The laser light (Nd:YAG, 1064 nm) is conducted via light fibres. At TEXTOR, a 5 mm² sized homogeneous laser spot is created with a pulse duration of 1.5 ms, and an Energy of 5 J, typically. Below the laser spot a volume of at most 1 mm³ is desorbed. The generated temperature is calculated numerically and indirectly deduced from surface changings. Depending on the conditions during the layer formation the hydrogen content of the hydrocarbon layer will vary and different fractions of the released molecules (H_2 , CH_4 , C_2H_4) are created during the laser heating. Hydrogen-rich layers release a greater fraction of hydrocarbons whereas graphite exposed in the erosion zone releases principally hydrogen molecules. The release of atomic hydrogen by laser desorption was not found.

The emitted light is measured by means of narrow-band interference filters and a CCD-camera. The fraction of the light emission which lies outside the observation volume is estimated using simulations of the emission by the neutral gas transport Monte Carlo code EIRENE for each molecular fraction. Conversion factors $(S/XB)_{\text{eff}}$ were measured in various reference plasmas ($T_e = 22\text{--}30$ eV, $n_e = 1\text{--}11 \times 10^{18} \text{ m}^{-3}$ and $T_e = 50\text{--}74$ eV, $n_e = 1\text{--}5 \times 10^{18} \text{ m}^{-3}$) by desorbing prepared graphite samples which release a known amount of hydrogen with a known molecular distribution.

LDS measurements were carried out in TEXTOR at hydrocarbon layers deposited on a graphite test limiter. The desorbed layers had been deposited within up to 3 minutes of plasma exposure, which is 40% of an ITER plasma discharge. The measured hydrogen inventories could be validated in post-mortem analyses.

For the first time, LDS allowed for measuring the hydrogen inventory in the erosion-dominated zone of a graphite limiter during a plasma discharge. The inventory was found to be larger during the plasma discharge than between two discharges. The deduced dynamic hydrogen inventory during the plasma discharge is $1\text{--}8 \times 10^{20} \text{ atoms/m}^2$, depending on the plasma conditions (H^+ flux density, plasma temperature). This is in line with a mean retention time of 1.9 to 3.6 ms.

It was shown that LDS allows a sensitive measurement (detection limit below 10^{20} m^{-2}) of hydrogen inventories in the surface of plasma-facing components during a plasma discharge.

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung.....	8
2. a-C:H-Schichten.....	14
2.1 Die Bildung amorpher Kohlenwasserstoffschichten.....	15
2.1.1 Die Entstehung der Schichten.....	15
2.1.2 Vorkommen von a-C:H-Schichten im Fusionsreaktor.....	17
2.1.3 Herstellung von a-C:H-Schichten in einem Niedertemperaturplasma.....	18
2.2 Das Wasserstoffinventar und die optischen Eigenschaften von a-C:H-Schichten...	19
2.3 Methoden der Schichtcharakterisierung.....	21
3. Laserinduzierte thermische Desorption.....	23
3.1 Grundlagen der Desorption von a-C:H-Schichten.....	25
3.2 Rechenmodell zur Wärmeleitung.....	28
3.2.1 Halbbunendlicher Körper.....	29
3.2.2 Numerisches Modell der Wärmeleitung.....	31
3.3 Grundlagen zur Reflexion und Absorption.....	33
3.3.1 Reflexion und Absorption.....	33
3.3.2 Interferenz an dünnen Schichten, Oberflächenrauigkeit.....	34
3.4 Bestimmen der Größe des desorbierten Volumens.....	35
3.4.1 Rechnungen zur Wärmeausbreitung.....	35
3.4.2 Optische Veränderungen während des Aufheizens.....	39
3.5 Oberflächenveränderung durch das Aufheizen.....	42
3.5.1 Struktur des ursprünglichen Substrats und der unbestrahlten Schichten....	42
3.5.2 Unvermeidbare Effekte des Aufheizens.....	45
3.5.3 Vermeidbare Effekte des übermäßigen Aufheizens.....	47
3.6 Durch Aufheizen freigesetzte Spezies aus Schicht und Substrat.....	48
3.7. Wahl der Laserparameter für eine Laserdesorptionsmessung.....	54
4. Passive Spektroskopie an Wasserstoff.....	56
4.1 Emissionsspektroskopie an Wasserstoffatomen.....	56
4.2 Quellen des atomaren Flusses.....	60
4.2.1 Definition der inversen atomaren Ausbeute Y_A	60
4.2.2 Unterscheiden von H und D.....	61
4.3 EIRENE-Simulation des H_α -Emissionsleuchtens.....	62

5. Experimenteller Aufbau und Meßmethoden.....	68
5.1 Laser.....	68
5.2 Laboraufbau.....	70
5.2.1 Massenspektrometrische Messung der desorbierten Spezies.....	71
5.2.2 Temperaturmessung.....	73
5.3 Aufbau an TEXTOR.....	74
5.3.1 TEXTOR.....	74
5.3.2 Das Limiterschleusensystem und der Aufbau an TEXTOR.....	74
5.3.3 Datenerfassung.....	76
5.3.4 Extrapolation von der beobachteten auf die gesamte Lichtemission.....	77
5.3.5 Datenauswertung und Meßunsicherheit.....	79
5.4 Die präparierten (vorbeschichteten) Proben.....	82
6. Test und Anwendung der Meßmethode in TEXTOR.....	84
6.1 Die verwendeten Plasmaentladungen und deren Eigenschaften.....	85
6.2 Zeitliche Entwicklung des Emissionsleuchtens.....	88
6.3 Überhitzen des Laserflecks.....	90
6.4 Messung des Konversionsfaktors $(S/XB)_{eff}$ mittels Desorption präparierter Schichten.....	93
6.4.1 Schichtcharakterisierung.....	94
6.4.2 Verwendete Plasmaentladungen und Plazierung der Proben.....	96
6.4.3 Bestimmung der Konversionsfaktoren $(S/XB)_{eff}$	97
6.5 Wasserstoffinventarmessung in der Depositionszone.....	99
6.5.1 Nachuntersuchung: Colorimetrische Schichtdickenmessung.....	100
6.5.2 Nachuntersuchung mittels Laserdesorption im Labor.....	106
6.5.3 Vergleich der Resultate aus TEXTOR und aus den Nachuntersuchungen.....	108
6.6 In-situ Messung des Sättigungsinventars in der Erosionszone.....	109
6.6.1 Plasmaparameter und Lage der desorbierten Fläche.....	110
6.6.2 Vorgehensweise bei der Messung.....	111
6.6.3 Ergebnisse und Diskussion.....	113
6.7 Fazit.....	118
7. Zusammenfassung.....	120
Anhang.....	125
Literaturverzeichnis.....	127
Abbildungsverzeichnis.....	133

1. Einleitung

Eine der größten, wenn nicht die größte Herausforderung der Menschheit ist die zukünftige Energieversorgung. Mit Beginn der Industrialisierung begann die zunehmende Abhängigkeit von nichterneuerbaren Energieträgern, zunächst war dies Kohle, später kamen Erdöl, Erdgas und Uran hinzu. Im Laufe der Zeit wurde dieser Energiemix unter wechselnden Gesichtspunkten bewertet. So fiel die Entscheidung für einen Energieträger bis in die 70er Jahre allein nach dessen Verfügbarkeit und Kosten. In den 80er Jahren wuchs das Bewußtsein für Umweltprobleme, die durch die Schadstoffemissionen aus der Verbrennung fossiler Rohstoffe bzw. die langlebigen radioaktiven Abfälle aus Kernreaktoren entstanden. Infolgedessen wurden in der westlichen Welt strenge Auflagen für den Einsatz von Filtern und Katalysatoren für die Abgasreinigung eingeführt. Damit konnten die bestehenden Energieträger bei geringfügig höheren Kosten weitergenutzt werden. Die Kernenergie erfuhr einen wachsenden Widerstand aus der Bevölkerung, insbesondere als Folge des Reaktorunfalls in Tschernobyl 1986. Mitte der 90er Jahre wurde man sich dagegen eines schwerwiegenderen Problems bewußt, welches das Verfeuern fossiler Energieträger zur Deckung des stetig steigenden Energiebedarfs prinzipiell infragestellt, lange vor dem Ende aller Vorräte: Das bei der Verbrennung freigesetzte Kohlendioxid wirkt in der Erdatmosphäre als Treibhausgas. Mit steigender Konzentration in der Atmosphäre wächst die mittlere Oberflächentemperatur der Erde – einzig über das Ausmaß dieses Temperaturanstiegs ist die Wissenschaftsgemeinde noch uneins. Die Menschheit ist jedoch auf ein wechselndes Klima nicht eingestellt. Die Verschiebung von Klimazonen und der Anstieg des Meeresspiegels wird nie dagewesene soziale und wirtschaftliche Auswirkungen haben, von Mißernten und Problemen der Trinkwasserversorgung bis hin zu häufigeren Überflutungen gerade der dichtbesiedelten Küstenregionen der Welt. Um diese Folgen abzumildern wird nach Ersatz für die fossilen Energieträger gesucht, um die CO₂-Emissionen langfristig zu senken.

Auf elektrische Energie entfiel im Jahr 2005 16% des weltweiten Energieverbrauchs [IEA07]. Für deren Erzeugung ist etwa die zweieinhalbfache Menge an Primärenergie notwendig, das sind ca. 25% des Weltprimärenergieverbrauchs. Die Gewinnung von Elektrizität erfolgte im Jahr 2005 zu 67% auf Basis der fossilen Rohstoffe Kohle (40%), Erdgas (20%) und Erdöl (7%), den Rest teilten sich zu gleichen Teilen Kernenergie und Wasserkraft. Etwa 2% tragen die erneuerbaren Energieträger ohne die Wasserkraft bei. Kohlekraftwerke decken die Grundlast, teures Gas wird hauptsächlich zur Deckung von Lastspitzen eingesetzt oder als Reserve vorgehalten. Ein Ersatz insbesondere für Kohlekraftwerke muß grundlastfähig sein, was durch den vielversprechendsten erneuerbaren Energieträger, die Windkraft, nicht bzw. nur unter sehr hohen Kosten für Energiespeicherung und -transport geleistet werden kann. Die

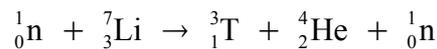
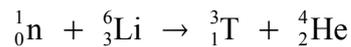
Standorte für Wasserkraftwerke sind nahezu vollständig erschlossen, die Kernkraft erlebt fast auf der gesamten Welt eine Renaissance, nachdem der Ausbau nach 1986 für zwei Jahrzehnte praktisch zum Erliegen gekommen war. Einem raschen und umfangreichen Ausbau sind jedoch vielerorts durch die mangelnde Akzeptanz in der Bevölkerung sowie durch die vergleichsweise hohen Anfangsinvestitionen Grenzen gesetzt.

Eine mögliche Option für die Grundlastversorgung in der zweiten Hälfte dieses Jahrhunderts ist die Kernfusion. Sie wäre eine Energiequelle, deren Rohstoffe Deuterium und Lithium nach menschlichen Maßstäben unerschöpflich sind und zusätzlich auf der Erde gleichverteilt vorkommen.

Die Kernfusion nutzt wie auch die Kernspaltung die Bindungsenergie der Nukleonen in Atomkernen. Es existiert ein Maximum der Bindungsenergie pro Nukleon für Kerne der Massenzahl 56 (Eisen). Das bedeutet, daß bei der Fusion zweier leichterer Kerne überschüssige Bindungsenergie freigesetzt wird. Diese abgegebene Energie macht sich als Massendefekt zwischen den Edukten und Produkten der Kernreaktion bemerkbar, nach der Gleichung $E=mc^2$. Damit zwei Atomkerne fusionieren können, müssen sie sich einander so weit nähern, daß die anziehende starke Wechselwirkung die abstoßende elektromagnetische Wechselwirkung übertrifft. Die Reaktionspartner müssen mit hoher kinetischer Energie aufeinanderstoßen. Die für die technische Realisierung in einem Fusionsreaktor besonders geeignete Deuterium-Tritium-Reaktion



erreicht ihren maximalen Reaktionsquerschnitt bereits bei einer Energie der Edukte, der beiden Wasserstoffisotope Deuterium (D) und Tritium (T), von 70 keV. Sie verschmelzen zu einem instabilen Helium-5-Kern, der praktisch instantan mit einer Halbwertszeit von $7.6 \times 10^{-22} \text{ s}$ unter Emission eines Neutrons in einen stabilen Helium-4-Kern zerfällt. Die freiwerdende Bindungsenergie von 17.6 MeV verteilt sich unter Impuls- und Energieerhaltung auf die Reaktionsprodukte. Das Deuterium wird aus Wasser gewonnen. Auf der Erde hat das Isotop Deuterium einen Anteil von 0.015% am Wasserstoff. Um den weltweiten Stromverbrauch des Jahres 2005 zu decken wäre ein Drittel des Deuteriums nötig, das in diesem Zeitraum aus dem Rhein in die Nordsee fließt. Das Wasserstoffisotop Tritium kommt dagegen nur in Spuren in der Natur vor. Es wird in der oberen Atmosphäre durch kosmische Strahlung erzeugt, ist jedoch instabil und zerfällt mit einer Halbwertszeit von 12.3 Jahren zu Helium-3. Tritium fällt lediglich in Kanada als Nebenprodukt der dortigen mit schwerem Wasser moderierten Kernreaktoren an. Die Mengen, die der Betrieb eines Fusionskraftwerk verbraucht, müssen im Kraftwerk selber hergestellt werden. Das bei der D-T-Reaktion freiwerdende Fusionsneutron wird verwendet, um das nötige Tritium aus den verschiedenen Lithiumisotopen ${}^6\text{Li}$ und ${}^7\text{Li}$ zu erbrüten.



Seine kinetische Energie von 14.1 MeV gibt das Fusionsneutron in den entsprechenden Tritiumbrutmodulen als Wärme ab. Diese Wärme wird über ein Kühlmittel abtransportiert und auf konventionelle Weise in elektrischen Strom umgewandelt. Ein Kraftwerk der Leistung 3GW_{th} würde in einem Jahr ununterbrochen brennenden Plasmas etwa eine halbe Tonne des Leichtmetalls verbrauchen. Je nach Bauweise der Brutmodule würde das Lithium für ein gesamtes Kraftwerksleben bereits bei dessen Errichtung integriert. Weltweit wäre 2005 eine Lithiummenge von 1000 t verbraucht worden, um mit Hilfe des erbrüteten Tritiums den gesamten Strombedarf zu decken.

Während das in der D-T-Reaktion freigesetzte Neutron zum Erbrüten des Tritiums verwendet wird, dient die Energie des erzeugten α -Teilchens zum Aufheizen des Plasmas. Für die Nutzung der Fusionsreaktion zum Zwecke der Energiegewinnung müssen thermonukleare Bedingungen geschaffen werden, d.h. der Fusionsbrennstoff, das D-T-Gemisch, muß als heißes, möglichst dichtes Plasma vorliegen. Für den Einschluß eines solchen Fusionsplasmas werden verschiedene Konzepte untersucht. Das am weitesten entwickelte ist der Tokamak [Wesso]. Hierbei wird das Plasma von Magnetfeldern in einer torusförmigen Kammer eingeschlossen. Eine Komponente des Magnetfelds wird erzeugt, indem nach dem Transformatorprinzip ein Strom im Plasma induziert wird. Die Brenndauer des Plasmas ist daher bei einem Tokamak prinzipiell durch den möglichen Stromhub in der Primärwicklung dieses Transformators begrenzt. Die Brenndauer beträgt bei heutigen Experimenten einige Sekunden (normalleitende Spulen) bis Minuten (supraleitende Spulen), könnte im Kraftwerksmaßstab jedoch auf einige Stunden ausgedehnt werden.

Das eingeschlossene Plasma wird auf eine Temperatur von 100 000 000 K aufgeheizt. Dies entspricht einer mittleren Energie pro Teilchen von 10keV^1 , was bedeutet, daß nur die schnellsten Teilchen der Geschwindigkeitsverteilung überhaupt zur Fusionsreaktion beitragen können. Bei einer Plasmatemperatur von 10 bis 20 keV erreicht jedoch die Fusionsleistungsdichte ihr Maximum. Eine höhere Plasmatemperatur würde zwar den Anteil an 70-keV-Teilchen im Plasma erhöhen, jedoch sänke gleichzeitig die Plasmadichte, da der durch Plasmatemperatur und -dichte erzeugte Plasmadruck durch den technisch limitierten Magnetfelddruck kompensiert werden muß.

Während der kommenden zehn Jahre wird in Südfrankreich das Fusionsexperiment ITER [ITERw] (Internationaler thermonuklearer Experimentalreaktor, bzw. lat. „der Weg“) aufgebaut und in Betrieb genommen, um dort erstmals die Nettogewinnung von Fusionsenergie sowie die Integration sämtlicher kraftwerksrelevanter Technologien zu demonstrieren. Das Ziel ist, über eine Dauer von 8 Minuten eine thermische Leistung von 500 MW aus Fusionsreaktionen zu erhalten und dabei eine Leistungsverstärkung $Q=10$ zu erreichen. Die Leistungsverstärkung ist der Quotient aus thermischer Fusionsleistung und von außen

¹ 1 eV entspricht 11 605 K

zusätzlich zugeführter Heizleistung. Weiterhin werden Schlüsseltechnologien für zukünftige Fusionskraftwerke getestet: Supraleitende Magnetfeldspulen, Komponenten, die hohe Wärmelasten verkraften, Fernhandlung und -montage sowie die Wandmodule, in denen das Tritium erbrütet wird. ITER erreicht dabei nahezu die Dimensionen eines späteren Kraftwerks, wird jedoch als Experiment betrieben, ohne jegliche Anlagen zur Stromerzeugung.

Die hohen Wärmelasten, die an einigen Komponenten des sogenannten Divertors auftreten, können im Extremfall bis zu 25 MW/m^2 erreichen. Um der Gefahr des Schmelzens von plasmabegrenzenden Komponenten zu begegnen, ist während der ersten Betriebsphase für den hochbeanspruchten Teil des Divertors die Verwendung von kohlefaserverstärktem Graphit (CFC) vorgesehen. Graphit bietet den enormen Vorteil, im Falle thermischer Überlastung nicht zu schmelzen und somit seine Form und Funktion beizubehalten. Die Fortschritte in der Fusionsforschung während der letzten zwei Jahrzehnte wurden erst dadurch ermöglicht, daß sich Graphit als Wandmaterial gegenüber den vorherigen rein metallischen Wänden durchgesetzt hatte.

Der Graphit wird auf diese Weise dem direkten Teilchen- und Wärmefluß aus dem Plasma ausgesetzt. Dies führt durch verschiedene Mechanismen zur Freisetzung von Kohlenstoff in das Plasma: Durch Sublimierung bei hohen Temperaturen, durch Zerstäubung sowie durch chemische Erosion durch die auftreffenden Wasserstoffionen. Bei der Wiederablagerung dieses Kohlenstoffs in Form amorpher Schichten wird Wasserstoff gebunden. Nahezu überall auf der inneren Oberfläche des Plasmagefäßes werden amorphe Kohlenwasserstoffschichten (a-C:H-Schichten) abgelagert. Durch diesen kontinuierlichen Zuwachs wird mit der Zeit ein beträchtlicher Teil des im Reaktor befindlichen Wasserstoff in den a-C:H-Schichten gebunden sein. In ITER wird mit einem D-T-Gemisch gearbeitet, das heißt, die Hälfte dieses Wasserstoffinventars wird aus Tritium bestehen. Aufgrund der Radioaktivität des Tritiums ist jedoch eine Obergrenze für die mobilisierbare Tritiummenge im Plasmagefäß von 350 g vorgeschrieben, entsprechend der Vorgabe, daß bei der Freisetzung des gesamten Tritiuminventars in die Umwelt keine Evakuierung der Umgebung notwendig wird.

Versuche, mittels Computersimulationen und der Extrapolation aus heutigen Experimenten abzuschätzen wann diese Sicherheitsgrenze erreicht wird und der Betrieb für die Entfernung der a-C:H-Schichten unterbrochen werden muß, ergeben innerhalb der Unsicherheiten (verschiedene Plasmakonfigurationen und Wandmaterialien) eine Anzahl der möglichen ITER-Plasmaentladungen von 10 bis zu über 1000. Es ist offensichtlich, daß die Unsicherheiten bei der Vorhersage der Tritiumeinlagerung in die a-C:H-Schichten reduziert werden müssen. Dies erfordert unter anderem neue diagnostische Methoden, das Tritiuminventar in diesen Schichten zu messen. Heutige Methoden sind bis auf wenige Ausnahmen darauf angewiesen, Proben aus der zu untersuchenden Oberfläche zu entnehmen. Auch die Bilanzierung der in die Plasmakammer eingelassenen und aus ihr abgepumpten Wasserstoffmenge ist eine etablierte Meßmethode. Einen großen Fortschritt böte jedoch die Möglichkeit, das Wasserstoffinventar zu beliebigen Zeitpunkten, auch während der Plasmaentladung, auf plasmanahen Oberflächen zu messen. Mit dem Bezug auf ITER wird eine solche zeitliche und räumliche In-situ-Fähig-

keit zu einem entscheidenden Faktor: Bei 8 Minuten dauernden Plasmaentladungen wird es nicht mehr genügen, nach einer Entladung die Nettodeposition auf der gesamten Innenwand bzw. an einigen im voraus definierten Positionen zu kennen.

Genau diese flexible Art der Inventarmessung kann mit Hilfe der laserinduzierten thermischen Desorptionsspektroskopie (LDS, auch LID) erfolgen. Eine LDS-Messung muß während einer Plasmaentladung auf einer plasmanahen Oberfläche erfolgen. Die zu analysierende Stelle wird durch einen Millisekunden dauernden Laserpuls auf Temperaturen von 1400 bis 2100 K aufgeheizt, woraufhin der in der aufgeheizten Oberflächenschicht gebundene Wasserstoff in das Plasma entweicht. Dort wird er durch Elektronenstoß zur Emission von charakteristischer Linienstrahlung angeregt. Die Anzahl der desorbierten Wasserstoffatome wird schließlich aus der Zahl der emittierten Photonen, aus den Plasmaparametern über der aufgeheizten Stelle sowie anhand von Kenntnissen über die Mechanismen der Wasserstofffreisetzung ermittelt.

Das Ziel dieser Arbeit ist die Entwicklung der LDS hin zu einer quantitativen Meßmethode. In früheren Arbeiten [Hub01] wurde bereits erfolgreich die Verwendung des laserinduzierten Aufheizens für die gezielte Desorption von a-C:H-Schichten demonstriert. Die Grundlagen der passiven Emissionsspektroskopie an Atomen sind seit langem bekannt [Pos93], die diesbezügliche Bedeutung der Moleküle wurde seit Mitte der 90er Jahre erkannt und schrittweise entschlüsselt [Vie94, Pos99, Mer01, Bre05]. Neu in dieser Arbeit ist die Zusammenführung der beiden Methoden, um ihre Vorteile einer räumlichen und zeitlichen In-situ-Messung zu kombinieren.

Die Laserdesorptionsspektroskopie wird in den folgenden fünf Kapiteln vorgestellt:

Kapitel 2 umfaßt Informationen über die **a-C:H-Schichten**, ihre Entstehung und Eigenschaften sowie über die Meßmethoden, die hier für die Analyse der Schichten eingesetzt werden.

Im Kapitel 3 wird die **Laserdesorption** untersucht. Zunächst werden anhand eines allgemein akzeptierten Modells die Prozesse beschrieben, die beim Aufheizen der a-C:H-Schichten ablaufen. Es wird ein numerisches Modell zur Temperatursimulation vorgestellt, aus dem sämtliche Temperaturangaben in dieser Arbeit abgeleitet werden. Anhand der Resultate aus Laborexperimenten wird diese Temperaturskala mit dem Desorptionsmodell verglichen. Die Simulation der Temperatur ermöglicht es weiterhin, detaillierte Aussagen über die desorbierten Flächen und Volumina zu machen. Schließlich werden Parameter von Standard-Laserpulsen definiert, die im folgenden nahezu ausschließlich verwendet werden. An deren Beispiel wird erläutert, wie bei der Auswahl der Laserparameter für die LDS vorzugehen ist.

Die **passive Emissionsspektroskopie** in der Plasmarandschicht wird in Kapitel 4 erläutert. Es wird die H_{α} -Emission von neutralen Wasserstoffatomen gemessen, die durch den Zerfall der freigesetzten Molekülspezies entstehen. Die Umrechnung der gemessenen Photonenzahlen in die Zahl an Wasserstoffatomen, die in diesen Molekülen enthalten waren, erfordert zwei Konversionsfaktoren, die in diesem Kapitel eingeführt werden. Ein Teil der H_{α} -Emission erfolgt außerhalb des beobachteten Volumens. Die Abschätzung dieses Anteils erfolgt mit Hilfe des Monte-Carlo-Codes EIRENE.

Das Kapitel 5 beinhaltet die Beschreibungen der verschiedenen **experimentellen Aufbauten** und der damit möglichen Meßmethoden sowie Betrachtungen zu Meßunsicherheiten, die aus dem Aufbau resultieren.

Schließlich werden in Kapitel 6 die Resultate der **eigentlichen LDS-Messungen** vorgestellt. Die Qualität der Methode wird anhand der Desorption sowohl präparierter wie auch in TEXTOR gewachsener Schichten demonstriert. Die hohe Empfindlichkeit wird gezeigt, indem die LDS für bislang einmalige Messungen in der Erosionszone verwendet wird. Am Ende dieses Kapitels erfolgt eine Bewertung der LDS, wofür nochmals sämtliche Einzelschritte aufgeführt werden, die bei einer LDS-Messung zu beachten sind.

2. a-C:H-Schichten

Das Ziel der vorliegenden Arbeit ist die Nutzung der laserinduzierten thermischen Desorption zur In-situ-Bestimmung des Wasserstoffgehalts in den Oberflächen der plasmabegrenzenden Elemente eines Fusionsreaktors. Während der Plasmaentladung wird dort auf drei Arten Wasserstoff eingelagert: Durch Adsorption auf der Oberfläche, durch Implantation in eine Oberflächenschicht und durch Deponierung amorpher Kohlenwasserstoffschichten (a-C:H-Schichten).

Die a-C:H-Schichten sind der Gegenstand dieses Kapitels. Sie werden gebildet, sobald Kohlenstoff für plasmabegrenzende Komponenten verwendet wird, als Graphit oder CFC (Carbon-Fibre reinforced Carbon, kohlefaserverstärkter Graphit). In ITER zum Beispiel sollen CFC-Divertorplatten zum Einsatz kommen, und kaum ein heutiges Fusionsexperiment kommt ohne Graphit/CFC aus. Werden jedoch a-C:H-Schichten gebildet, so tragen sie einen beträchtlichen Teil des im Reaktorgefäß gefangenen Wasserstoffs.

Die Entstehung der a-C:H-Schichten läßt sich vereinfacht anhand der Wechselwirkungen von keV-Wasserstoff- und -Kohlenstoffionen sowie Molekülen und Radikalen eines Prozeßgases verstehen. Die Wasserstoffionen aktivieren die ansonsten chemisch passive Oberfläche, indem sie Wasserstoffatome von der Oberfläche lösen und offene Bindungen zurücklassen. Diese ermöglichen den Molekülen die Ankopplung an die Oberfläche und den Aufbau der Schicht. Auf plasmaexponierten Oberflächen in Fusionsplasmen wirken sehr intensive und energiereiche Wasserstoffionenflüsse ein. Dort bestimmen vor allem die Konzentration und die Energie der aus dem Plasma kommenden Kohlenstoffionen den Aufbau der Schichten. In Abschnitt 2.1. wird detaillierter auf diese Prozesse eingegangen.

Abschnitt 2.2. gibt einen Überblick über die physikalischen Eigenschaften der Schichten. Der Fokus liegt dabei auf der Variation der optischen Eigenschaften mit dem Wasserstoffinventar.

Im letzten Abschnitt 2.3 werden die Meßmethoden, mit denen die erzeugten Schichten charakterisiert wurden, kurz vorgestellt.

Für weitere Informationen zu a-C:H-Schichten sei insbesondere auf die Übersichtsartikel von Robertson [Rob02], Jacob [Jac98] und Küppers [Küp95] verwiesen.

2.1 Die Bildung amorpher Kohlenwasserstoffschichten

Die Eigenschaften amorpher Kohlenwasserstoffschichten hängen von ihrer Entstehungsgeschichte ab. Daher soll in diesem Kapitel zunächst beschrieben werden, welche Prozesse zu ihrer Bildung führen. Der Schwerpunkt wird dabei auf das entstehenden Wasserstoffinventar gelegt.

Im einem Laborexperiment können die Parameter gewählt werden, die die gewünschte Schicht wachsen lassen. Im Fusionsreaktor dagegen sind die Plasmaparameter durch die Entfernung der Oberfläche zur letzten geschlossenen Flußfläche (LCFS) vorgegeben. Im Abschnitt 2.1.2 soll daher das Vorkommen bestimmter Schichten in einem Fusionsreaktor sowie ihre räumliche Verteilung näher beleuchtet werden.

2.1.1 Die Entstehung der Schichten

Auf Oberflächen, die einem mit Kohlenstoff verunreinigten Wasserstoffplasma ausgesetzt sind, scheiden sich amorphe Kohlenwasserstoffschichten ab. Die dafür verantwortlichen Prozesse werden im folgenden erläutert.

Im Plasma liegen neben Kohlenwasserstoffmolekülen (KW) auch deren Radikale sowie Wasserstoffatome und -moleküle vor, weiterhin Ionen aller dieser Spezies. In Laborplasmen wird ein Prozeßgas ($\text{KW} + \text{H}_2$) vorgegeben, durch dessen Dissoziation eine Vielzahl auch größerer KW-Moleküle erzeugt wird. In Fusionsplasmen dagegen überwiegen einfachere Moleküle wie Methan, je heißer das Plasma wird, desto wichtiger werden jedoch die reinen Kohlenstoff- und Wasserstoffionenflüsse. Die molekularen Bestandteile dieser Plasmen sind experimentell kaum zugänglich: Spektroskopisch können anhand bestimmter Molekülbanden H_2 (Fulcher-Band) sowie die Zerfallsprodukte C_2 (Swan-Band), CH (Gerö-Band) und CH^+ (Douglas-Herzberg-Band) im sichtbaren Spektralbereich gemessen werden [Bre07].

Die Atom- und auch Molekülionen im Plasma werden durch die Schichtspannung des Plasmas und die angelegte Vorspannung beschleunigt und treffen mit Energien von bis zu 300 eV auf die Wand. In Fusionsplasmen wird die Wand zusätzlich von höherenergetischen (bis keV) Wasserstoffatomen bombardiert, die im Plasma infolge von Ladungsaustauschreaktionen entstehen. Eine Vielzahl von Prozessen in und auf der a-C:H-Schicht sind daraufhin möglich, die sich untereinander auf äußerst komplexe Weise verstärken oder abschwächen [Rob02, Swa03]:

Molekülradikale koppeln an freie Bindungen an der Schichtoberfläche an und tragen so direkt zum Schichtaufbau bei. In geringem Maße erzeugen sie dort auch freie Bindungen.

Hochenergetische (0.1 bis 1 keV) Wasserstoffatome und -ionen wechselwirken aufgrund ihrer geringen Masse vor allem mit anderen Wasserstoffatomen in der Wand. Durch sie entstehen freie Bindungen an Kohlenstoffatomen, indem Wasserstoff aus einer C-H-Bindung herausgeschlagen wird. Dadurch wiederum aktivieren sie die ansonsten chemisch passive a-C:H-Schicht, sowohl an der Oberfläche als auch im Volumen bis zu ihrer Eindringtiefe von bis zu

einigen hundert Nanometern. Durch die stärkere Vernetzung wird die Härte der Schicht erhöht, wie auch ihre Dichte und ihr Brechungsindex, während ihr Wasserstoffgehalt mit zunehmender Vernetzung sinkt.

Kohlenstoffionen spielen bei der Deponierung von Schichten in Niedertemperaturplasmen eine vernachlässigbare Rolle. Sie treten vor allem als Verunreinigung in der Randschicht von Fusionsplasmen auf. Ihre Konzentration im Plasma sowie ihre Energie bzw. die energie- und massenabhängige Zerstäubungsausbeute bestimmen, ob auf einer plasmaexponierten Oberfläche die Deponierung von Schichten oder die Erosion der Oberfläche erfolgt.

Niederenergetische (<100 eV) Wasserstoffatome und -ionen bewirken dagegen im Zusammenspiel mit Kohlenstoff- und anderen schweren Ionen eine Erosion der a-C:H-Schicht: Die durch die Wirkung der schwereren Teilchen erzeugten offenen C-Bindungen werden effektiv durch niederenergetischen Wasserstoff passiviert. Auf diese Weise können schwach gebundene Kohlenwasserstoffmoleküle innerhalb der a-C:H-Schicht gebildet werden, die anschließend aus der Schicht herausdiffundieren. Kohlenstoff wird auf diese Weise „chemisch“ erodiert und ins Plasma freigesetzt.

Neutrale Moleküle und Radikale tragen zum Schichtaufbau in Niedertemperaturplasmen bei. In Hochtemperaturplasmen treten sie nur infolge der chemischen **Reerosion** von a-C:H-Schichten auf. Sie gelangen ins Plasma und werden entweder sofort lokal redeponiert oder über längere Strecken innerhalb des Plasmas transportiert um schließlich zu dissoziieren. Dies ist neben der Zerstäubung von Wandkomponenten die Quelle der Kohlenstoffionen im Plasma. Die wiederholte Reerosion und Redeposition führt zu einer Kohlenstoffmigration entlang der Reaktorwand. Der Kohlenstoff akkumuliert sich schließlich in vom direkten Plasmafluß abgeschatteten Bereichen. Die auf die Wand treffenden neutralen Moleküle und Radikale dringen nicht in die Wand oder die a-C:H-Schicht ein sondern reagieren nur mit ihrer Oberfläche. Dort können sie sich anlagern oder gebundene Wasserstoffatome lösen und somit wiederum freie Bindungen erzeugen. Die Haftung (sticking) der Moleküle kann jedoch sehr verschieden sein. So haftet das Methanmolekül mit seiner abgeschlossenen 2p-Schale sehr schlecht (Sticking ≈ 0). Ungesättigte mehratomige Kohlenwasserstoffe (C_2H_4 etc.) und Mehrfachradikale² (CH_2) dagegen können direkt in eine bestehende C-C-Bindung der Schicht eingegliedert werden und haften sehr viel stärker an der Oberfläche. Monoradikale (CH_3) sind auf freie Bindungen an der Oberfläche angewiesen und liegen mit ihrer Haftung zwischen diesen beiden Beispielen. Ein von Null verschiedener Fluß an hochenergetischen Wasserstoffionen aktiviert die Schichtoberfläche durch das Erzeugen freier Bindungen und erhöht so die Haftung für Monoradikale um bis zu zwei Größenordnungen.

Die Depositionsrate wird also bestimmt durch die Häufigkeitsverteilung der im Plasma vorkommenden Spezies und ihrer Energieverteilung, durch das Haftungsvermögen der Spezies, ihre Fähigkeit freie Bindungen zu erzeugen oder zu passivieren und nicht zuletzt die

2 „mehrfach“ bezieht sich auf die Anzahl an offenen Bindungen

Fähigkeit, die Oberfläche zu zerstäuben. Der genaue Mechanismus der Deponierung kann jedoch selbst bei Kenntnis aller Teilchenflüsse nicht angegeben werden, da die verschiedenen Einzelprozesse einander zu stark beeinflussen.

Die in dieser Arbeit verwendeten vorbeschichteten Proben wurden in einem Methan-Wasserstoff-Plasma (4:1) bei einer Vorspannung von 300 V beschichtet. Die beobachtete Depositionsrate von 2 bis 3 nm/min ist sehr niedrig [Möl95]. Der Brechungsindex der gebildeten Schichten lag im Bereich $n=1.9...2.0$, ihr Wasserstoffinventar betrug dabei $4 \times 10^{19} \text{ m}^{-2}$ pro nm Schichtdicke, was ein um den Faktor 1.3 bis 1.7 höherer Wert ist als in den später in TEXTOR deponierten Schichten.

2.1.2 Vorkommen von a-C:H-Schichten im Fusionsreaktor

In Fusionsexperimenten bilden sich a-C:H-Schichten auf den Innenwänden des Reaktors infolge von Reerosion und Redeposition, wenn als Material für plasmabegrenzende Komponenten Kohlenstoff verwendet wird [May01, Jac05]. Dieser wird durch die aus dem Plasma kommenden Teilchen erodiert, entweder physikalisch durch Zerstäubung oder chemisch durch Reaktion mit den auftreffenden Wasserstoffionen. Die chemische Erosion des Kohlenstoffs [Rot99] führt zur Freisetzung von Kohlenwasserstoffmolekülen C_nH_m [Jac98] in das Plasma, die nach den gerade beschriebenen Prozessen a-C:H-Schichten formen und im Plasma die Konzentration von Kohlenstoff erhöhen. Aus dem Plasma kommende hochenergetische Wasserstoffionen verdichten und vernetzen diese Schicht aus locker gebundenen und in der Regel gesättigten Kohlenwasserstoffen. Sie schlagen bevorzugt Wasserstoffatome aus der Schicht, bedingt durch Impuls- und Energieerhaltung. An die freiwerdenden Bindungen können neue Wasserstoffatome ankoppeln, vor allem aber können die Kohlenstoffatome der Schicht untereinander rekombinieren. Die aus dem Plasma kommenden Kohlenstoffionen tragen zum Zerstäuben der Wandoberflächen und a-C:H-Schichten bei. Die Selbstzerstäubungsausbeute des Kohlenstoffs ist generell kleiner als 1. Der Deponierung von Schichten wirkt jedoch die chemische Erosion durch die Wasserstoffionen entgegen. Damit es zur Deponierung von Schichten auf Oberflächen kommt, die dem direkten Plasmafluß ausgesetzt sind, muß daher die Kohlenstoffkonzentration im Plasma einen von der chemischen Erosionsausbeute abhängigen Schwellwert überschreiten.

Die auf diese Weise aufwachsenden a-C:H-Schichten können abermals erodiert werden (Reerosion), so daß sich auf der Wandoberfläche eine Migrationsbewegung von Kohlenstoff einstellt [Wie03]. Infolge der chemischen Erosion des Kohlenstoffs wird aufgrund der Freisetzung als Kohlenwasserstoff auch ein Wasserstoffinventar entlang der Wand transportiert. Quellen dieser Bewegung sind Netto-Erosionszonen im Reaktor, also Flächen an denen die Erosionsrate größer als die Depositionsrate ist. Dies sind im allgemeinen Oberflächen, die einem starken direkten Teilchenfluß aus dem Plasma ausgesetzt sind, wie Limiter und Divertor-Prallplatten. Plasmaferne und abgeschattete Bereiche stellen die Senken dar. Dort fehlt der Einfluß der Wasserstoffionen, weshalb die dortigen Schichten sehr viel lockerer und wasserstoffreicher sind als die unter Plasmaexposition deponierten. Solche weit

entfernt vom Plasma befindlichen Schichten sind jedoch für die Laserdesorptionsspektroskopie (LDS) nicht erreichbar. Die emissionsspektroskopische Messung der Desorptionsprodukte ist dort aufgrund der fehlenden Elektronenstoßanregung nicht möglich.

Auch plasmaexponierte Flächen können Senken für die Kohlenstoffmigration sein. Dies ist dann der Fall, wenn die Depositionsrate die Erosionsrate lokal übertrifft. Diese Schichten können mit der LDS untersucht werden.

In plasmanahen und plasmafernen Senken können a-C:H-Schichten aufwachsen, deren einzige Beschränkung bezüglich der Schichtdicke die eigene mechanische Integrität und die Haftung am Substrat sind. Ab Dicken um 50-100 μm beginnen die Schichten, sich abzulösen und zu Boden zu fallen bzw. im Plasma zerstäubt zu werden [Pea99]. Insbesondere beim Belüften des Reaktors bzw längerer Lagerung an Luft blättern die Schichten ab [Rub01], vermutlich infolge der Reaktion einiger Bestandteile der Schicht (z.B. Bor) mit Sauerstoff.

Neben dem Anlagern von Kohlenwasserstoffen führt auch die Implantation von Wasserstoffionen und -atomen zur Bildung von a-C:H-Schichten [Jac05]. Hochenergetische Wasserstoffatome werden im Plasma durch Ladungsaustausch zwischen Wasserstoffionen und thermischen Verunreinigungsatomen erzeugt. Da die Bewegung von Neutralteilchen nicht an das Magnetfeld gekoppelt ist, findet Implantation auf der gesamten Innenwand statt. Die Flüsse entlang der Magnetfeldlinien sind um Größenordnungen höher als die infolge des Ladungsaustauschs, sie wirken jedoch auf die relativ kleinen Flächen von Limitern und Divertorprallplatten (ITER: 680 m^2 Wandfläche, davon 6-8 m^2 im Divertor). Die Wasserstoffimplantation bewirkt die Bildung einer wenige Mikrometer dicken Schicht, entsprechend der Eindringtiefe der Teilchen. Das Wasserstoffinventar in diesen Schichten wächst zunächst an, erreicht jedoch nach kurzer Zeit eine Sättigung [Haa95]. In Netto-Erosionszonen **dieser plasmabegrenzenden Komponenten** wird auf diese Weise ein Gleichgewichts-Wasserstoffinventar aufgebaut, das herkömmlichen post-mortem-Analysen nicht zugänglich ist.

2.1.3 Herstellung von a-C:H-Schichten in einem Niedertemperaturplasma

Um die Prozesse bei der laserinduzierten thermischen Desorption an gut definierten und reproduzierbaren Schichten untersuchen zu können, wurden in einem Laborexperiment (PADOS) Graphitproben a-C:H-beschichtet. Diese Proben wurden anschließend mit verschiedensten Methoden charakterisiert, um ihr Wasserstoffinventar zu bestimmen. Sie wurden dann für die Untersuchung der Laserdesorptionsprozesse im Laboraufbau (Kapitel 3) sowie zur Messung der $(S/XB)_{\text{eff}}$ -Konversionsfaktoren in TEXTOR eingesetzt (Kapitel 6.4).

Für die Beschichtung wurden die Proben einem RF-geheizten Niedertemperaturplasma ausgesetzt. Als Prozeßgas kam deuteriertes Methan (CD_4) zum Einsatz, dem 20% Deuterium zugesetzt waren. Zwischen den Elektroden wurde eine Vorspannung von 300 V angelegt, und die Proben wurden auf der Kathode platziert. Bei den verwendeten Depositionsparametern

<i>Typ</i>	<i>Akronym</i>	<i>H/(H+C)</i>	<i>H/C</i>	<i>C-Hybridisierung</i>
weich, polymerartig	PLC	> 40 at%	> 0.6	60% sp ³
hart, diamantartig	DLC	20 ... 40 at%	0.05 ... 0.6	< 40% sp ³

Tabelle 2.1: Grobe Einteilung von a-C:H-Schichten nach ihrem Wasserstoffgehalt, nach [Rob02]. Schichten mit H/C < 0.25 werden in [Rob02] auch als graphitartig bezeichnet. Dies ist jedoch ungebräuchlich für Schichten aus Fusionsanlagen.

entstanden Schichten mit einem Verhältnis $H/C=0.4...0.6$ und einem Brechungsindex $n=1.9...2.0$. Diese Schichten haften infolge der hohen inneren mechanischen Spannungen lediglich bei Dicken kleiner als 500 nm dauerhaft auf den Graphitsubstraten.

2.2 Das Wasserstoffinventar und die optischen Eigenschaften von a-C:H-Schichten

Amorphe Kohlenwasserstoffschichten werden grob unterteilt in sogenannte harte und weiche Schichten (s. Tab. 2.1). Die Namen entsprechen ihren stark variierenden mechanischen Eigenschaften. Diese Schichtarten sind eine Folge der Plasmabedingungen am Ort der Deponierung. In abgeschatteten Bereichen, die keinem direkten Teilchenfluß aus dem Plasma ausgesetzt sind, werden sehr lockere, wasserstoffreiche Schichten gefunden, wie zum Beispiel an den wassergekühlten Gittern vor den Pumpleitungen an JET [Coa01]. Da dort kein Fluß von Wasserstoffionen und -atomen auf die Schicht trifft, werden nur wenige freie Bindungen in der a-C:H-Schicht erzeugt, und die C-Atome rekombinieren nur in geringem Maße. Das H/C-Verhältnis bleibt folglich hoch, und die Schicht ist in sich nur locker gebunden. Derartige Schichten sind jedoch nicht Gegenstand dieser Arbeit, da sie vorwiegend in plasmafernen Bereichen entstehen, die der Emissionsspektroskopie zur Messung des freigesetzten Wasserstoffs nicht zugänglich ist.

In den plasmaexponierten Depositionszonen, die einem Fluß von Kohlenstoffionen sowie von hochenergetischen (>100 eV) Wasserstoffatomen und -ionen ausgesetzt sind, bilden sich harte Schichten. Die direkte Ablagerung von Kohlenstoffatomen sowie der hohe Wasserstofffluß führen zu einem relativ niedrigen H/C-Verhältnis von bis zu 0.3 und zu einer stark vernetzten Schicht. Durch kurzzeitige Temperaturexkursionen auf über 900 K oder langanhaltender hoher Temperatur durch den Energieeintrag aus dem Plasma kann der Wasserstoffgehalt solcher Schichten weiter verringert sein, d.h. das H/C-Verhältnis der Schicht ist kleiner als 0.1. Der Wasserstoff in einer solchen Schicht ist hauptsächlich an sp²-hybridisierte Kohlenstoffatome gebunden.

Die im Labor hergestellten harten a-C:H-Schichten erreichten Dicken um 500 nm, bevor sie sich vom Graphitsubstrat lösten. Aus Fusionsexperimenten wurden jedoch Schichten von bis zu 200 µm Dicke gefunden, die während einiger Jahre Betriebszeit (10 Plasmastunden)

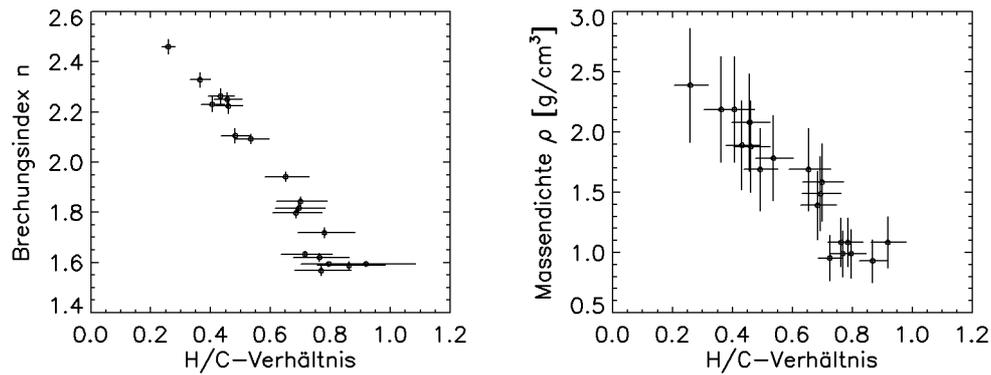


Abb. 2.1: H/C-Verhältnis, Massendichte und Brechungsindex von a-C:H-Schichten [Swa99]

Referenz	[Wie90]	[Rub01]	[Pea99]
Schichtdicke	20...100 nm (Profil entlang Probenoberfl.)	50 μm	40 μm
Fundort	TEXTOR, Kollektorsonde in Abschälschicht	TEXTOR ALT- Limitierziegel	JET, innerer Divertor, Louvre
n	2.4	n/a	n/a
Massendichte ρ [g/cm ³]	1.26	2	n/a
H-Atomdichte ρ_H [10 ¹⁹ /m ² nm]	2.5 \pm 0.5	1	n/a
(H,D)/C	0.4 \pm 0.1	0.10 \pm 0.05	0.4 (D/C) 0.8..1.0 ((H+D)/C)
B/C	0.23	n/a	0

Tab. 2.2: Eigenschaften von in Fusionsexperimenten deponierten Schichten

aufgewachsen waren. [Rub01, Oya05] Diese Bildung sehr dicker Schichten ist die Folge wechselnder Depositionsbedingungen, wodurch die mechanischen Spannungen abgebaut werden können, die sonst kritisch für die Haftung auf dem Substrat sind. Entsprechend ihrer Entstehungsgeschichte bestehen sie aus einer Vielzahl einzelner Lagen (s. a. [Wie03]).

Die Beschreibung der optischen Eigenschaften und des Wasserstoffgehalts soll sich daher auf dünnen Schichten beschränken. An Schichten aus Niedertemperaturplasmen sind in anderen Veröffentlichungen [Swa99] verschiedene Gesetzmäßigkeiten beobachtet worden, die eine sehr gute Charakterisierung erlauben. Das H/C-Verhältnis und die Volumendichte korrelieren mit dem Brechungsindex n der Schicht (Abb. 2.1), der mittels Ellipsometrie experimentell gut zugänglich ist. Es zeigt sich, daß nicht das Prozeßgas maßgeblich ist für die Schichteigenschaften, sondern die Energie der auftreffenden Kohlenstoffatome.

In anderen Veröffentlichungen werden niedrigere Werte für das H/C-Verhältnis und den Brechungsindex genannt, verglichen mit den Daten aus Abb. 2.1. Dabei handelt es sich jedoch um Schichten, die auf plasmabegrenzenden Komponenten in Fusionsexperimenten entstanden waren (Tab. 2.2). Hier kann es zur Kodeponierung von anderen Elementen neben Kohlenstoff

und Wasserstoff kommen, wie z.B. Bor. Auch die Temperatur der Schicht sowie die Ionenflüsse und -energien sind höher und weniger stabil während der Expositionszeit als in den Niedertemperatur-Laborplasmen.

2.3 Methoden der Schichtcharakterisierung

Für die Untersuchungen zur Laserdesorption in Kapitel 3 sowie für einige der Messungen in Kapitel 6 wurden Graphitproben verwendet, die mit einer deuterierten a-C:H-Schicht vorbeschichtet wurden. Um das Wasserstoffinventar dieser Schichten zu bestimmen und die Meßresultate der Laserdesorption beurteilen zu können, wurden Messungen an den Proben durchgeführt sowie an mitbeschichteten Plättchen aus poliertem Silizium. Neben diesen Proben wurden auch in TEXTOR deponierte und laserdesorbierte Schichten nachträglich analysiert. Keine der verschiedenen Analyseverfahren kann für sich allein die Schichteigenschaften hinreichend bestimmen. Mit der Kombination mehrerer Meßverfahren ist jedoch eine gute Charakterisierung der Schichten möglich. Die verschiedenen Meßmethoden werden hier kurz vorgestellt.

Die **Ellipsometrie** bestimmt aus der Änderung der Polarisation des unter verschiedenen Winkeln von der Probenoberfläche reflektierten Lichts den komplexen Brechungsindex ($n+ik$) der Schicht und die Schichtdicke. Sie kann nur bei Proben angewendet werden, die hinreichend gut reflektierend und plan sind, wie zum Beispiel bei den Siliziumplättchen, die bei jeder Beschichtung der Graphitproben mitbeschichtet wurden. Bei der Messung wird über eine Fläche von ca. 3 mm gemittelt. Das ist die Fläche, die der für die Messung verwendete HeNe-Laser bestrahlt. Es ist zu beachten, daß Brechungsindex n und Extinktionskoeffizient k für die Wellenlänge des HeNe-Lasers (632.8 nm) bestimmt werden. Die Werte der optischen konstanten bei der Nd:YAG-Laserwellenlänge (1064 nm), die bei der Desorption verwendet wurde, müssen mittels der Dispersion der Schicht abgeschätzt werden. Der Brechungsindex kann 5% bis 10% niedriger angesetzt werden, der Extinktionskoeffizient um 50% bis 70% niedriger als der ellipsometrisch bestimmte Wert [McK82]. Für die Bestimmung des Wasserstoffinventars, vor allem durch Vergleich mit Literaturwerten [Swa99], sind die bei 633 nm gewonnenen Daten dagegen sehr gut geeignet.

Colorimetrie [Wie94] nennt man die Bestimmung der Schichtdicke anhand der Interferenzfarben, die bei Beleuchtung der Schicht sichtbar werden. Dabei kann Licht mit einem kontinuierlichen Spektrum verwendet werden, also das einer Halogenlampe (3200 K) oder Tageslicht (6500 K). Der gemessene Farbwert ist im wesentlichen abhängig von dem Produkt aus Schichtdicke und Brechungsindex der Schicht. Er hängt jedoch nicht von der Lichtintensität ab. Geringe Variationen des Absorptionskoeffizienten, wie sie in der Realität beobachtet werden können, haben nur geringen Einfluß auf den gemessenen Farbwert. Mit wachsender Absorption der Schicht nimmt lediglich die Farbsättigung ab. Aus diesem Grund stößt die Colorimetrie bei Schichtdicken größer 1 µm an ihre Grenzen, da Farbunterschiede zunehmend

schlechter aufgelöst werden. Die optischen Konstanten n und k des Schichtsystems müssen bekannt sein, um die Schichtdicke zu ermitteln. Die Colorimetrie setzt also die Kenntnis der komplexen Brechungsindizes von Probe und Substrat voraus, wie sie zum Beispiel mit der Ellipsometrie gemessen werden. Im Anhang ist eine Farbtabelle zu finden, die die nach [Hof90] berechneten Interferenzfarben als Funktion von Brechungsindex und Schichtdicke zeigt.

Mit dem **Lichtmikroskop** können auch räumlich eng begrenzte Farbverläufe aufgelöst werden. Diese entstehen zum Beispiel an Kanten von Abdeckungen.

Die **Rasterelektronenmikroskopie** (REM, auch engl. SEM) vermag, die Schichtdicke direkt zu messen. Hierzu muß jedoch eine Probe zerbrochen werden, um die Dicke an der Bruchkante zu messen bzw. die Schicht muß Risse aufweisen. Weiterhin darf die Rauigkeit der Probe höchstens von der Größenordnung der Schichtdicke sein. Die REM erlaubt auch, Oberflächenveränderungen infolge der Desorption zu analysieren, wie zum Beispiel das Ablösen der Schicht oder das teilweise Sublimieren der Schicht.

Bei der **Profilometrie** wird die Probe mit einer Nadel abgetastet, wobei vertikale Auflösungen von 1 nm möglich sind. Die horizontale Auflösung ist jedoch begrenzt durch die Form der Nadelspitze, einer Halbkugel mit 6 µm Radius. Schichtdicken können an Kanten, verursacht durch Ablösen der Schicht oder durch Abdecken vor dem Beschichten, gemessen werden.

Mit **SIMS** (Sekundärionen-Massenspektroskopie) kann ein Tiefenprofil der Elementverteilung in der Probe bestimmt werden. Ein Ionenstrahl (Cs^+ , O^+) wird benutzt, um die Probenoberfläche auf einer Fläche von 0.1 mm² zu zerstäuben. Die dabei aus der Probe herausgeschlagenen Sekundärionen werden massenspektrometrisch identifiziert. Mit zunehmender Dauer der Bestrahlung wächst die Tiefe, aus der die Sekundärionen stammen, wodurch die Tiefenauflösung möglich wird. Eine Tiefenkalibrierung muß jedoch gesondert erfolgen, da lediglich die Zerstäubungsdauer bekannt ist, die von der Zerstäubungsausbeute der jeweiligen Elemente durch die Primärionen abhängt. Vielfach werden daher Zwischenschichten (wenige Atomlagen) aus anderen Elementen in Schichtsysteme eingebaut, die bei der SIMS-Analyse eine Referenztiefe markieren.

Die **Thermische Desorptionsspektroskopie** (TDS) mißt die Menge flüchtiger Stoffen in der Probe, indem die zu untersuchende Probe im Hochvakuum in einem Ofen bei Heizraten von einigen K/s ausgeheizt wird. Die Probe wird dabei zerstört. Die freigesetzten Gase werden massenspektrometrisch gemessen. Diese Methode ist verwandt mit der hier ausgearbeiteten laserinduzierten thermischen Desorption (LD – nicht LDS \equiv Laserinduzierte thermische Desorption + emissionsspektroskopischer Nachweis!). In beiden Verfahren werden die flüchtigen Stoffe thermisch freigesetzt. Das Aufheizen im Ofen erfolgt jedoch bei sehr viel geringeren Heizraten als bei der LD (10⁶ K/s). Weiterhin heizt ein Laserpuls nur eine dünne Oberflächenschicht von weniger als 0.1 µm Dicke auf, im Gegensatz zur TDS, die stets das gesamte Probenvolumen ausgast. Der Nachweis der desorbierten Teilchen erfolgt jeweils massenspektrometrisch. Bei der TDS ist dies eine Durchflußmessung, bei der LD eine Messung des Druckanstiegs in einem abgeschlossenen Volumen.

3. Laserinduzierte thermische Desorption

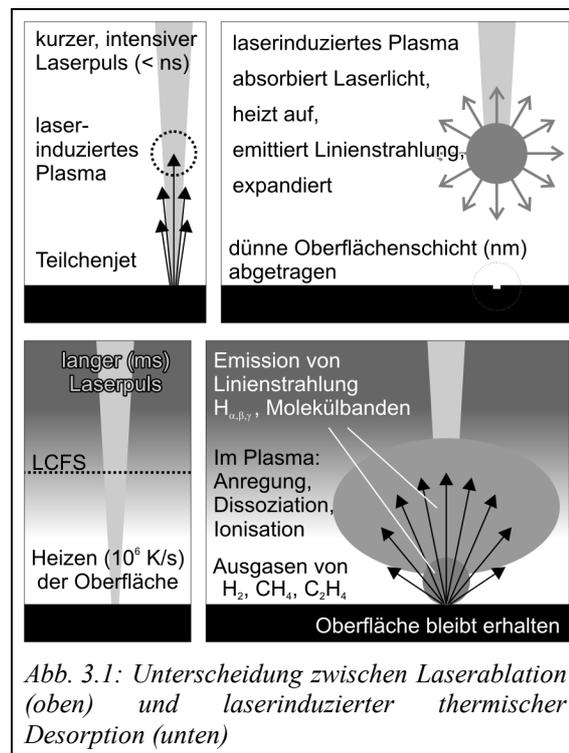
Die Wirkung von Laserlicht auf Materialien kann sehr verschiedenartig sein. Reflexion, Absorption und Transmission werden durch die Wellenlänge des Lichts und das Material bestimmt. Die Einwirkdauer und die einwirkende Leistung pro Fläche gibt vor, welche physikalischen Prozesse bestimmend werden.

Man unterscheidet grob zwischen Laserablation und Laserdesorption, abhängig von der Dauer des Laserpulses und der eingetragenen Energie pro Fläche. Die Abbildung 3.1 zeigt den prinzipiellen Unterschied zwischen Ablation (oben) und Desorption (darunter). Das jeweils linke Bild liegt zeitlich vor dem rechten.

Ablation bezeichnet das Abtragen einer einige zehn Nanometer dicken Schicht von der Oberfläche infolge sehr kurzer, intensiver Laserpulse (z.B. gütegeschalteter Rubinlaser, $\lambda = 694 \text{ nm}$, $10 \text{ ns} \times 10^{14} \text{ W/m}^2$). Dabei werden mit Pulsdauern von Nano- bis hinunter zu Picosekunden sehr hohe Leistungsdichten auf der Oberfläche erreicht. Innerhalb der kurzen Pulsdauer ist der Wärmetransport im Material vernachlässigbar, und allein die Eindringtiefe des Laserlichts

bestimmt die Tiefe des aufgeheizten Volumens: Eine Oberflächenschicht von wenigen Nanometern Dicke wird noch während des Laserpulses explosiv freigesetzt, ablatiert. Das Laserlicht kann mit den freigesetzten Teilchen wechselwirken, wodurch ein laserinduziertes Plasma entstehen kann. Dieses wird durch das einfallende Laserlicht angeregt, und das Laserlicht erreicht die Oberfläche nicht mehr. Die Emission aus einem solchen laserinduzierten Plasma wird zum Beispiel bei der laserinduzierten Breakdown-Spektroskopie (LIBS) genutzt.

Die *Desorption* dagegen verwendet lange Pulse (Millisekunden), um eine Oberfläche bis zu einigen Zehntelmillimetern tief aufzuheizen. Um starke Temperaturexkursionen zu vermeiden ist ein Laserpuls nötig, der zeitlich und räumlich homogen ist [Swf05]. In dieser Arbeit wird die Laserdesorption dazu verwendet, Graphitoberflächen auf einer Fläche von 4 mm^2 bis 6 mm^2 auf 1400 K bis 2100 K aufzuheizen. Dies führt zur Freisetzung von Wasserstoff aus dem Graphitsubstrat und aus a-C:H-Schichten auf dessen Oberfläche. Der Laser ist ein



Nd:YAG-Laser ($\lambda = 1064 \text{ nm}$), die verwendeten Pulsdauern liegen im Bereich 1 ms bis 5 ms, die auf der Probenoberfläche erreichten Laserleistungsdichten reichen von 200 MW/m^2 bis 1000 MW/m^2 . Auf dieser Millisekunden-Zeitskala wird der Aufheizprozeß weniger durch die Eindringtiefe des Laserlichts bestimmt, sondern vielmehr durch die Wärmeleitung von der geheizten Oberfläche in das darunterliegende Volumen. Die Energieverluste in Form von Schwarzkörperstrahlung, durch die freigesetzten Teilchen oder durch Emission thermischer Elektronen sind selbst bei einer Temperatur von 2100 K noch kleiner als 1% der zugeführten Leistung und somit zu vernachlässigen.

Diese Arbeit beschäftigt sich ausschließlich mit der Laserdesorption von a-C:H-beschichteten und unbeschichteten Graphitproben. In diesem Kapitel werden die verschiedenen für die Laserdesorption maßgeblichen physikalischen Prozesse beschrieben und entsprechende geeignete Laserparameter abgeleitet.

Überschreitet die Temperatur der Oberfläche einen Schwellenwert von 600 K , so beginnt ein Umbau der Schicht, verbunden mit der Freisetzung des zuvor chemisch in der a-C:H-Schicht gebundenen Wasserstoffs [Küp95]. Freigesetzt werden zunächst vor allem Kohlenwasserstoffe, ab 900 K dann ausschließlich molekularer Wasserstoff. Auch der im Substrat gebundene Wasserstoff wird durch das Aufheizen mobil, diffundiert an die Korngrenzen und wird analog zum Wasserstoff der Schicht freigesetzt. Atomare Freisetzung von Wasserstoff aus der Schicht wird dabei nicht beobachtet, da die Schicht bereits ausgegast ist, bevor Temperaturen größer als 1400 K erreicht werden, bei denen ein nennenswerter Teil des Wasserstoffs atomar freigesetzt würde [Bre05]. Wasserstoff aus dem Substrat könnte dennoch atomar freigesetzt werden, da wegen der relativ langsameren Wasserstoffdiffusion im Substrat stets auch noch gegen Ende des Laserpulses Wasserstoff durch die heiße Oberfläche tritt. Diese eigentlichen Desorptionsvorgänge werden in Abschnitt 3.1 beschrieben.

Bei den hier verwendeten Laserflecken genügt aufgrund ihrer Fläche eine eindimensionale Betrachtung der Wärmeleitung senkrecht zur Oberfläche: Der den Wärmetransport treibende Temperaturgradient ist parallel zur Oberfläche nur am Fleckrand von Null verschieden, und zwar auf einer Strecke von $0.1 \dots 0.2 \text{ mm}$ die klein ist gegen den Fleckdurchmesser von 2.4 mm . Die Wärmeleitung an diesem Fleckrand kann separat betrachtet werden, um die Inhomogenität der Temperatur am Fleckrand abzuschätzen. So zeigt sich zum Beispiel, daß die aufgeheizte Fläche mit der Zeit wächst, was eine Unterscheidung zwischen desorbierter Fläche (Desorptionsfleck) und bestrahlter Fläche (Laserfleck) erfordert. Die Modelle für die Wärmeleitung werden in Abschnitt 3.2 erläutert. Diese Modelle werden in den darauffolgenden Abschnitten als Basis für die Temperaturbestimmung verwendet: Im Abschnitt 3.4 wird beschrieben, was unter „Desorptionsfleck“ zu verstehen ist und wie die desorbierte Fläche anhand der optischen Veränderungen der Oberfläche bestimmt werden kann.

Die Eindringtiefe des Laserlichts bestimmt die Tiefe des Energieeintrags und somit den Ort des Aufheizens. Bei den in dieser Arbeit verwendeten dünnen Schichten ist das Modell des Aufheizens der Oberfläche eines halbumendlichen Volumens eine gute Näherung für die Realität, in der das Laserlicht in einer dünnen ($< 100 \text{ nm}$) Oberflächenschicht absorbiert wird.

Die Schicht selber ist zunächst optisch transparent und gegenüber dem geheizten Volumen zu vernachlässigen, kann jedoch durch Interferenzeffekte zu leicht erhöhter oder verminderter Reflexion (± 0.05) des einfallenden Laserlichts beitragen. Es sei hierbei auch auf Kapitel 2.2 zu den Eigenschaften von a-C:H-Schichten verwiesen. Die a-C:H-Schichten können sich hinsichtlich ihrer physikalischen Eigenschaften deutlich voneinander unterscheiden, weshalb es keinen typischen Laserpuls (Pulsdauer, Leistungsdichte) gibt, der dazu geeignet ist, beliebige Schichten auf die für die Desorption nötige Temperatur aufzuheizen. In dieser Arbeit wurde mit a-C:H-Schichten gearbeitet, die in Vorversuchen bezüglich ihrer Dicke, Wasserstoffinventar und optischer Eigenschaften charakterisiert wurden. Der Laserpuls konnte dementsprechend gut angepaßt werden. Im Falle von gänzlich unbekanntem Schichten, falls also keinerlei begründete Annahmen über Dicke und Härte der Schicht möglich sind, werden mehrere Versuche nötig sein, um geeignete Parameter für die Laserdesorption zu finden. Mehr zur Reflexion und Absorption des Laserlichts ist in Abschnitt 3.3 zu finden.

Infolge der Desorption wird aus der a-C:H-Schicht der Wasserstoff entfernt, und es verbleibt ein amorphes Netzwerk aus Kohlenstoffatomen. Dieses hat neuen optische und mechanische Eigenschaften. Die Änderung der optischen Eigenschaften wird in Abschnitt 3.4 für die Definition der desorbierten Fläche verwendet. Die mechanischen Veränderungen werden in Abschnitt 3.5 anhand von SEM-Aufnahmen diskutiert.

Schließlich werden im Abschnitt 3.6 die durch die Laserdesorption freigesetzten Teilchen gemessen. Eine entsprechende Auswertung ermöglicht, die Flüsse der desorbierten Teilchen nach der Oberflächentemperatur aufzulösen. In dieser Form ist der Vergleich mit anderen Experimenten bei geringen Heizraten (TDS) möglich.

In dieser Arbeit wurden zwei Sätze von Laserparametern („Laserpulstypen“) eingesetzt. Damit können verschiedene Ziele besser erreicht werden, z.B. eine dickere Oberflächenschicht von Wasserstoff zu befreien oder Schichten auf der Substratoberfläche zu desorbieren, um ihr Wasserstoffinventar zu messen. Diese Sätze an Laserparametern sind in Abschnitt 3.4 zusammengetragen und erläutert.

3.1 Grundlagen der Desorption von a-C:H-Schichten

Die Freisetzung des Wasserstoffs aus der a-C:H-Schicht ist ein mehrstufiger Prozeß. Anders als zum Beispiel in Metallen, wo Wasserstoff meist atomar auf Zwischengitterplätzen sitzt und sehr beweglich ist, sind die Wasserstoffatome in der a-C:H-Schicht chemisch an den Kohlenstoff gebunden (Diffusionskonstante $D = 2 \times 10^{-11} \text{ cm}^2/\text{s}$ [Pil89]). Bei steigender Temperatur werden C–C- und C–H-Bindungen sukzessive umsortiert bzw. gelöst [Küp95].

Die Kohlenstoffatome in der a-C:H-Schicht (s. Abb. 3.2) sind etwa je zur Hälfte sp^2 - und sp^3 -hybridisiert. sp^3 -hybridisierte Atome sind in der Regel mit mindestens einem Wasserstoffatom verbunden (alkanartige Strukturen), sp^2 -hybridisierte Kohlenstoffatome kommen sowohl graphitisch vor (3 C–C-Bindungen) als auch aromatisch (2 C–C-Bindungen und 1 C–H-Bin-

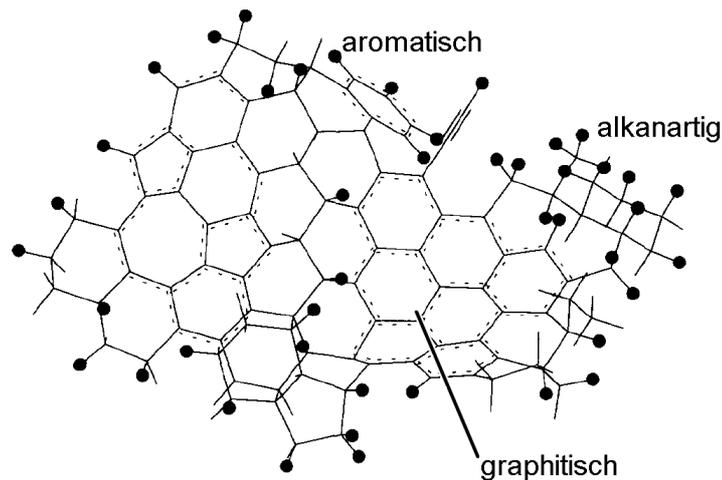


Abb. 3.2: Ebene Projektion einer $a\text{-C:H}$ -Struktur mit $H/C=0.4$ [Küp95]. C-Atome sind die Knotenpunkte des Gitters, in den Hybridisierungen sp (Dreifachlinie), sp^2 (gestrichelte Linie), sp^3 (einfache Linie). Schwarze Punkte sind H-Atome.

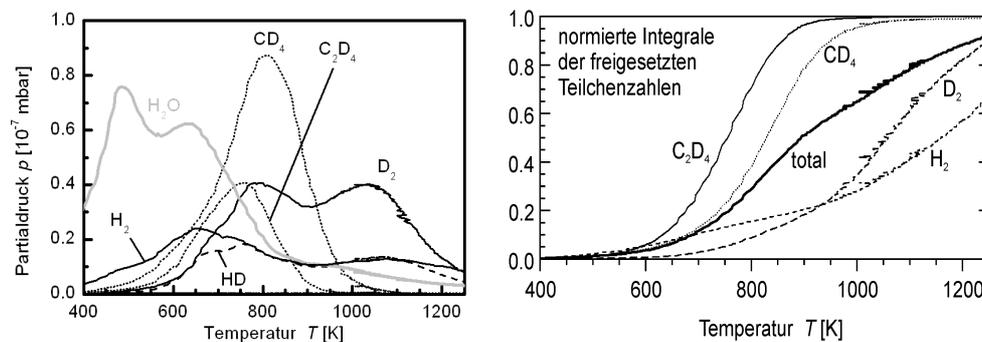


Abb. 3.3: Links: Partialdruckverlauf beim langsamen Ausheizen (bis $1000\text{ }^\circ\text{C}$, 1 K/s) einer $a\text{-C:H}$ -Schicht (900 nm) auf Graphit, beschichtet in einem $\text{CD}_4\text{-RF}$ -Plasma bei 300 V Vorspannung. Die Schicht deuteriert, und freigesetzter Wasserstoff H_2 stammt von adsorbiertem Wasser ($T < 900\text{ K}$) und aus dem Substrat ($T > 900\text{ K}$). Rechts: Integrale der obigen Signale, normiert auf die jeweils gesamte freigesetzte Menge; „total“ bezeichnet die Gesamtmenge freigesetzten Deuteriums

ung). Beim Aufheizen oberhalb von 700 K wird diese Struktur umgebaut hin zur energetisch günstigeren sp^2 -Hybridisierung, die oberhalb von 900 K ausschließlich vorkommt. Die alkanartigen Strukturen in der $a\text{-C:H}$ -Schicht sind dann vollständig verschwunden. Beim Umbau der Schicht werden Methylgruppen abgespalten, rekombinieren und werden freigesetzt. Das Ausgasverhalten (Abb. 3.3) zeigt entsprechend unterhalb von 850 K noch eine überwiegende Freisetzung des Wasserstoffs in Form von Kohlenwasserstoffen (CH_4 , C_2H_4). Bei höheren Temperaturen dagegen wird dieser Kanal unterdrückt. Stattdessen erfolgt die weitere Freisetzung in Form molekularen Wasserstoffs, bei der schließlich C–H-Bindungen gelöst werden. Die gebildeten freien Wasserstoffatome rekombinieren rasch in der Nähe ihres Entstehungsortes zu Wasserstoffmolekülen. Zwischen 1000 K und 1100 K erreicht die Freisetzung molekularen Wasserstoffs auf diese Weise ein Maximum³. Aufgrund der Porosität der

³ Hier muß unbedingt zwischen thermischer Desorption (Aufheizen, beginnend bei $T < 500\text{ K}$) und Experimenten zur Implantation und Reemission von Wasserstoff unterschieden werden. Bei letzteren wird ein Strahl von Wasserstoffionen oder -atomen ($\sim 1\text{ keV}$) auf eine temperierte Probe gerichtet um Wasserstoff zu

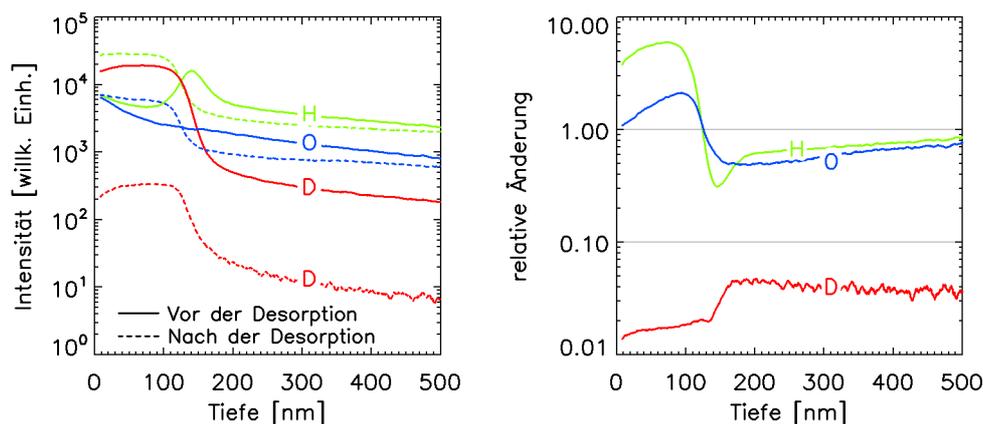


Abb. 3.4: SIMS-Tiefenprofil der Zusammensetzung einer deuterierten $a\text{-C:H}$ -Schicht (Dicke: 130 nm) vor und nach der Laserdesorption. Das linke Diagramm zeigt die gemessenen Sekundärionenflüsse, im rechten Bild ist die Änderung (nachher/vorher) dargestellt

Schicht (0.3 ... 0.8 nm Porengröße) können die gebildeten Moleküle sich in ihr frei bewegen und die Schicht sofort verlassen. Erst oberhalb von 1400 K verschiebt sich das Verhältnis von atomar freigesetztem zu molekular freigesetztem Wasserstoff hin zu Werten größer 1 [Bre05]. Ein solches Verhalten ist jedoch nicht zu beobachten, wenn nicht gleichzeitig Wasserstoff in die Oberfläche eingebracht wird, da bei einer Temperatur von 1200 K bereits 90% des Wasserstoff aus der Schicht verschwunden ist.

Im Substrat diffundiert Wasserstoff atomar entlang der Kristallebenen bis an die Korngrenzen, wo an den Rand-C-Atomen CH_2 -Gruppen gebildet werden. Die weiteren Reaktionen erfolgen analog zu denen innerhalb der Schicht. Der Transport aus dem Substrat erfolgt dann ebenfalls molekular, was gleichzeitig das Vermischen von Wasserstoff aus der Schicht und aus dem Substrat und die Bildung von Mischmolekülen (HD etc.) unterdrückt. Beobachtete Mischmoleküle können auf in die Schicht eingedrungenes Wasser zurückgeführt werden.

Insbesondere bei der Desorption dünnen Schichten können die Wasserstoffmengen aus der Schicht und aus dem Substratvolumen von gleicher Größenordnung sein, da ein relativ großes Volumen des Graphitsubstrats aufgeheizt wird. Der intrinsischen Wasserstoffuntergrund aus dem Substrat ist daher stets zu berücksichtigen. In Abbildung 3.4 wird ein Beispiel für die Zusammensetzung (SIMS-Tiefenprofil) einer 130 nm dicken deuterierten $a\text{-C:H}$ -Schicht gezeigt, vor und nach ihrer Desorption. Die Untergrenze der Schicht ist deutlich am Rückgang der Deuteriumkonzentration zu erkennen. In den ersten 300 nm des Substrats (d.h. in 200 bis 500 nm Tiefe) ist die H-Konzentration nur 5- bis 10mal kleiner als die D-Konzentration innerhalb der $a\text{-C:H}$ -Schicht. Wenigstens die Hälfte des H-Inventars in den oberen 300 nm des Graphitsubstrats wurde durch die Laserdesorption freigesetzt. Ein Teil des H-Inventars ist vermutlich auf adsorbiertes Wasser zurückzuführen, da die Proben vor der SIMS-Messung stets längere Zeit der Luft ausgesetzt waren. Der Rückgang des H- und des O-Inventars infolge der Desorption wird daher durch die SIMS-Messung nicht vollständig erfasst. Insbesondere die desorbierte Schicht bindet offensichtlich sehr viel Wasser. Laserdesorptionsmessungen an

implantieren. Der Fluß an re-emittiertem Wasserstoff ist dabei konstant (steady-state), lediglich die Art der Freisetzung, Atome oder Moleküle, variiert. Vgl. z.B. [Vie94], [Dav95]

unbeschichtetem Graphit zeigen im Mittel für 1.5 ms Pulsdauer ein mobilisierbares Inventar an Wasserstoffatomen aus dem Substrat von 10^{22} m^{-2} was in der gleichen Größenordnung liegt wie das Inventar der verwendeten präparierten Schichten. Dies hat Konsequenzen für das Vorgehen bei den Messungen mit präparierten Schichten (Kap. 6.2). Dort soll eine definierte Wasserstoffmenge freigesetzt werden, weshalb deuterierte Schichten verwendet werden, und das H/D-Verhältnis der freigesetzten Gase bestimmt wird. Bei LDS-Messungen redeponierter Schichten in einem Fusionexperiment kann man ein geringeres intrinsisches Inventar annehmen, da die Komponenten dort unter Hochvakuumbedingungen für längere Zeiträume auf erhöhter Temperatur (470 K) gehalten werden. Weiterhin werden die Oberflächen teils hohen kurzzeitigen Wärmeflüssen ausgesetzt, was im Laufe der Zeit zu einem Rückgang dieses Anfangsinventars führt.

Nach dem Entweichen des Wasserstoffs verbleibt anstelle der a-C:H-Schicht ein amorphes, teils graphitisches Kohlenstoffgerüst, das nicht länger optisch transparent ist: Der Absorptionskoeffizient ist um zwei Größenordnungen gewachsen [Rob02]. Bereits die Transformation zu einer sp^2 -dominierten Struktur verändert die optischen Eigenschaften sichtlich (vgl. Kap. 3.4.2). An den Stellen, an denen der direkte thermische Kontakt zum Substrat fehlt, steigt die Temperatur deutlich schneller, mit nahezu linearer Zeitabhängigkeit, da in dem Fall ein thermisch nahezu isoliertes Volumen mit einer konstanten Heizleistung aufgeheizt wird.

3.2 Rechenmodell zur Wärmeleitung

In einem isotropen Festkörper läßt sich die Ausbreitung von Wärme, das heißt die Änderung der Temperatur T als Funktion von Ort x und Zeit t , durch die Wärmeleitungsgleichung beschreiben.

$$\frac{d}{dt}T = D \Delta T + Q(r, t) \quad (3.1)$$

wobei Q Wärmequellen und -senken beschreibt. In guter Näherung kann das Problem jedoch bereits eindimensional betrachtet werden, als Wärmeleitung senkrecht von der Oberfläche, was eine analytische Lösung erlaubt (Abschnitt 3.2.1). Für die genauere zweidimensionale Betrachtung der Wärmeleitung nach der Seite am Fleckrand wird ein numerisches Modell aufbauend auf dem Differenzenverfahren verwendet (Abschnitt 3.2.2).

Die hier typischen erzeugten Laserflecke sind kreisförmig mit einem Durchmesser größer 2 mm. In diesem Falle ist die Eindringtiefe der Wärme in die Tiefe wie auch nach den Seiten mit 0.1 bis 0.3 mm klein gegen den Durchmesser des aufgeheizten Oberflächenflecks.

Bei genauerer Betrachtung des Desorptionsprozesses kann die Unschärfe des Randes als noch niedriger angegeben werden. Die Freisetzung des Wasserstoffs aus der Schicht findet nämlich nur in einem Temperaturbereich zwischen 650 K und 1300 K statt. Die Graphitoberfläche dagegen kann bis auf eine Temperatur von 2100 K aufgeheizt werden, ohne negative Auswirkungen auf die LDS-Messung zu bewirken. Die am Ende dieses Kapitels für die LDS-

Material	c [J g ⁻¹ K ⁻¹]	κ [m ² s ⁻¹]	ρ [g cm ⁻³]	K [W m ⁻¹ K ⁻¹]
Graphit EK98 [s. Anhang]	1.8 ± 0.1	(3.2 ± 0.2) × 10 ⁻⁵	1.85	105 ± 5
a-C:H, hart ($n = 2.0$)	1.8 ± 0.1 [Ish06]*	(1.5 ... 3) × 10 ⁻⁶ [Ish06]*	1.8 [Swa99]	0.7±0.3 [Bul00]
Polyethylen PE	1.9	(6 ... 30) × 10 ⁻⁸	0.91...0.96	0.1 ... 0.5
Wolfram W	0.14	5 × 10 ⁻⁵	19.3	140
Beryllium Be	1.8	5 × 10 ⁻⁵	1.82	180

Tabelle 3.1: Thermische Eigenschaften verschiedener Materialien. Der Wert für die Temperaturleitfähigkeit κ für a-C:H-Schichten wurde zwischen Graphit und PE gemittelt. Der angegebene Wert der Wärmekapazität von Graphit ist ein Mittelwert, der zum Berechnen von Temperaturerhöhungen von 300 K auf 1000 K bis 1700 K geeignet ist. Temperaturen unterhalb von 1000 K werden dabei um 10% unterschätzt. Die Daten der übrigen Materialien gelten für $T = 300$ K.

* Schichten aus Referenz [Ish06]: >200 μ m dicke redeponierte inhomogene Schichten

Messungen festgelegten Laserparameter führen zum Beispiel zu einem Temperaturanstieg im Zentrum des Laserflecks von 300 K auf 1800 K. Derjenige Randbereich des Laserflecks, der gerade zwischen 650 K und 1300 K erreicht und somit nur teilweise desorbiert wird, ist schmäler als 0.1 mm. Die Größe des Desorptionsflecks muß jedoch stets bei der Nachuntersuchung der Proben gemessen werden.

3.2.1 Halbunendlicher Körper

Bei der Betrachtung dünner Schichten (Dicke < 1 μ m) bestimmen Absorption und Wärmeleitung im Graphitsubstrat die Temperatur der Schicht, da die Laserenergie an der Oberfläche absorbiert wird und das Substrat bis in 20 bis 100 μ m Tiefe aufheizt. Entsprechend der Wärmekapazität und des Volumens dominiert also das Substrat die Temperaturentwicklung, und die Temperatur der Schicht folgt der Oberflächentemperatur des Substrats. Aufgrund der geringen Dicke der Schicht kann deren vertikale Temperaturverteilung als homogen angesehen werden, was die Berechnung der Schichttemperatur als Oberflächentemperatur eines halbunendlichen Volumens ermöglicht. Die Wärmeleitungsgleichung lautet in diesem Fall

$$K \left(\frac{1}{\kappa} \frac{\partial}{\partial t} - \frac{\partial^2}{\partial x^2} \right) T(x, t) = F(x, t) \quad . \quad (3.2)$$

K ist die Wärmeleitfähigkeit, F die zugeführte Leistungsdichte. Für die Temperaturleitfähigkeit κ gilt

$$\kappa = \frac{K}{c \rho} \quad . \quad (3.3)$$

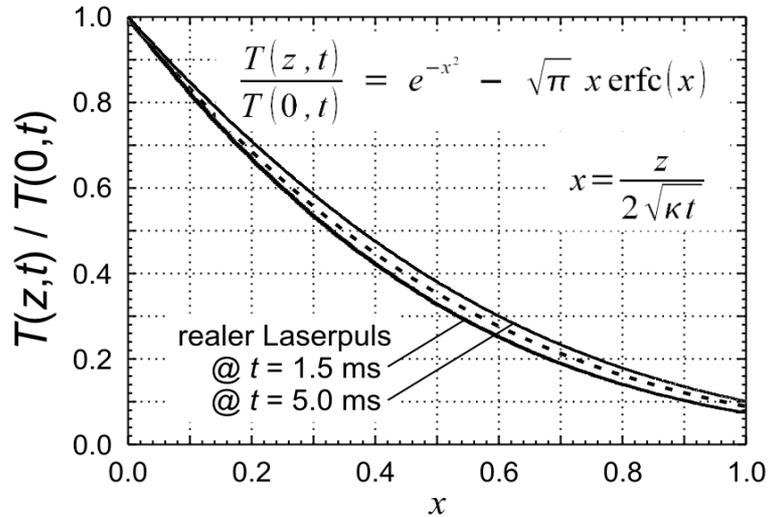


Abb. 3.5: Wärmeleitung in einen halbumendlichen Körper: Tiefenprofil der Temperatur bei konstanter Heizleistung. Zum Vergleich sind die berechneten (s. nächster Abschnitt) Temperaturverläufe für den realen Laserpuls mit aufgetragen.

$c = c_p = c_v$ ist die Wärmekapazität und ρ die Massendichte. Werte für diese Parameter sind in Tabelle 3.1 für einige a-C:H-Schichten sowie Materialien aufgeführt, die als Wandmaterialien für ITER in Betracht gezogen werden. Die aufgeführten Werte sowie die Temperaturabhängigkeiten von W und Be sind in [ITMat] zu finden.

Die allgemeine Lösung der Temperaturverteilung bei Energieeintrag $F(x=0, t)$ in einer dünnen Oberflächenschicht lautet [Car]

$$T(x, t) = \frac{\sqrt{\kappa}}{K \sqrt{\pi}} \int_0^t dt' \frac{F(t-t')}{\sqrt{t'}} e^{-\frac{x^2}{4\kappa t'}} \quad (3.4)$$

Für den speziellen Fall des zeitlich konstanten Energieeintrags $F_0 = F(x=0)$ kann für die Temperatur ein analytischer Ausdruck gefunden werden [Car]

$$T(x, t) = \frac{2F_0}{K} \left(\sqrt{\frac{\kappa t}{\pi}} e^{-\frac{x^2}{4\kappa t}} - \frac{x}{2} \operatorname{erfc}\left(\frac{x}{2\sqrt{\kappa t}}\right) \right) \quad (3.5)$$

Die Parameter, die bei der Laserdesorption variiert werden, sind die Leistungsdichte an der Probenoberfläche und die Dauer des Energieeintrags. Dabei ist die Leistungsdichte F direkt proportional der zu erreichenden Temperatur T , das heißt, Unsicherheiten in der Absorption der Laserstrahlung gehen direkt in die Temperatur ein. Die Dauer t des aufheizenden Laserpulses geht nur über die Wurzel in die Temperatur ein, da mit wachsender Pulsdauer ein immer größeres Volumen aufgeheizt wird. Somit können durch die Wahl der Parameter F und t die Eindringtiefe (s. Abb. 3.5) und die Temperatur unabhängig voneinander vorgegeben werden, zum Beispiel um mit einem sehr langen ($t > 4$ ms) Laserpuls eine Stelle auf der Probe bis in einige $100 \mu\text{m}$ Tiefe auszuheizen, um bei weiteren Messungen dort nur noch Wasserstoff aus redeponierten Schichten zu messen. Dabei muß stets beachtet werden, daß

diesen Überlegungen nur die Wärmeleitung senkrecht zur Oberfläche zugrunde liegt. Die Wärmeleitung parallel zur Oberfläche führt zu einer Ausdehnung des aufgeheizten Volumens auch zur Seite.

Durch dieses Modell wird ersichtlich, welche Möglichkeiten es gibt, das Aufheizen der Oberfläche durch die Wahl der Laserparameter zu beeinflussen. Weiterhin ist das analytische Modell unverzichtbar, um die Gültigkeit und Genauigkeit der numerischen Simulation zu testen, die im nächsten Abschnitt beschrieben wird.

3.2.2 Numerisches Modell der Wärmeleitung

Das Modell der eindimensionalen Wärmeleitung stößt an seine Grenzen, sobald die Absorption der Laserenergie in einer dickeren Schicht erfolgt und die Unschärfe des Fleckrandes in die Größenordnung der Laserflecke kommt, etwa bei längeren Laserpulsen. Um diese Fälle zu untersuchen wird ein numerisches Modell benutzt, das auf dem Verfahren der Finiten Differenzen beruht [Num]. Hierbei wird der Differentialquotient

$$\frac{d}{dx} f(x) = \lim_{h \rightarrow 0} \frac{f(x+h) - f(x)}{h} \quad (3.6)$$

als Differenzenquotient genähert:

$$\frac{d}{dx} f(x) \approx f'_x = \frac{f(x-\Delta x) - f(x+\Delta x)}{2\Delta x} \quad (3.7)$$

$$\frac{d^2}{dx^2} f(x) \approx f''_x = \frac{f(x-\Delta x) - 2f(x) + f(x+\Delta x)}{\Delta x^2} \quad (3.8)$$

Um die Dimensionalität des Problems zu verringern wird in zylindrischen Koordinaten gerechnet, die Zylinderachse verläuft senkrecht zur Oberfläche durch die Mitte des Laserflecks. Aufgrund der Symmetrie werden sämtliche Ableitungen nach der poloidalen Koordinate φ zu Null, und es kann in zwei Raumdimensionen gerechnet werden. Aus der Wärmeleitungsgleichung (3.1) ergibt sich so die Temperaturänderung für einen Zeitschritt der Schrittweite Δt von t nach $t+1$

$$T_{r,z,t+1} = T_{r,z,t} + \frac{\kappa \Delta t}{4} \left(\frac{F_{r,z,t+1}}{K} + \frac{1}{r} T'_r + T''_r + T''_z \right) \quad (3.9)$$

$$T'_r = \frac{-T_{r-1,z,t} + T_{r+1,z,t}}{2\Delta r} \quad (3.10)$$

$$T''_r = \frac{T_{r-1,z,t} - 2T_{r,z,t} + T_{r+1,z,t}}{\Delta r^2} \quad (3.11)$$

$$T''_z = \frac{T_{r,z-1,t} - 2T_{r,z,t} + T_{r,z+1,t}}{\Delta z^2} \quad (3.12)$$

Das Simulationsvolumen muß dazu räumlich und zeitlich in äquidistante Punkte unterteilt werden (s. Abb. 3.6).

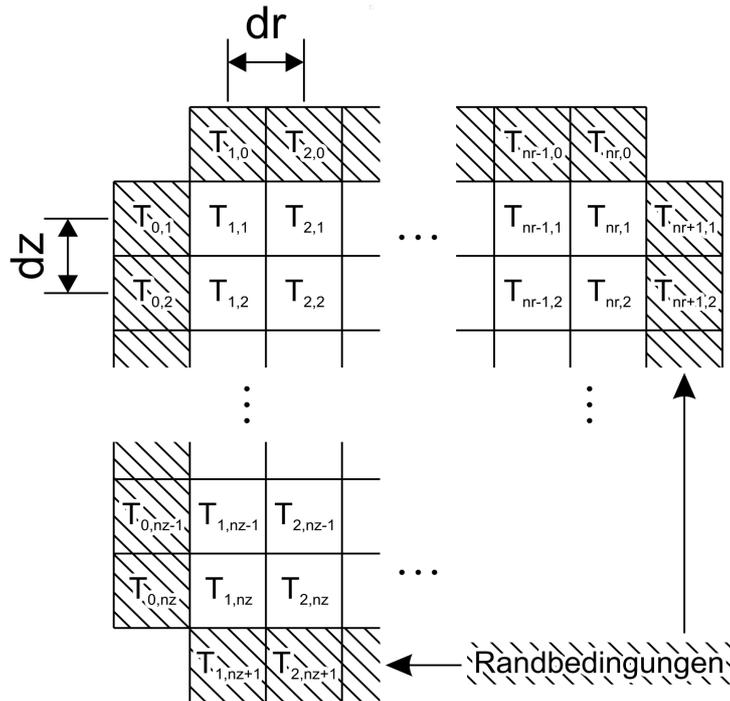


Abb. 3.6: Das Simulationsgebiet wird in äquidistante Zellen (1 bis nr) \times (1 bis nz) unterteilt. Die Randbedingung $d/dt=0$ wird berücksichtigt, indem die entsprechenden Randpunkte vor jedem Zeitschritt auf die Temperatur des inneren Nachbarn gesetzt werden.

Die Randbedingungen sind gegeben durch den verschwindenden Wärmetransport aus dem simulierten Volumen, das heißt der Temperaturgradient am Rand ist stets gleich Null. Als Anfangsbedingung wird $T_{r,z,t=0}=300\text{K}$ verwendet. Die Grenzen des Simulationsgebiets werden zweckmäßigerweise dort gelegt, wo ein vernachlässigbarer Temperaturgradient senkrecht zu den Grenzen erwartet wird. Dies ist je nach Dauer des Laserpulses 0.5 mm bis 1.5 mm nach außen und innen vom Fleckrand sowie in die Tiefe.

Dieses Modell wird für die Ermittlung der Temperaturverteilung in allen Experimenten, die in dieser Arbeit beschrieben werden, verwendet. Für die Untersuchung der Laserdesorption in diesem Kapitel ist die räumliche Verteilung der Temperatur von besonderer Bedeutung. Für LDS-Messungen in TEXTOR werden feste Laserparameter verwendet. Bei der Beschreibung der dort auftretenden Phänomene wird nur noch die Temperatur T_z im Fleckzentrum angegeben. Die Temperatur T_z , die Anfangstemperatur T_0 , die Laserpulsdauer t und der Laserfleckdurchmesser d genügen, um die räumliche Temperaturverteilung in der Graphitprobe zu berechnen. In Abschnitt 3.4 wird mit Hilfe des vorgestellten Modells ausführlich die zeitliche Entwicklung der Temperaturverteilung untersucht.

3.3 Grundlagen zur Reflexion und Absorption

3.3.1 Reflexion und Absorption

Im Fall des senkrechten Einfalls von Licht auf eine Oberfläche im Vakuum gilt für die Reflexion R und die Transmission T

$$R = \frac{(n-1)^2 + k^2}{(n+1)^2 + k^2} \quad (3.13)$$

$$T = \frac{4}{(n+1)^2 + k^2} \quad (3.14)$$

n ist der Realteil des komplexen Brechungsindex, k sein Imaginärteil, auch Extinktionskoeffizient genannt. Bei den verwendeten a-C:H-Schichten werden diese ellipsometrisch bestimmt und liegen für Licht der Wellenlänge $\lambda=632.8\text{ nm}$ im Bereich $n=1.9 \dots 2.0$ und $k=0.03 \dots 0.08$. Im Infraroten ist k niedriger, bei der Laserwellenlänge (Nd:YAG, $\lambda=1064\text{ nm}$) kann $k=0.01 \dots 0.04$ angesetzt werden. Die Absorption A des Lichts der Intensität I_0 in einer Schicht der Dicke d wird mit

$$A = 1 - \frac{I(d)}{I_0} = 1 - e^{-\alpha d} \quad (3.15)$$

beschrieben, wobei zwischen k und dem Absorptionskoeffizienten α die Beziehung

$$\alpha = \frac{4\pi k}{\lambda} \quad (3.16)$$

gilt. Damit kann die Eindringtiefe für das Laserlicht in Schichten mit $k=0.03$ als 2 bis 5 μm abgeschätzt werden. Für Graphit ($k=2.2$) ergibt sich eine Eindringtiefe von $d_e=40\text{ nm}$. Das untersuchte Schichtsystem ($d_{\text{a-C:H}} < 500\text{ nm}$ auf Graphit) kann somit in guter Näherung als Graphitoberfläche angesehen werden, auf der eine dünne transparente Schicht liegt, die durch Wärmeleitung vom Substrat her geheizt wird. Im Verlaufe des Aufheizens ändern sich jedoch die optischen Eigenschaften der Schicht. Bei einer Temperatur von 700 K beginnt ein Umbau der Schicht hin zu einer Struktur aus sp^2 -hybridisierten C-Atomen. Dadurch wird die Schicht ab $T=900\text{ K}$ undurchlässig für das Laserlicht. Dieses wird dann in der Oberfläche der Schicht absorbiert, und das Aufheizen der Schicht durch Wärmeleitung wird von dort ausgehen. Der Anteil des Laserpulses, der an der Schichtoberfläche absorbiert wird, läßt sich aus der zeitlichen Entwicklung der Temperatur abschätzen. Hierfür kommt das Modell der eindimensionalen Wärmeleitung im halbumendlichen Medium (Gl. 3.5) zum Einsatz. Der relative, auf die Pulsdauer bezogene Zeitpunkt t/t_p , an dem eine Temperatur T_l überschritten wird ist demnach

$$\frac{t}{t_p} = \left(\frac{T_l - T_0}{T_{\text{Pulsende}} - T_0} \right)^2 \quad (3.17)$$

Dabei ist T_0 die Anfangstemperatur. Für eine Beispielrechnung sei $T_0=300\text{K}$, und die Temperatur am Ende des Laserpulses sei 1600K . Die Temperatur $T_l=900\text{K}$ wird dann nach 21% der Laserpulsdauer überschritten. Das bedeutet, etwa 80% der absorbierten Pulsenergie wird direkt in die Oberfläche der aufgeheizten a-C:H-Schicht eingebracht. Unter der Annahme, daß die Schicht in einen graphitähnlichen Zustand übergeht verschiebt sich der Ort der Absorption bzw. der Ort des Aufheizens von der Substratoberfläche zur Schichtoberfläche. Dies macht bei den dünnen Schichten keinen Unterschied, bei dickeren Schichten jedoch könnte sich eine Art von Absorptionsfront herausbilden, die vom Substrat zur Schichtoberfläche wandert. Da jedoch über die optischen Eigenschaften dicker Schichten nichts genaueres bekannt ist, bleibt dies eine Spekulation. Mit wachsender Schichtdicke wird die Annahme der transparenten a-C:H-Schicht immer weniger zutreffen, und die Schicht wird nicht mehr homogen sein, sondern intern einen Schichtaufbau aufweisen, der die zeitlich wechselnden Depositionsbedingungen an der Wand widerspiegelt. Diese Charakterisierung dicker Schichten muß Bestandteil einer weitergehenden Arbeit sein, die den Einsatzbereich der Laserdesorption erweitert.

3.3.2 Interferenz an dünnen Schichten, Oberflächenrauigkeit

Innerhalb der ersten 0.1...0.3 ms des Laserpulses ist das Schichtsystem für die Laserstrahlung transparent. In dem Fall ist die Interferenz der an den Grenzflächen reflektierten Wellen zu berücksichtigen. Dies führt zu einer großen Schichtdickenabhängigkeit der Reflexion (1% bis 30%). Bei Dicken oberhalb $1\ \mu\text{m}$ sind solche Interferenzeffekte weniger deutlich ausgeprägt, weil infolge der längeren Lichtwege die Absorption des einfallenden Lichts zunimmt. Die Unsicherheit der Reflexion von dünnen Schichten geht ein in die erreichte Temperatur, da ein Teil der Laserenergie reflektiert wird, bis die Schicht oberhalb von 900K lichtundurchlässig wird. Die Reflexion eines Teils R der Laserenergie hat einen verminderten Temperaturanstieg ΔT_{red} zur Folge, nach Gleichung (3.5):

$$\Delta T_{\text{red}} = T(F, t_{900}) - T(F \cdot (1-R), t_{900}) = R \cdot (900\text{K} - T_0) \quad (3.18)$$

Dabei sei F ist die Laserleistungsdichte und t_{900} der Zeitpunkt, an dem die Oberflächentemperatur $T=900\text{K}$ beträgt. Das Extrembeispiel: Eine Reflektivität von 30% verglichen mit 1% bis zum Zeitpunkt t_{900} bedeutet eine Reduzierung der am Ende des Laserpulses erreichten Temperatur um $\Delta T_{\text{red}}=180\text{K}$, wenn die Probenoberfläche zuvor auf Zimmertemperatur war.

Die Reflexion wird auch durch die Oberflächenrauigkeit beeinflusst. Infolge von Mehrfachreflexion an rauen Oberflächen wird die Reflexion von der Oberfläche geringer, und anstelle eines einzelnen Einfallswinkels ist eine breite Verteilung von Einfallswinkeln zu berücksichtigen. Der überwiegende Teil der in dieser Arbeit verwendeten Graphitoberflächen weist eine Rauigkeit R_a von einigen Mikrometern auf, was auch an der geringen Brillanz der Interferenzfarben der aufgetragenen Schichten zu erkennen ist. In Abbildung 3.7 sind SEM-Bilder der Oberflächen dargestellt. Die Teilbilder a) ($R_a < 50\text{nm}$) und c) ($R_a = 2 \dots 6\ \mu\text{m}$) zeigen den Unterschied zwischen poliertem und unpoliertem Graphit: Auf der unpolierten

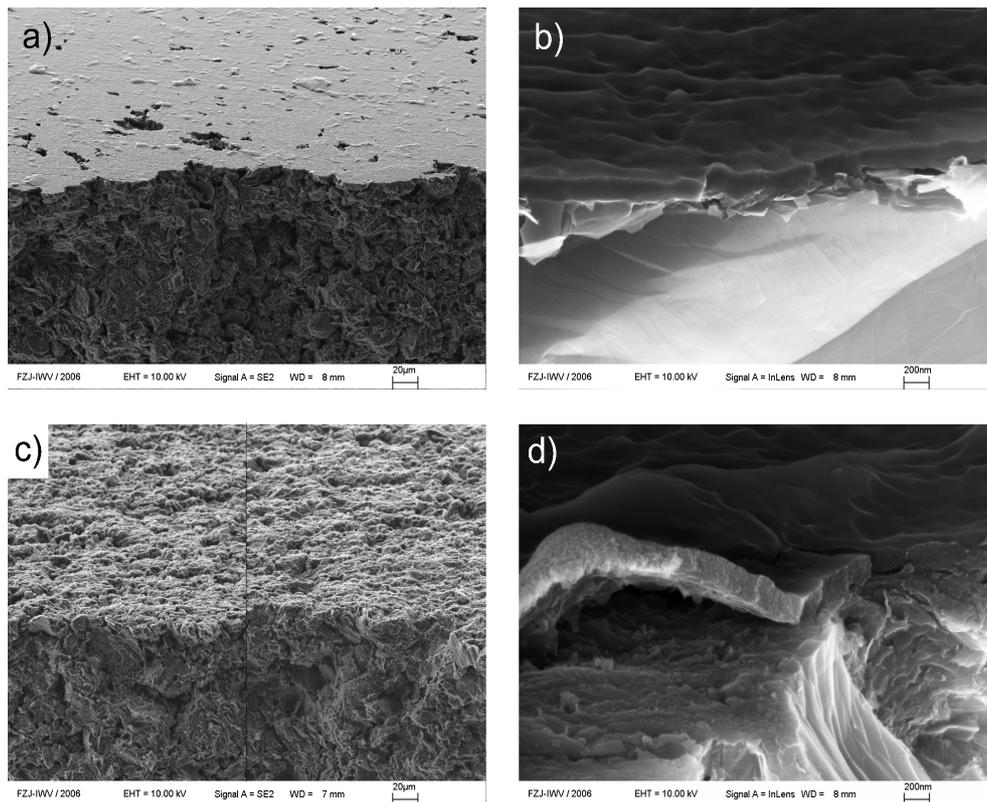


Abb. 3.7: Schichtdicke an Bruchkanten der Graphitproben, Blickwinkel 20° zur Oberfläche: a) poliert, 180-nm-Schicht ; b) Vergrößerung aus a) ; c) unbeschichtete Graphitoberfläche (linke Hälfte) sowie die gleiche Probe mit einer 360-nm-Schicht (rechte Hälfte) ; d) 180-nm-Schicht nach der Desorption.

Oberfläche ist kaum ein Unterschied zwischen unbeschichtetem und beschichtetem Graphit auszumachen: Die Unebenheiten werden von einer solch dünnen Schicht noch nicht ausgeglichen. Bei polierten Oberflächen könnte dagegen die Reflexion durch Interferenzeffekte modifiziert sein. Für die Untersuchung der Laserdesorption in den Abschnitten 3.5 und 3.6 wurden dennoch polierte Proben verwendet, da die geringe Oberflächenrauigkeit Untersuchungsmethoden wie SEM oder SIMS erleichtert.

3.4 Bestimmen der Größe des desorbierten Volumens

3.4.1 Rechnungen zur Wärmeausbreitung

Bei einer LDS-Messung wird die freigesetzte Wasserstoffmenge mit spektroskopischen Mitteln gemessen. Die ausgeheizte Fläche bzw. das ausgeheizte Volumen kann dagegen nur abgeschätzt werden. Im folgenden werden Rechnungen vorgestellt, die die Temperaturentwicklung in einer Oberflächenschicht mit Hilfe des im Abschnitt 3.2 beschriebenen Modells simulieren.

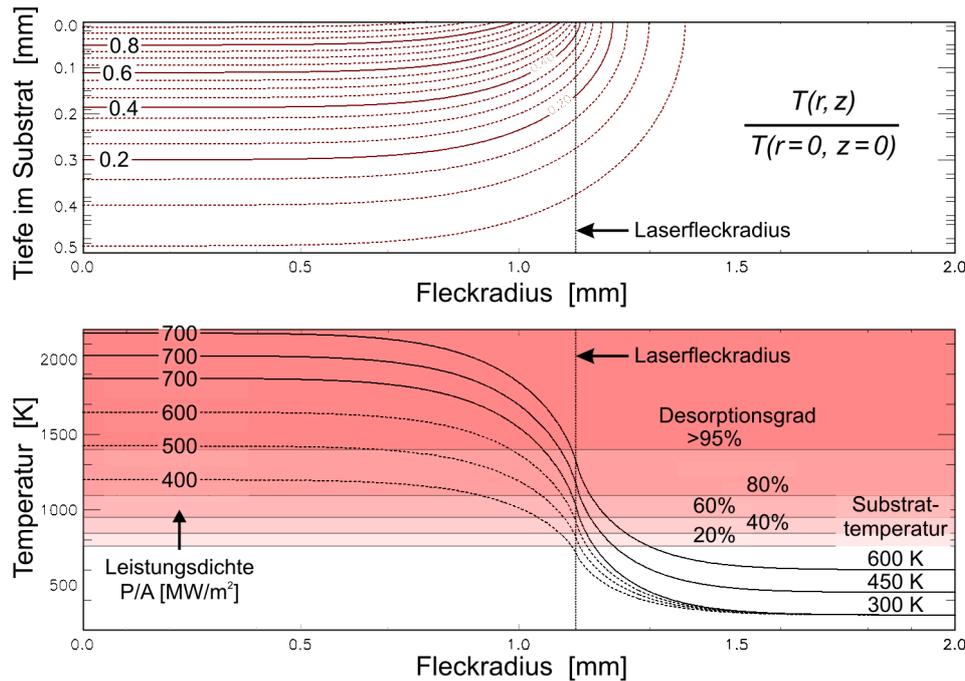


Abb. 3.8: Oben: Radialer Querschnitt $T(r,z)$ durch den normierten dreidimensionalen Temperaturverlauf eines Laserflecks, der durch einen Laserpuls der Dauer $t_p = 1.5$ ms erzeugt wurde (Isothermen). Unten: Radiale Querschnitte des Temperaturverlaufs entlang der Oberfläche $T(0,z)$ dieses Laserflecks – aufgetragen sind absolute Temperaturen für verschiedene Substrattemperaturen T_0 und Heizleistungen (Laserleistung P / Fläche A)

Das Ergebnis einer solchen Simulation der Temperaturverteilung in einer Graphitprobe zeigt Abb. 3.8. Der einwirkende Laserpuls ist der ist der am Ende von Kapitel 3 festgelegte Puls A, der als Standardpuls für die LDS-Messungen in TEXTOR verwendet wird. Der Laserfleck hat in der Modellrechnung einen Durchmesser von 2.26 mm, in Anlehnung an die reale Fleckgröße. Dargestellt ist die Temperaturverteilung zum Ende des Laserpulses. Die obere Hälfte zeigt den relativen Abfall der Temperatur im Volumen unter dem Laserfleck. Die vertikalen Achse ist die Tiefe, die horizontale Achse die radiale Position vom Zentrum des Flecks, und die Konturlinien sind Isothermen. Der Fleckradius bei $r = 1.13$ mm ist gestrichelt eingezeichnet. Die untere Bildhälfte zeigt verschiedene Temperaturprofile entlang der Oberfläche. Die horizontale Achse ist identisch mit der der oberen Bildhälfte, auf der vertikalen Achse ist die Temperatur aufgetragen. Auch hier ist der Fleckradius bei $r = 1.13$ mm gestrichelt eingezeichnet. Die eingezeichneten Temperaturprofile unterscheiden sich in ihren Anfangstemperaturen und Heizleistungen (Laserleistungsdichten). Die gestrichelt eingezeichneten Profile gelten für verschiedene Laserleistungsdichten von 400 bis 700 MW/m², mit einer Anfangstemperatur von $T_0 = 300$ K. Die mit durchgezogener Linie gezeichneten Profile sind alle für eine Laserleistungsdichten von 700 MW/m², sie variieren in ihrer Anfangstemperatur von 300 K bis 600 K. Weiterhin sind verschiedene Desorptionsgrade angegeben. Diese bezeichnen näherungsweise den Anteil des bei der jeweiligen Temperatur desorbierten Wasserstoffs am Gesamtwasserstoff an – diese Werte stammen aus den Desorptionsmessungen, die in Abschnitt 3.6 erläutert werden.

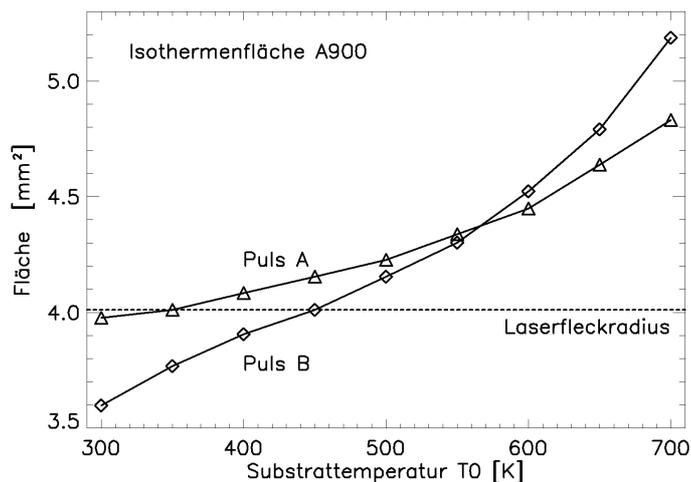


Abb. 3.9: Änderung der Isothermenfläche A_{900} bei Variation der Substrattemperatur für die beiden festgelegten Standardpulse.

Es ist zu erkennen, daß die Oberflächentemperatur in radialer Richtung über einen relativ breiten Bereich kontinuierlich abfällt. Am Rand des Laserflecks ist sie auf etwa 50% gesunken, dort hat sie auch ihren maximalen Gradienten. Um einen möglichst scharf begrenzten Desorptionsfleck zu erhalten genügt es offensichtlich nicht, die Oberflächentemperatur auf die zur vollständigen (90%) Desorption nötigen 1200 K zu erhöhen, denn diese Temperatur gilt nur für den zentralen Bereich des Laserflecks. Stattdessen muß die Temperatur so weit erhöht werden, daß am Fleckrand, im Bereich des maximalen Temperaturgradienten die Temperatur (900 ± 100) K beträgt. Dann stimmt die effektiv zu 100% desorbierte Fläche näherungsweise mit der Fläche des Laserflecks überein, d.h. die Wasserstoffmenge, die im Laserfleck verbleibt, ist gleich derjenigen, die außerhalb des Laserflecks zusätzlich desorbiert wird. Als Wert für die Größe des Desorptionsflecks auf der Probenoberfläche wird daher die Größe der Isothermenfläche A_{900} verwendet. Die Isothermenfläche ist die Fläche, die von der Isotherme zu $T=900$ K am Ende des Aufheizens eingeschlossen wird. Diese Isotherme wird entsprechend als Fleckrand bezeichnet. Sie verläuft innerhalb des unscharfen Fleckrands – sie kann durch eine Analyse der optischen Veränderung der Schicht lokalisiert werden, was im nächsten Abschnitt 3.4.2 beschrieben wird. Die Veränderung von A_{900} mit der Anfangstemperatur T_0 des Graphitsubstrats zeigt Abb. 3.9. Die Erhöhung der Substrattemperatur bewirkt eine Vergrößerung der desorbierten Fläche. Für die Meßbedingungen an TEXTOR (Puls A, $T_0=470$ K) beträgt die Vergrößerung etwa 3 bis 4% pro 100 K Temperaturerhöhung.

Die gleichen Überlegungen wie für die Isothermenfläche A_T werden nun für das Isothermenvolumen V_T angestellt: Auch bis in eine Tiefe von mehreren Zehntelmillimetern steigt die Temperatur auf 900 K bis 1200 K an. Die Eindringtiefe der Temperatur ist jedoch nicht konstant sondern verringert sich vom Fleckzentrum zum Fleckrand. Die Freisetzung des Wasserstoffinventars der a-C:H-Schicht ist von dem Aufheizen des Substratvolumens unbeeinflusst, da sie praktisch keine Ausdehnung in die Tiefe aufweist. Für sie genügt die Betrachtung der Isothermenflächen. Das Graphitsubstrat enthält jedoch ebenfalls ein intrinsisches Inventar an mobilisierbarem Wasserstoff. Dessen Freisetzung hängt von der

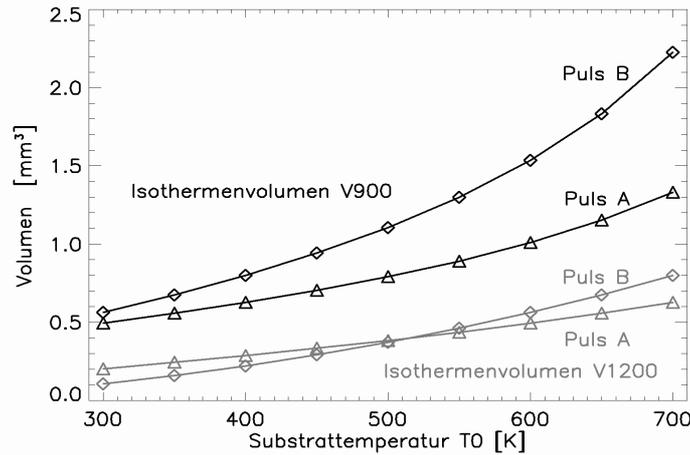


Abb. 3.10: Isothermenvolumina V_{900} und V_{1200} für Puls A und Puls B bei Variation der Anfangstemperatur des Substrats. Puls A und B sind die beiden am Ende dieses Kapitels definierten Standardlaserpulse.

Eindringtiefe der Wärmewelle ab. Daher sei äquivalent zur Isothermenfläche A_T das Isothermenvolumen V_T zum Ende des Laserpulses definiert. Die Isothermenvolumina V_{900} und V_{1200} sind in Abb. 3.10 als Funktion der Substrattemperatur T_0 aufgetragen. Diese beiden sind für die Abschätzung des desorbierten Volumens besonders geeignet: Für eine vollständige Desorption muß die Temperatur auf über 1200 K angehoben werden. Erreicht die Schicht aufgrund ihrer zu großen Dicke nicht durchgängig diese Temperatur, so ist das effektiv desorbierte Volumen abzuschätzen. Analog zur effektiv desorbierten Fläche wird hierfür das Isothermenvolumen V_{900} verwendet. Im Beispiel von Puls A in Abb. 3.8 wird eine Temperatur von 900 K bis in 200 μm Tiefe unterhalb des Fleckzentrums erreicht. Der genaue Verlauf von V_{900} kann in der oberen Hälfte von Abb. 3.8 nachvollzogen werden: Betrag zum Beispiel die Anfangstemperatur $T_0=450$ K, so erzeugt Puls A eine Maximaltemperatur von 2020 K. V_{900} entspricht dann der 30%-Konturlinie in der normierten Auftragung von $T(r,z)$. Eine Fortsetzung der Bewegung der Wärmewelle in die Tiefe nach Ende des Laserpulses ist für die Isothermen von 900 K und 1200 K vernachlässigbar. Für niedrigere Temperaturen kann das Isothermenvolumen jedoch auch nach Ende des Laserpulses noch weiter anwachsen.

Die gleichen Überlegungen zum desorbierten Volumen können für das Graphitsubstrat durchgeführt werden. Dieses setzt nahezu keine Kohlenwasserstoffe frei, daher erfolgt die Desorption im Mittel erst bei höheren Temperaturen von 1000 bis 1100 K. Das effektiv desorbierte Volumen ist gleich dem Isothermenvolumen dieser höheren Temperatur. Für die Abschätzung genügt es, den Mittelwert der Isothermenvolumina V_{900} und V_{1200} zu verwenden. Aufgrund der Größe dieses Volumens (das 100- bis 1000fache des Schichtvolumens) ist die freigesetzte Wasserstoffmenge trotz des geringen Wasserstoffanteils im Graphit von $\text{H}/\text{C}=10^{-4}\dots 10^{-5}$ vergleichbar mit der, die aus einer ca. 100 nm dicken a-C:H-Schicht freigesetzt würde. Dies ist von großer Bedeutung für die Messungen auf präparierten Schichten in TEXTOR, da dort mit solch dünnen a-C:H-Schichten gearbeitet wird. Der Wasserstoff aus dem Substratvolumen stellt dann einen signifikanten Untergrund dar. Daher werden deuterierte Schichten verwendet, d.h. solche, die mit Hilfe eines CD_4/D_2 -Plasmas deponiert

wurden und nahezu ausschließlich Deuterium freisetzen. Durch Bestimmung des H/D-Verhältnisses innerhalb der desorbierten Spezies können dann die Freisetzung aus dem Substrat und Freisetzung aus der Schicht diskriminiert werden.

3.4.2 Optische Veränderungen während des Ausheizens

Die Größe des Desorptionsflecks ist näherungsweise durch die Größe des Laserflecks bzw. der Isothermenfläche A_{900} gegeben. Die genaue Größe derjenigen Fläche, auf der vollständige Desorption vorliegt, kann wie im vorigen Abschnitt gezeigt mit Hilfe von Temperatursimulationen abgeschätzt werden. Eine weitere Möglichkeit stellt die nachträgliche Vermessung des Desorptionsflecks anhand von fotografischen Aufnahmen dar.

Durch das Aufheizen der Schicht ändern sich ihre optischen Eigenschaften: Die zunächst transparente Schicht wird bei einer Temperatur von (800 ± 100) K intransparent (vgl. die Umwandlungstemperaturen nach dem Küppers-Modell, Kap. 3.1). Da die transparente Schicht entsprechend ihrer Dicke Interferenzfarben zeigt, der spätere Desorptionsfleck aber graphitisch grau ist, kann diese Isotherme von 800 K durch Vermessen der Farben um den Desorptionsfleck, insbesondere der Farbsättigung, gefunden werden. Um die Schwelle zu finden, der sich diese Temperatur zuordnen läßt, wurde im Laboraufbau eine Serie von Desorptionsflecken auf einer deuterierten 130 nm dicken a-C:H-Schicht erzeugt, die verschiedene Endtemperaturen im Fleckzentrum erfuhren. Das Substrat war polierter Graphit ($R_a < 50$ nm). Dabei wurden die jeweils bei der Laserdesorption freigesetzten Gase quantitativ bestimmt, wie in Kapitel 5.2.1 beschrieben wird. Abb. 3.11 zeigt Bilder von Querschnitten der erzeugten Desorptionsflecken, die einige Tage nach der Desorption angefertigt wurden. Die Querschnitte sind entsprechend der jeweils erreichten Temperatur angeordnet.

Bestimmung der Oberflächentemperatur

Die Temperatur wurde rechnerisch ermittelt, d.h. der gemessene zeitliche Verlauf des Laserpulses wurde verwendet, um die Wärmeausbreitung wie im vorigen Abschnitt zu simulieren. Dies ergab eine vorläufige Temperaturskala, die auf einem für die Temperatursimulation angenommenen Absorptionskoeffizienten von $\varepsilon = 0.8$ beruht. Diese Wahl für ε wird durch den Vergleich der so erhaltenen Temperaturabhängigkeiten der optischen Eigenschaften und der freigesetzten Spezies bekräftigt. Die rechnerischen Temperaturen, bei denen starke Änderungen stattfinden, sind konsistent mit den nach dem Küppers-Modell aus Abschnitt 3.1 stattfindenden strukturellen Änderungen in der Schicht. Als Beispiel sei die Veränderung der Reflektivität mit der Temperatur näher erläutert. Mit einer Photodiode wurde der relative zeitliche Verlauf der reflektierten Lichtintensität aufgezeichnet. Das reflektierte Laserlicht ist in Abb. 3.11 mit aufgetragen, zur genaueren Untersuchung ist es in Abb. 3.12 auch für sich allein dargestellt. Im gleichen Diagramm ist zum Vergleich die zeitliche Laserpulsform abgebildet. Die Messung mit der Photodiode ist nicht kalibriert, daher

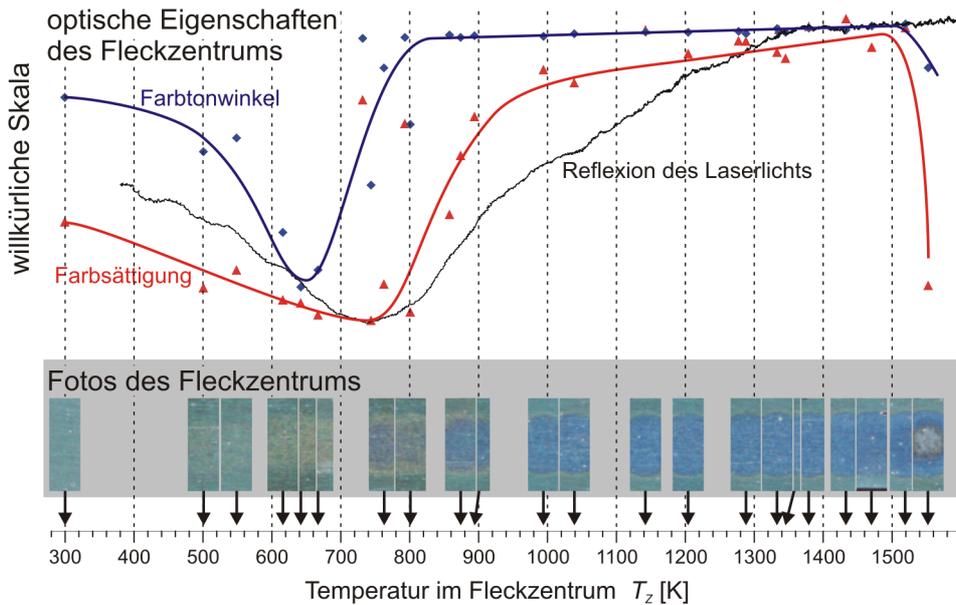


Abb. 3.11: Veränderung der optischen Eigenschaften der a -C:H-Schicht während des Aufheizens: Unten sind fotografierte Querschnitte der Desorptionsflecken abgebildet und einer Temperaturskala zugeordnet. Darüber sind die gemessenen optischen Eigenschaften über der gleichen Temperaturskala aufgetragen (frei skaliert): Die Reflexion des Laserlichtes, die Farbsättigung und der Farbtonwinkel. Die letzteren beiden wurden den abgebildeten Bildern der Laserflecken entnommen (Mittelung aller Pixel innerhalb des halben Fleckradius).

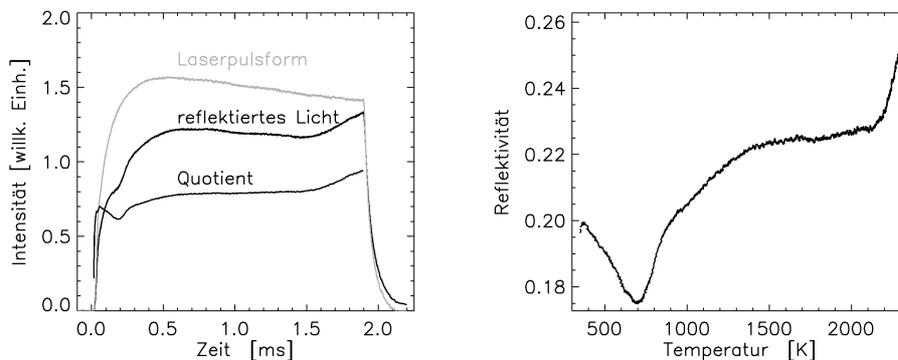


Abb. 3.12: Links: Die Reflektivität wurde als Quotient aus reflektiertem und einfallendem Laserlicht bestimmt. Rechts: Als Reflektivität der ursprünglichen a -C:H-Schicht wurde $R = 0.20$ angenommen und die gemessenen Werte entsprechend skaliert. Die Temperaturskala ist berechnet mit der Leistungsdichte $P_0 = 800 \text{ MW/m}^2$ und konstanter Absorption von 0.80. (Die Variation um ± 0.02 ist dagegen vernachlässigbar.)

muß, um einen absoluten Wert für die Reflektivität R angeben zu können, die gemessene reflektierte Intensität I_b geeignet skaliert und durch die eingestrahlte Laserpulsform I_a dividiert werden.

$$R = \frac{f I_b}{I_a} \quad (3.19)$$

Der Faktor f wurde so gewählt, daß die Reflektivität zu Beginn des Laserpulses der angenommenen Absorption von 0.80 bzw einer Reflektivität von 0.20 entspricht. Mit dieser Skalierung ist in der Absorption eine Variation von ± 0.02 zu beobachten, was keine

signifikanten Auswirkungen auf die Temperaturentwicklung hat. Die Temperatur, bei der die Änderung stattfindet, korreliert jedoch sehr gut mit den zu erwartenden Veränderungen der Schicht infolge des Aufheizens: Zunächst ist eine Verringerung der Reflektivität zu beobachten, die eine Änderung der Schichtdicke durch die Freisetzung von adsorbiertem Wasser bedeuten könnte. Oberhalb von 700 K steigt die Reflektivität wieder, dabei können anhand der Geschwindigkeit der Änderung zwei Phasen unterschieden werden, die Temperaturintervalle zwischen 700 K und 850 K sowie zwischen 850 K und 1400 K. Diese korrelieren mit dem Umbau der Schicht hin zu vollständiger sp^2 -Hybridisierung bzw. zu einer rein graphitischen Schicht (s. Kap. 3.1). Oberhalb von 1500 K ist die Reflektivität konstant – die frühere a-C:H-Schicht ist vollständig desorbiert. Der erneute Anstieg oberhalb von 2000 K ist auch im linken Diagramm in der zeitlichen Auftragung des reflektierten Lichts ab 1.5 ms gut zu erkennen. Dieser Anstieg könnte Wärmestrahlung aus dem Desorptionsfleck sein. Denkbar wäre auch, daß er etwas mit dem bei Messungen in TEXTOR beobachteten Phänomen des starken Ansteigens des H_α -Emissionsleuchtens bei übermäßigem Aufheizen (Kap. 6.1) zu tun hat.

Das Vermessen des Desorptionsflecks anhand der Farbsättigung der Probenoberfläche

Der Kontrast zwischen Desorptionsfleck und unberührter Schicht zeigt sich am stärksten in der Farbsättigung S . Daher ist es naheliegend, anhand dieser Größe die Fläche des Desorptionsflecks zu bestimmen. Um die Farbsättigung aus den photographischen Bildern der Flecke zu extrahieren, müssen die Bilder, die zunächst im RGB-Format vorliegen, in das HSB-Format oder das HLS-Format konvertiert werden. RGB steht dabei für Rot-Grün-Blau, d.h. die Farbe eines Pixels des Bildes ist in einem Zahlentripel dieser drei Farbwerte codiert. HSB (Hue-Saturation-Brightness) bzw. HLS (Hue-Lightness-Saturation) stehen für eine andere Beschreibung der Farbe. Hue ist ein Maß für den Farbton des Pixels, der sogenannte Farbwinkel. Saturation ist die Farbsättigung, d.h. die Abweichung des Pixels von Neutralgrau. Brightness bzw. Lightness ist die Helligkeit, mit den Extremwerten 0 (schwarz) und 1 (weiß). Die Konvertierung erfolgt mittels einer fertigen IDL-Routine (aus IDL 6.3). Die dahinterstehenden Formalismen sowie weitere Erläuterungen zu Farbwerten sind in der DIN 5033 [D5033] zu finden.

Die aus den Fotografien der Desorptionsflecke extrahierten Werte für die Farbsättigung S und den Farbwinkel H in Abhängigkeit von der Temperatur sind in Abb. 3.11 zu sehen. Innerhalb des halben Laserfleckradius wurden dafür die Farbwerte sämtlicher Pixel gemittelt. Beide fallen zunächst bis etwa $T_z=700$ K ab. Der Farbwinkel steigt dann bis $T_z=800$ K auf seinen Maximalwert an und bleibt konstant. Die Farbsättigung steigt bis $T_z=900$ K stark an und wächst danach nur noch schwach. Die starke Änderung der Farbsättigung bei $T_z=800$ K ist geeignet, um an ihr den Fleckradius zu messen. Sie entspricht dem Übergang von dem homogen grau-blauen Fleckzentrum auf den schmalen gelblichen Rand, der bei den Laserflecken mit einer Temperatur größer als 1000 K zu beobachten ist. Die Isothermenfläche A_{800}

kann somit direkt anhand von Fotografien der Laserflecke bestimmt werden. Näherungsweise kann diese Fläche als desorbierte Fläche angesehen werden. Die Abweichung beträgt dann maximal 8% (langsames Aufheizen mit 400 MW/m^2 über 5 ms wie in Abschnitt 3.6).

3.5 Oberflächenveränderung durch das Aufheizen

Verschiedene desorbierte Proben wurden unter dem Rasterelektronenmikroskop (SEM) untersucht. Gegenstand der Untersuchung war das Entstehen von Schäden am Substrat und Veränderungen in der Schicht in Abhängigkeit von der erreichten Temperatur. Die Proben, die hierbei zum Einsatz kamen waren polierte Graphitproben mit a-C:H-Schichten von 130 nm bzw. 180 nm Dicke. An beiden Proben waren zunächst im Laboraufbau Laser-desorptionsmessungen durchgeführt worden, wobei die Laserparameter variiert wurden, so daß verschiedene Endtemperaturen erreicht wurden. Unter diesen Desorptionsflecken wurde eine repräsentative, einen breiten Temperaturbereich überspannende Gruppe ausgewählt und unter dem SEM betrachtet, in der Regel senkrecht zur Oberfläche. Die Probe mit der 180-nm-Schicht wurde zusätzlich zerbrochen und die Bruchkante unter einem Winkel von 70° zum Lot auf die beschichtete Oberfläche betrachtet.

Zunächst werden in den folgenden Abschnitten unbestrahlte Schichten und Substrat bezüglich ihrer Rauigkeit und Schichtdicke charakterisiert. Als nächstes werden Oberflächenveränderungen beschrieben, die zwangsläufig auftreten, sowie Effekte, die vermieden werden können, indem eine Maximaltemperatur beachtet wird.

3.5.1 Struktur des ursprünglichen Substrats und der unbestrahlten Schichten

Oberflächenrauigkeit

In dieser Arbeit kamen verschiedene Substrate zum Einsatz, die hinsichtlich ihrer Rauigkeit stark verschieden sind. So werden beim Herstellen der Schichten stets Pyramiden aus drei Siliziumplättchen mitbeschichtet, da sich die Schichten auf den sehr planen Siliziumoberflächen sehr gut untersuchen lassen. Abb. 3.13a zeigt eine SEM-Aufnahme vom Rand eines solchen Plättchens, an dem durch das Hantieren ein Teil der Schicht abgelöst wurde und als zweite Lage obenaufliegt. Aus dem SEM-Bild wird deutlich, daß die Rauigkeit $R_a < 100 \text{ nm}$ beträgt. Die profilometrisch gemessene Oberflächenrauigkeit von Schicht und Siliziumoberfläche liegt bei $R_a = 1 \text{ nm}$. Die Spitze des Profilometers ist jedoch eine Kugel von $12.5 \mu\text{m}$ Durchmesser, so daß zwar die Höhenauflösung die Größenordnung Nanometer erreicht, Oberflächenstrukturen dagegen nicht aufgelöst werden können, die kleiner als dieser Durchmesser sind. Die wirkliche Oberflächenrauigkeit ist somit vermutlich von der Größenordnung $R_a = 10 \text{ nm}$.

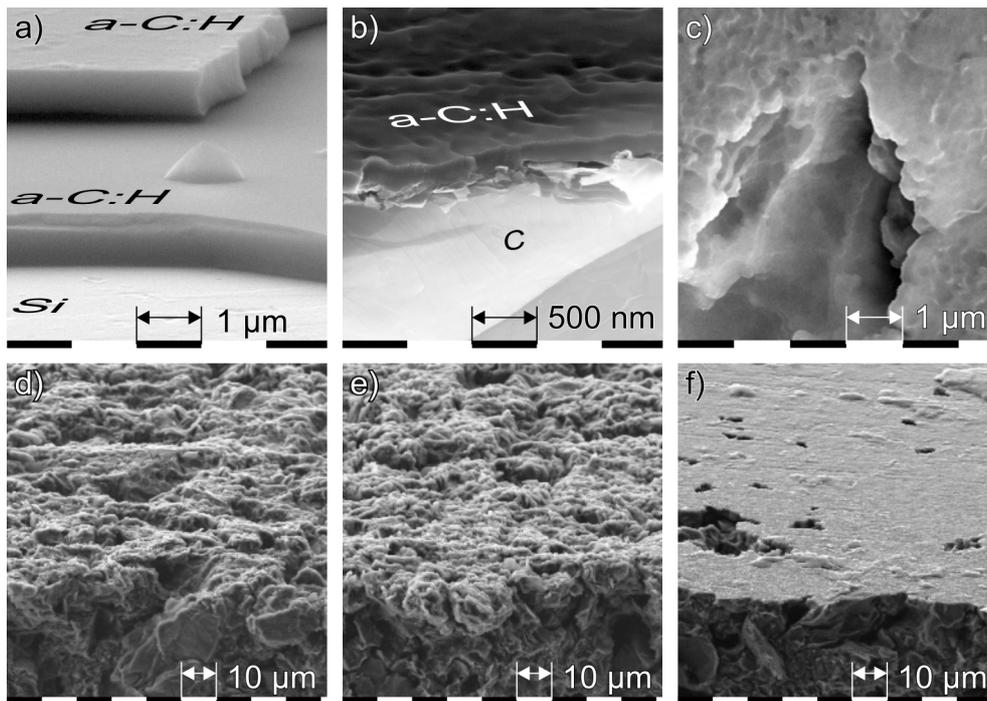


Abb. 3.13: Rauigkeit von Schicht und Substrat; die Aufnahmen sind unter einem Winkel von 20° zur Oberfläche aufgenommen für b) bis e) wurde die Probe zerbrochen und die Bruchkante beobachtet: a) 380 nm Schicht auf Silizium; ein abgelöstes Stück der Schicht liegt mit der Unterseite zuoberst auf der noch haftenden Schicht – b) 180 nm Schicht auf poliertem Graphit – c) offene Pore in polierter Oberfläche, beschichtet – d) unpoliertes Graphitsubstrat ohne Schicht – e) 380 nm Schicht auf unpoliertem Graphit – f) wie b)

Einer solch geringen Rauigkeit am nächsten kommen die polierten Graphitproben, wie sie in Abb. 3.13b, c und f zu sehen sind. Die Rauigkeit dieser Oberflächen beträgt auf den ebenen Flächen $R_a=40$ nm, hier stimmen die Profilometriemessung und die Abschätzung aus der SEM-Aufnahme überein. Jedoch verbleiben verteilt über die Oberfläche einzelne Krater, die durch die Poren im Graphit entstehen (Porosität 8%, Porengröße $2\ \mu\text{m}$, s. Anhang). Da die Poren im Volumen existieren, lassen sich diese Krater durch Polieren nicht entfernen, sondern werden lediglich zugeschmiert mit dem durch das Polieren abgespannten Graphitstaub. Dieser Staub wurde in wiederholten Ultraschallbädern entfernt, damit die später aufgebraachte a-C:H-Schicht Kontakt zur Substratoberfläche hat und besser haftet.

Ähnlich einer Schneedecke folgt die Schicht sämtlichen Unebenheiten (Abb. 3.13b) und glättet sie; selbst tief in den Poren (Abb. 3.13c) ist die Schicht noch als Belag auf den sonst scharfkantigen Graphitoberflächen auszumachen. In Abb. 3.13f ist jedoch zu erkennen, daß die 180 nm dicke Schicht auf Flächen von bis zu $10\ \mu\text{m}$ Durchmesser stellenweise etwas über die Umgebung hinaus erhoben ist. Diese bläschenartigen Strukturen deuten auf eine partiell vom Substrat gelöste Schicht hin. Der Versuch, noch dickere Schichten dieses Typs auf polierten Graphitproben aufwachsen zu lassen, führte stets zu Schichten, die sich entweder sofort oder innerhalb weniger Tage an Luft vom Substrat lösten. Daher wurden für die Laserdesorption in der Regel Proben aus nichtpoliertem Graphit verwendet. Die Rauigkeit dieses Substrats entspricht mit $R_a=5\text{...}10\ \mu\text{m}$ etwa einer halben bis einer Korngröße des Graphits. Da die Schicht nicht auf ein planes Substrat gezwungen wird, bleiben ihr mehr

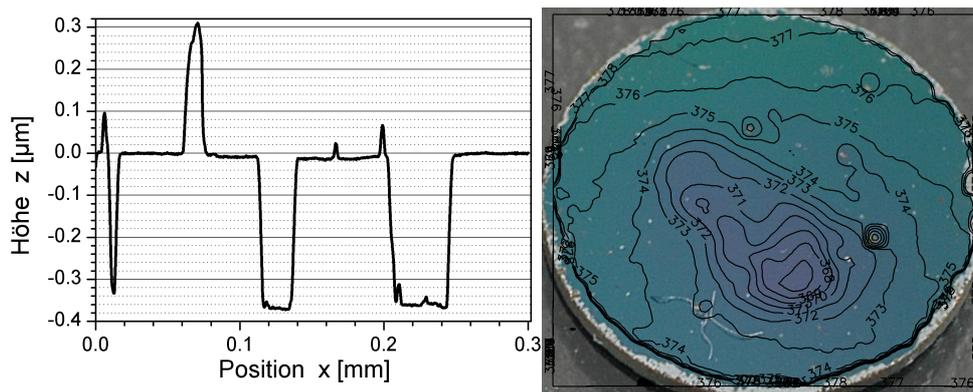


Abb. 3.14: Messung der Schichtdicke auf der Siliziumprobe ($\varnothing 7$ mm) aus Abb. 3.13a mittels Profilometrie am Probenrand (links) und Colorimetrie (rechts). Die Höhe Null ist die Oberfläche der Schicht. Teile der Schicht haben sich gelöst, dort wird das Substrat in einer Tiefe von 360 nm sichtbar.

Freiheitsgrade, um ihre internen mechanischen Spannungen auszugleichen, ohne sofort großflächig den Kontakt zum Substrat zu verlieren. In der Tat konnten auf diese Weise dauerhafte Schichten von bis zu 700 nm Dicke abgeschieden werden. Abb. 3.13d zeigt eine unbeschichtete Graphitoberfläche, in Abb. 3.13e liegt auf der Oberfläche eine 360...380 nm dicke a-C:H-Schicht, vergleichbar der in Abb. 3.13a gezeigten. Die Schicht ist nur zu erahnen: Die in Abb. 3.13d scharfkantigen erscheinenden Graphitkörner sehen etwas glatter aus, d.h. die Schicht folgt der Oberflächenform.

Schichtdicke

Die Aufgabe, die die zu entwickelnde Diagnostik bewältigen soll, ist die Bestimmung des Wasserstoffinventars einer Oberfläche. Dabei spielt die Schichtdicke lediglich insofern eine Rolle, als es eine Obergrenze geben muß für die Schichtdicke, die noch desorbiert werden kann. Diese Grenze spielt jedoch bei den verwendeten dünnen Schichten noch keine Rolle. Trotzdem ist es vorteilhaft, die Dicke der in Pados aufgebrauchten Schichten zu kennen, da dies ein alternative Methode zur Bestimmung des Wasserstoffinventars darstellt, neben den thermischen Methoden wie Laserdesorption im Labor (LDS) oder Ausheizen der Proben im Ofen (TDS). Ist die Schichtdicke bekannt, so kann das Wasserstoffinventar über die Wasserstoff-Volumendichte der Schicht ausgerechnet werden (vgl. Kap. 2.2).

Aus den SEM-Bildern der ebenen Oberflächen kann direkt die Schichtdicke abgelesen werden. Im Falle der Schicht auf Silizium (Abb. 3.13a) sind dies 380 nm, bei der polierten Graphitprobe in Abb. 3.13b 180 nm. Die profilometrische Messung auf dem Rand des Siliziumplättchens ergibt eine Dicke von 360 nm (Abb. 3.14). Die Ellipsometrie liefert in der Mitte des Plättchens bei der Wellenlänge $\lambda = 632.8$ nm einen Brechungsindex $n = 2.03$, einen Extinktionskoeffizienten $k = 0.06$ und eine Dicke von $d = 365$ nm. Werden diese optischen Daten als Eingabeparameter für die Colorimetrie [Wie94] verwendet, so ist es möglich, die schwache Inhomogenität der Schicht zu vermessen, die bereits mit dem bloßen Auge unter geeignetem Blickwinkel als leichte Farbvariation sichtbar ist. In Abb. 3.14 sind dazu Höhenlinien über der Fotografie des Siliziumplättchens überlagert. Dies mag als Beispiel für

die Leistungsfähigkeit der Methode dienen, im allgemeinen aber ist eine systematische Meßunsicherheit von ± 10 nm für die Dickenmessung anzusetzen, die vor allem aus der Unsicherheit des Brechungsindex' der Schicht resultiert. Werte für die Wasserstoffvolumendichte sind in Kapitel 2.2 zu finden. Für die eingesetzten präparierten Schichten wird der Wert $(3 \pm 1) \times 10^{19} \text{ m}^{-2} \text{ nm}^{-1}$ benutzt, was einem Inventar auf der Siliziumprobe von $(1.1 \pm 0.3) \times 10^{22} \text{ m}^{-2}$ entspricht. Die Inventarmessung einer gleichzeitig beschichteten Graphitprobe mittels TDS ergab einen Wert von $(1.9 \pm 0.6) \times 10^{22} \text{ m}^{-2}$.

3.5.2 Unvermeidbare Effekte des Aufheizens

Unvermeidbare Effekte sind solche, die sich bei der laserinduzierten thermischen Desorption bereits bei niedrigen Temperaturen einstellen, und sich daher nicht durch Einhalten einer Maximaltemperatur vermeiden lassen. Dies sind Rißbildung und die Entstehung von Bläschen in der Schicht, d.h. die Schicht verliert lokal ($10 \mu\text{m}$) die Haftung zum Substrat und wölbt sich aufgrund innerer Spannungen nach oben.

Die Risse sind vermutlich die Folge der thermischen Expansion des Graphitsubstrats um ca. 0.5% ($3.4 \times 10^{-6}/\text{K}$). Dies kann anhand von Abb. 3.15 nachvollzogen werden. Dort ist eine 180 nm dicke a-C:H-Schicht auf poliertem Graphit nach der Desorption gezeigt. Die Temperatur im Fleckzentrum erreichte hier 1500 K, bei einem Fleckdurchmesser (A_{800}) von 2.1 mm. Die Risse sind in der SEM-Aufnahme deutlich zu erkennen, sie ziehen sich in horizontaler Richtung durch das Bild. In Teilbild d) ist der durch die Spitze eines Bläschens laufende Riß vergrößert gezeigt. An den parallel verlaufenden Rändern des Risses kann die Richtung der Zugkraft abgelesen werden, sie verläuft in der Tat annähernd vertikal, also senkrecht zur Ausbreitungsrichtung der Risse, wobei lokale Abweichungen aufgrund der Porenstruktur des Graphits auftreten. Die Ausschnittsvergrößerung in Teilbild c) zeigt eine an die Oberfläche tretende Pore und die an ihr konzentriert auftretenden Risse. Man erkennt, daß die Risse sich auch unter der Schicht ins Substrat hinein fortsetzen. Die Schicht folgt also dem Substrat in seiner Ausdehnung; nur wo dieses reißt, öffnet sich auch ein Riß in der Schicht. Die Tiefe der Risse beträgt vermutlich 0.1 mm bis 0.2 mm, entsprechend der Tiefe des Aufheizens.

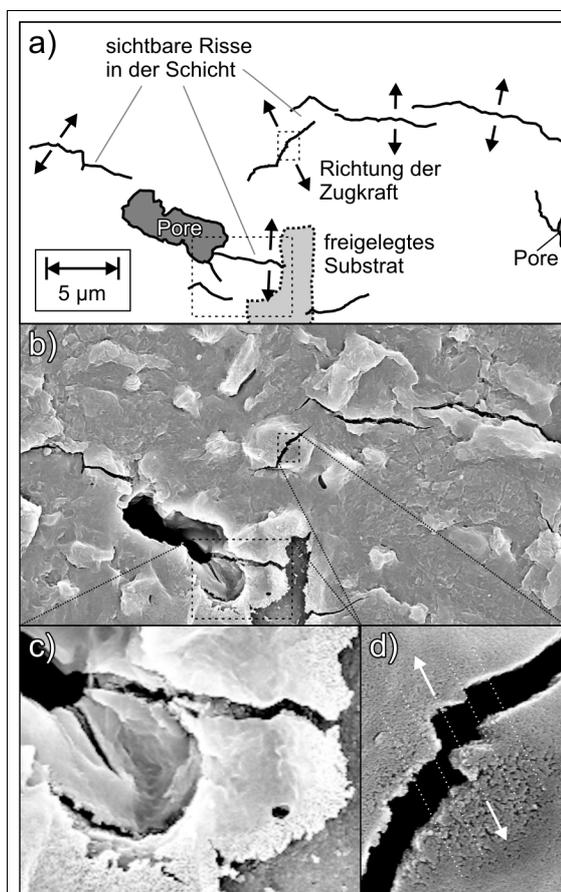


Abb. 3.15: Rißbildung in der a-C:H-Schicht: a) Hauptmerkmale von Teilbild b); c) und d) sind Ausschnittsvergrößerungen. Details siehe Text.

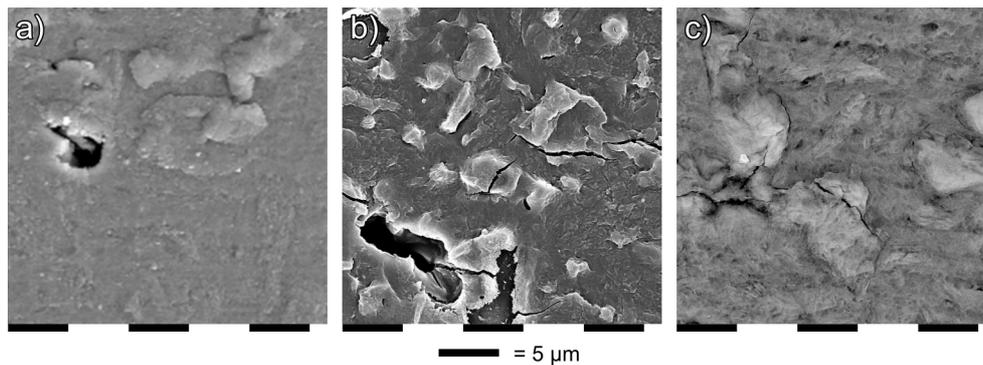


Abb. 3.16: Ablösen der Schicht vom Graphitsubstrat durch Bildung von Bläschen: a) 180 nm Schicht vor der Desorption, b) 180 nm Schicht nach der Desorption (Das Bild zeigt andere Kontraste infolge einer anderen Elektronenoptik), c) 130 nm Schicht nach der Desorption

Nach dem Aufheizen kühlt die Oberfläche wieder auf ihre Ursprungstemperatur ab, und die Ausdehnung des Substrats erreicht wieder die Maße vor der Desorption, die Risse schließen sich jedoch nicht wieder. Die Ursache ist in der strukturellen Veränderung der Schicht infolge des Ausheizens zu finden (Kap. 3.1). Die Wasserstoffatome, die ihre Atombindung zu einem Kohlenstoffatom lösen, hinterlassen offene Bindungen. Die Rekombination dieser offenen Bindungen ermöglicht es dem Kohlenstoffnetzwerk, die erzwungene neue Form zu stabilisieren. Möglicherweise finden ähnliche Prozesse im Graphit statt. Dort diffundiert eingelagerter Wasserstoff an die Korngrenzen und wird oberhalb von 900 K durch Rekombination zu H_2 freigesetzt, auf die gleiche Weise wie dies auch in der Schicht mit dem dort noch vorhandenen Wasserstoff geschieht.

Die Entstehung der Bläschen ist eine Folge innerer Spannungen der a-C:H-Schicht, welche wiederum eine Folge der Entstehungsgeschichte der Schicht sind. Diese führen zum Emporwölben der Schicht, sobald die Haftung zum Substrat unter einen kritischen Wert fällt. Die Spannungen wachsen mit zunehmender Schichtdicke, was sich daran zeigt, daß bei der noch nicht ausgeheizten, 180 nm dicken Schicht in Abb. 3.16a bereits einzelne Bläschen zu beobachten sind. Im Vergleich dazu zeigt eine 130 nm-Schicht vor der Desorption (Abb. 3.16b) keine und nach Aufheizen auf 1500 K (Abb. 3.16c) nur geringe Zeichen von Bläschenbildung, vergleichbar mit der 180 nm-Schicht vor der Desorption. Die Bläschen entstehen während des Aufheizens bereits bei Temperaturen von unter 850 K. Aufgrund ihres schlechten thermischen Kontakts zum Substrat werden sie deutlich schneller aufgeheizt als der Rest der Probe, was zur Sublimation der Bläschen von ihrer Spitze her führt, wie es schon in Abb. 3.15d zu sehen ist. Es ist daher zu erwarten, daß eine pyrometrische Temperaturmessung in ihrem quadratmillimetergroßen Meßpunkt keine echte Temperatur mißt. Die Temperaturverteilung ist stark inhomogen, und die Intensität der Wärmestrahlung wird durch die heißen Stellen auf den Bläschen dominiert ($\sim T^4$).

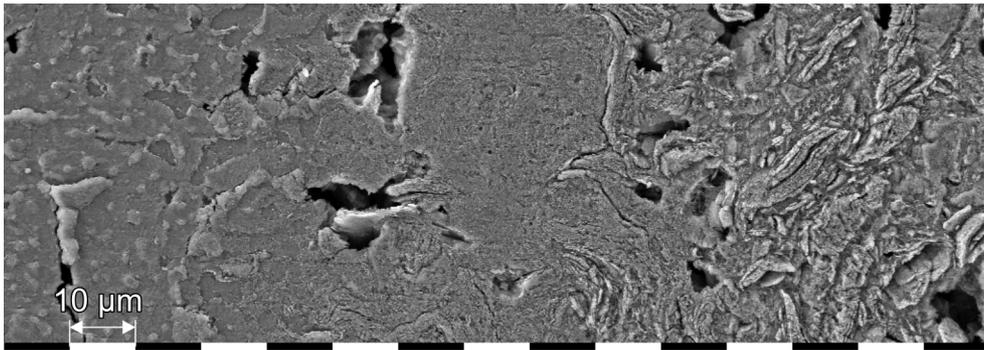


Abb. 3.17: Zu hohe Temperatur: Aufnahme eines Fleckrands; von links nach rechts steigt die erreichte Temperatur von 1200 K bis auf 3300 K (jeweils $\pm 10\%$). Dies gibt einen Überblick über sämtliche auftretende Effekte: Sublimation einzelner Bläschen / sämtlicher Bläschen / der gesamten Schicht / des Graphitsubstrats

3.5.3 Vermeidbare Effekte des übermäßigen Aufheizens

Vermeidbare Effekte bei der laserinduzierten thermischen Desorption entstehen infolge überhöhter Temperatur bzw. zu langer Verweildauer auf hoher Temperatur. Dies sind das teilweise bzw. vollständige Sublimieren auch der noch am Substrat haftenden, schon wasserstofffreien a-C-Schicht und schließlich die Sublimierung des Substratmaterials.

Diese Auswirkungen sind in Abb. 3.17 und Abb. 3.18 zu sehen. Die Strukturen in Abb. 3.18 sind die Folge einer länger andauernden Oberflächentemperatur von 1700 K: Der Laserpuls dauerte 7 ms, wobei jedoch die Temperatur zum Pulsende hin nicht mehr anstieg, sondern für 3 ms nahezu konstant zwischen 1600 K und 1700 K blieb. Das blumenkohlartige Ausfransen der Schicht infolge der teilweisen Sublimierung muß während dieses Temperaturplateaus entstanden sein: Ein anderer Desorptionsfleck auf der gleichen Schicht, bei dem der Laserpuls nach 5 ms endete, zeigt keinerlei Anzeichen von Sublimation.

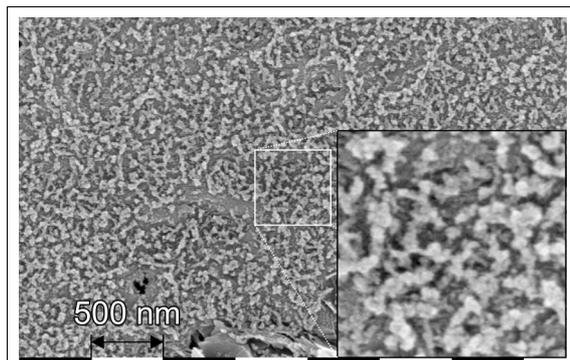


Abb. 3.18: Beginn der Sublimation an der Oberseite der Schicht: 130 nm dicke Schicht, die durch ein 7 ms dauernder Laserpuls auf 1700 K aufgeheizt wurde. Die gleiche Schicht ist 2 ms zuvor ($T = 1600$ K) noch unbeschädigt

Auf die Zerstörung der Schicht folgt das Abtragen der Substratoberfläche. Diese Entwicklung zeigt Abb. 3.17. Die Temperatur des abgebildeten Fleckrands überspannt einen Bereich von 1200 K links bis deutlich über 3000 K auf der rechten Bildseite.

Die Strategie, mit der solche Schäden zu vermeiden sind, besteht zum Einen darin, die Temperatur nur soweit zu erhöhen wie für die Desorption der Schicht und für einen scharfen Fleckrand (s. Kap. 3.4) erforderlich ist, und gleichzeitig möglichst kurze Laserpulse zu verwenden. Kurz bedeutet in diesem Fall, die Pulsdauer und die Leistungsdichte so zu wählen, daß kein Temperaturplateau wie in Abb. 3.18 auftritt, sondern zum Pulsende stets

noch Heizraten von mehr als 100 K/ms vorliegen. Wichtig ist weiterhin, daß Pulsdauer bzw. Leistungsdichte angepaßt werden müssen, falls die Substrattemperatur bereits erhöht ist, da dann die nötige und die erlaubte Temperaturerhöhung kleiner sind.

3.6 Durch Aufheizen freigesetzte Spezies aus Schicht und Substrat

Durch die laserinduzierte thermische Desorption wird aus der Oberfläche einer Probe eine Menge an Wasserstoff freigesetzt, die dem Wasserstoffinventar dieser Oberfläche entspricht. Diese Wasserstoffmenge soll in der Randschicht des Fusionsplasmas spektroskopisch bestimmt werden, indem die Intensität der zeitlich mit dem Laserpuls korrelierten H_α -Emission gemessen wird. Um die beobachteten Photonenzahlen anhand eines Modells nachvollziehen zu können, muß die Verteilung des Wasserstoffs auf die verschiedenen freigesetzten Spezies bekannt sein, sowohl für den gesamten Laserpuls wie auch zeitlich aufgelöst bzw. aufgelöst nach der Temperatur der Oberfläche. Erst dann kann mit Hilfe von Annahmen über den Zerfall der freigesetzten Moleküle die Zahl der neutralen Wasserstoffatome berechnet werden, wie in Kapitel 4 beschrieben wird.

Die Speziesverteilung wurden am Laboraufbau gemessen: Der durch das Aufheizen induzierte Teilchenfluß von der Oberfläche wurde mit einer zeitlichen Auflösung von 0.1 ms bestimmt, indem mit gleichen Laserparametern wiederholt die gleiche a-C:H-beschichtete Probe an einer frischen Stelle desorbiert wurde. Dabei wurde mit einer relativ niedrigen Laserleistungsdichte von $P/A=400\text{ MW/m}^2$ (Puls B, vgl. Kapitel 3.7) gearbeitet, was die Heizrate gegenüber dem Standardpuls (Puls A) verringerte und so die höhere Zeitauflösung vereinfachte. Die Laserfleckgröße und der zeitliche Verlauf der Laserleistung P waren bei jedem Fleck in guter Näherung ($\pm 12\%$ infolge von zwei Meßreihen an aufeinanderfolgenden Tagen) die gleichen, lediglich die Dauer t_p des Laserpulses wurde variiert. Hierzu wurde die Blitzlampe, die den Laser pumpt, bei stets gleicher Spannung für die Zeit t_p gezündet. Die angegebene Leistungsdichte von 400 MW/m^2 ist dabei für die ersten 1.5 ms des Laserpulses gültig, bei längeren Laserpulsen fällt die Laserleistung über die Pulsdauer deutlich ab, hier zeigt sich die Entladekurve der Kondensatorbank, die die Blitzlampe versorgt. Ein solcher langer, abfallender Laserpuls ist am Anfang von Kapitel 5 abgebildet. Dieser Abfall der Pulsleistung ist in der Simulation der Oberflächentemperatur berücksichtigt. Die Schwankungen der Leistungsdichte von Laserpuls zu Laserpuls wurden bei der Auswertung mit Hilfe der aufgezeichneten Pulsenergien und -dauern herausgerechnet.

Zunächst soll zwischen den Spezies unterschieden werden, die aus der Schicht, und solchen, die aus dem Substrat freigesetzt werden. Hier ist die Deuterierung der Schicht eine große Hilfe, da aus dem Substrat kein Deuterium freigesetzt wird. Dies ist in Abb. 3.19 gezeigt: Zwei Massenspektren, eins von der Desorption der beschichteten Seite der Graphitprobe und eins von der gleichartigen Desorption der unbeschichteten Rückseite wurden voneinander subtrahiert. Somit ist der Untergrund der aus dem Graphit emittierten Spezies entfernt, und

übrig bleibt allein die Emission aus der a-C:H-Schicht. Deutlich ist die Signatur von D_2 , CD_4 und C_2D_4 zu erkennen. Möglicherweise ist die Masse 46 ein Hinweis auf C_3D_5 , das Signal wird jedoch für die weiteren Untersuchungen wegen seiner geringen Größe vernachlässigt. Sehr deutlich ist auch zu sehen, daß im Spektrum der desorbierte Spezies nur geradzahlige Massen, also Kombinationen aus 12 (Kohlenstoff) und 2 (Deuterium) vorkommen, die einzige Ausnahme bildet HD (Masse 3).

Die Messung der Speziesverteilung erfolgte durch Bilden der Differenz der Massenspektren vor und nach dem Laserpuls. Die Meßmethode wird in Kapitel 5.2.1 genauer beschrieben. Die so in der Vakuumkammer gemessene Speziesverteilung stellt den integrierten Fluß während eines Laserpulses der Dauer t_p und der Leistungsdichte $P/A = 400 \text{ MW/m}^2$ dar (Abb. 3.20). Die Menge an derartigen Messungen bei verschiedenen Pulsdauern t_p ergibt eine Funktion, deren Ableitung der Teilchenfluß während des Laserpulses ist.

Die Angabe des Flusses in Abhängigkeit von der Laserpulsdauer ist schlecht geeignet, um sie mit Resultaten anderer Messungen zu vergleichen, da die Teilchenflüsse nur mittelbar eine Funktion der Zeit sind. Günstiger ist die Angabe als Funktion der Temperatur wie in Abb. 3.21 rechts, was eine numerische Simulation des Temperaturverlaufs bei dem jeweiligen Laserpuls nötig macht. Die analytische Lösung der eindimensionalen Wärmeleitung genügt nicht, da die Laserpulsform nur näherungsweise der angesetzten Rechteckform entspricht: Mit wachsender Pulsdauer wächst die Abweichung des Temperaturverlaufs von der analytischen eindimensionalen Lösung (Quadratwurzel), bis die Temperatur im Fleckzentrum T_Z aufgrund der verringerten Laserleistung und der Wärmeleitung bei 1700 K ein Maximum erreicht. Die entsprechend über diesen Temperaturverlauf aufgetragenen Teilchenzahlen sind in der Abbildung 3.21 rechts zu sehen.

Dieser Plot ist noch mit dem räumlichen Temperaturverlauf gefaltet: Aufgrund der Wärmeleitung parallel zur Oberfläche verschmiert der Temperaturverlauf am Fleckrand mit zunehmender Pulsdauer. Das Maximum ist dabei stets durch die Temperatur im Fleckzentrum T_Z gegeben. Die Abb. 3.22 verdeutlicht dies: Dort sind die Isothermenflächen $A_{600}(T_Z)$ bis $A_{1500}(T_Z)$ aufgetragen. Die Isothermenfläche $A_T(T_Z)$ sind definiert durch die Fläche, die von der zugehörigen Isotherme der Temperatur T eingeschlossen wird. Die Isotherme der Temperatur T ist gegeben durch den Radius, auf dem die Temperatur T herrscht. Hierbei kann die Zylindersymmetrie um das Fleckzentrum ausgenutzt werden. Aufgrund der Anzahl und Verteilung der Datenpunkte wurde eine Abstufung der Isothermen von $\Delta T = 100 \text{ K}$ gewählt.

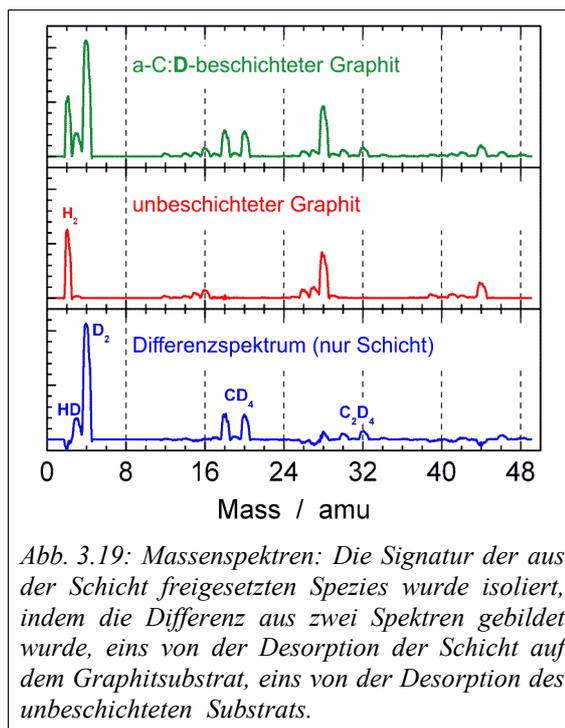


Abb. 3.19: Massenspektren: Die Signatur der aus der Schicht freigesetzten Spezies wurde isoliert, indem die Differenz aus zwei Spektren gebildet wurde, eins von der Desorption der Schicht auf dem Graphitsubstrat, eins von der Desorption des unbeschichteten Substrats.

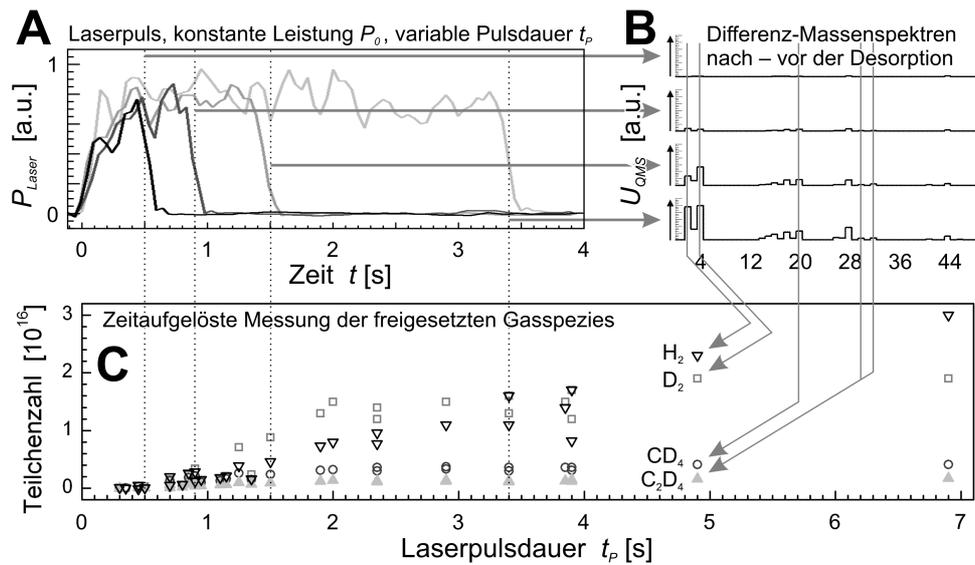


Abb. 3.20: Zeitaufgelöste Messung der freigesetzten Gasspezies durch wiederholte Desorption einer frischen Stelle, wobei lediglich die Laserpulsdauer variiert wurde.

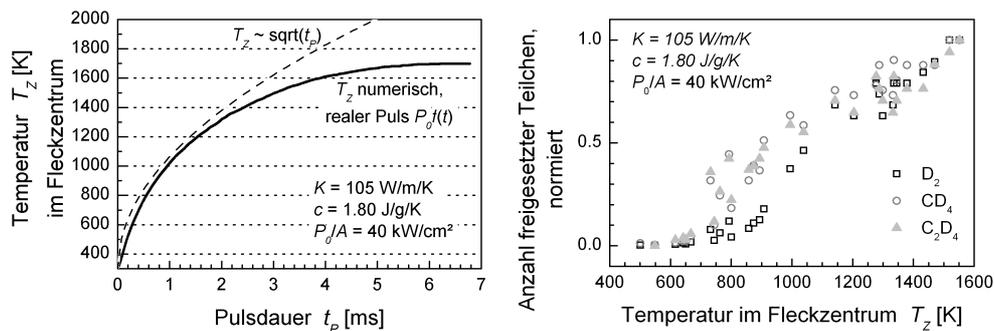


Abb. 3.21: Links: Temperatur im Fleckzentrum über die Pulsdauer, numerisch und analytisch; Rechts: Aus der Schicht desorbierte Teilchen, aufgetragen über der Temperatur, die für die jeweiligen Datenpunkte berechnet wurde, und normiert auf die maximale Freisetzung

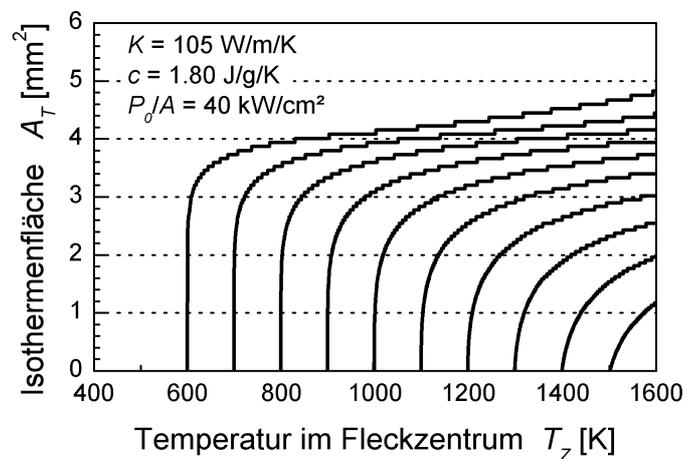


Abb. 3.22: berechnete Isothermenflächen A_T als Funktion von T_z . Die Fläche des Laserflecks ist $A = 4.0 \text{ mm}^2$. Die Stufen sind Artefakte der numerischen Simulation ($\Delta r = 10 \mu\text{m}$).

Das Wasserstoffinventar ist homogen in der a-C:H-Schicht verteilt, die Flächendichte an Wasserstoff ist f_c . Dieses Inventar wird bei vollständiger Desorption frei. Der Isothermenfläche $A_T(T_Z)$ kann das Isothermeninventar $f_T A_T(T_Z)$ zugeordnet werden, das ist dasjenige Inventar, das aus der Schicht auf einer Fläche $A = A_T(T_Z)$ im Temperaturintervall $[T \dots T + 100 \text{ K}]$ freigesetzt wird. f_c ist die Summe über alle f_T .

Für jede Isothermenfläche ist nun zu ermitteln, welcher Anteil $0 < f_T < f_c$ des Isothermeninventars desorbiert wurde. Für $A_{600}(T_Z)$ kann dies direkt aus den Datenpunkten im Temperaturintervall $T = [600 \text{ K} \dots 700 \text{ K}]$ abgelesen werden, da unterhalb von $T = 600 \text{ K}$ kein Deuterium aus der Schicht freigesetzt wird (s. Kap. 3.1). Die Signale S_i der Datenpunkte im Temperaturintervall $T = [700 \text{ K} \dots 800 \text{ K}]$ setzen sich dagegen bereits aus zwei Teilen zusammen, nämlich der Emission aus den Isothermenflächen A_{600} und A_{700} , wodurch sich folgendes Muster für die Auswertung ergibt:

$$\begin{aligned} 600 \text{ K} \leq T_Z < 700 \text{ K} : S_i &= f_{600} A_{600}(T_{Z,i}) \\ 700 \text{ K} \leq T_Z < 800 \text{ K} : S_i &= f_{600} A_{600}(T_{Z,i}) + f_{700} A_{700}(T_{Z,i}) \\ 800 \text{ K} \leq T_Z < 900 \text{ K} : S_i &= f_{600} A_{600}(T_{Z,i}) + f_{700} A_{700}(T_{Z,i}) + f_{800} A_{800}(T_{Z,i}) \\ &\vdots \end{aligned} \quad (6.1)$$

f_T wird an die Datenpunkte S_i innerhalb des zugehörigen Temperaturintervalls gefittet, wobei die Methode der kleinsten Quadrate verwendet wird:

$$\begin{aligned} \sum_i (S_i - f_{600} A_{600}(T_{Z,i}))^2 &\rightarrow \min \\ \sum_i (S_i - f_{600} A_{600}(T_{Z,i}) - f_{700} A_{700}(T_{Z,i}))^2 &\rightarrow \min \\ &\vdots \end{aligned} \quad (6.2)$$

Diese an die Datenpunkte S_i angepaßten Kurven $\sum f_T A_T$ sind in Abb. 3.23 gezeigt. Das Resultat dieser Auswertung sind die Flächendichten f_T . Sie geben das aus der Schicht freigesetzte Inventar im Temperaturbereich $[T \dots T + 100 \text{ K}]$ an, bezogen auf die Fläche des Desorptionsflecks. Wird dieser Auswertalgorithmus für jede der gemessenen Spezies durchgeführt, so erhält man die temperaturabhängige Zusammensetzung der desorbierten Spezies wie in Abb. 3.24 links.

Die nun vorliegenden Daten können direkt verglichen werden mit denen, die bei der langsamen thermischen Desorption durch Aufheizen der Proben in einem Ofen gewonnen werden (Abb. 3.24 rechts). Es zeigt sich, daß das Ausgasverhalten bis hinauf zu Heizraten von 10^6 K/s noch nicht von der Heizrate abhängt. Dies ist ein Hinweis darauf, daß es sich bei den Prozessen, die das Ausgasen kontrollieren, nicht um Diffusion, sondern um chemische Reaktionen handelt, deren Kinetik durch wesentlich kleinere Zeitskalen bestimmt ist.

Im Falle der Laserdesorption wird auch bei Temperaturen im Fleckzentrum T_Z weit oberhalb von 900 K noch die Freisetzung von Kohlenwasserstoffen beobachtet. Die Ursache dieses Effekts kann sein, daß die Isothermenflächen nach Ende des Laserpulses nicht alle sofort kleiner werden. Die lokal im Laserfleck eingetragene Wärmemenge verteilt sich im gesamten Volumen, Aus der Simulation ergibt sich die Faustregel, daß die Isothermenflächen A_T für $T < (T_{Z,max} - T_{Z,min})/2$ nach Ende des Aufheizens für einige Millisekunden weiterwachsen. Dies

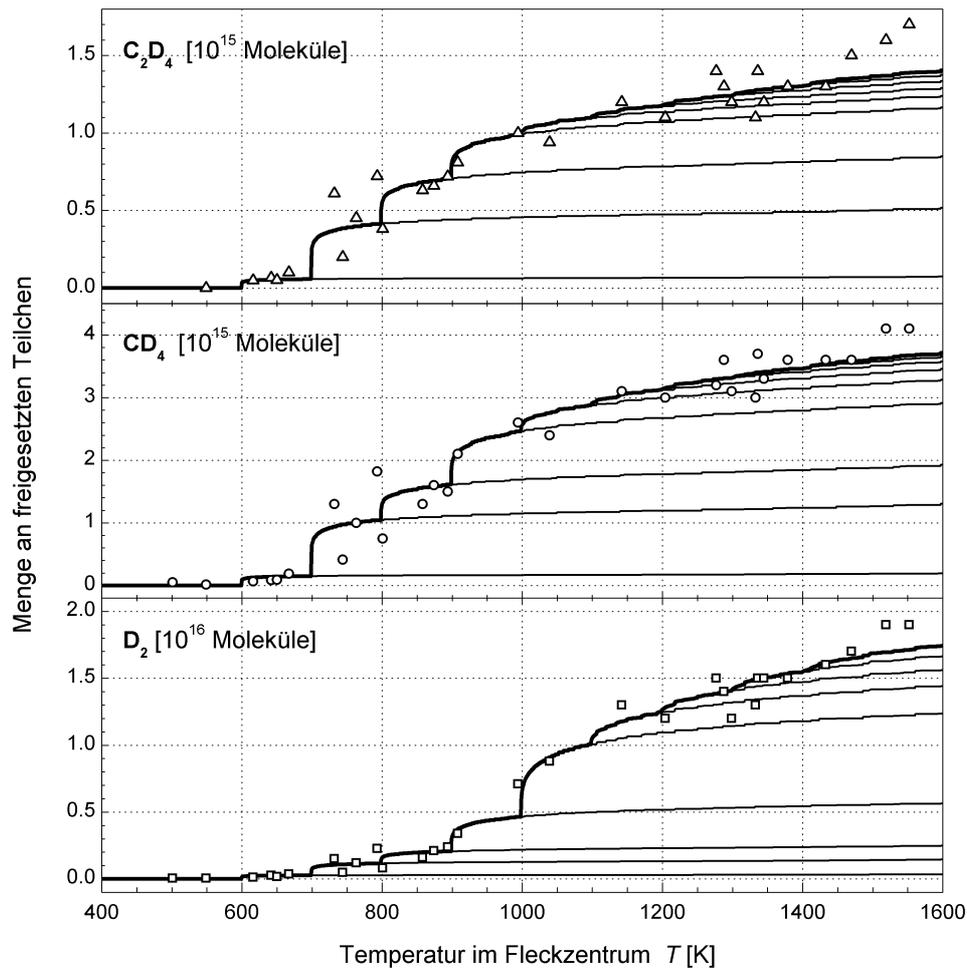


Abb. 3.23: Ermittlung der temperaturabhängigen Desorptionsrate durch sukzessiven, kumulativen Fit der Isothermen an die Datenpunkte: Beginnend mit der Isothermenfläche $A_{600}(T_Z)$ wird der zugehörige Faktor f_{600} so gewählt, daß die Abweichungen von $f_{600}A_{600}(T_Z)$ zu den Datenpunkten im Intervall $T_Z = [600 \text{ K} \dots 700 \text{ K}]$ minimal werden. Da jetzt f_{600} bekannt ist kann als nächstes $f_{700}A_{700}(T_Z) + f_{600}A_{600}(T_Z)$ durch Variation von f_{700} auf die Datenpunkte im Intervall $T_Z = [700 \text{ K} \dots 800 \text{ K}]$ gefittet werden. Dann ist das Intervall $T_Z = [800 \text{ K} \dots 900 \text{ K}]$ an der Reihe, aus dem f_{800} ermittelt wird usw. Die gefundenen f_T sind (Einheit: Moleküle/Fläche) das auf die Fläche bezogene Inventar, das im Temperaturbereich $[T \dots T + 100 \text{ K}]$ aus der Schicht freigesetzt wurde.

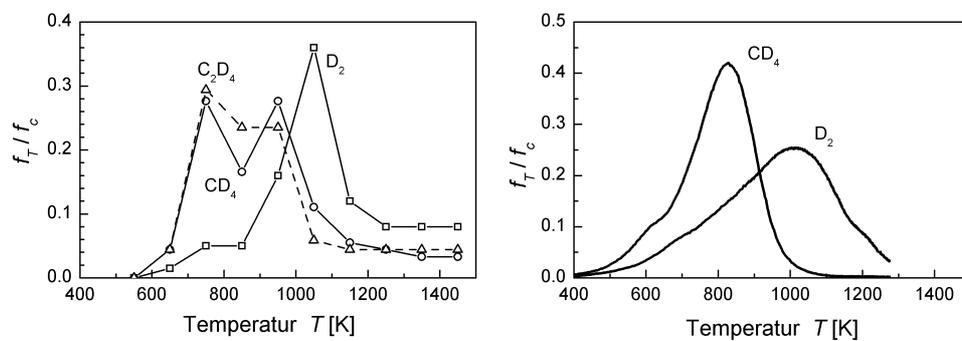


Abb. 3.24: Freisetzung der Gasspezies bei thermischer Desorption als Funktion der Temperatur. (relative Menge innerhalb $\Delta T = 100 \text{ K}$) Zwischen laserinduzierter Heizung (links, 10^6 K/s) und dem Ausheizen in einem Ofen (rechts, 1 K/s) besteht kein signifikanter Unterschied bezüglich des Ausgasverhaltens.

ist leicht einzusehen: Ein isolierter homogener Körper, dessen eine Hälfte die Temperatur T_1 und dessen andere Hälfte die Temperatur T_2 hat, wird im Gleichgewicht die Temperatur $(T_1+T_2)/2$ erreichen. Für das aufgeheizte Volumen gilt dieser Fall so lange, wie die Wärmeleitung in das Volumen noch nicht zu weit fortgeschritten ist. Dieses fortgesetzte Wachstum der Isothermenflächen ist in der beschriebenen Auswertung jedoch nicht berücksichtigt: Der Temperaturverlauf wird als identisch in allen Flecken angesetzt und geht nach dem jeweiligen Pulsende sofort auf T_0 zurück.

Eine weitere Fehlerquelle ist die systematische Unsicherheit der errechneten Temperatur. Diese ist in der Unsicherheit der Eingabeparameter der Simulation begründet. So müssen Wärmeleitfähigkeit, Wärmekapazität und Massendichte des Substratmaterials bekannt sein. Diese wurden durch einen Fit an die Meßwerte (Temperatur über Zeit) eines früheren Experiments (s. Anhang) erhalten, bei denen der gleiche Graphit (EK98) mittels Elektronenstrahl aufgeheizt wurde. Die Wärmekapazität ist für diesen Fit und in der Simulation als konstant $c=1.8\text{ J/g/K}$ angenommen, was für Temperaturerhöhungen von $T_0=300\text{ K}$ auf $T_{max}=1000\text{ K}\dots2000\text{ K}$ gute Resultate liefert. Geringere Temperaturerhöhungen jedoch um bis zu 15% unterschätzt. Insbesondere die Freisetzung von CD_4 und C_2D_4 fällt in diesen fehleranfälligen Temperaturbereich. Die hervorragende Übereinstimmung der Temperatur bei den D_2 -Peaks in Abb. 3.24 läßt dagegen auf einen nur kleinen Fehler bei höheren Temperaturen schließen.

Die zweite Fehlerquelle für die Eingabeparameter der Temperatursimulation betrifft das räumliche Profil des Laserpulses: Auch dieses weicht von der angenommenen idealen Rechteckform ab. Abbildung 1 in Kapitel 5 zeigt den Querschnitt. Der Fleck mit einem Radius von $R=0.5\text{ mm}$ weist auch auf der radialen Position $r=0.6\text{ mm}$ noch 15% bis 20% der Leistungsdichte im Fleckzentrum auf. Die Isothermenflächen, insbesondere die für niedrige Temperaturen, werden entsprechend größer sein bzw. mit der Pulsdauer stärker wachsen, was zu einer fortdauernden Emission von Kohlenwasserstoffen aus der an den Laserfleck angrenzenden Schicht führt.

Neben den deuterierten Spezies, die aus der Schicht freigesetzt wurden, konnte eine Vielzahl anderer Verbindungen beobachtet werden, deren freigesetzte Menge über den gesamten Laserpuls hinweg wuchs (Abb. 3.25). Diese konnten nur in Ausnahmefällen identifiziert werden, wie z.B. Wasserstoff H_2 , oder Kohlenmonoxid CO . Ihre Freisetzung steht offenbar im Zusammenhang mit der Zersetzung des Graphitsubstrats bzw. des Überrests, der von der Schicht nach der Desorption bleibt. Im Falle von H_2 ist auch die Mobilisierung und Freisetzung tief (100 μm) im Graphitvolumen denkbar.

Die inflationäre Freisetzung von H_2 hat Konsequenzen für die spektroskopische Messung der H_α -Emission bei der Desorption reiner deuterierter a-C:H-Schichten auf Graphit, wie sie in Kapitel 6.4 vorgestellt werden. Die freigesetzte Deuteriummenge ist dort bekannt, aber der aus dem Substrat kommende Wasserstoff muß stets mit berücksichtigt werden.

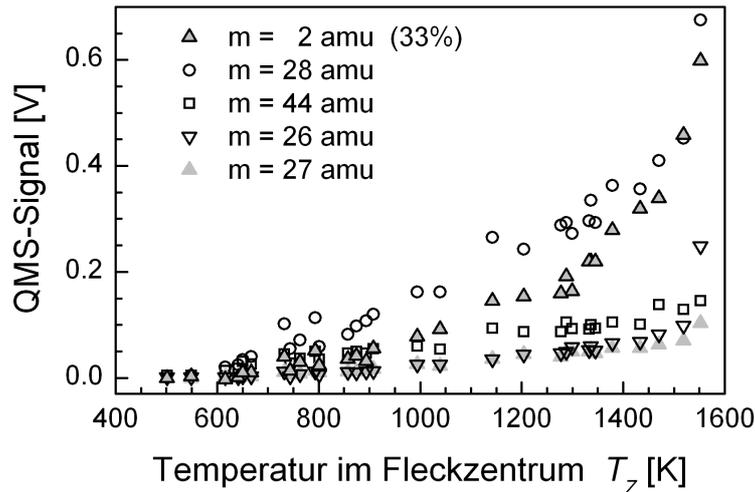


Abb. 3.25: Beispiele für die Signale von Spezies, die nicht aus der Schicht stammen. Diese zeichnen sich durch fehlende Sättigung bei hohen Temperaturen aus – die Obergrenze für die freigesetzte Menge wird durch die Dauer des Laserpulses bestimmt. Die markanten Beispiele sind H_2 (2 amu) und CO bzw. C_2H_4 (28 amu). Der Großteil dieser vielen Spezies konnte nicht identifiziert werden.

3.7. Wahl der Laserparameter für eine Laserdesorptionsmessung

Anhand von den Resultaten der Temperatursimulation in Abb. 3.26 können die Laserparameter unmittelbar ausgewählt werden. Die Auswahlprozedur wird im folgenden anhand von Puls A und Puls B erläutert. Dies sind diejenigen Parametersätze, die in dieser Arbeit nahezu ausnahmslos zum Einsatz kommen.

In Abb. 3.26 sind drei Größen gegeneinander aufgetragen: Die Temperaturerhöhung, die Laserleistungsdichte und die Laserpulsdauer. Nur die letzteren beiden können direkt beeinflusst werden. Zunächst wird daher die nötige Temperaturerhöhung abgeschätzt: Die Temperatur der Probenoberfläche betrage $T_0=300$ K. Die einfachste Bedingung für die Temperaturerhöhung besagt, daß die Endtemperatur der Probenoberfläche größer als $T=1200$ K sein muß. Dies entspräche einem Temperaturanstieg von $\Delta T=900$ K. Um einen scharfen Fleckrand zu erhalten gilt jedoch als zweite Bedingung, der Temperaturgradient senkrecht zum Fleckrand solle dort am höchsten sein, wo die Temperatur zum Ende des Laserpulses $T=(900\pm 100)$ K beträgt. Das ist dann der Fall, wenn diese Temperatur nach etwa der Hälfte des Temperaturanstiegs erreicht ist. Der gewünschte Temperaturanstieg wäre demnach $\Delta T=(1500\pm 200)$ K. Die feste Temperaturerhöhung ΔT schränkt die weitere Parameterwahl auf Paare $(P/A, t_p)$ ein. Nun kann die Wärmeleitung in die Tiefe bzw. zur Seite hin berücksichtigt werden. Bei der Messung ist ein scharfer Fleckrand gewünscht, die Wärmeeindringtiefe spielt dagegen keine Rolle, da die verwendeten Schichten mit höchstens 400 nm Dicke vernachlässigbar dünn sind. Daher wird für einen Puls A eine niedrige Pulsdauer von $t_p=1.5$ ms festgelegt. Um das festgelegte ΔT zu erreichen ist eine Leistungsdichte von 600 MW/m² nötig. Hinzu kommt ein Aufschlag von 5...15%, um die Reflektivität der Graphitoberfläche zu berücksichtigen. Ein Puls B mit einer Pulsdauer von $t_p=5.0$ ms soll als „Reinigungspuls“ dienen. Die höhere Pulsdauer führt zu einer höheren

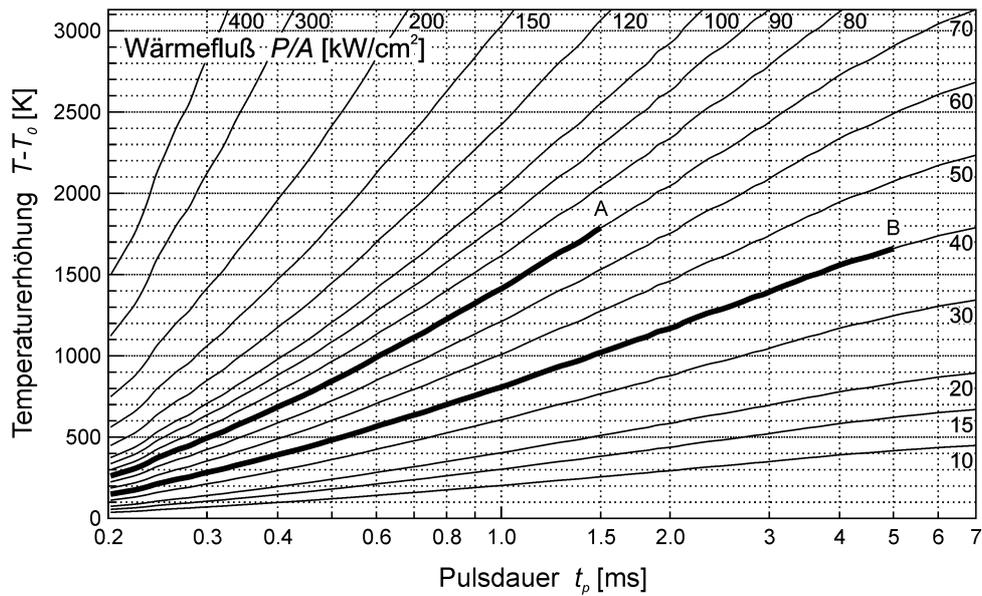


Abb. 3.26: Temperaturanstieg als Funktion des Wärmeflusses und der Zeit, gerechnet in halbbunendlicher Geometrie und mit **100% Absorption** der Laserleistung, für Laserpulse der mittleren Leistungsdichte P/A auf Graphit EK98 (Tabelle 3.1). Die Temperaturverläufe für Puls A und Puls B sind hervorgehoben.

	Puls A	Puls B
Pulsdauer [ms]	1.5	5.0
Energiedichte [MJ/m^2]	1.05	2.0
Leistungsdichte [MW/m^2]	700	400
Starttemperatur [K]	300	300
Endtemperatur [K]		
analytisch nach Gl. 3.5	1870	1940
numerisch, reale Pulsform	1790	1660
Eindringtiefe am Pulsende ($T > 1200 \text{ K}$) [μm]	125	280

Tabelle 3.3: Parameter der verwendeten Laserpulse A und B für die Laserdesorption von Graphitproben.

Wärmeeindringtiefe, was auch das Graphitsubstrat von intrinsischem Wasserstoff befreit. Diese Reinigung kann zwischen zwei Plasmaentladungen erfolgen. Die Eigenschaften von Puls A und Puls B sind in Tabelle 3.3 aufgelistet. Es fällt auf, daß mit zunehmender Pulsdauer die analytische Endtemperatur und die numerisch mit der realen Pulsform berechnete Endtemperatur voneinander abweichen: Gegen Ende des Laserpulses nimmt die Laserleistung ab, somit ist dann der Temperaturanstieg geringer als in der analytischen Lösung.

Es gilt als dritte Bedingung für die Temperaturerhöhung, daß eine Maximaltemperatur von 2100...2400 K nicht überschritten werden sollte. Diese ist durch den erneuten Anstieg der H_α -Emission über der Oberfläche gegeben. In Kapitel 6.1 werden Beispiele für ein solches Überhitzen des Desorptionsflecks gezeigt und die Sublimierung von Kohlenstoff als wahrscheinliche Ursache des erneut auftretenden Emissionsleuchtens identifiziert.

4. Passive Spektroskopie an Wasserstoff

Die Wasserstoffmenge, die infolge der Laserdesorption aus dem Desorptionsfleck ins Plasma freigesetzt wird, wird mittels Emissionsspektroskopie gemessen. Dies wird primär über die räumlich und zeitlich aufgelöste Messung der H_{α} - (und D_{α} -) Emission (H_{α} : $\lambda=656.28$ nm, D_{α} : $\lambda=656.10$ nm) von neutralen Wasserstoff- und Deuteriumatomen geschehen, was deren quantitativen Nachweis ermöglicht [Pos93]. Die Grundlagen hierzu werden in Abschnitt 4.1 erläutert.

Der so bestimmte atomare Wasserstofffluß muß dann in das gesuchte molekular freigesetzte Wasserstoffinventar umgerechnet werden. Hierfür wird in Kapitel 4.2 die inverse atomare Ausbeute Y_A eingeführt. Sie gibt die Zahl an Wasserstoffatomen an, die in den desorbierten Wasserstoff- und Kohlenwasserstoffmolekülen enthalten sein müssen, um aus deren Zerfall im Plasma 1 neutrales Wasserstoffatom zu erhalten. Die gesamte Molekülphysik bei der Desorption kann damit in Y_A zusammengefaßt werden werden.

Quantitative Aussagen sind mit der Emissionsspektroskopie nur dann möglich, wenn das gesamte Emissionsleuchten gemessen wird. Dies ist in der Praxis nicht möglich, da das Emissionsleuchten in der Regel über das Sichtfeld der Beobachtung hinausreicht. In Kapitel 4.3 werden Simulationen mit dem Monte-Carlo-Neutralteilchencode EIRENE [EIREN] beschrieben, mit deren Hilfe ein Korrekturfaktor für das Sichtfeld ermittelt wird.

4.1 Emissionsspektroskopie an Wasserstoffatomen

Emissionsspektroskopie an neutralen und teilweise ionisierten Atomen im Plasma bietet die Möglichkeit, die Dichte dieser Teilchen im Plasma in situ zu bestimmen [Pos93]. Dazu wird die Intensität der Emission eines elektronischen Übergangs gemessen. Mittels eines Modells der Besetzung des oberen Zustands wird diese Intensität in eine entsprechende Teilchenzahl umgerechnet.

Es wird die Intensität I_{tot} einer Spektrallinie der Frequenz ν gemessen, die ein Atom von seiner Freisetzung ins Plasma bis zu seiner Ionisation emittiert. I_{tot} ist somit das Linienintegral der Emission über die Flugstrecke zwischen r_1 und r_2

$$I_{tot} = \int_{r_1}^{r_2} dr h\nu \varepsilon(r) \quad (4.1)$$

Der Emissionskoeffizient ε für diese Spektrallinie, die beim Übergang des Atoms vom angeregten elektronischen Zustand i in den Zustand j emittiert wird, ergibt sich aus der Besetzungsdichte n_A^* des angeregten Zustands und dem Einsteinkoeffizienten A_{ij} der spontanen Emission (der Wahrscheinlichkeit pro Zeit für den spontanen Übergang des Atoms vom Zustand i in den Zustand j):

$$\varepsilon = \frac{1}{4\pi} n_A^* A_{ij} \quad (4.2)$$

Für die Besetzungsdichte des angeregten Zustands i werden Koronabedingungen angenommen,

$$n_A^* \sum_{k < i} A_{ik} = n_A n_e \langle \sigma_{ExG} v_e \rangle, \quad (4.3)$$

das bedeutet, die Anregung aus dem Grundzustand durch Elektronenstoß (rechte Seite) in den Zustand i und das Zurückfallen aus dem angeregten Zustand i in einen Zustand $k < i$ unter Lichtemission (linke Seite) sind im Gleichgewicht. Hierbei ist n_A die Besetzungsdichte des Grundzustands, n_e die Elektronendichte im Plasma und $\langle \sigma_{ExG} v_e \rangle$ der Ratenkoeffizient für die Anregung aus dem Grundzustand durch Elektronenstoß. Dieser ist über die Geschwindigkeit v_e der Elektronen eine Funktion der Elektronentemperatur T_e .

Das Verzweigungsverhältnisses (**B**branching ratio)

$$B = \frac{A_{ik}}{\sum_{k < i} A_{ik}}, \quad (4.4)$$

berücksichtigt die möglichen Übergänge in verschiedene elektronische Zustände k . Der Emissionskoeffizienten wird dann zu

$$\varepsilon = \frac{B}{4\pi} n_A n_e \langle \sigma_{ExG} v_e \rangle. \quad (4.5)$$

Für die gemessene linienintegrierte Intensität ergibt sich damit

$$I_{tot} = B \frac{h\nu}{4\pi} \int_{r_1}^{r_2} dr n_A(r) n_e(r) \langle \sigma_{ExG} v_e \rangle \quad (4.6)$$

Dem gegenüber steht der Fluß $\Phi_A = n_A v_A$ an Atomen mit der Geschwindigkeit v_A in das Plasma. Unter der Annahme, daß sämtliche Atome mit dem Ionisationsratenkoeffizienten $\langle \sigma_I v_e \rangle$ ionisiert werden,

$$\frac{d}{dr} \Phi_A + n_A n_e \langle \sigma_I v_e \rangle = 0 \quad (4.7)$$

ergibt sich über die Flugstrecke integriert

$$\Phi_A = \int_{r_1}^{r_2} dr n_A(r) n_e(r) \langle \sigma_I v_e \rangle \quad (4.8)$$

Der Zusammenhang zwischen gemessener Intensität und atomarem Fluß in das Plasma ergibt sich nach Gleichung (4.6) und (4.8) als

$$\Phi_A = \frac{4\pi I_{tot}}{B h\nu} \frac{\int_{r_1}^{r_2} dr n_A(r) n_e(r) \langle \sigma_I \nu_e \rangle}{\int_{r_1}^{r_2} dr n_A(r) n_e(r) \langle \sigma_{ExG} \nu_e \rangle} \quad (4.9)$$

Die Ratenkoeffizienten der Elektronenstoßanregung und der Ionisation sind Funktionen der Elektronendichte n_e und -temperatur T_e . Im allgemeinen weist der Quotient $\langle \sigma_I \nu_e \rangle / \langle \sigma_{ExG} \nu_e \rangle$ nur eine schwache Abhängigkeit von $T_e(r)$ auf. Diese variiert im Beobachtungsvolumen nur wenig, in radialer Richtung. Daher läßt sich Gleichung (4.9) vereinfachen:

$$\Phi_A = \frac{4\pi I_{tot}}{B h\nu} \frac{\langle \sigma_I \nu_e \rangle}{\langle \sigma_{ExG} \nu_e \rangle} = \frac{4\pi I_{tot}}{h\nu} \frac{S}{XB} \quad (4.10)$$

Dabei wurden für die Ratenkoeffizienten die Substitutionen $\langle \sigma_I \nu_e \rangle = S$ (ionisation) und $\langle \sigma_{ExG} \nu_e \rangle = X$ (excitation) vorgenommen.

Der so definierte Konversionsfaktor S/XB ermöglicht die Umrechnung der gemessenen Photonenflüsse in atomare Flüsse, unter der Voraussetzung, daß sämtliche Atome innerhalb des Beobachtungsvolumens ionisiert werden („Ionisationen pro Photon“). In der Plasmarandschicht ist er nicht konstant aufgrund der starken Änderung der Elektronendichte zwischen der Wand und der letzten geschlossenen Flußfläche. Dies ist sehr deutlich in den Temperatur- und Dichteprofilen der verschiedenen verwendeten Referenz-Plasmaentladungen zu sehen. Diese sind im Anhang aufgeführt. In diese Diagramme ist das jeweilige S/XB -Profil nach [ADAS] mit aufgetragen. Für die praktische Anwendung in solchen Randschichtplasmen muß ein Mittelwert für S/XB gewählt werden, wofür man sich an der radialen Position mit der stärksten Lichtemission orientiert. Einen Überblick über den Wertebereich von n_e , T_e und S/XB verschafft Abb. 4.1, wo die S/XB aus [ADAS] in Form von Konturlinien als Funktion von Dichte und Temperatur aufgetragen sind. In diesen Konturplot hineingezeichnet sind die (T_e, n_e) -Profile von Referenzentladungen. Der Parameter bei diesen Profilen ist die radiale Position r , die durch die Zahlen auf den Profilen angegeben ist (r [cm]). Die Ermittlung der molekularen Wasserstoffflüsse aus dem Desorptionsfleck erfordert eine zusätzliche Korrektur, um den Zerfall der Moleküle in die gemessenen Wasserstoffatome zu berücksichtigen. Diese Korrektur wird in Kapitel 4.2 vorgestellt. In anderen Arbeiten [Bre03] wird dies durch Ersetzen von S/XB durch S/XB_{eff} erreicht.

Plasmatemperatur- und -dichte werden nicht am Ort der Desorptionswolke gemessen, sondern an einer anderen Stelle in TEXTOR durch die thermische Heliumstrahldiagnostik [Smi05, Hin95]. Die gemessenen Parameter werden direkt übernommen, unter der Annahme, daß sie entlang der Magnetfeldflächen konstant sind und daß die Magnetfeldflächen außerhalb der LCFS keine Verschiebung nach der Niederfeldseite erfahren (Shafranov-Verschiebung).

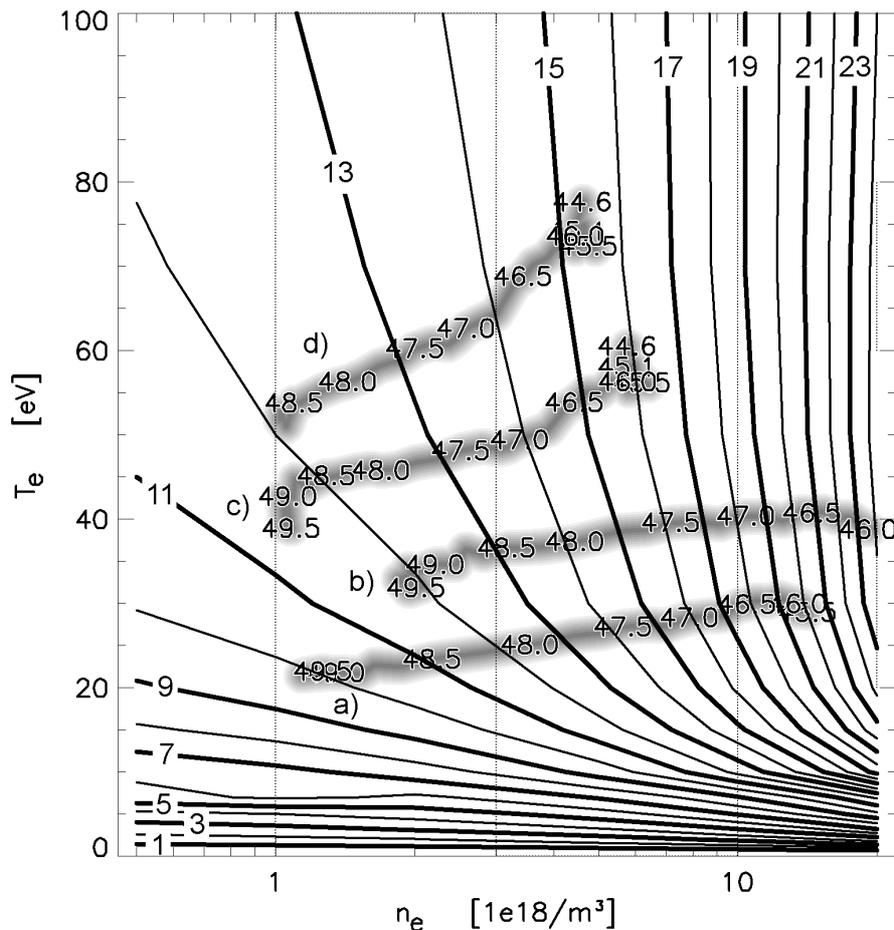


Abb. 4.1: S/XB (Konturlinien) als Funktion von Elektronendichte n_e und -temperatur T_e nach [ADAS]. Daruntergelegt sind vier radiale Profile von $T_e(r)$ und $n_e(r)$ für die verwendeten Plasmaentladungen (Kap. 6.1). Die Zahlen auf den Profilen geben die radiale Position [cm] an. a) Plasmotyp A (OH, $\bar{n}_e = 3.5$), b) Plasmotyp B1 (NI, $\bar{n}_e = 3.5$), c) Plasmotyp C (OH, $\bar{n}_e = 2.5$), d) Plasmotyp D (OH, $\bar{n}_e = 2.0$) – Dichte [\bar{n}_e] = 10^{19} m^{-3}

Die von der Wand desorbierten thermischen ($< 1 \text{ eV}$) Atome und Moleküle können einen kühlenden Einfluß auf das Plasma haben, der bei sehr hohen Flüssen berücksichtigt werden muß. Die ins Plasma freigesetzten Teilchen erzeugen direkt vor der Probenoberfläche einen atomaren Teilchenfluß von⁴ bis zu $5 \times 10^{20} \text{ s}^{-1}$. Dem gegenüber stehen der wärmezuführende Elektronenfluß aus dem Plasma entlang der Magnetfeldflächen. Der Elektronenfluß beträgt abhängig von der Ausdehnung der Emissionswolke und der Elektronenflußdichte einige 10^{18} s^{-1} . Der Teilchenfluß infolge der Laserdesorption wird daher bei großflächiger Desorption dickeren Schichten überwiegen. Die lokalen Plasmaparameter sollten demnach durch diesen lokalen Fluß beeinflusst sein, wie zum Beispiel in [Unt05] berichtet wurde: Dort wurde in einer vergleichbaren experimentellen Anordnung D_2 durch ein Loch in einem Graphitlimiter eingeblasen und auf diese Weise atomare Flüsse von $1 \times 10^{20} \text{ s}^{-1}$ bis $3 \times 10^{21} \text{ s}^{-1}$ erzeugt. Im Fall der hohen Einblasraten wurde in der Tat die lokale Ausbildung eines kalten, dichten Plasmas (10 eV , $8 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$) vor der Gaseinblasdüse beobachtet. Bei dem niedrigeren Gasfluß von $1 \times 10^{20} \text{ s}^{-1}$, wie er etwa bei der Desorption von 100 nm dicken a-C:H-Schichten entsteht, wurde

4 Desorption von 10^{15} bis 10^{17} H-Atomen innerhalb von 0.2 ms bis 0.5 ms

dagegen keine starke Veränderung der lokalen Temperatur und Dichte beobachtet, wie auch in [Bre03] berichtet wird. Im Falle hoher Teilchenflüsse durch die Desorption muß jedoch eine mögliche lokale Kühlung des Randschichtplasmas berücksichtigt werden. Falls dünne Schichten desorbiert werden, können die Plasmaparameter ohne Korrektur von der Heliumstrahldiagnostik übernommen werden.

Eine weiterer Punkt bei dieser Meßmethode ist die Frage nach der optischen Durchlässigkeit der emittierenden Teilchenwolke für das emittierte H_α -Licht und eventueller Reabsorption des emittierten Lichts. Dabei ist zu bedenken, daß der überwiegende Teil der Atome sich im Grundzustand befindet. Ein H_α -Photon wird beim Übergang eines Elektrons zwischen den Energieniveaus $n=2$ und $n=3$ des Wasserstoffatoms emittiert bzw. absorbiert. Das Atom muß also durch Elektronenstoß in den Zustand $n=2$ angeregt werden bzw. gerade ein H_α -Photon emittiert haben, um ein H_α -Photon absorbieren zu können. Die Reabsorption von H_α -Photonen durch angeregte H-Atome, kann daher vernachlässigt werden.

4.2 Quellen des atomaren Flusses

Mit Hilfe der passiven Spektroskopie auf dem H_α -Übergang des Wasserstoffatoms kann der Fluß an Wasserstoffatomen im Emissionsvolumen festgestellt werden. Die Freisetzung des Wasserstoffs erfolgt jedoch in Form von molekularem Wasserstoff und Kohlenwasserstoffmolekülen. Abhängig von den Zerfallskanälen dieser Moleküle kann daher nur ein Bruchteil der ursprünglich freigesetzten Atome beobachtet werden. Um die nicht beobachteten dunklen Atome zu berücksichtigen ist ein weiterer Umrechnungsfaktor Y_A nötig, der in Kapitel 4.2.1. eingeführt wird.

Bei den Laserdesorptionmessungen in dieser Arbeit sind zwei Fälle zu unterscheiden: Wird eine unbekannte Schicht desorbiert, so interessiert der gesamte Wasserstofffluß aus der Oberfläche. In Kapitel 6.2 werden Proben verwendet, die eine bekannte Menge an Deuterium freisetzen. Dort ist nur der Fluß an Deuterium von Interesse. Zusätzlich zum Deuterium D wird im diesem Fall eine schlecht kontrollierbare Menge an Wasserstoff H freigesetzt. Die Messung von I_{tot} erfaßt aufgrund der Breite der verwendeten Interferenzfilter (FWHM=3 nm) sowohl H_α - wie auch D_α -Licht, daher muß separat das H/D-Verhältnis des freigesetzten Wasserstoffs gemessen werden. Diese Korrekturen werden in 4.2.2. diskutiert.

4.2.1 Definition der inversen atomaren Ausbeute Y_A

Der nach Gleichung (4.10) spektroskopisch bestimmte atomare Fluß Φ_A^{spec} muß korrigiert werden, um den äquivalent-atomaren Fluß Φ_A^{inv} aus der Oberfläche zu erhalten, d.h. den Gesamtfluß an Atomen A, gleich in welcher Form (A , A_2 , CA_4 etc.):

$$\Phi_A^{inv} = \Phi_A^{spec} Y_A = \frac{4\pi I_{tot}}{h\nu} \frac{S}{XB} Y_A \quad (4.11)$$

Der Korrekturfaktor Y_A kann somit als Kehrwert der Atom-Ausbeute aus dem Molekülzerfall betrachtet werden. In [Bre03] und in vielen anderen Arbeiten wird stattdessen der Faktor S/XB durch einen Faktor $(S/XB)_{eff}$ ersetzt, der gerade diesen Korrekturfaktor Y_A beinhaltet, d.h.

$$\left(\frac{S}{XB}\right)_{eff} = \frac{S}{XB} Y_A \quad (4.12)$$

Dies ist praktikabel für die Freisetzung einer reinen Spezies. Bei der Laserdesorption wird jedoch ein Gemisch aus molekularem Wasserstoff und Kohlenwasserstoffen in das Plasma freigesetzt. S/XB bleibt konstant, während Y_A abhängt vom Anteil der verschiedenen molekularen Spezies i am gesamten Teilchenfluß sowie von der Anzahl η_i^A an Atomen A, die bei deren Zerfall freiwerden.

$$Y_A = \frac{\Phi_A^{inv}}{\Phi_A^{spec}} = \frac{\sum_i N_i^A \Phi_i}{\sum_i \eta_i^A \Phi_i} \quad (4.13)$$

N_i^A steht für die Zahl an Atomen A, die ein Molekül i enthält. Φ_i ist der Fluß an Molekülen i . Diese Molekularen Flüsse sind aus Voruntersuchungen an identischen bzw. vergleichbaren a-C:H-Schichten bekannt. Die einzelnen molekularen Zerfallsausbeuten η_i^A können der Literatur entnommen werden: Der Wert für $\eta_{H_2}^H = 1$ wurde in [Bre05] bestimmt. Er gilt für Elektronentemperaturen oberhalb 17 eV, das heißt, dann, wenn der Zerfall des H_2 -Moleküls verstärkt über die Bildung des Molekülions H_2^+ erfolgt. Ebenfalls aus Messungen [Bre07] bekannt ist der Wert für Methan $\eta_{CH_4}^H = 0.8$. Für Ethen wird analog zu Methan $\eta_{C_2H_4}^H = 0.8$ angenommen. Es wird deutlich, daß stark kohlenwasserstofffreisetzende Schichten ein höheres Y_A aufweisen, da H_2 effektiver in Wasserstoffatome zerfällt als Kohlenwasserstoffe dies tun. Das Wasserstoffinventar wird also unterschätzt, falls eine zu niedrige Kohlenwasserstofffreisetzung angenommen wird.

4.2.2 Unterscheiden von H und D

Bei einigen Messungen an TEXTOR muß zwischen verschiedenen Wasserstoffisotopen unterschieden werden. So wurden zum Test der optischen Beobachtung an TEXTOR (s. Kap. 6.2) Graphitproben in TEXTOR desorbiert, die mit einer deuterierten a-C:H-Schicht versehen waren. Die Menge an freigesetztem Deuterium sowie die zugehörige Speziesverteilung ist dann aus den Voruntersuchungen der Proben bekannt. Wasserstoff 1H jedoch wird nahezu ausschließlich (>95%) aus dem Graphitsubstrat freigesetzt, dessen Inventar infolge von Umwelteinflüssen und Herstellungsverfahren unsicher ist. Bei den präparierten Schichten weicht zum Beispiel die Speziesverteilung bei der Freisetzung aus dem Substrat ($H_2:HD:CH_4:C_2H_4=30:1:2:6$) leicht gegenüber der Freisetzung aus der Schicht ab ($D_2:HD:CD_4:C_2D_4=26:5:6:2$).

Im Falle nichtisotopenreiner Moleküle wird $\eta_i^{H,D}$ entsprechend der im Molekül vorkommenden Isotope gewichtet, so ist zum Beispiel $\eta_{HD}^H = \eta_{HD}^D = 0.5$ und $\eta_{CD_3H}^D = 0.6$. Aufgrund der Dominanz von molekularem Wasserstoff als atomare Quelle in beiden Fällen ist jedoch der Unterschied zwischen dem Y_A von H und D vernachlässigbar: Nach Gleichung (4.13) ergibt sich aus der beispielhaft angegebenen Speziesverteilung der präparierten a-C:H-Proben der Wert $Y_A=2.52$ bzw. $Y_A=2.55$. Als praktische Konsequenz wird für diese Schichten stets mit einem einzigen Wert Y_A gerechnet. Bei der Voruntersuchung der präparierten Proben in Laborversuchen (Kap. 6.4) wurde für die vollständige Desorption durch den Standardlaserpuls A ein mittlerer Wert von $Y_A=2.60 \pm 0.05$ gefunden. Schichten, die in TEXTOR deponiert (Kap. 6.5) wurden, wiesen bei Nachuntersuchungen $Y_A=2.22 \pm 0.02$ auf, was auf einen geringeren Kohlenwasserstoffanteil ($D_2 : CD_4 : C_2D_4 = 20 : 1 : 1$) unter den desorbierten Spezies zurückzuführen ist.

Die Unterscheidung von H und D bei den Messungen an den vorbeschichteten Graphitproben erfolgt mittels des H/D-Verhältnisses, das während der Desorption in TEXTOR bzw. bei der Charakterisierung der Proben gemessen wird. Die entsprechend erweiterte Gleichung (4.11) lautet nun

$$\Phi_D^{inv} = \frac{4\pi I_{tot}}{h\nu} \frac{S}{XB} \frac{Y_A}{1 + H/D} \quad (4.14)$$

H/D bezeichnet dabei das echte Mengenverhältnis der beiden Isotope und nicht, wie vielfach umgangssprachlich üblich, den Anteil des einen Isotops am Gesamtfluß, also $H/D \neq H/(D+H)$.

Bei der Probencharakterisierung im Laborexperiment wird H/D aus dem dort massenspektrometrisch gemessenen H_2/D_2 -Verhältnis übernommen. Dies ist eine gute Näherung, da molekularer Wasserstoff den Großteil (60%...80%) der freigesetzten Wasserstoffatome enthält. Die Einbeziehung weiterer Spezies in die Ermittlung von H/D ergibt kein genaueres Resultat, da hierfür die Unsicherheit der Zuordnung von Misch-Spezies (H und D) zu den Massenkanälen im Massenspektrum zu groß ist. Im Falle der TEXTOR-Messungen wird H/D aus dem Intensitätsverhältnis H_α/D_α : in der Emissionswolke übernommen. Dem liegt die Annahme zugrunde, daß infolge der dominierenden Freisetzung von Wasserstoffmolekülen und vergleichbarer Ratenkoeffizienten für H und D dieses Linienverhältnis eine gute Näherung darstellt.

4.3 EIRENE-Simulation des H_α -Emissionsleuchtens

Die Entwicklung der freigesetzten Teilchen im Plasma wurde mit dem Neutralteilchencode EIRENE [Rei84, EIREN] simuliert. Dieser berechnet mittels des Monte-Carlo-Verfahrens dreidimensional die Neutralteilchendichte in einem vorgegebenen⁵ Plasma, aus der über die

⁵ Die Eingabeparameter dieses Codes sind das Magnetfeld, die radialen n_e - und T_e -Profile, die freigesetzte Teilchenart und -menge sowie Anfangsort und -geschwindigkeitsverteilung (in Betrag und Richtung) der Teilchen.

elektronische Besetzung der Neutralteilchen die Lichtemission abgeleitet wird. Das Ergebnis ist die dreidimensionale Verteilung der Lichtemission, die entlang von Sehstrahlen integriert wird. Die räumliche Auflösung der durchgeführten Rechnungen (das Gitter im Plasma) beträgt 0.25 cm in radialer und in toroidaler Richtung, die Sehstrahlen haben ebenfalls radial und toroidal einen Abstand von 0.25 cm, durchqueren das Plasmagitter jedoch unter einem Winkel von ca. 5°.

Die durch die Integration entlang der Sehstrahlen erhaltenen zweidimensionalen Verteilungen der H_α -Emission kann direkt mit den experimentell gewonnenen Kamerabildern verglichen werden. Auf diese Weise ist es möglich abzuschätzen, welcher Anteil des Emissionsleuchtens I außerhalb des Sichtfeldes liegt. Diese Abschätzung fließt in Form der Sichtfeldkorrektur V in die Auswertungen mit ein:

$$V = \frac{I_{\text{gesamt}}}{I_{\text{in Sichtfeld}}} \quad (4.15)$$

$$\Phi_D^{inv} = \frac{4\pi I_{\text{tot}}}{h\nu} \frac{S}{XB} \frac{Y_A}{1 + H/D} \times V. \quad (4.16)$$

Die Resultate der EIRENE-Simulationen sind in Abb. 4.2 gezeigt, am Beispiel einer Freisetzung von 70% H_2 , 20% CH_4 und 10% atomaren Wasserstoffs in die Plasmen A und D (hohe Dichte und niedrige Dichte). Temperatur und Dichte dieser Plasmen werden im Kapitel 6.1 näher erläutert. In Abb. 4.2a bis f ist die normierte simulierte Emission über der radialen und toroidalen Richtung aufgetragen. In die simulierten Bilder des Emissionsleuchtens ist das Sichtfeld der Dalsa-Kamera eingezeichnet. Ein beträchtlicher Teil des Emissionsleuchtens liegt stets außerhalb dieses Sichtfeldes. Die jeweils sich ergebende Sichtfeldkorrektur $V = V_S$ ist in den Abbildungen angegeben. Welchen Effekt eine Vergrößerung des Sichtfelds hat, ist in Abb. 4.2g zu erkennen. Dort sind alle durchgeführten Simulationen aufgetragen, was einen guten allgemeinen Überblick über die Problematik der Sichtfeldgröße verschafft: Selbst das gesamte in das Simulationsvolumen hineingelegte Sichtfeld von 40 cm Breite in toroidaler Richtung und 20 cm Höhe in radialer Richtung erfährt lediglich 60% bis 80% des gesamten Emissionsleuchtens. Die Ursache ist die Ausdehnung der Teilchenwolke in toroidaler Richtung bei geringer Intensität (<5% des Maximums), wie in Abb. 4.2h zu sehen ist. Für diese Abbildung wurde das Emissionsleuchten nicht entlang von Sehstrahlen integriert, sondern rein in poloidaler und radialer Richtung. Anschließend wurde ein Fenster zentriert über das Emissionsleuchten gelegt und das Integral über die Emission innerhalb dieses Fensters über die Fensterbreite aufgetragen. Eine Sichtfeldkorrektur wird demnach immer notwendig sein.

Eine Veränderung der Sichtfeldkorrektur wird bewirkt durch die Änderung der Sichtfeldgröße, durch das Verschieben des Sichtfelds gegenüber der Emissionswolke, durch einen Wechsel der Plasmaparameter sowie durch eine geänderte freigesetzte Speziesverteilung. Beispiele für die einer Veränderung der Sichtfeldkorrektur durch diese Parameter zeigen die Abbildungen 4.3a bis d. Dort ist die Sichtfeldkorrektur jeweils als Funktion der radialen

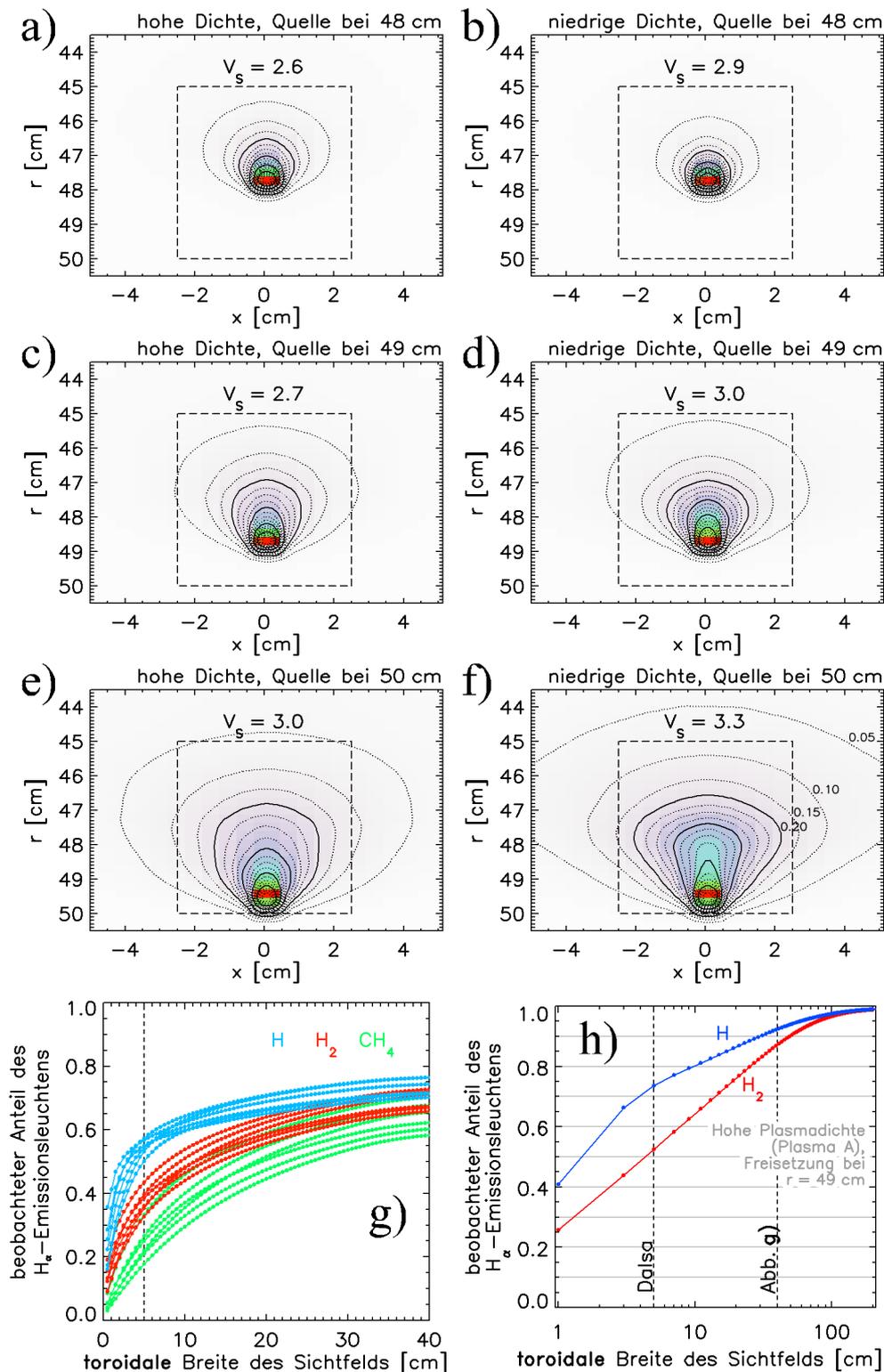


Abb. 4.2: a) bis f) EIRENE-Simulation des H_α -Emissionsleuchtens bei einer Freisetzung von 70% H_2 , 20% CH_4 und 10% H . Es werden die radiale Position der Quelle und die Plasmadichte variiert. Hohe Dichte ist Plasma A, niedrige Dichte ist Plasma D. Die Konturplots sind auf das jeweilige Maximum normiert, die Höhenlinien sind in Schritten von 5% und 20% eingezeichnet. Das angegebene V_s gilt für das eingezeichnete Sichtfeld der Dalsa-Kamera (gestricheltes Quadrat).

g) und h) Beobachtetes Emissionsleuchten in Abhängigkeit von der toroidalen Sichtfeldbreite. g) enthält alle simulierten Plasmen, Quellpositionen und emittierten Spezies. h) zeigt nur die Simulation aus c), jedoch wurde nicht entlang von Sehstrahlen integriert, sondern über die gesamte radiale und poloidale Breite.

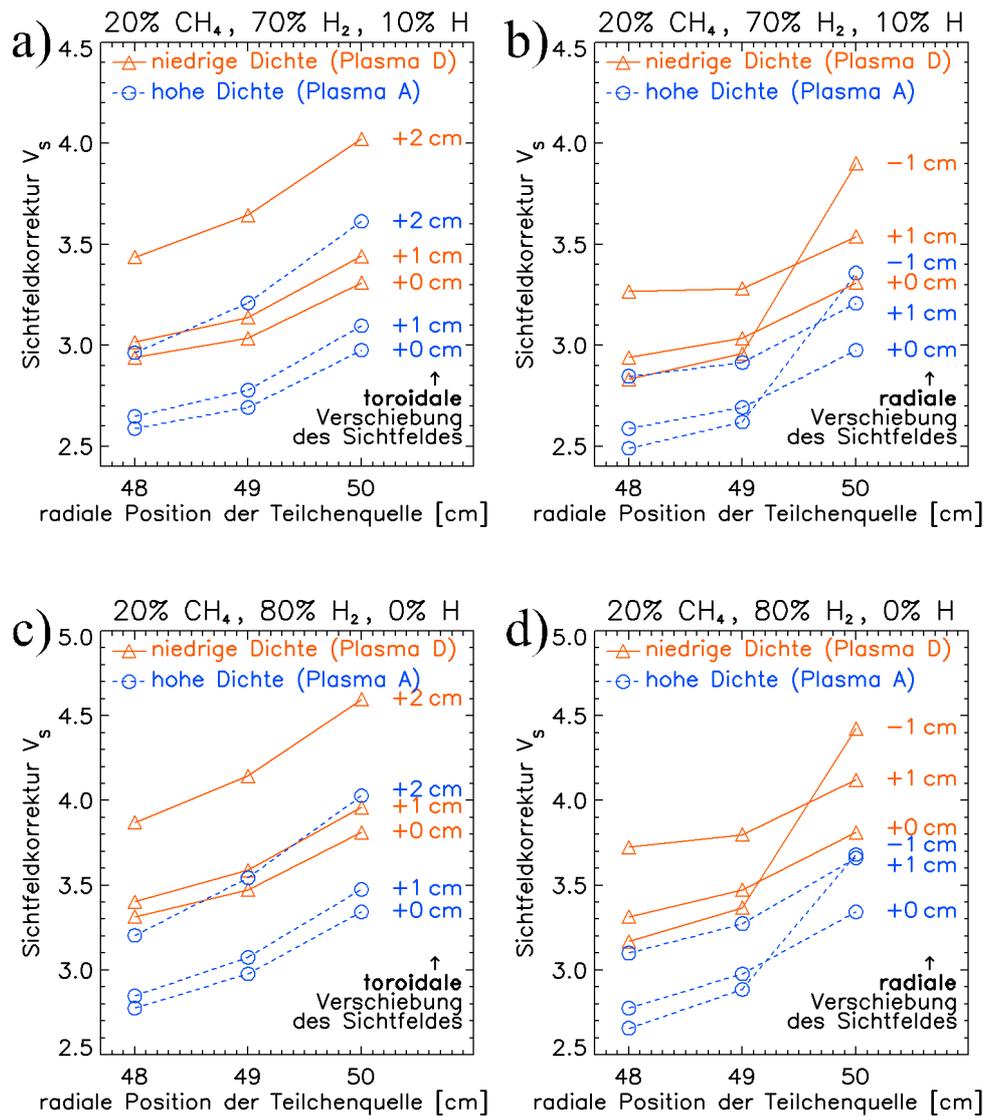


Abb. 4.3: Variation der Sichtfeldkorrektur V_s bei Verschiebung des Kamerasichtfeldes in radialer (b und d) und toroidaler (a und c) Richtung sowie verschiedener Zusammensetzung der desorbierten Teilchenarten. Das unverschobene Sichtfeld mißt 5x5 cm und ist zentriert auf 47.5 cm in radialer und auf die Teilchenquelle in toroidaler Richtung

Position der Teilchenquelle aufgetragen, und zwar für verschiedene Plasmen (A und D) und für die Verschiebung des Sichtfeldes gegenüber der Position (-2.5...2.5 cm, 45...50 cm). Die Speziesverteilung wird zwischen den Bildern (a, b) und (c, d) variiert: In den ersteren beiden gilt die gleiche Speziesverteilung wie in Abb. 4.2, in Abb. 4.3c und d wird dagegen kein atomarer Wasserstoff freigesetzt.

Wird das Sichtfeld in toroidaler Richtung verschoben, so ändert sich V zunächst kaum. Erst Verschiebungen um mehr als 1 cm bewirken Erhöhungen von V um mehr als 5%, die dann jedoch sehr schnell anwachsen und bei 2 cm Verschiebung bereits 20% erreichen können. Bei radialer Verschiebung des Sichtfeldes ist ein ähnliches Verhalten zu beobachten. Es ist vor allem zu beachten, daß der Ort der Freisetzung sich im Sichtfeld befinden muß.

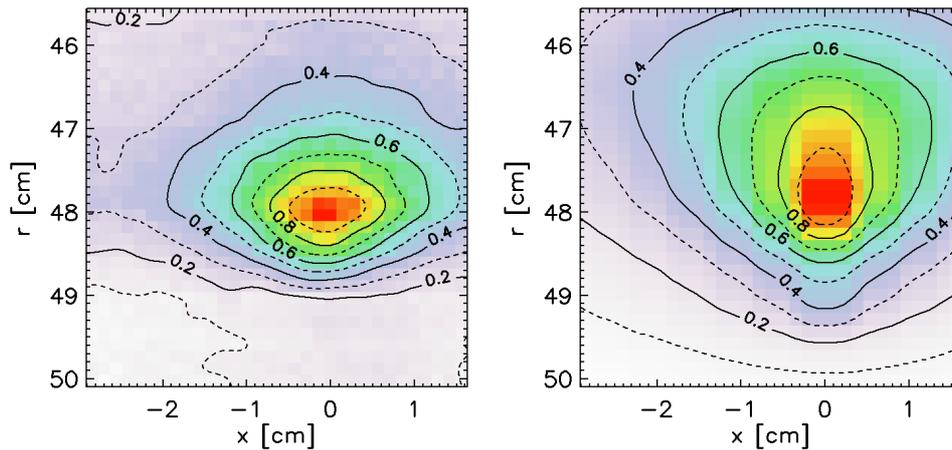


Abb. 4.4: Normiertes H_α -Emissionsleuchten des desorbierten Wasserstoffs: Messung (links) und EIRENE-Simulation (rechts), $V_S=4.6$ nach EIRENE

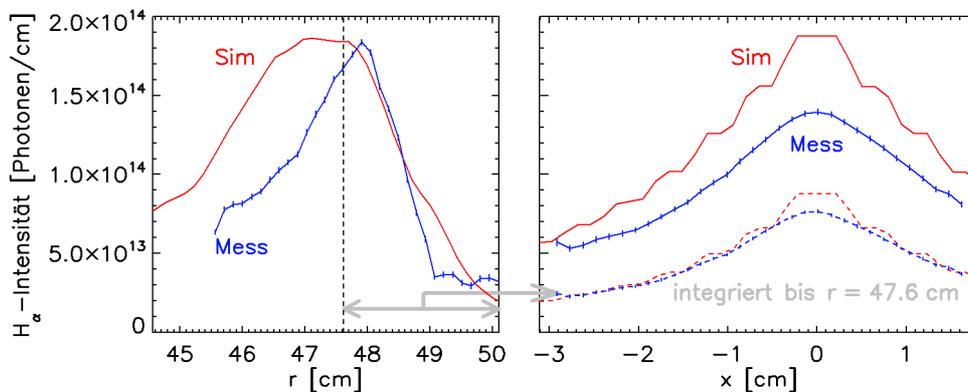


Abb. 4.5: Radiale und toroidale Profile aus den Bildern in Abb. 4.4, erhalten durch Integration über x bzw. r . Für die gestrichelten toroidalen Profile im rechten Diagramm wurde nur über den radialen Bereich $r = 47.6 \text{ cm} \dots 50.0 \text{ cm}$ integriert.

Der Vergleich mit einer gemessenen Emissionswolke offenbart jedoch Abweichungen zur Simulation. In Abb. 4.4 sind das gemessene (links) und das simulierte (rechts) H_α -Emissionsleuchten gegenübergestellt, die Abb. 4.5 zeigt die radialen und toroidalen Profile dieser Bilder (*Messung* und *Simulation*). Es wurde zu 100% H_2 -Freisetzung angenommen. Das Hinzufügen von CH_4 -Freisetzung zur Simulation würde die Gesamtintensität reduzieren, hätte auf die Form der Emissionswolke jedoch kaum Auswirkungen. Die zusätzliche Freisetzung von atomarem Wasserstoff würde ein sehr lokales und hohes Maximum der Emission bei $r=49.4 \text{ cm}$ hervorrufen. Dies würde zum Einen die simulierte Emission nicht an die gemessene annähern, zum Anderen ist die Freisetzung von atomarem Wasserstoff bei dieser Desorption nicht zu erwarten.

Zwischen der radialen Position der Teilchenquelle und dem Maximum der H_α -Emission stimmen Simulation und Messung jedoch sehr gut überein, die dortigen Abweichungen können auf die in der Simulation nicht berücksichtigte Limiteroberfläche bei $r=49.2 \text{ cm}$ zurückgeführt werden. Der Rückgang der Emission in Richtung Plasmazentrum, ab $r=47.6 \text{ cm}$, ist dagegen in der Messung sehr viel stärker zu beobachten als in der EIRENE-Simulation. Diese berechnet eine um bis zu 50% über der Messung liegende H_α -Emission. In

toroidaler Richtung zeigt das simulierte Emissionsleuchten ein schärfer ausgeprägtes Maximum. Der Ursache dieser Abweichungen ist vermutlich eine lokal abweichende Plasmadichte bzw. -temperatur. Die in dieser Arbeit verwendeten Temperatur- und Dichteprofile wurden nicht lokal am Ort der Desorption gemessen. Weiterhin war während der Desorption das Plasma um etwa 4 mm nach unten verschoben, d.h. in Richtung der Probenoberfläche. Dies wurde durch eine entsprechende Verschiebung der Temperatur- und Dichteprofile für die Simulation berücksichtigt, was jedoch lediglich eine Näherung darstellt.

Die Abweichung der Gesamtintensität in den diskutierten Bildern in Abb. 4.4 von 2.1×10^{16} (Messung) gegenüber 2.7×10^{16} (Simulation) wird als typische mögliche Abweichung der EIRENE-Simulationen angesehen. Für die Unsicherheit der Sichtfeldkorrektur wird aus diesem Grund ein Wert von $\pm 30\%$ angenommen. Diese Unsicherheit beruht zum größten Teil auf der Unsicherheit der lokalen Plasmaparameter am Ort des Emissionsleuchtens. Für die aus den Plasmaparametern mit EIRENE berechnete H_α -Emission wird dagegen kein zusätzlicher systematischer Fehler berücksichtigt.

5. Experimenteller Aufbau und Meßmethoden

5.1 Laser

Für die Experimente an TEXTOR und die Laboruntersuchungen kommt ein blitzlampen-gepumpter Nd:YAG-Laser der Firma LASAG zum Einsatz. Der FLS 306N liefert bei der Laserwellenlänge von 1064nm eine maximale Pulsleistung von 20kW und eine Maximalenergie pro Puls von 60J. Die Pulsdauer kann bei reduzierter Laserleistung bis zu 20ms betragen. Die zeitliche Laserpulsform entspricht bei Laserpulsen bis ca. 2ms Dauer einer Rechteckform, bei längeren Laserpulsen fällt die Laserleistung über den Puls hinweg ab (s. Abb. 5.1). Die Pulsform wird stets bei der Messung mit aufgezeichnet. Hierzu ist im Laser eine Photodiode in einer Ulbrichtkugel installiert, in die ein Teil des Strahls umgelenkt wird. Ein Schema des Lasers vom Resonator bis zur Lichtleiterkopplung zeigt Abb. 5.2. Für die Laborexperimente wurde der Laser über einen per RS232-Schnittstelle angeschlossenen PC und ein vom Hersteller zur Verfügung gestelltes Programm vollständig fernbedient. Wird der Laser an TEXTOR eingesetzt, so erfolgt das Öffnen und Schließen des Verschlusses (Shutter) sowie das Auslösen der Laserpulse durch Signale der TEXTOR-Steuerung. Die Energie- und Pulslängeneinstellungen erfolgen auch dann weiterhin über das PC-Programm.

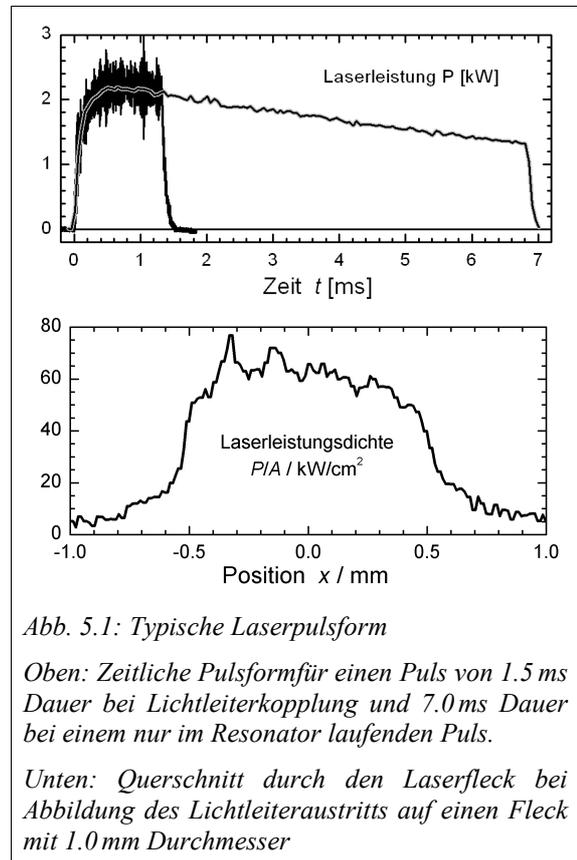


Abb. 5.1: Typische Laserpulsform

Oben: Zeitliche Pulsform für einen Puls von 1.5 ms Dauer bei Lichtleiterkopplung und 7.0 ms Dauer bei einem nur im Resonator laufenden Puls.

Unten: Querschnitt durch den Laserfleck bei Abbildung des Lichtleiteraustritts auf einen Fleck mit 1.0 mm Durchmesser

Das Lasersystem ist mit einem Justierlaser (HeNe, 632.8 nm) ausgestattet, auf den die Kavität des eigentlichen Nd:YAG-Lasers justiert ist. Er dient zur Justierung sämtlicher Laseroptiken bis hin zur Positionierung des Laserflecks auf der Probenoberfläche.

Der Laserstrahl wird über eine Strecke von 35 m durch einen 400 μm dicken Quarz-Lichtleiter („Optran WF“ von Ceramoptec, IR-optimiert, $NA=0.22$) zu dem jeweiligen Einsatzort geführt. Der Lichtleiter absorbiert auf dieser Strecke 0.5% der Laserenergie (0.66 dB/km). Die Lichtleiterenden sind auf eine Rauigkeit von $\lambda/10$ poliert. Die Einkopplung des 6 mm

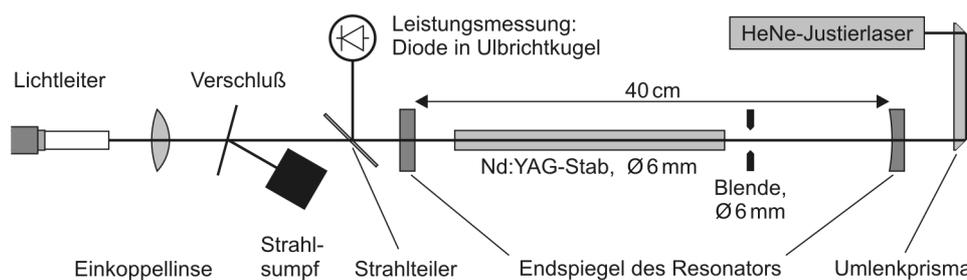


Abb. 5.2: Aufbau des Laserresonators

durchmessenden Laserstrahls in den Lichtleiter erfolgt mit einer chromatisch korrigierten Linse, die für Laser- und Justierlaserwellenlänge die gleiche Brennweite $f=60\text{ mm}$ hat. Damit kann die Lasereinkopplung zwischen den verschiedenen Lichtleitern innerhalb von Minuten gewechselt werden. Der Lichtleiter muß auf der Einkoppelseite auf 2 bis 3 cm Länge komplett von seinen Schutzhüllungen befreit werden, um eine Zerstörung durch an der Lichtleiterendfläche vorbeitretende Laserstrahlung zu vermeiden.

Die Auskoppelseite der Lichtleiter ist in ein 3 cm langes Aluminiumröhrchen eingelassen und durch Verkleben fixiert, was mechanische Spannungen im Lichtleiter verhindert. Solche Spannungen beeinflussen den Brechungsindex des Quarzglas und somit die Fähigkeit des Lichtleiters, das Licht zu führen, und können zum Versagen des Lichtleiters an der entsprechenden Stelle führen. Das Lichtleiterende ragt etwa 3 mm aus dem Röhrchen heraus. Die Austrittsfläche des Lichtleiters wird auf die zu desorbierende Probe abgebildet, wodurch ein kreisförmiger, scharf begrenzter, homogener Laserfleck erzeugt wird. Im Laboraufbau wird dazu ebenfalls eine für HeNe und Nd:YAG chromatisch korrigierte Linse verwendet ($f=80\text{ mm}$ bzw. $f=60\text{ mm}$). Die erzeugten 2.2 mm durchmessenden Laserflecke können mit einer Genauigkeit von 0.05 mm auf der Probe platziert werden. Die in TEXTOR erzeugten Laserflecke haben einen Durchmesser von 2.4 mm. Hier wird für die Abbildung des Lichtleiters eine nicht chromatisch korrigierte Linse ($f=310\text{ mm}$) verwendet, wodurch der Justierlaser einen unscharfen Laserfleck auf der Probe erzeugt. Die Positionierung des Laserflecks auf der Probe in TEXTOR erfolgt deshalb nur mit einer Genauigkeit von etwa $\pm 3\text{ mm}$ – die Reproduzierbarkeit dieser Einstellung ist dann jedoch auf $\pm 0.1\text{ mm}$ möglich.

Der Verlauf des Laserstrahls vom Laserresonator bis zur Probenoberfläche ist in Abb. 5.3 dargestellt. In TEXTOR fällt der Laserstrahl unter einem Winkel auf die Probe, der je nach Probengeometrie 7° oder 38° beträgt, wodurch ein elliptischer Fleck mit der kleinen Halbachse $d=2.4\text{ mm}$ erzeugt wird. Der offene Durchmesser der Linse beträgt 71 mm. Dies ergibt eine maximal nutzbare numerische Apertur des aus dem Lichtleiter austretenden Lichts $NA_{Linse}=0.10$ (voller Öffnungswinkel 11.5°). Die numerische Apertur des Lichtleiters beträgt dagegen $NA_{LWL}=0.22$. Aufgrund der Einkopplung der Laserstrahlung in den Lichtleiter unter einer relativ kleineren numerischen Apertur $NA_{Eink.}=0.050-0.075$ und der geringen Länge und krümmungsarmen Verlegung der Lichtleiterstrecke tritt das Licht unter nahezu der gleichen numerischen Apertur am Faserende aus. Träte das Laserlicht mit $NA_{Eink.} > NA_{Linse}$ aus dem Lichtleiter, so wäre ein Teil der Laserleistung nicht auf der Probenoberfläche nutzbar,

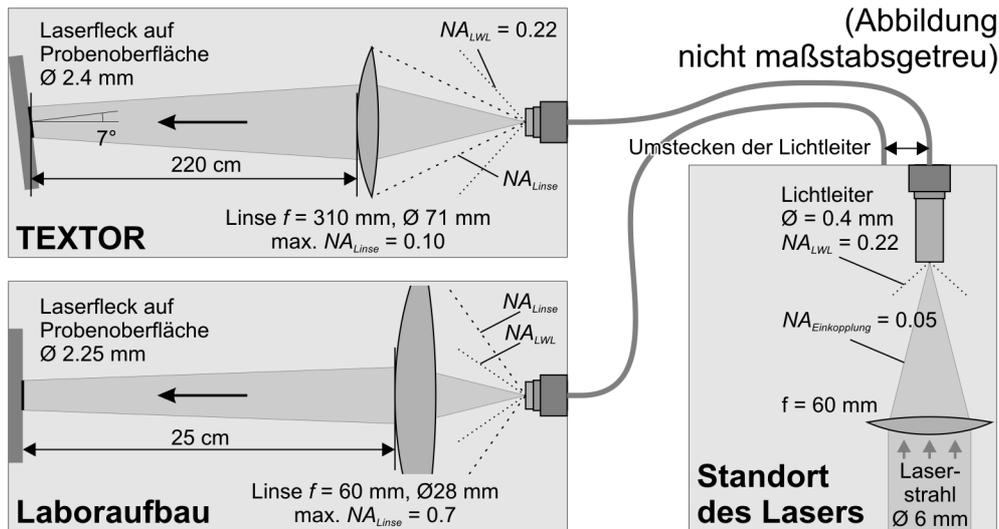


Abb. 5.3: LWL-Einkopplung am Laser, LWL-Auskopplung an TEXTOR und Laboraufbau

entsprechend dem Verhältnis von offener und bestrahlter Linsenfläche. Die durch die letzte Linse transmittierte Leistung wird jeweils vor den Messungen an TEXTOR mit einem pyroelektrischen Energiemeßkopf überprüft. Hierzu wird der Meßkopf ca. 1.0 m hinter der Linse in den Laserstrahl gestellt, wofür der laseroptische Aufbau an TEXTOR (s. Abb. 5.4, blaue Elemente) als Ganzes abgenommen werden muß. Die Transmission bis zu diesem Meßort liegt typischerweise bei 75% bis 85%. Werte unter 70% lassen auf eine Beschädigung eines der Lichtleiterenden schließen. Zur Fehlersuche genügt die visuelle Betrachtung des Faserendes mit Hilfe einer starken Lupe in reflektiertem Gegenlicht.

Für die Transmission des Vakuumfensters und die Absorption an der Probe wird angenommen, daß die Werte den im Laborexperiment gemessenen entsprechen. Dort wurden die Referenzmessungen für die Mengen an freigesetztem Deuterium durchgeführt. Pauschal kann die Transmission am TEXTOR-Fenster (Quarzglas) mit 92% angesetzt werden. Auf der Probenoberfläche stehen demnach 69% bis 78% der Ausgangsleistung des Lasers zu Verfügung.

5.2 Laboraufbau

Der Laboraufbau (Abb. 5.5) besteht aus einer Vakuumkammer mit einem Volumen von 85 Litern, in deren Zentrum die zu untersuchenden Proben an einem Manipulator befestigt sind. Dieser ermöglicht eine Drehung um die

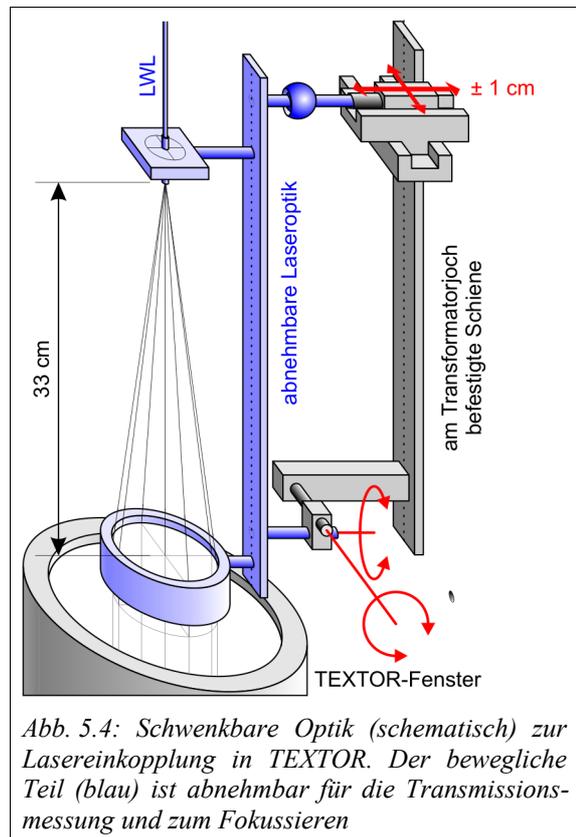


Abb. 5.4: Schwenkbare Optik (schematisch) zur Lasereinkopplung in TEXTOR. Der bewegliche Teil (blau) ist abnehmbar für die Transmissionsmessung und zum Fokussieren

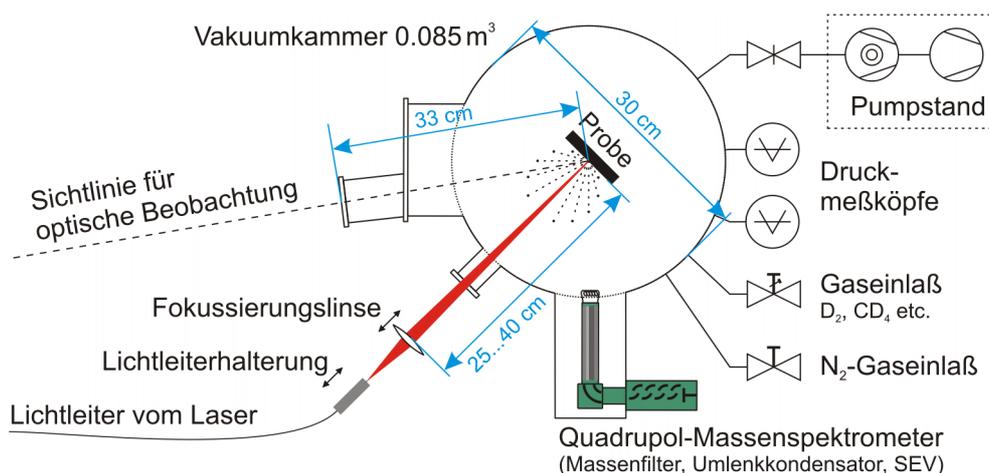


Abb. 5.5: Laboraufbau

senkrechte Achse sowie die Verschiebung der Probe in alle Raumrichtungen bei 1° bzw. 0.05 mm Genauigkeit. Der Basisdruck beträgt 10^{-6} bis 10^{-7} mbar. Mit einem Pumpstand bestehend aus Turbomolekular- und Vorpumpe wird dieser Druck innerhalb von 6 bis 48 Stunden erreicht. Das Laserlicht wird vom Austritt des Lichtleiters mit drei- bis sechsfacher Vergrößerung auf die Probe abgebildet. Die abbildende Linse ($f=80\text{ mm}$) ist chromatisch für 633 nm und 1064 nm korrigiert, wodurch die Laserflecke allein mit Hilfe des Justierlasers scharfgestellt und auf der Probe platziert werden können. Als Diagnostiken stehen ein Quadrupol-Massenspektrometer (QMS), dessen Signal durch einen Sekundärelektronenvervielfacher (SEV) verstärkt wird, ein Ionisationsvakuummeter und eine optische Sichtlinie zum Laserfleck zur Verfügung. An dieser kommen eine Kamera oder eine Photodiode zum Einsatz. Das Ionisationsvolumen des QMS hat zur Probenoberfläche einen Abstand von 15 cm , seine Sichtlinie hat einen Winkel von 45° zur Oberfläche. Das QMS-Signal wird direkt am SEV gemessen, die Einstellung des Massenfilters dagegen wird vom Steuergerät des QMS übernommen.

Die optische Beobachtung dient der visuellen Kontrolle des Laserflecks. Weiterhin wird auf dieser Sichtlinie die Wärmestrahlung aus dem Laserfleck mit einer schnellen CCD-Kamera bzw. mittels einer Photodiode gemessen. Die Laserwellenlänge wird durch Verwendung eines Notchfilters unterdrückt (10^{-6}).

Die anfallenden Daten von QMS-Signal, QMS-Massenfilter, Laserpulsform und Photodiode werden mit einem PC mit Meßwerterfassungskarte aufgezeichnet. Bis zu vier Kanäle können mit jeweils bis zu 50 MHz aufgezeichnet werden, bei maximal 16 MByte gemeinsamem Speicher für alle Kanäle. Der dynamische Bereich dieser Datenerfassung umfaßt 256 Stufen (8 bit).

5.2.1 Massenspektrometrische Messung der desorbierten Spezies

Die Identifizierung und quantitative Bestimmung der freigesetzten Gase erfolgt mittels des Massenspektrometers (QMS). Für die Kalibrierung wird in die von der Pumpe abgesperrte Vakuumkanter ein Gas (D_2 , CD_4 , C_2D_4) bis zu einem Druck von 10^{-5} bis 10^{-4} mbar

eingelassen. Ausgehend von einem Basisdruck von 10^{-6} mbar wird somit der Gesamtdruck in der Kammer von dem Partialdruck des eingelassenen Gases bestimmt. Dieser Druck wird mit dem Ionisationsvakuummeter gemessen. Die einzelnen Gase werden anhand spezifischer Massen quantifiziert: H_2 (Masse 2), HD (3), D_2 (4), CD_4 (20), C_2D_4 (32).

Für die Messung der desorbierten Gase werden bei abgesperrter Vakuumkammer in schneller Wiederholung (1 Hz) Massenspektren aufgezeichnet für die Massen 2 bis 50. Dies erfolgt in einem Zeitraum von 13 s vor dem Laserpuls bis 39 s danach. Für einige 100 ms nach der Desorption ist die Druckverteilung in der Vakuumkammer noch nicht wieder im Gleichgewicht. Daher werden diejenigen Meßwerte verworfen, die im Zeitraum 0.1 s vor bis 1 s nach dem Laserpuls aufgenommen wurden.

Die Zeitspuren der einzelnen Massenkanäle werden nun aus den Spektren extrahiert. Jedes dieser Massensignale wird über der Zeit aufgetragen und exponential gefittet, jeweils separat vor und nach dem Laserpuls, wie in Abb. 5.6 gezeigt wird. Der Meßwert für den Druckanstieg eines Massenkanals ist dann die Differenz der Funktionswerte der Fitfunktionen zum Zeitpunkt des Laserpulses. Im Beispiel von

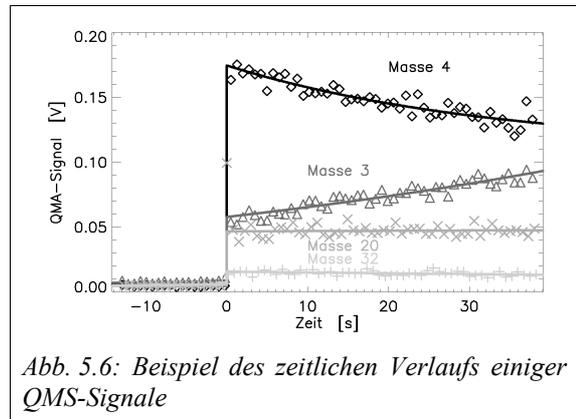


Abb. 5.6: Beispiel des zeitlichen Verlaufs einiger QMS-Signale

Abb. 5.6 stand der Massenfilter zum Zeitpunkt des Laserpulses ($t=0$ s) gerade bei Masse 20, dadurch ist dieser Punkt nicht während des Gleichgewichts gemessen worden und um einen Faktor 2 erhöht. Er liegt jedoch im Zeitraum $[-0.1$ s, 1.0 s] um den Laserpuls und wird bei der Auswertung nicht berücksichtigt. Die Notwendigkeit für den exponentiellen Fit an die gemessenen Daten wird anhand der Massen 3 (HD) und 4 (D_2) deutlich: Es findet anscheinend ein Isotopenaustausch zwischen den Wasserstoffisotopomeren H_2 und D_2 statt. Der exponentielle Fit beschreibt die Partialdruckverläufe hinreichend gut und erlaubt, die Partialdrücke zum Zeitpunkt der Freisetzung zu ermitteln.

Eine zeitliche Auflösung kann in diesem Modus durch eine Vielzahl wiederholter Messungen erreicht werden, bei denen die Pulslänge variiert wird. Dabei ist die Blitzlampenspannung des Lasers konstant zu halten, um einen gleichen zeitlichen Verlauf des Laserpulses zu gewährleisten – die mittlere Leistung des Laserpulses kann variieren, da seine zeitliche Form nur näherungsweise rechteckförmig ist. Hierbei ist zu beachten, daß flüchtige Spezies wie Atome und Radikale nicht detektiert werden können, da stets der Zustand ab 1 s nach der Desorption betrachtet wird.

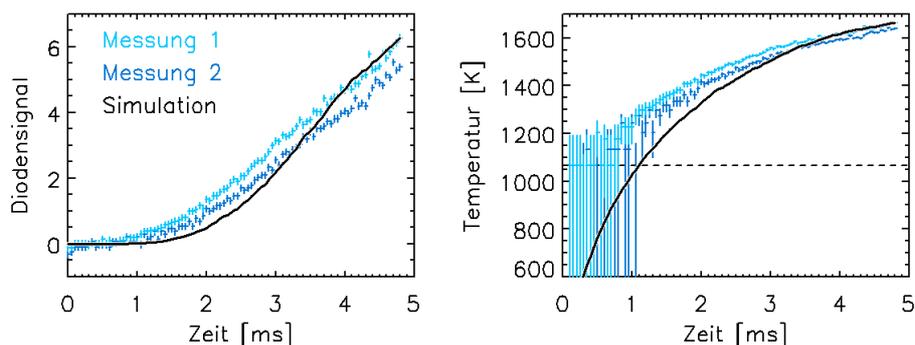


Abb. 5.7: Pyrometrische Temperaturmessung: Die zwei gemessenen Signale (links) wurden in eine Temperatur umgerechnet (rechts). Die kleinste meßbare Temperatur ist durch die gestrichelte Linie markiert. Zusätzlich ist rechts der simulierte Temperaturverlauf aufgetragen. Dieser wurde im nächsten Schritt in das Diodesignal umgerechnet und in das linke Diagramm mit eingezeichnet.

5.2.2 Temperaturmessung

Mittels einer Photodiode wird die Wärmestrahlung aus dem Brennfleck mit einer Zeitauflösung von 40 ns gemessen. Durch Verwenden eines Notchfilters wird das von der Probe reflektierte Laserlicht um den Faktor 10^{-6} unterdrückt. Die Kalibrierung erfolgt mit einem Hohlraumstrahler, der bis auf eine Temperatur von 1280 K aufgeheizt werden kann. Die Emissivität der Probenoberfläche wird als konstant $\varepsilon=0.8$ angenommen. Höhere Temperaturen als 1280 K werden durch eine Temperatursimulation extrapoliert. In diese Simulation fließen die angenommene konstante Emissivität sowie die spektrale Empfindlichkeit der Diode ein. Für die in der Sichtlinie befindlichen optischen Elemente (Quarz, BK7) wird ebenfalls konstante spektrale Transmission angenommen. Beispiele von Messungen (Datenpunkte) und die Simulation (Linie) sind in Abb. 5.7 gegenübergestellt. Die Empfindlichkeit der Diodenmessung genügt für Temperaturen oberhalb 1200 K, was für die Beschreibung der Desorptionsprozesse nicht ausreichend ist. Die Messung dient daher lediglich dazu, die Temperatursimulation bei hohen Temperaturen zu testen. Zwischen 1100 K und 1500 K zeigt sich eine Abweichung zwischen Messung und Simulation. Diese kann zum Einen auf Unzulänglichkeiten der Simulation hindeuten, wie die nichtberücksichtigte Temperaturabhängigkeiten der Wärmekapazität $c_p(T)$ und der Emissivität $\varepsilon(T)$. Zum Anderen treten auf der Oberfläche offenbar Hotspots durch sich ablösende Schichten auf (s. Kap. 3.6), die eine Verfälschung der pyrometrischen Temperaturmessung bewirken können.

Die in dieser Arbeit verwendeten Temperaturskalen basieren daher auf den Ergebnissen der Temperatursimulation, die in Kapitel 3 vorgestellt wurden. Die Rechnungen wurden ihrerseits mit theoretisch begründeten Temperaturschwellen abgeglichen, bei denen bestimmte beobachtbare Veränderungen in der Struktur der a-C:H-Schichten auftreten.

5.3 Aufbau an TEXTOR

5.3.1 TEXTOR

TEXTOR [Neu05] ist ein Tokamak mit kreisförmigem Plasmaquerschnitt. Der große Radius beträgt 175 cm, der kleine Plasmaradius 46 cm (letzte geschlossene Flußfläche, LCFS). Das Magnetfeld hat eine Stärke von maximal 2.8 T, der Plasmastrom kann bis zu 800 kA betragen. Die Dauer einer Plasmaentladung ist abhängig von der zugeführten Heizleistung und der Plasmadichte und beträgt ca. 4 Sekunden bei dichten, rein ohmschen Plasmen und bis zu ca. 10 Sekunden bei Zusatzheizung und niedriger Plasmadichte. Als Zusatzheizverfahren stehen Neutralteilcheninjektion (NBI, 4 MW), Ionen- (ICRH, 4 MW) und Elektronenzyklotronresonanzheizung (ECRH, 1 MW) zur Verfügung.

Die LCFS wird durch den toroidal umlaufenden ALT-II-Pumplimiter vorgegeben. Dieser Graphitlimiter umschließt nahezu vollständig den gesamten Torus unter einem poloidalen Winkel von 45° unterhalb der Mittelebene. Die Erste Wand des Tokamaks bei $r=55$ cm ist der Liner aus Inconel-625. Dieser kann für die Vakuumkonditionierung auf 570 K aufgeheizt werden und wird während des Betriebs auf einer Temperatur von 420 K gehalten. Zur Konditionierung dienen weiterhin regelmäßige Borierungen (etwa monatlich, PACVD einer Bor-Schicht auf der Ersten Wand) sowie Glimmentladungen. [Phi05] Durch die Borierung wird das Pumpvermögen der Wand erhöht, was eine bessere Kontrolle der Plasmadichte ermöglicht. Glimmentladungen dienen ebenfalls der Verbesserung des Pumpvermögens der Wand sowie der Reinigung und des Isotopenaustauschs des Wasserstoffs in der Wand.

5.3.2 Das Limiterschleusensystem und der Aufbau an TEXTOR

An TEXTOR existiert ein Vakuumschleusensystem, durch das Proben in den Tokamak eingeführt werden können, ohne das Vakuum in TEXTOR zu brechen. [Swe05] Die Limiter-schleuse 1 befindet sich 90° unterhalb der Mittelebene (Abb. 5.8), in Sektion 10/11 von TEXTOR. Das Einsetzen einer Probe und die Evakuierung des Schleusenvolumens auf TEXTOR-Druck nimmt mittels Kryopumpe 2 bis 3 Stunden in Anspruch. Es kommen Proben verschiedener Geometrien zum Einsatz, die bei den jeweiligen Messungen in Kapitel 6 näher beschrieben werden. Die eingesetzte Probe kann radial in TEXTOR verfahren werden um sie in der Nähe der LCFS zu platzieren. Eine Drehung der Probe um die senkrechte Achse ist ebenfalls möglich. Der aktuell eingestellte Drehwinkel wird mit einer Genauigkeit von $\pm 1^\circ$ durch ein Potentiometer erfaßt und als analoger Spannungswert von der TEXTOR-Datenerfassung aufgezeichnet. Dabei weist die Drehmechanik ein Spiel von etwa 4° auf, weshalb der eingestellte Drehwinkel mit Hilfe des Justierlasers überprüft werden muß.

Die Beobachtung des Emissionsleuchtens erfolgt von der Niederfeldseite, tangential zur Probenoberfläche, mit Hilfe von CCD-Kameras. In der Regel wird eine 32x32-Pixel-Kamera („Dalsa“) verwendet, die mit einer Bildfrequenz von 500 Hz betrieben wird. Die Bildauflösung beträgt dabei 1.5 mm/Pixel. Alternativ wird bei einigen Messungen eine

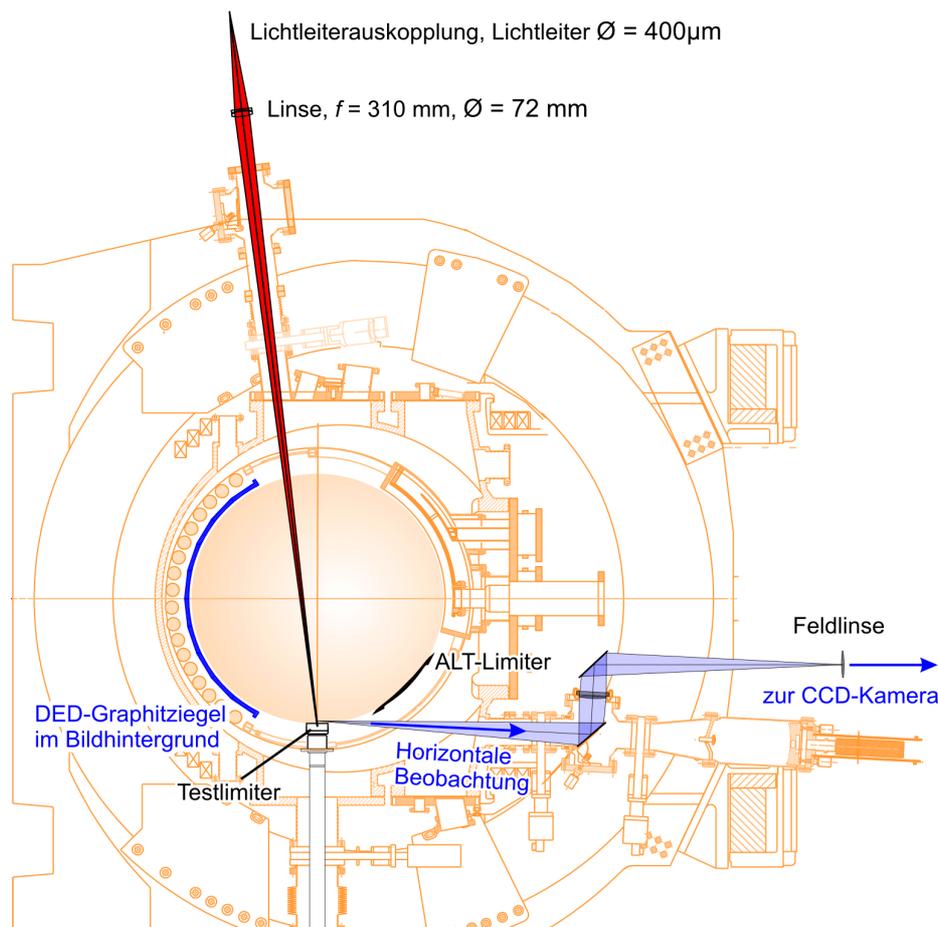


Abb. 5.8: Meßanordnung in TEXTOR

728x568-Pixel-Kamera mit Bildverstärker verwendet („Proxitronic“). Diese arbeitet mit einer festen Bildrate von 50 Hz, die Bildauflösung beträgt 0.22 mm/Pixel. In dem Strahlengang vor der CCD-Kamera wird ein Interferenzfilter plaziert, der schmalbandig (1.5 nm) für die Balmer- α -Linie des Wasserstoffs durchlässig ist. Bei Bedarf kann das Licht schrittweise bis auf 3×10^{-4} mittels Neutralsdichtefiltern abgeschwächt werden. Aus dem Sichtfeld dieses optischen Aufbaus wird ein Teil ausgekoppelt, um mit einem direktabbildenden Spektrometer [Bre02] radial aufgelöst (51 cm bis 42 cm) zu messen. Auf diese Weise wird das H_α/D_α -Verhältnis der Emissionswolke bestimmt. Auf den Eintrittsspalt des Spektrometers wird dabei ein in toroidaler Richtung ca. 5 mm breiter Streifen abgebildet, der mit einer Genauigkeit von ± 1 cm über dem desorbierten Fleck liegt. Die toroidale Ausdehnung der Emissionswolke im $(H, D)_\alpha$ -Licht beträgt dagegen 2 bis 5 cm. Daher werden aus dieser Messung im wesentlichen Abfallängen und Verhältnisse von Linienintensitäten gewonnen.

Eine weitere optische Sichtlinie nahezu senkrecht zur Probenoberfläche (7° zum Lot) wird für die Zuführung des Laserstrahls genutzt. Das Lichtleiterende, aus dem der Laserstrahl austritt, wird auf die Probenoberfläche abgebildet. Um den Ort des Laserflecks auf der Probe variieren zu können ist der gesamte laseroptische Aufbau schwenkbar befestigt. Die Schwenkachsen liegen parallel zur Mittelebene des Tokamaks und etwa 45° zur toroidalen bzw. poloidalen Richtung. Der gesamte schwenkbare Aufbau kann weiterhin von dem Vakuumfenster weggedreht werden, um den Strahlengang zur Limiterschleuse für andere Experimente

freizumachen und um einen besseren Zugang zu dem optischen Aufbau zu haben. Bei der Justierung ist zu beachten, daß der HeNe-Justierlaser mit 632.8 nm Wellenlänge anders abgebildet wird als der Nd-YAG-Laser mit seiner Wellenlänge von 1064 nm, da die verwendete Linse keine entsprechende chromatische Korrektur aufweist. Der Nd:YAG-Laser wird dann scharf auf die Probe (220 cm Abstand) abgebildet, wenn der Justierlaser auf 209 cm Entfernung ein scharfes Bild des Lichtleiters erzeugt. Um diese Strecke auszumessen und die Abbildung zu überprüfen muß der Aufbau an TEXTOR aus seiner Befestigung ausgehängt werden. Die Tiefenschärfe der erzielten Abbildung genügt, daß die Fokussierung nicht nachgeführt werden muß, sobald die Probe radial verfahren wird. Die Platzierung auf der Probe ist dann jedoch zu überprüfen, da der Laser die Probenoberfläche unter 7° bestrahlt.

5.3.3 Datenerfassung

Bei der Laserdesorption in TEXTOR sind seitens der Laserdesorption folgende vier Datenquellen aufzuzeichnen: Das Videosignal der Kamera zusammen mit dem FVAL-Signal („Frame valid“), das die gültigen Bilddaten innerhalb des Videosignals markiert sowie die Laserpulsform. Die Laserpulsform wird kalibriert im Laserresonator gemessen, ein weiteres Mal unkalibriert als Streulicht von der Lasereinkopplung in TEXTOR. Die dortige Messung dient der Kontrolle, ob ein Laserpuls zur Probenoberfläche gelangte.

Das Aufzeichnen der Daten erfolgt wie in den Labormessungen auf einem PC mit einer Meßwerterfassungskarte ($2^{22} = 4.2 \times 10^6$ Datenpunkte pro Kanal). Die Erfassungsrate richtet sich nach dem schnellsten Signal, also dem Videosignal. Der Pixeltakt der Kamera wird daher als Takt für die Datenerfassung gewählt.

Ein Beispiel für die zeitliche Steuerung der LDS-Messung an TEXTOR zeigt Abb. 5.9. Der Start der Datenerfassung erfolgt 0.1 s...0.2 s vor dem Laserpuls auf die Probe durch ein Triggersignal der TEXTOR-Steuerung (B). Dieses öffnet gleichzeitig den Verschuß des Lasers (C). Weiterhin generiert die TEXTOR-Steuerung von Beginn der Plasmaentladung an den Takt für die Bildfrequenz (A, 500 Hz...2500 Hz) und für das Auslösen des Laserpulses (D, 0.5 Hz...4 Hz). Die Kamera erhält ihren Arbeitstakt nicht von der TEXTOR-Steuerung, da diese die nötigen hohen Frequenzen (2 MHz für 500 Hz Bildrate) nicht geeignet erzeugen kann. Stattdessen wird ein separater Frequenzgenerator eingesetzt. Die Datenerfassung ist somit nicht synchronisiert mit der TEXTOR-Steuerung, die Bildfrequenz dagegen schon. Aufgrund dieses asynchronen Betriebs haben die einzelnen Bilder des aufgezeichneten Videosignals zueinander keinen konstanten Abstand im Datenstrom. Um die Bilder dort eindeutig zu identifizieren ist die Auswertung des FVAL-Signals zwingend erforderlich.

Die Laserpulse werden mit der fallenden Flanke des frei wählbaren Lasertaktes (D) ausgelöst. Der Laser benötigt ein bis zwei Pulse, bis die Laserleistung und Pulsform von Laserpuls zu Laserpuls stabil ist. Er feuert daher von Beginn der TEXTOR-Entladung bei nichtgeöffnetem Verschuß (E), diese Laserpulse werden vom Verschuß in einen Strahlsumpf reflektiert.

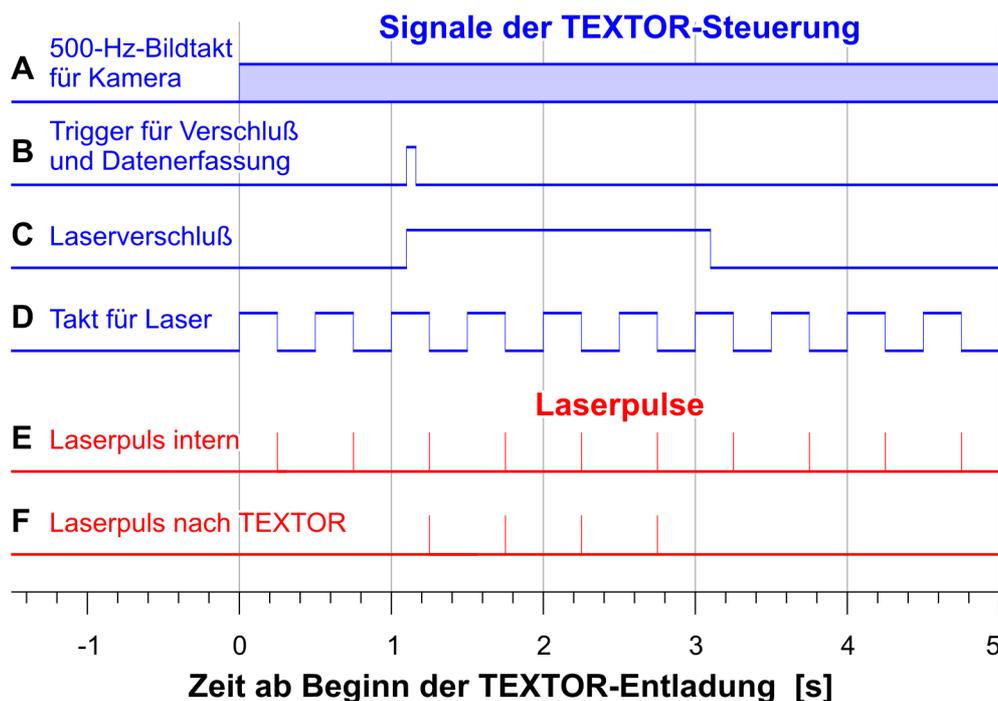


Abb. 5.9: Taktdiagramm einer typischen LDS-Messung

Die aufgezeichneten Daten werden auf einer lokalen Festplatte gespeichert und zur Auswertung von einer IDL-Routine eingelesen. Die Bilder, die zeitlich mit dem aufgezeichneten Laserpuls korrelieren, werden hinsichtlich des vorhandenen Emissionsleuchten ausgewertet, die restlichen dienen zur Ermittlung des Untergrunds und der zufälligen Meßunsicherheit.

5.3.4 Extrapolation von der beobachteten auf die gesamte Lichtemission

Das Leuchten der Emissionswolke wird mit einer CCD-Kamera aufgezeichnet. Das Sichtfeld der Kamera ist jedoch begrenzt und kann nie das gesamte Emissionsleuchten erfassen. Ein Beispiel für die gemessene H_{α} -Emission ist in Abb. 5.10 zu sehen. Das obere Bild stammt von der Proxitronic-Kamera und zeigt das allein durch den TEXTOR-Flansch begrenzte Sichtfeld („Sichtfeldrand“). In dieses Bild eingezeichnet ist das Sichtfeld der Dalsa-Kamera. Es ist zu erkennen, daß ein Teil der Lichtemission außerhalb des Blickfelds der Dalsa-Kamera liegt. Auch durch den TEXTOR-Flansch wird ein Teil des Emissionsleuchten verdeckt. Um den Anteil der Lichtemission abzuschätzen, der außerhalb des Proxitronic- bzw. des Dalsa-Sichtfelds liegt, wurden EIRENE-Rechnungen durchgeführt. Diese Simulationen werden im Kapitel 4.3 näher beschrieben. In dem Beispiel von Abb. 5.10a ergibt die Integration über das gesamte Sichtfeld der Proxitronic-Kamera nur 50% der gesamten EIRENE-simulierten Lichtemission bzw. eine 2.6mal größere Intensität als die Integration über das Sichtfeld der Dalsa-Kamera. Die Dalsa-Kamera ermöglicht im Gegenzug eine wesentlich höhere Zeitauflösung als die Proxitronic-Kamera und wurde aus diesem Grunde für alle weiteren Messungen verwendet. Die Dalsa-Bilder in Abb. 5.10b zeigen kaum Untergrundleuchten, was daran liegt, daß niedrige Intensitäten von der Datenerfassung nicht erfaßt wurden. Dies erfordert eine Korrektur der aufgezeichneten Daten, die im folgenden erläutert werden soll.

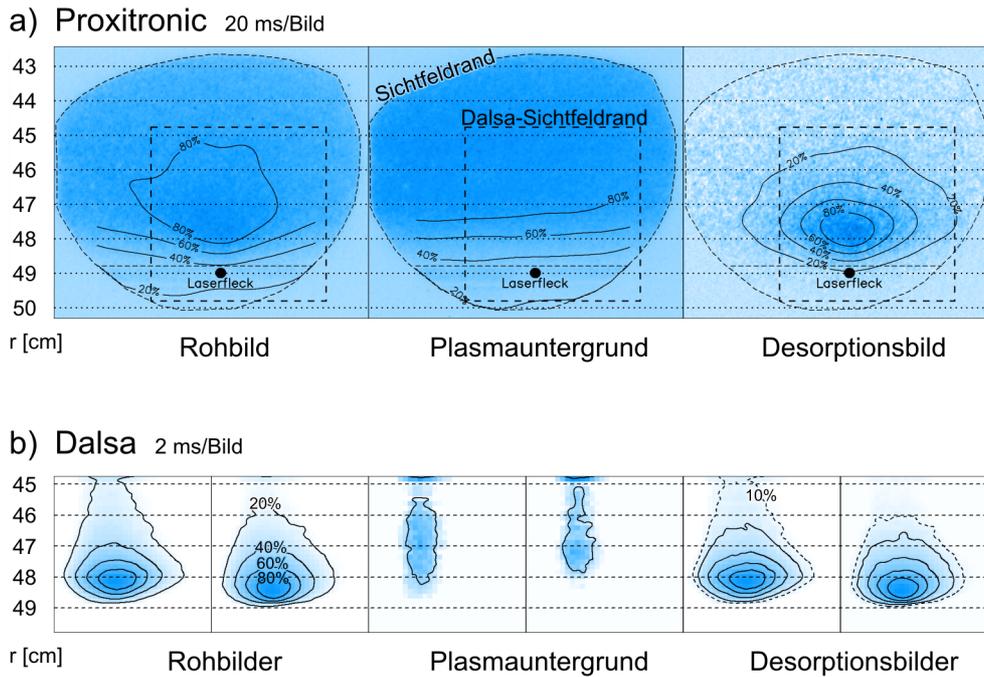


Abb. 5.10: a) Proxitronic-Bild des Emissionsleuchtens, b) Dalsa-Bilder (des auf zwei Kamerabilder verteilten Emissionsleuchtens) – in den Dalsa-Aufnahmen sind durch einen Offset in der Datenerfassung niedrige Intensitäten abgeschnitten

Um die Begrenzung des Sichtfelds zu berücksichtigen, wird die in Kapitel 4.3 eingeführte Sichtfeldkorrektur V um den Faktor V_O , der Offsetkorrektur, erweitert. V hat dann zwei voneinander unabhängigen Beiträge, das sind die bisherige reine Sichtfeldkorrektur V_S und die Offsetkorrektur V_O :

$$V = \frac{I_{tot}}{I_{meas}} = V_S \times V_O \quad (6.1)$$

Die Ursache der Offsetkorrektur ist in Abb. 5.10b in den Dalsa-Bildern zu erkennen. In Form einer Skizze ist dies ebenfalls in Abb. 5.11 an einem radialen Profil eines Dalsa-Bildes gezeigt. Die Daten der Dalsa-Kamera sind in einer großen Zahl von Messungen mit einem einseitigen Fehler behaftet, da das Kamerasignal einen Offset von $-(0.12 \pm 0.03)$ V aufweist, wohingegen die Datenerfassung in der Regel nur in einem Meßbereich von 0 V...2 V erfolgte. Der niedrigintensive Teil des Videosignals wurde in diesen Fällen abgeschnitten und das neue Minimalsignal auf Null verschoben. Die Dalsa-Bilder in Abb. 5.10b zeigen daher eine untere Grenze des tatsächlichen Emissionsleuchtens. Um einen Wert für die Obergrenze anzugeben, wird für den Bildbereich, in dem kein Plasmauntergrund erfaßt wurde, ein Nullniveau von -0.15V angenommen. Je nach Intensität des Emissionsleuchtens und Meßbereich der Datenerfassung beträgt die relative Unsicherheit der Offsetkorrektur 5% bis 50%.

Die Ermittlung von Sichtfeld- und Offsetkorrektur erfolgt weiterhin bildweise durch Vergleich mit einem entsprechenden EIRENE-Bild. Falls eine Offsetkorrektur erforderlich ist wird zunächst der angenommene Offset von dem EIRENE-Bild subtrahiert und die Bildpunkte, die dann einen Wert kleiner als Null haben, gleich Null gesetzt. Das so erzeugte

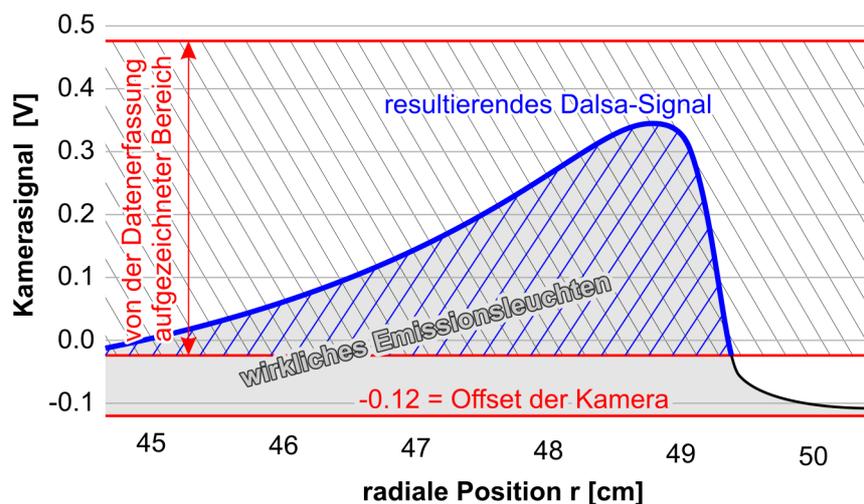


Abb. 5.11: Skizze zur Veranschaulichung der Offsetkorrektur

Bild wird dann wie gehabt auf das Kamerasichtfeld beschnitten und integriert, um I_{meas} zu erhalten. Die Unsicherheit der Offsetkorrektur wird ermittelt, indem diese Prozedur einmal mit dem minimalen und einmal mit dem maximalen angenommenen Offset durchgeführt wird. Dieser Meßfehler fließt zusammen mit dem bisherigen Meßfehler der reinen Sichtfeldkorrektur in die weitere Auswertung ein, hierzu werden beide mittels quadratischer Fehlerfortpflanzung zusammengefaßt.

5.3.5 Datenauswertung und Meßunsicherheit

Die Rohdaten liegen in Form von Kamerabildern vor (32 x 32 Pixel). Diese wurden mit einer Bildfrequenz von 500 Hz oder 2500 Hz über einen Zeitraum von 2.1 bzw. 0.6 s aufgezeichnet. Die höhere Bildfrequenz diente lediglich dazu, in einzelnen Messungen das Emissionsleuchten zeitlich aufzulösen. Bei der Bildfrequenz von 500 Hz sind jeweils ein oder zwei Bilder in dem Zeitintervall aufgenommen, in dem auch der Laser feuert. Diese Bilder werden im folgenden als *Desorptionenbilder* bezeichnet, unabhängig von ihrem Inhalt: Sie zeichnet zunächst allein die zeitliche Korrelation mit dem Laserpuls aus. Nur in den erwähnten Ausnahmefällen der höheren Bildfrequenz sind dies mehr als zwei Bilder. In diesen Fällen muß das im folgenden beschriebene Verfahren der Untergrundermittlung angepaßt werden. Zunächst soll jedoch der Standardfall erläutert werden.

Auf allen Kamerabildern liegt stets auch ein Untergrund, der nicht einem Weißen Rauschen entspricht, sondern zeitlich fluktuiert. Infolge der Bildrate von 500 Hz können Fluktuationen mit Frequenzen unterhalb 250 Hz identifiziert und weitgehend aus den Rohdaten entfernt werden. Die verbleibenden Fluktuationen bestimmen die zufällige Unsicherheit der Messung des Emissionsleuchtens.

Die Elektronik der Dalsa-Kamera ist für einen Pixeltakt von 8 MHz optimiert. Sie wurde jedoch zumeist mit einem Pixeltakt von 2 MHz betrieben, um die Datenerfassung besser auszunutzen. Die niedrigere Frequenz hat zur Folge, daß gerade und ungerade Bilder eine leicht abweichende Verstärkung in der Kamera erfahren. Es ist auch nur näherungsweise so,

daß genau die geraden und ungeraden Bilder voneinander abweichen: Die Frequenzanalyse der Videodaten (Abb. 5.12d,e) zeigt eine starke Komponente bei 230...240 Hz bei einer Bildrate von 500 Hz, was vermutlich genau dieser elektronischen Störung entspricht.

Der Untergrund wird bestimmt, indem die Störfrequenzen aus den Rohdaten herausgefiltert werden. Hierzu wird die Bildfolge pixelweise in zeitlicher Richtung geglättet. Um die Störung bei 235 Hz effektiv zu eliminieren, wird der Untergrund in den geraden und in den ungeraden Bildern separat ermittelt und abgezogen. Nach dem Untergrundabzug werden sie wieder gleichberechtigt behandelt. Das Vorgehen ist schematisch in Abb. 5.13 dargestellt. Zunächst wird, um das Emissionsleuchten zu eliminieren, linear interpoliert zwischen dem Bild vor und dem Bild nach den Desorptionsbildern (G und H). Anschließend wird der dreidimensionale Datensatz (radial, toriodal, zeitlich) in zeitlicher Richtung geglättet. Für diese Glättung wird ein Sawitzky-Golay-Filter (gewichtetes gleitendes Mittel) zweiter Ordnung eingesetzt. Die Breite des Filters wird minimal gewählt, d.h. je 2 Punkte links- und rechtsseitig, um den zeitlichen Fluktuationen bestmöglichst zu folgen. Diese Glättung bewirkt eine Hochpaßfilterung der Rohdaten mit einer Grenzfrequenz von ca. 90 Hz. Durch die getrennte Behandlung der geraden und ungeraden Bilder werden Frequenzen um 250 Hz vollständig unterdrückt. Die Breite dieser Bandsperre beträgt ca. 150 Hz, d.h. sie reicht bis hinunter zu einer Frequenz von 170 Hz.

Dieses Verfahren der Untergrundermittlung kann in Form eines Satzes von vier Formeln beschrieben werden, mit denen der Untergrund direkt aus den Rohdaten zu ermitteln ist. Dies sind Gleichung (5.5), die Formel für die Sawitzky-Golay-Mittelung, sowie drei Sonderfälle, die Gleichungen (6.2...6.4), die durch die Interpolation über die Desorptionsbilder entstehen.

Am Beispiel von Abb. 5.12 soll die Ermittlung des Untergrundes veranschaulicht werden. Im Teilbild a) sind die Bilddaten aus einer Plasmaentladung über die Zeit aufgetragen. Ein Datenpunkt in der Auftragung ist die über alle Pixel integrierte Intensität des Bildes zum Zeitpunkt t . Die Zeitpunkte der Laserpulse sind markiert als „Laserpuls Nr. 1...4“. Die Auftragung ist zweigeteilt: die obere Hälfte zeigt die Rohdaten, in der unteren Hälfte ist der ermittelte Untergrund von den Rohdaten subtrahiert worden, so daß die Datenpunkte um Null streuen. Dort sind die Datenpunkte der Desorptionsbilder hervorgehoben. Weiterhin ist die Standardabweichung der Datenpunkte von dem ermittelten Untergrund als horizontale Linie aufgetragen. Die dünneren Linien markieren Vielfache der Standardabweichung. Der Zeitraum, über den die Standardabweichung ermittelt wurde, wird durch die Länge dieser Linien angezeigt. Bei der Berechnung der Standardabweichung wurden die ohmsche (OH) und die NI-geheizte Phase der Entladung separat behandelt. Unter der zeitlichen Auftragung der Daten sind Histogramme abgebildet, die die Verteilung der untergrundbereinigten Daten zeigen (die Desorptionsbilder sind stets ausgelassen.) Dies dient zur Kontrolle des Untergrundabzugs: Ein guter Untergrundabzug hinterläßt normalverteilt streuende Daten, entlang der unterlegten theoretischen Glockenkurve. Dies ist der Fall, daher kann davon ausgegangen werden, daß die nichtzufälligen Fluktuationen bestmöglich abgezogen sind. Eine andere Sichtweise ermöglicht die Frequenzanalyse der Bilddaten. Dies erfolgt in den Bildern

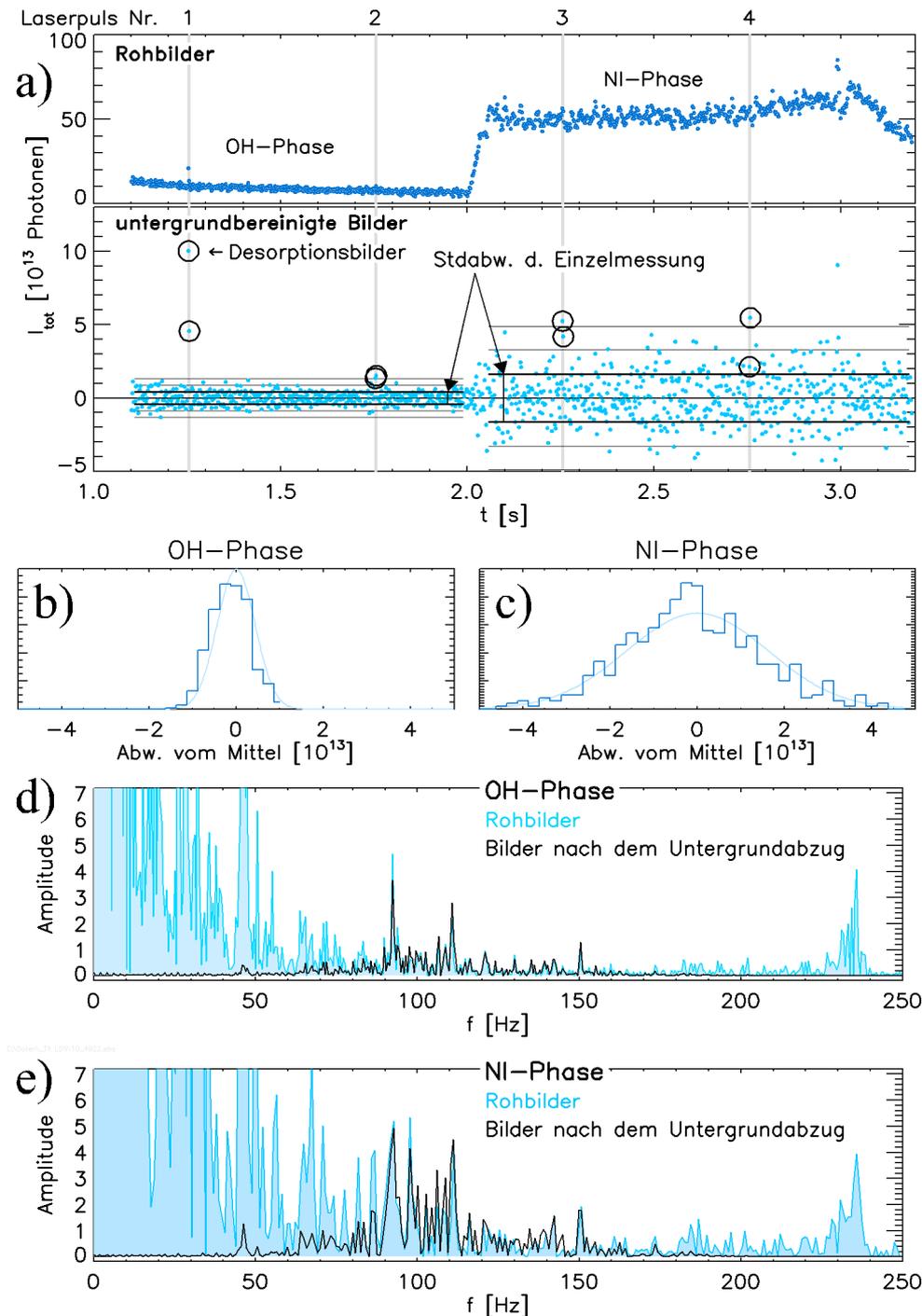
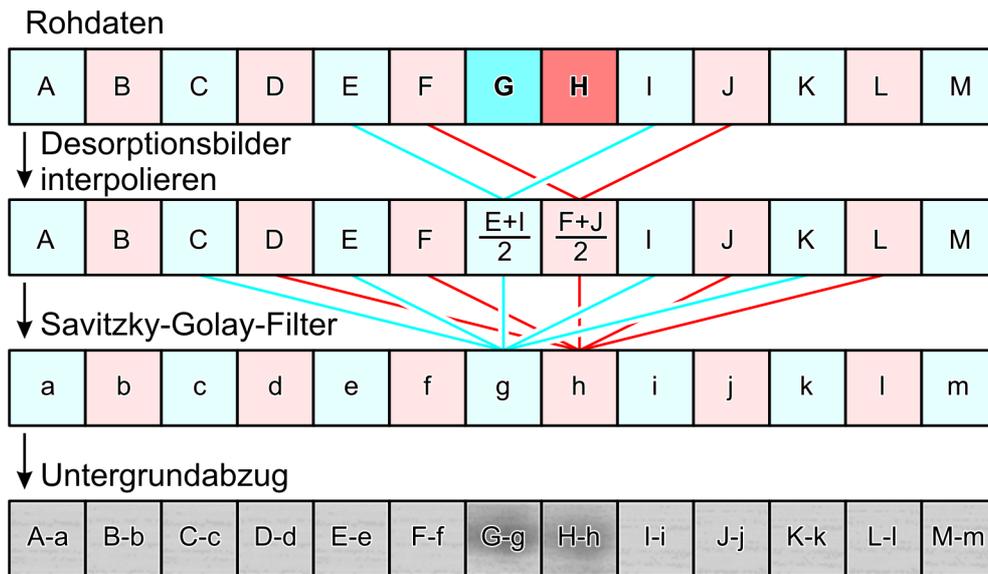


Abb. 5.12: a) bis c) Anwendungsbeispiel des in Abb. 3.6 beschriebenen Untergrundabzugs, d) und e) dazugehörige Frequenzspektren der OH- und der NI-Phase

d) und e). Die niedrigfrequenten Fluktuationen sind aus den untergrundbereinigten Daten verschwunden – dies war die Voraussetzung für die statistische Analyse der Daten mittels der Histogramme. Der höherfrequente Anteil der Rohdaten findet sich ebenfalls nicht in den untergrundbereinigten Daten wieder. Dieser Frequenzbereich >170 Hz war kritisch für die Laserdesorptionsmessung, da die Störungen dieser Frequenz nah an die „zeitlich lokale Frequenz“ des Emissionsleuchtens (2 Bilder, bzw. 250 Hz) herankommen, d.h. sie sind nicht ohne weiteres von einer zeitgleich aufleuchtenden Emissionswolke zu unterscheiden. Die



$$g = \frac{-6C + 41E + 41I - 6K}{70} \quad (5.2)$$

$$i = \frac{3E + 23I + 12K - 3M}{35} \quad (5.3)$$

$$k = \frac{-6E + 18I + 17K + 12M - 3O}{70} \quad (5.4)$$

$$m = \frac{-3I + 12K + 17M + 12O - 3Q}{35} \quad (5.5)$$

Abb. 5.13: Untergrundermittlung und -abzug. Die Balken stehen für die aufeinanderfolgenden Bilder, gerade und ungerade Bilder sind durch die verschiedenen Farben symbolisiert. Die Bildreihen setzen sich nach rechts fort, es folgen die Bilder O, P, Q, ...

verbliebenen Fluktuationen zeigen eine breite Verteilung um 100 Hz herum. Sie werden für die Ermittlung des zufälligen Meßfehlers herangezogen. Der zufällige Meßfehler der Datenpunkte ist die einfache Standardabweichung der Einzelmessung innerhalb der Phase (OH/NI), während der jeweils gemessen wurde. In der Regel gehören zu einer Messung zwei Datenpunkte (2 Kamerabilder pro Laserpuls), deren Einzelfehler sich quadratisch addieren. Dann werden darauf die systematischen Fehler linear addiert.

5.4 Die präparierten (vorbeschichteten) Proben

Zur Untersuchung der Desorptionsprozesse im Laboraufbau und zum Test der Meßmethode an TEXTOR wurden Graphitproben verwendet, die speziell zu diesem Zweck mit a-C:H-Schichten beschichtet wurden. Diese Schichten waren deuteriert, um zwischen Desorption aus der Schicht (Deuterium D) und Desorption aus dem Graphitsubstrat (Wasserstoff H) unterscheiden zu können.

Die einzelnen Probensubstrate wurden aus Graphit EK98 mit den Abmessungen 22 mm x 22 mm x 3 mm gefertigt. Einige der Graphitproben wurden vor dem Beschichten poliert (Rauigkeit $R_a = 30$ nm), da die aufgetragenen Schichten dann besser zu untersuchen sind. Die an TEXTOR eingesetzten Proben waren jedoch sämtlichst unpolierte Proben mit einer Rauigkeit von $R_a = 5$ μ m. Auf solchen Oberflächen ist die Absorption des Laserlichts reproduzierbarer und die Schichtenhaftung besser als auf den polierten Oberflächen. Vor dem Beschichten wurden sämtliche Proben im Ultraschallbad in Ethanol von Graphitstaub befreit und anschließend 12 Stunden bei 150°C ausgeheizt. Diese Reinigung ist Voraussetzung für das Haften der Schicht auf dem Substrat.

Das Beschichten erfolgte in einer CD₄ (80%) / D₂ (20%) Glimmentladung. Die Vorspannung der mit den Proben bestückten Elektrode betrug 300 V. Die beschichteten Proben wurden bis zu ihrem Einsatz unter Luftabschluß aufbewahrt, das sind Zeiträume zwischen einem und vier Monaten. Infolge der Probencharakterisierung sowie beim Bestücken und Einbauen des Probenhalters waren sie jedoch insgesamt für vier bis acht Stunden der Luft ausgesetzt.

Die so hergestellten Schichten wurden mit Hilfe der in Kapitel 2.3 beschriebenen Methoden bezüglich des Deuteriuminventars und der Deuteriumfreisetzung charakterisiert.

6. Test und Anwendung der Meßmethode in TEXTOR

In diesem Kapitel werden die Laserdesorptionsmessungen beschrieben, die an TEXTOR durchgeführt wurden. Hierfür werden die Voruntersuchungen zur laserinduzierten thermischen Desorption aus Kapitel 3 und die Betrachtungen zur H_α -Spektroskopie aus Kapitel 4 verknüpft. Die Bezeichnung der nun an TEXTOR eingesetzten Meßmethode lautet Laserdesorptionsspektroskopie, kurz LDS.

Im ersten Abschnitt werden die Eigenschaften der in TEXTOR verwendeten Plasmaentladungen beschrieben.

Im Abschnitt 6.2 wird die zeitliche Entwicklung des H_α -Emissionsleuchtens gezeigt, die als weiteres Indiz für die vollständige Freisetzung des Wasserstoffs in molekularer Form dient.

Während der LDS-Messungen an TEXTOR wurde ein Phänomen beobachtet, das eine Verfälschung der Messung bewirken kann: Wird das laserinduzierte Aufheizen der Oberfläche nach der eigentlichen Desorption, d.h. wenn die H_α -Emission abgeklungen ist, fortgesetzt, so wird bei sehr viel höherer Temperatur (2400 K) ein erneutes H_α -Leuchten über dem Desorptionsfleck beobachtet, unabhängig von der zuvor desorbierten Wasserstoffmenge. Damit wird eine maximal erlaubte Oberflächentemperatur vorgegeben. Dieser Effekt wird im Abschnitt 6.3 diskutiert.

Im Abschnitt 6.4 wird beschrieben, wie durch Desorption einer bekannten Wasserstoffmenge S/XB-Faktoren aus den spektroskopischen Beobachtungen ermittelt wurden, um sie mit Literaturwerten [ADAS] zu vergleichen. Hierfür wurden präparierte Proben in TEXTOR desorbiert. Die Proben sind mit deuterierten Kohlenwasserstoffschichten vorbeschichtet und wurden hinsichtlich ihres Deuteriuminventars charakterisiert. Dies ermöglicht die Freisetzung einer definierten Menge an Deuterium aus der Schicht in einer für die Laserdesorption charakteristischen Weise, d.h. als starken kurzzeitigen Gaspuls (10^{18} D-Atome / 1 ms) von D_2 -, CD_4 -, und C_2D_4 -Molekülen.

In Abschnitt 6.5 wird schließlich die ursprüngliche Motivation dieser Arbeit demonstriert, die In-situ-Messung des Wasserstoffinventars von a-C:H-Schichten, die in TEXTOR deponiert wurden, während einer Plasmaentladung. Anschließend wird in Nachuntersuchungen die Dicke der desorbierten Schicht bzw. ihre Wasserstoffvolumendichte bestimmt und mit der in TEXTOR gemessenen freigesetzten Wasserstoffmenge verglichen.

Im Abschnitt 6.6 wird die Empfindlichkeit der LDS anhand von Messungen in der Erosionszone eines Graphitlimiters gezeigt. Durch wiederholte Messung an einer Stelle konnte hier erstmals zeitaufgelöst gemessen werden, wie sich in der Erosionszone für die Dauer der Plasmaentladung ein Wasserstoffinventar aufbaut.

Im letzten Abschnitt werden als Übersicht alle Parameter und Konversionsfaktoren, die für die LDS-Messung beachtet werden müssen und bekannt sein müssen, aufgeführt und kurz beschrieben.

6.1 Die verwendeten Plasmaentladungen und deren Eigenschaften

Es wurden nur wenige verschiedene Plasmatypes verwendet, um die Vergleichbarkeit der Messungen in TEXTOR zu gewährleisten. Diese Plasmatypes werden im folgenden anhand eines Referenzplasmas charakterisiert. In den folgenden Abschnitten wird wiederholt auf die hier vorgestellten Plasmen und ihre Eigenschaften verwiesen werden.

In den Abbildungen zu den einzelnen Plasmen werden jeweils die radialen Elektronentemperatur- und -dichteprofile $(T_e, n_e)(r)$ gezeigt, die mit der Heliumstrahldiagnostik [Smi05] auf der Niederfeldseite von TEXTOR gemessen wurden. Von Bedeutung für die H_α -Emissionsspektroskopie ist lediglich die Plasmarandschicht, daher beschränken sich die Temperatur- und Dichteprofile auf diesen Bereich. Neben T_e und n_e enthalten die Abbildungen den aus [ADAS] entnommenen S/XB -Wert für das entsprechende (T_e, n_e) -Wertepaar sowie die Ionenflußdichte Γ_i , die sich aus dem (T_e, n_e) -Paar errechnet:

$$\Gamma_i = n_i v_i \quad (6.1)$$

Als Geschwindigkeit wird die wahrscheinlichste thermische Geschwindigkeit eingesetzt.

$$v_i = \sqrt{\frac{2kT_i}{m_i}} \quad (6.2)$$

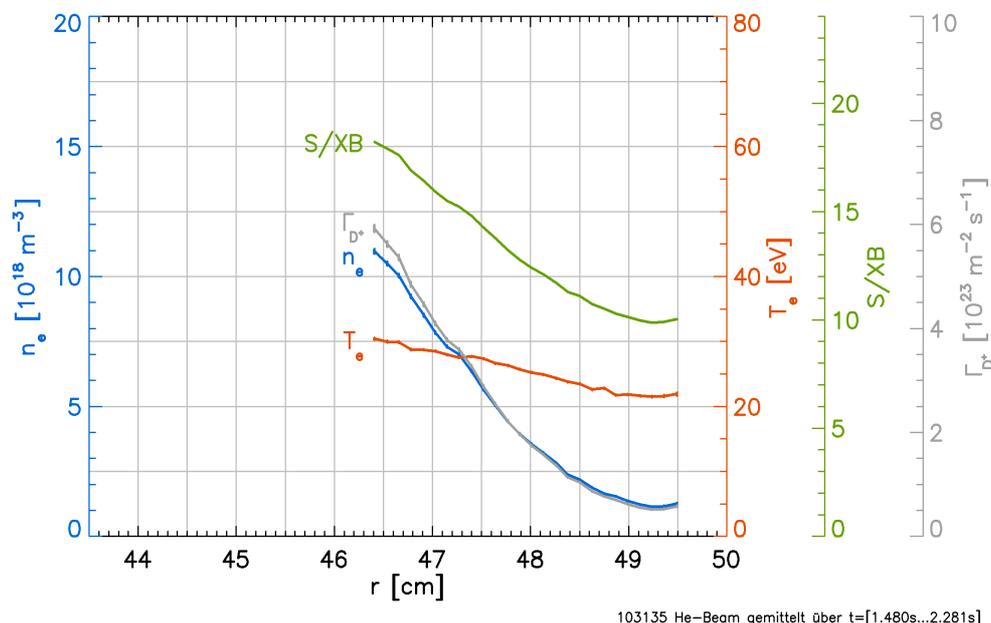
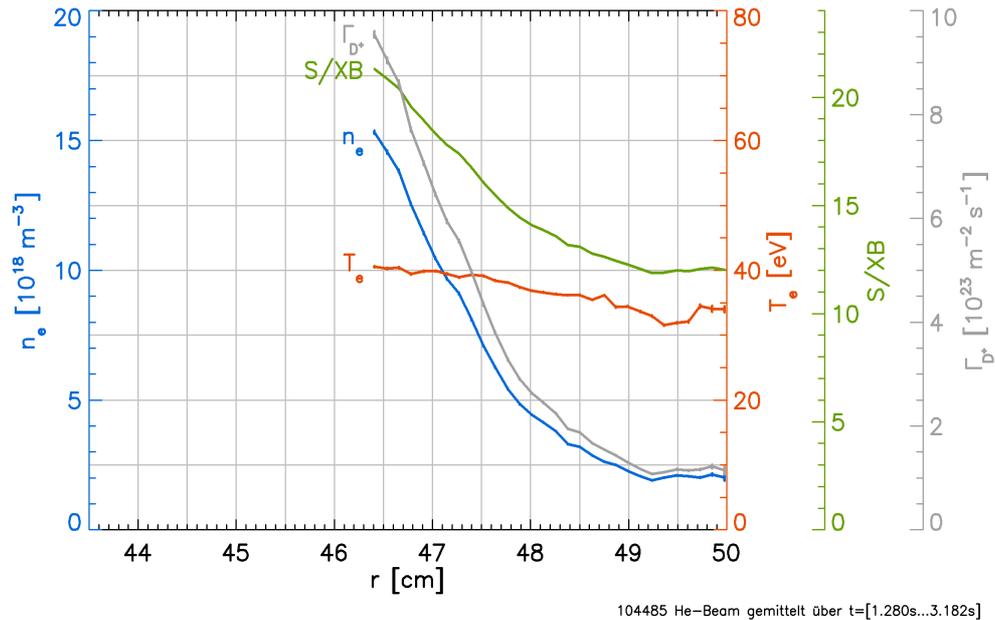
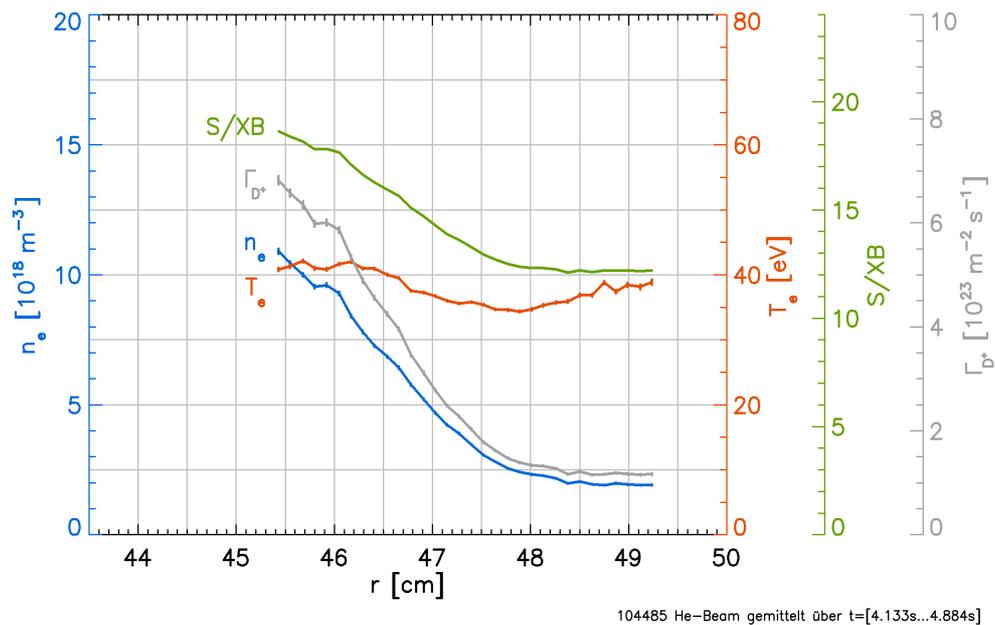


Abb. 6.1: Plasmaentladung A

Abb. 6.2: Plasmaentladung **B1**Abb. 6.3: Plasmaentladung **B2**

Weiterhin gelten die Annahmen, daß Ionen- und Elektronentemperatur und -dichte jeweils gleich sind, d.h. $n_i = n_e$ und $T_i = T_e$. Die Flußdichten werden jeweils für reine Deuteriumionenflüsse berechnet ($m_i = 2$ amu).

Die Plasmatypen werden mit den Buchstaben A bis D bezeichnet. Typ B wird unterteilt in B1, für den Zeitraum während der NI-Heizung, und B2, nach deren Ausschalten.

Das Plasma vom **Typ A** ist ein rein ohmsch geheiztes Plasma mit der liniengemittelten Dichte $\bar{n}_e = 3.5 \times 10^{19} \text{ m}^{-3}$. Das Plasma vom **Typ B** ist ein ohmsch geheiztes Plasma mit der liniengemittelten Dichte $\bar{n}_e = 3.5 \times 10^{19} \text{ m}^{-3}$, in dem zum Zeitpunkt $t = 2.0 \text{ s}$ die Neutralteilchenheizung eingeschaltet wird. **B1** ist der Zeitraum während der Zusatzheizung, **B2** der Zeitraum

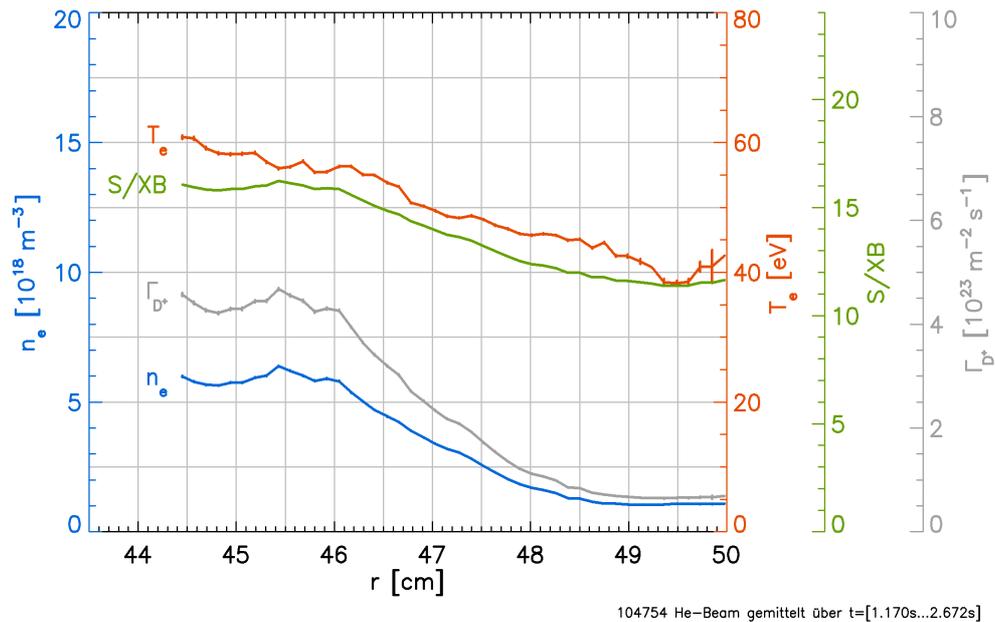


Abb. 6.4: Plasmaentladung C

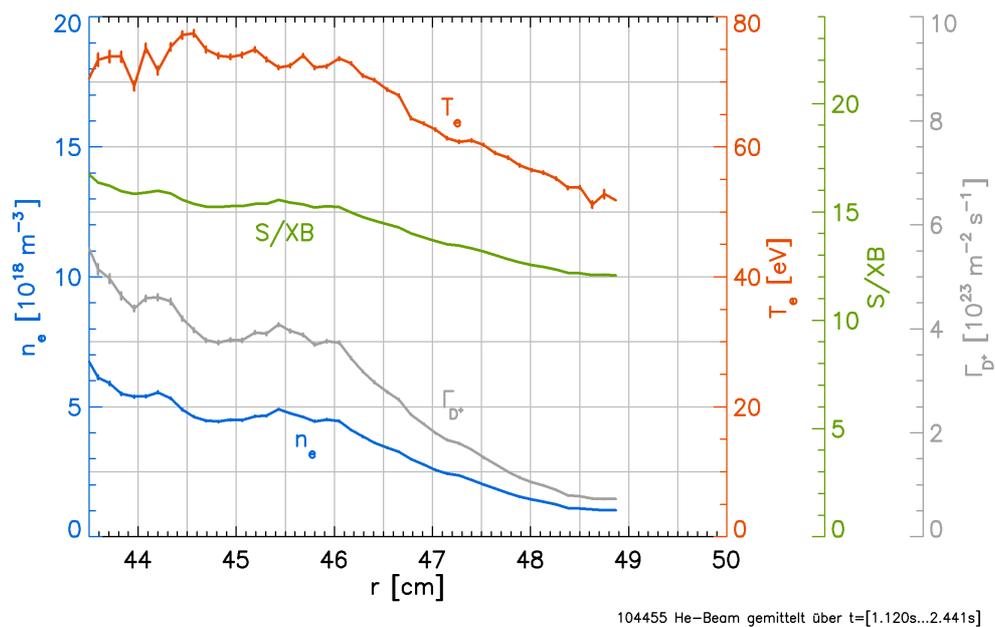


Abb. 6.5: Plasmaentladung D

zwischen dem Abschalten der Zusatzheizung und dem Ende der Plasmaentladung. Die Anfangsphase dieser Entladung ist identisch mit der Plasmaentladung vom Typ A. Das Plasma vom **Typ C** ist ein rein ohmsch geheiztes Plasma mit der liniengemittelten Dichte $\bar{n}_e = 2.5 \times 10^{19} \text{ m}^{-3}$. Das Plasma vom **Typ D** ist ein rein ohmsch geheiztes Plasma mit der liniengemittelten Dichte $\bar{n}_e = 2.0 \times 10^{19} \text{ m}^{-3}$.

6.2 Zeitliche Entwicklung des Emissionsleuchtens

Hier soll eine Messung diskutiert werden, bei der das Emissionsleuchten der freigesetzten Teilchen zeitlich aufgelöst wurde. Hierfür wurde die Kamera mit einer Bildrate von 2500 Hz betrieben. Auf diese Weise konnte Puls B (Pulsdauer 5.0 ms) zeitlich auf 12 Bildern aufgelöst werden. Die radiale Position des Desorptionsflecks war 48.0 cm, die Oberfläche ist um 10° geneigt, das Plasma war vom Typ C. Die Desorption erfolgte zu Beginn der ersten Entladung nach dem Einbau der Probe in TEXTOR. Vor dieser Exposition wurde die Probe nicht ausgeheizt, und während der gesamten Experimentierzeit war sie aktiv gekühlt, so daß eine Oberflächentemperatur zwischen 300 K und 350 K angenommen werden kann.

Die Wirkung dieses ersten Laserpulses ist in Abb. 6.6 zu sehen: Teilbild a) zeigt die Bilder des H_α -Emissionsleuchtens. Der Untergrund ist auf diesen Bildern bereits abgezogen. An jedem Bild ist die berechnete Temperatur vermerkt, die am Ende der Bildexpositionszeit im Zentrum des Laserflecks herrschte. In b) und c) sind die integrierten Intensitäten der einzelnen Bilder über die Zeit aufgetragen: Abbildung b) zeigt die Rohdaten und den ermittelten Untergrund, in c) wurden diese beiden subtrahiert. Der Zeitraum, in dem der Laser feuerte, ist jeweils grau unterlegt. Die Daten außerhalb dieses Zeitfensters dienen zur Ermittlung der zufälligen Meßunsicherheit der einzelnen Pixel. Im Teilbild d) sind die radialen Profile der Kamerabilder zu sehen. Für diese Profile wurde jeweils die Intensität über das gesamte Kamerabild in toroidaler Richtung (horizontal) integriert.

Auf den Kamerabildern 1 bis 9 sind Striche zu erkennen, die als leuchtende (glühende) Staubteilchen interpretiert werden können. Bild 1 und 2 zeigen ein Partikel direkt über dem Laserfleck, auf den späteren Bildern sind oberhalb der Wolke schnelle Partikel als leuchtende Striche zu erkennen. Die Länge der Leuchtspuren von 1 bis 2 cm pro Bild läßt auf eine typische Geschwindigkeit von 20 bis 50 m/s parallel zur Bildebene schließen. Eine geradlinige Extrapolation der Trajektorien der Staubteilchen weist auf den gemeinsamen Ursprung der Partikel im Laserfleck hin. Im Zentrum der Emissionswolke überstrahlt jedoch deren Licht sämtliche Spuren. Die Ursache für die starke Staubentwicklung bei der Desorption liegt in der fehlenden Reinigung der Graphitplatte (diese war lediglich eine Schutzverkleidung.) An einem anderen Tag wurde die erste Exposition der gleichen Platte vom Start der Plasmaentladung an aufgezeichnet. Auch dort wurde eine starke Staubentwicklung allein durch den ersten Plasmakontakt beobachtet.

Atomare Freisetzung von Wasserstoff

Bei hohen Oberflächentemperaturen ist mit atomarer Freisetzung von Wasserstoff zu rechnen [Bre02]: Zwischen 1100 K und 1700 K geht die Wasserstofffreisetzung kontinuierlich von molekularer zu atomarer Freisetzung über. Zu dem Zeitpunkt, an dem diese Temperaturen im Desorptionsfleck erreicht werden, ist jedoch nahezu der gesamte Wasserstoff aus der geheizten Oberfläche ausgegast, und der Anteil von atomar freigesetztem Wasserstoff ist vermutlich klein. Die Bestätigung dieser Annahme findet sich in Abb. 6.6d: Thermisch von

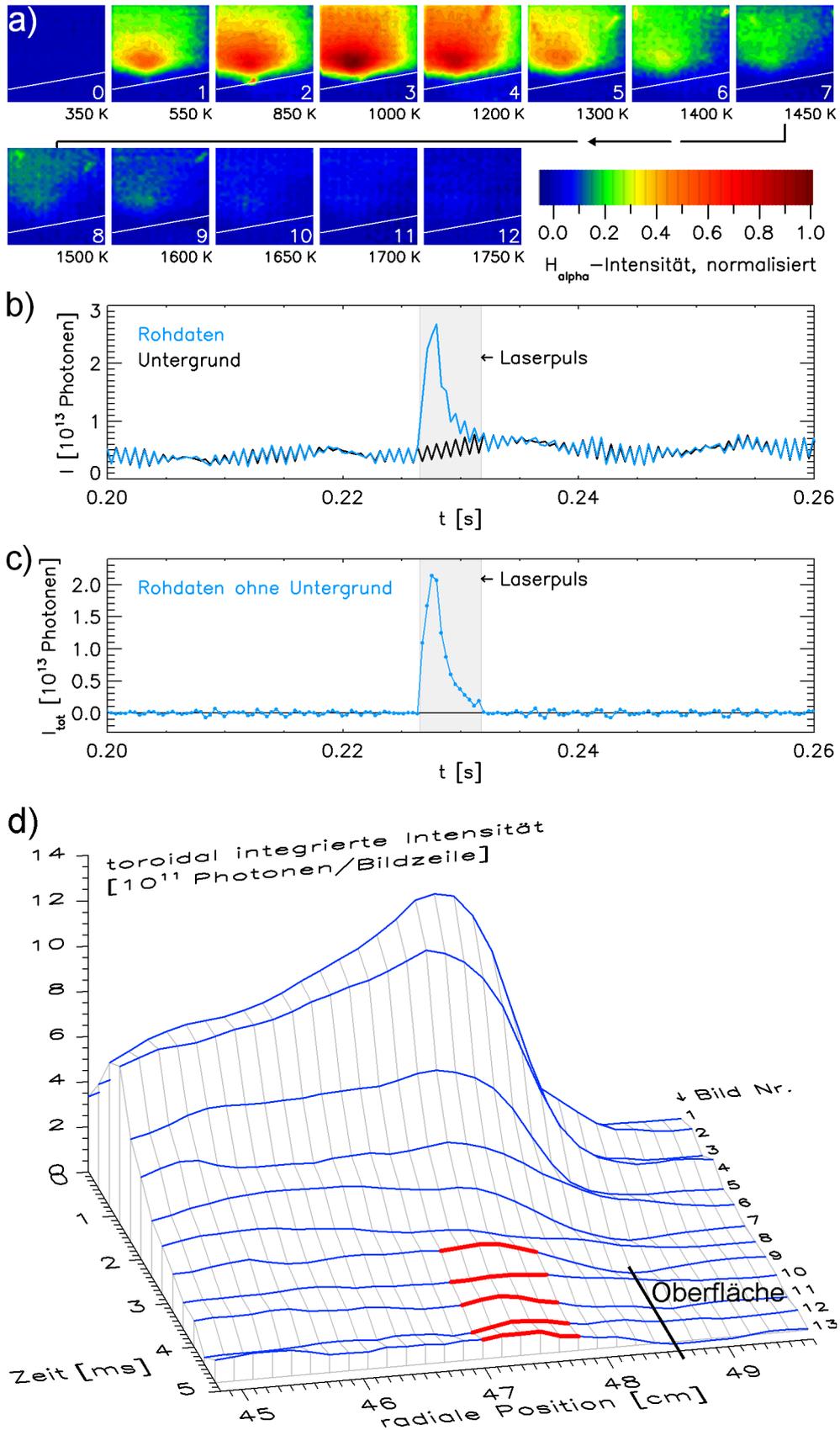


Abb. 6.6: Zeitaufgelöstes Emissionsleuchten: a) die einzelnen Kamerabilder (ohne Untergrund) mit den berechneten Temperaturen zum Ende des Bildes. b) und c) Integral der Kamerabilder als Funktion der Zeit. d) Absolutvergleich der radialen Profile der Desorptionsbilder. Rot hervorgehoben ist derjenige Bereich, der den möglichen Hinweis auf die atomare Freisetzung von Wasserstoff liefert.

der Oberfläche freigesetzte Wasserstoffatome weisen eine geringere Energie ($E < 0.2 \text{ eV}$) auf als Wasserstoffatome, die aus dem Zerfall von Wasserstoffmolekülen hervorgehen. Ihre Eindringtiefe ins Plasma ist daher geringer, wodurch bei atomarer Wasserstofffreisetzung das Emissionsleuchten näher an der Probenoberfläche beobachtet würde. Eine solche Verschiebung ist nicht zu erkennen, daher ist die atomare Freisetzung von Wasserstoff bei der Laserdesorption vernachlässigbar.

6.3 Überhitzen des Laserflecks

In diesem Abschnitt wird untersucht, welchen Effekt zu hohes Aufheizen des Desorptionsflecks auf die LDS-Messung hat. Dazu wurde die Leistung von Puls A um 20% erhöht und das Emissionsleuchten zeitlich aufgelöst gemessen (2500 Hz Bildrate). Der Anstieg der Oberflächentemperatur ist durch die höhere Heizleistung um 20% erhöht und erreicht 2400 K. Das Plasma war vom Typ C, und der Desorptionsfleck befindet sich an der radialen Position $r = 48.6 \text{ cm}$.

Abb. 6.7a zeigt die Bilder des H_α -Emissionsleuchtens während dreier Laserpulse. Im ersten und zweiten Bild des ersten Laserpulses wird das H_α -Leuchten beobachtet, das infolge der Desorption der Wasserstoff- und Kohlenwasserstoffmoleküle emittiert wird. Im dritten Bild ist die Desorption bereits abgeschlossen und die Oberflächenschicht **entleert**. Alle drei Laserpulse zeigen dieses Verhalten – das beim zweiten und dritten Laserpuls emittierte Emissionsleuchten ist allerdings aufgrund der gewählten Intensitätsskala und der Falschfarben nicht mehr zu erkennen. Bei jedem dieser drei Laserpulse steigt jedoch die H_α -Emission über dem Desorptionsfleck noch einmal an, sobald eine Temperatur von 2100...2400 K überschritten wurde. Das Maximum dieses Nachleuchtens liegt näher an der Oberfläche, was in den radialen Profilen der Bilder in Abb. 6.7b gut zu erkennen ist.

Dies deutet auf eine thermische atomare Wasserstoffquelle auf der Oberfläche hin. Die Temperatur im Desorptionsfleck ist hoch genug ($> 1700 \text{ K}$ [Bre01]), daß Wasserstoff von dort nur noch atomar freigesetzt würde. Eine Freisetzung aus der Oberfläche neben dem Desorptionsfleck kann daher ausgeschlossen werden. Dort würde eine plötzliche Temperaturerhöhung zunächst zur molekularen Freisetzung führen, und es würden die gleichen Stufen der Desorption durchlaufen wie zuvor innerhalb des Desorptionsflecks. Das Verschwinden des Emissionsleuchtens im dritten Bild deutet auf einen Prozeß hin, der erst bei einer Temperatur zwischen 2100 K und 2400 K einsetzt. Es stellt sich die Frage nach der Herkunft dieser Wasserstoffatome.

Der Wasserstofffluß aus dem Plasma in den Desorptionsfleck und die anschließende Re-emission thermischer Wasserstoffatome ist nicht die Ursache für das zusätzliche Emissionsleuchten. Eine Abschätzung des Wasserstoffflusses im Desorptionsbild Nr. 4 in Abb. 6.7a: Von Puls zu Puls (die untereinanderstehenden Bilder) ist das H_α -Leuchten näherungsweise konstant, daher kann der Mittelwert gebildet werden. Im Sichtfeld werden

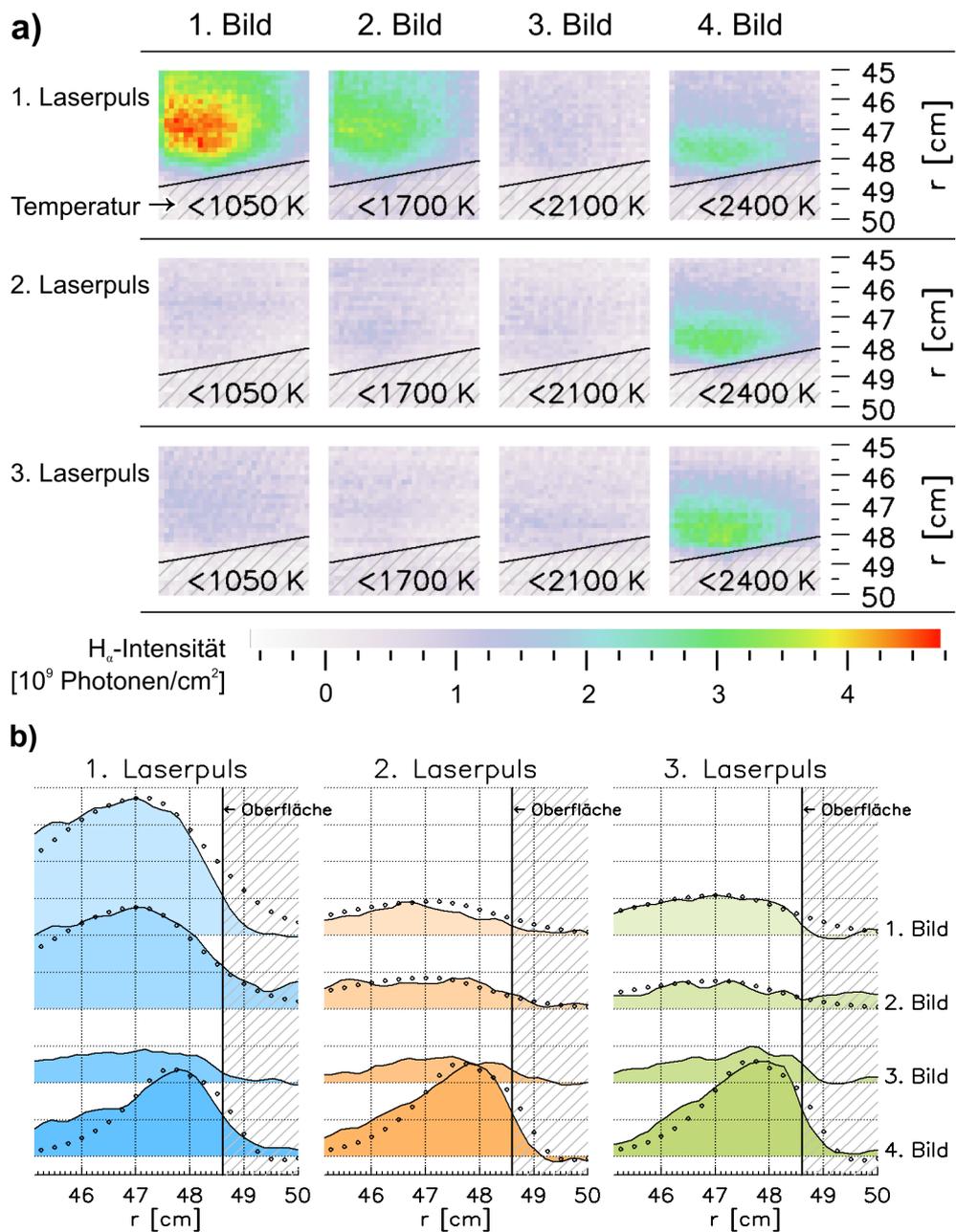


Abb. 6.7: Neuerlicher Anstieg der H_α-Emission bei hoher Oberflächentemperatur. Die überlagerte Schraffur zeigt die Position der Graphitprobe: a) Kamerabilder, 0,4 ms pro Bild, für jedes Bild ist die Maximaltemperatur im Laserfleck angegeben, b) radiale Profile der Kamerabilder [willk. Einh]. Gepunktet eingezeichnet sind die Profile aus EIRENE-Simulationen, diese sind normiert auf das Maximum des jeweiligen gemessenen Profils.

$(6.0 \pm 0.2) \times 10^{12}$ Photonen emittiert, die Sichtfeldkorrektur beträgt $V = 3.0 \pm 0.9$. Als Wert für S/XB wird 12.4 ± 0.5 verwendet. Der Laserpuls ist nach (0.25 ± 0.02) ms ab dem Beginn der Bildbelichtung zu Ende. Für die Abschätzung des Mindestflusses wird angenommen, daß sich das gemessene Emissionsleuchten auf diese 0,25 ms verteilt. Daraus resultiert eine Untergrenze für den Fluß an Wasserstoffatomen von der Oberfläche von $(9 \pm 3) \times 10^{17} \text{ s}^{-1}$ aus dem 5 mm² großen Desorptionsfleck. Die Mindestflußdichte aus der Oberfläche ist $(1.8 \pm 0.6) \times 10^{23} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$.

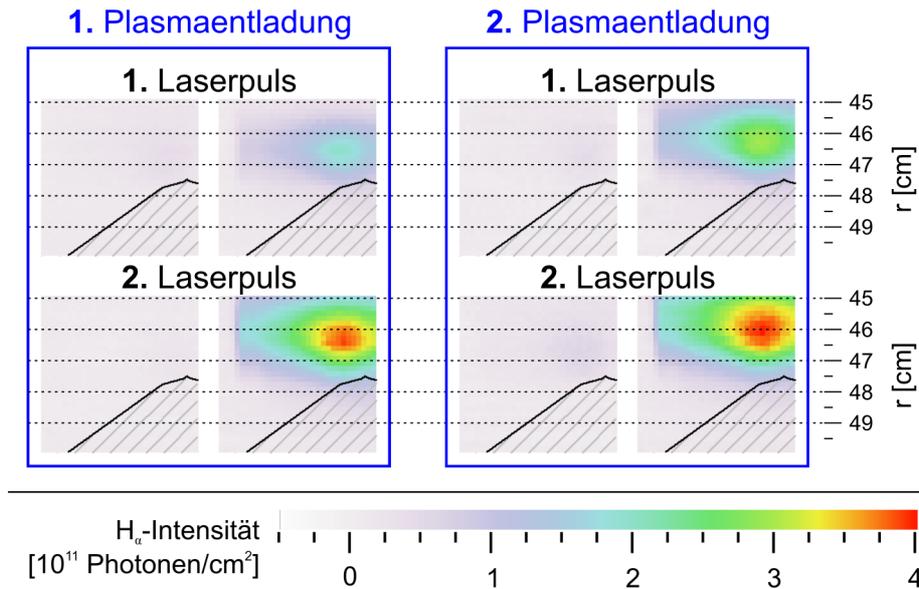


Abb. 6.8: Weitere Beispiele für starke H_{α} -Emission nach Ende des Desorptionsvorgangs, jedoch vor Ende des Aufheizens. Die überlagerte Schraffur zeigt die Position der Graphitprobe. Die Starttemperatur in der zweiten Plasmaentladung ist 10 bis 40 K höher als in der ersten. Man beachte die Änderung der Intensitätsskala gegenüber Abb. 6.7a) um den Faktor 100.

Diese Flußdichte an Wasserstoffatomen kann nicht aus dem Plasma eingetragen worden sein: Parallel zum Magnetfeld beträgt sie $8 \times 10^{22} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$, die Oberfläche ist jedoch nur um 10° zum ankommenden Fluß geneigt. Die Komponente der Flußdichte senkrecht zur Oberfläche beträgt noch $1.4 \times 10^{22} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Der Ursprung des H_{α} -Nachleuchtens müßte demnach in Atomen zu suchen sein, die erst bei Temperaturen oberhalb 2100 K im Graphit mobilisiert werden, was nirgends in der Literatur beschrieben wurde.

Alternativ könnte die hohe Oberflächentemperatur über das Sublimieren von Kohlenstoff eine lokale Kühlung des Plasmas bewirken. Der Konversionsfaktor S/XB sinkt dann, was das H_{α} -Recyclingleuchten während des Laserpulses erhöht. Gleichzeitig zerfallen die in der Umgebung des Laserflecks rezyklierenden Wasserstoffmoleküle effektiver in zwei Wasserstoffatome anstatt in ein Ion und ein Atom, so daß mehr Atome angeregt werden können. Weitere Beispiele in Abb. 6.8 zeigen, daß das H_{α} -Nachleuchten stark temperaturabhängig ist. Die Abbildung zeigt die Desorptionsbilder aus zwei aufeinanderfolgenden Plasmaentladungen. Durch die Wärmelast aus dem Plasma wächst die Oberflächentemperatur während der Entladung stark an. Dies bewirkt einen Anstieg des Nachleuchtens bei den Laserpuls innerhalb der Entladung. In der Pause zwischen den beiden Entladungen sinkt die Temperatur nicht wieder bis auf ihren alten Anfangswert ab. Die in der zweiten Plasmaentladung erreichten Temperaturen im Laserfleck liegen dadurch um 10 bis 40 K höher als zu den entsprechenden Zeitpunkten in der ersten Entladung. Diese geringfügige Erhöhung der Temperatur führt zu einem ca. 30% stärkeren H_{α} -Nachleuchten.

Die Konsequenz dieses H_{α} -Nachleuchtens ist die Festlegung der Temperaturobergrenze für die Laserdesorption auf 2100 K. Nur wenn das Emissionsleuchten zeitlich hinreichend gut aufgelöst wird, darf diese Maximaltemperatur überschritten werden. In dem Fall ist es mög-

lich, das Nachleuchten zeitlich aufzulösen und wie in Abb. 6.7a zu diskriminieren. Die Herkunft der „nachleuchtenden“ Atome bleibt jedoch unklar. Die plausibelste Erklärung ist, daß das Sublimieren von Kohlenstoff zu einer Verstärkung des lokalen Recyclingleuchtens führt.

6.4 Messung des Konversionsfaktors $(S/XB)_{eff}$ mittels Desorption präparierter Schichten

Hier werden LDS-Messungen beschrieben, in denen Werte für den Konversionsfaktor $(S/XB)_{eff}$ ermittelt werden. Die Vorgehensweise ist ähnlich der in [Bre05, Bre07], wo ein bekannter Gasfluß in die Plasmarandschicht eingeblasen wurde. In dieser Arbeit wurden präparierte Proben, die bei der Desorption eine bekannte Menge an Deuteriumatomen in einer bekannten Speziesverteilung freisetzen, unter verschiedenen Plasmabedingungen desorbiert. Es handelt sich um Graphitproben, die in einem D_2/CD_4 -Niedertemperaturplasma beschichtet wurden. Die Schichten wurden vor dem Einsatz in TEXTOR mittels Ellipsometrie, Colorimetrie und Laserdesorption analysiert. Wenn im folgenden von Wasserstoff die Rede ist, so ist stets das Element gemeint. Gleiches gilt für die Bezeichnung „a-C:H-Schicht“. Falls zwischen den Wasserstoffisotopen unterschieden wird, so wird dies jeweils im Kontext erwähnt.

Nach Gleichung 4.11 gilt für die freigesetzte Wasserstoffmenge N_H und für die infolgedessen emittierte H_α -Photonenzahl $N_{H\alpha}$ der Zusammenhang

$$N_H = N_{H\alpha} \frac{S}{XB} Y_A \quad (6.3)$$

S/XB ist der Konversionsfaktor im Falle atomarer Freisetzung, Y_A ist die reziproke Ausbeute an Wasserstoffatomen, die beim Zerfall der freigesetzten Moleküle entstehen. Das Produkt aus beiden entspricht dem in früheren Publikationen [Bre05] eingeführten $(S/XB)_{eff}$. Die getrennte Verwendung der beiden Konversionsfaktoren ist hier von Vorteil, da Y_A konstant bleibt, S/XB jedoch eine Dichteabhängigkeit aufweist. Nur bei niedrigen Plasmatemperaturen ($T_e < 17$ eV) muß mit abweichenden molekularen Zerfallsprozessen gerechnet werden [Unt05, Bre05], was Y_A in Abhängigkeit von T_e bringt.

Für die spektroskopische Messung muß beachtet werden, daß nicht alle H_α -Photonen beobachtet werden, da die Emission zum Teil außerhalb des Sichtfeldes des Detektors stattfindet. Dies erfordert eine Korrektur der Photonenzahl $N_{H\alpha}$, für die im Kapitel 4.3 die Sichtfeldkorrektur V eingeführt wurde. Weiterhin muß speziell bei der Desorption der präparierten Proben das H/D-Verhältnis der desorbierten Moleküle berücksichtigt werden, da nur die freigesetzte Deuteriummenge bekannt ist. Dieser steht eine unsichere Menge an Wasserstoff (H) gegenüber, der aus dem Graphitsubstrat freigesetzt wird.

Unter Berücksichtigung dieser Korrekturen wird Gleichung (6.3) zu

$$N_D = N_{H\alpha} \frac{S}{XB} Y_A V \frac{1}{1 + H/D} \quad (6.4)$$

Im folgenden ersten Unterabschnitt wird die Charakterisierung der verwendeten Schichten beschrieben. Dies umfaßt die Bestimmung der Deuteriumflächendichte N_D/A_{Labor} , die Bestimmung der Speziesverteilung, die in Y_A einfließt sowie die Abschätzung des H/D -Verhältnisses.

Anschließend werden die zwei verwendeten Plasmaentladungen vorgestellt sowie die Platzierung der Graphitproben in TEXTOR.

Schließlich werden die in TEXTOR spektroskopisch gemessenen D-Flächendichten mit den aus der Schichtcharakterisierung bekannten verglichen. Neben der Variation der Plasmaparameter wurde hierbei die radiale Position der Probenoberfläche von $R = 50 \dots 48$ cm variiert.

6.4.1 Schichtcharakterisierung

In TEXTOR kamen ausschließlich unpolierte Graphitproben mit einer Oberflächenrauigkeit von $R_a = (5 \pm 2) \mu\text{m}$ zum Einsatz. Auf diese wurden zuvor deuterierte a-C:H-Schichten in einem D_2/CD_4 -Niedertemperaturplasma aufgebracht. Bei dieser Beschichtung der Graphitproben wurden neben und auf den Graphitproben Siliziumplättchen ($\varnothing 7 \text{ mm} \times 0.5 \text{ mm}$, $R_a < 5 \text{ nm}$) plaziert. Die auf dem Silizium aufwachsenden Schichten sind mit denen auf den Graphitproben vergleichbar.

Die Schichtdicke d , der Brechungsindex n und der Extinktionskoeffizient k der Schicht wurden mittels Ellipsometrie auf den Siliziumplättchen bestimmt. Die Schichtdicken reichten je nach Beschichtungscharge von $d = 180 \text{ nm}$ bis $d = 250 \text{ nm}$, bei einem Brechungsindex der Schichten von $n = 1.95 \pm 0.05$ und einem Extinktionskoeffizienten $k = 0.04 \pm 0.02$. Die Umrechnung zwischen Wasserstoffinventar (Atome/Volumen) und Schichtdicke erfolgt mittels einer Volumendichte an Wasserstoff von $(3 \pm 1) \times 10^{19} \text{ m}^{-2} \text{ nm}^{-1}$ [Wie90, Swa99].

Die Graphitproben wurden vor ihrem Einsatz in TEXTOR bezüglich ihrer Wasserstofffreisetzung charakterisiert. Hierzu wurden sie im Laboraufbau mit den gleichen Laserpulsen und Leistungsdichten desorbiert, wie später in TEXTOR. Die Messung der freigesetzten Spezies erfolgte massenspektrometrisch. Abbildung 6.9 illustriert die Vorgehensweise: Auf jeder Probe wurden 4 Stellen (V) entlang der Probenkanten desorbiert. Die Schichteigenschaften der in TEXTOR desorbierten Stellen (T) wurde zwischen diesen Punkten gemittelt. Das gemessene Wasserstoffinventar stimmte im Mittel dem Inventar überein, das aus der Schichtdicke auf den Siliziumplättchen abgeleitet wurde, die Werte streuen jedoch um

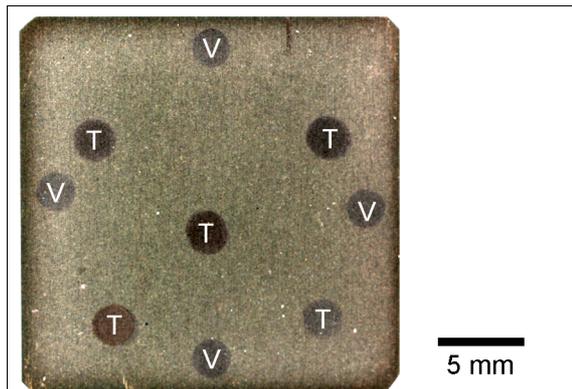


Abb. 6.9: Anordnung der Desorptionsflecke auf der Graphitprobe: Flecke aus TEXTOR-Messung und aus Voruntersuchung. Der dunkle Rand war in TEXTOR abgedeckt. Die Aufhellung der Probe wird durch vom Probenhalter gesputtertes Inconel bewirkt.

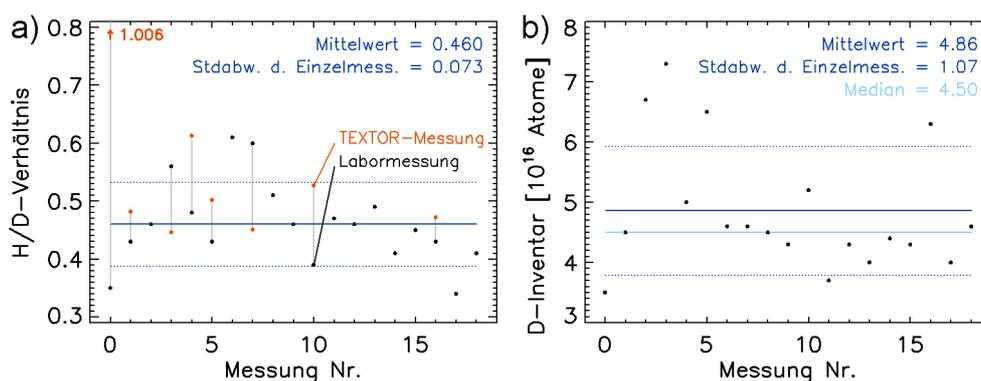


Abb. 6.10: a) H/D-Verhältnisse der Desorptionsflecke, ermittelt aus den Voruntersuchungen sowie aus der H_α/D_α -Spektroskopie in TEXTOR. b) Deuteriuminventare, die in den Voruntersuchungen gemessen wurden

20% infolge der nichtuniformen Beschichtung einer Charge. Innerhalb einer Probe ist diese Inhomogenität geringer: Als relative Unsicherheit der in den TEXTOR-Flecken desorbierten Deuteriummenge wird 10% angenommen.

Das H/D-Verhältnis innerhalb der freigesetzten Moleküle wurde von dem gemessenen H_2/D_2 -Verhältnis übernommen. Das H-Inventar im Graphitsubstrat ist abhängig von der Vorgeschichte der Proben vor der Desorption. Die Proben sind der Luft ausgesetzt, werden jedoch andererseits innerhalb von TEXTOR auf die Linertemperatur von 420 K aufgeheizt, was sie teilweise von Wasser befreit. In der Regel erfolgte auch eine H/D-Messung in der Emissionswolke während der Desorption in TEXTOR. Mittels eines abbildenden Spektrometers wurde das H_α/D_α -Verhältnis des Emissionsleuchtens gemessen. Die Meßergebnisse des H_2/D_2 -Verhältnisses (im Labor) und des H_α/D_α -Verhältnisses (in TEXTOR) sind in Abb. 6.10a gegenübergestellt: Die Streuung der Labormessungen beträgt 16%, die TEXTOR-Messungen zeigen das gleiche Verhalten. Insbesondere sind keine systematischen Abweichungen zwischen zusammengehörigen Messungen zu erkennen, d.h. zwischen Messungen desselben Desorptionsflecks (vertikale Linie zwischen den Punkten). Für die weiteren Betrachtungen wird der Mittelwert der Labormessungen verwendet: $H/D = 0.46 \pm 0.08$. In die Auswertung der Desorptionsmessungen nach Gleichung (6.4) geht diese Größe als $(1+H/D)$ ein, wodurch sich der relative Fehler zu $\pm 6\%$ ergibt.

In Abb. 6.9b sind die im Labor bestimmten Deuteriummengen in den desorbierten Flecken aufgetragen. Die Fläche des Desorptionsflecks beträgt in allen Fällen $(4.2 \pm 0.2) \text{ mm}^2$. In TEXTOR wurde ebenfalls infolge der konstanten Abbildungsverhältnisse und der konstanten Anfangstemperatur des Laserflecks stets eine Fläche von $(5.2 \pm 0.6) \text{ mm}^2$ desorbiert. Daher wird in die Auswertung lediglich das Flächenverhältnis $A_{\text{TEXTOR}}/A_{\text{Labor}} = 1.24 \pm 0.10$ eingehen, mit dem die im Labor gemessenen Deuteriummengen multipliziert werden: Die mittlere im Labor freigesetzte Deuteriummenge beträgt 4.9×10^{16} Atome, in TEXTOR werden im Mittel 6.0×10^{16} Deuteriumatome ins Plasma freigesetzt. Für die Auswertung wird jedoch nicht der Mittelwert verwendet, sondern das Resultat der jeweilige Einzelmessung aus der Probencharakterisierung.

6.4.2 Verwendete Plasmaentladungen und Plazierung der Proben

In TEXTOR wird üblicherweise mit Deuteriumplasmen gearbeitet. Für die Desorption der präparierten Proben dagegen wurden möglichst reine Wasserstoff-(H)-Plasmen benutzt, da so das aus den Proben freigesetzte Deuterium besser zu diskriminieren ist. Zu diesem Zweck wurde das Inventar der Innenwand von TEXTOR mittels einer Glimmentladung in Wasserstoff von der im Normalbetrieb vorliegenden Deuteriumbeladung auf Wasserstoff umgestellt.

Die LDS-Messung erfolgt stets während der Flat-Top-Phase der Plasmaentladung, d.h. wenn der Plasmastrom, die Plasmadichte und die Form und Position des Plasmas konstant sind. Dies ist für den Zeitraum 0.8...1.5 s bis 2.4...2.7 s der Fall. Wird eine höhere Plasmadichte eingestellt, so dauert es länger, bis diese zu Beginn der Entladung erreicht wird. Das Ende der Flat-Top-Phase wird durch die magnetische Sättigung des Eisenkerns von TEXTOR eingeleitet. Es treten dann Streufelder aus dem Eisenkern, die das ursprünglich zirkuläre Plasma elliptisch verformen. Oben und unten (d.h. an der Position des Testlimiters) wird es nach außen gedrückt, in der Mittelebene (dort werden Temperatur und Dichte des Plasmas gemessen) zieht es sich zusammen. Während der nächsten 2 bis 3 s der Plasmaentladung wird das Plasma an der Position der Probe um bis zu 5 mm nach außen gedrückt.

Der erste Laserpuls auf die unberührte Schicht erfolgte aus diesem Grund zum Zeitpunkt $t=1.25$ s oder $t=1.75$ s. In der gleichen Entladung erfolgten bis zu drei weitere Laserpulse auf die gleiche Stelle, um die Vollständigkeit der ersten Desorption zu überprüfen. Zu diesen späteren Zeitpunkten können allerdings infolge der Verformung des Plasmas die lokalen radialen Profile von Plasmadichte und -temperatur um bis zu 5 mm nach außen verschoben sein. Dies beeinflußt über die Form der Emissionswolke die Abschätzung des nichtbeobachteten Emissionsleuchtens.

Die Messung von $(S/XB)_{eff}$ soll bei einer Vielzahl verschiedener Plasmaparameter (T_e , $n_e(r)$) erfolgen. Dies wird durch die Variation der Plasmadichte \bar{n}_e und der radialen Position der Probenoberfläche R erreicht. \bar{n}_e ist die über eine Sichtlinie durch das Plasmazentrum gemittelte Plasmadichte, der Soll-Parameter für die Regelung der Plasmadichte an TEXTOR. Die Variation der Plasmadichte erforderte zwei verschiedene Typen von Plasmaentladungen, die im Abschnitt 6.1 als Typ A und Typ D eingeführt wurden. Die Veränderung der radialen Position der Probenoberfläche erlaubt eine zusätzliche Variation der Plasmaparameter vor der Probenoberfläche. Dies wurde durch entsprechendes Hinein- oder Hinausfahren der Probenhalterung in der Limiterschleuse realisiert.

Die Probenhalterung („Probenteller“) wird in Abb. 6.11 gezeigt. Er ist für die Aufnahme von zehn einzelnen Graphitproben ausgelegt. Die Probenoberflächen befinden sich 2.5 mm unterhalb der Oberseite des Probentellers, so daß sie nicht dem direkten Plasmafluß, parallel zum Magnetfeld, ausgesetzt sind. Durch Drehen des Probentellers kann eine neue Graphitprobe in dem Bereich plaziert werden, den der Laserstrahl erreicht. Der Laser selbst wird dann auf eine der fünf Meßpositionen auf der Probe eingestellt, wie sie bereits in Abb. 6.9 zu sehen waren.

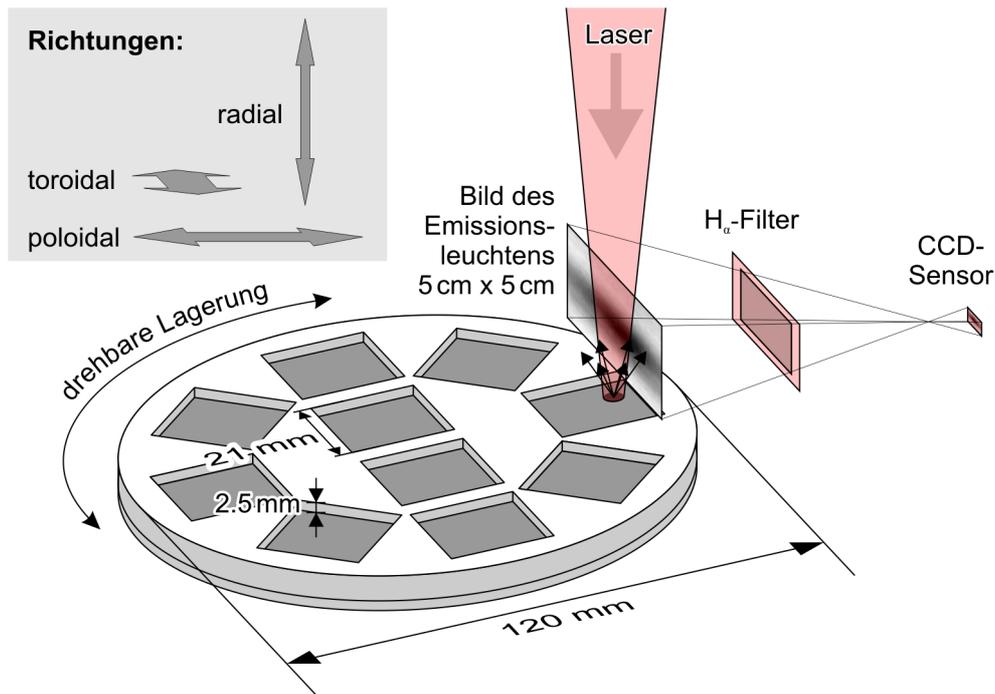


Abb. 6.11: Anordnung der Graphitproben im tellerförmigen Probenhalter in TEXTOR

6.4.3 Bestimmung der Konversionsfaktoren $(S/XB)_{eff}$

Durch Umformen von Gleichung (6.4) erhält man eine Formel für S/XB :

$$\frac{S}{XB} = \frac{1}{Y_A} \frac{N_D (1 + H/D)}{V N_{H\alpha}} \frac{A_{TEXTOR}}{A_{Labor}} \quad (6.5)$$

sowie für $(S/XB)_{eff}$

$$\left(\frac{S}{XB} \right)_{eff} = \frac{N_D (1 + H/D)}{V N_{H\alpha}} \frac{A_{TEXTOR}}{A_{Labor}} \quad (6.6)$$

Die eingehenden Größen sind bekannt: Das Deuteriuminventar N_D , die atomare Ausbeute Y_A und das H/D-Verhältnis wurden in Voruntersuchungen ermittelt. Die Sichtfeld- und Offsetkorrektur V wird für jede Einzelmessung aus den Intensitätsverteilungen von EIRENE-Simulationen ermittelt. Das Produkt aus V und der gemessenen H_α-Photonenzahl $N_{H\alpha}$ ist das gesamte durch den desorbierten Wasserstoff erzeugte Emissionsleuchten. In den hier vorgestellten Messungen sind die in TEXTOR erzeugten Desorptionsflecke alle gleich groß, wie auch die im Labor erzeugten. Daher geht die Fleckgröße als fester Umrechnungsfaktor $A_{TEXTOR}/A_{Labor} = 1.24 \pm 0.10$ ein.

Die Resultate der Messungen sind in den Abbildungen 6.12 und 6.13 zusammengetragen. Zunächst ist stets $(S/XB)_{eff}$ aufgetragen, da dieser Faktor direkter aus der Messung hervorgeht als S/XB , für das noch eine Annahme bezüglich Y_A gemacht werden muß. In den Abbildungen von $(S/XB)_{eff}$ (6.12a, 6.13a und b) sind die Resultate der Einzelmessungen in schwarz eingezeichnet sowie deren Mittelwert in rot. Grün unterlegt sind Werte aus den EIRENE-Simulationen, die auch für die Sichtfeldabschätzungen verwendet wurden. Bei den EIRENE-Werten sind zwei Szenarien zu unterscheiden: Es wird eine Rechnung mit 100% molekularer Wasserstofffreisetzung gezeigt und eine mit 20% Zumischung von Methan. Die $(S/XB)_{eff}$

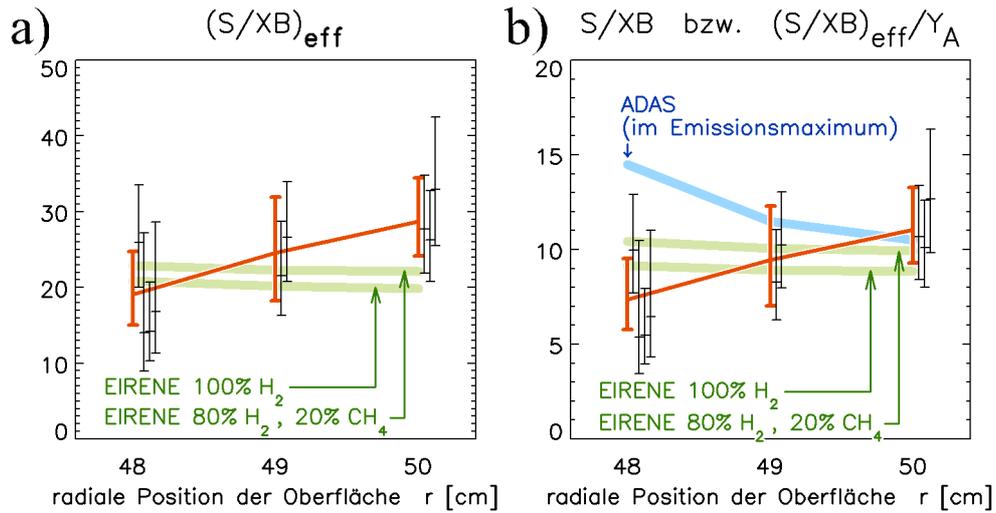


Abb. 6.12: a) gemessene (schwarz/rot) bzw mit EIRENE simulierte (grün) Werte für $(S/XB)_{eff}$ im Plasma A (hohe Dichte). b) Werte für S/XB , die durch Division $(S/XB)_{eff}/Y_A$ erhalten wurden. Der Wert aus der ADAS-Datenbank wurde nach den Plasmaparametern am Ort des maximalen Emissionsleuchtens gewählt. Die Datenpunkte und Fehlerbalken (schwarz) sowie ihr Mittelwert (rot) sind zwecks Übersichtlichkeit horizontal versetzt gezeichnet

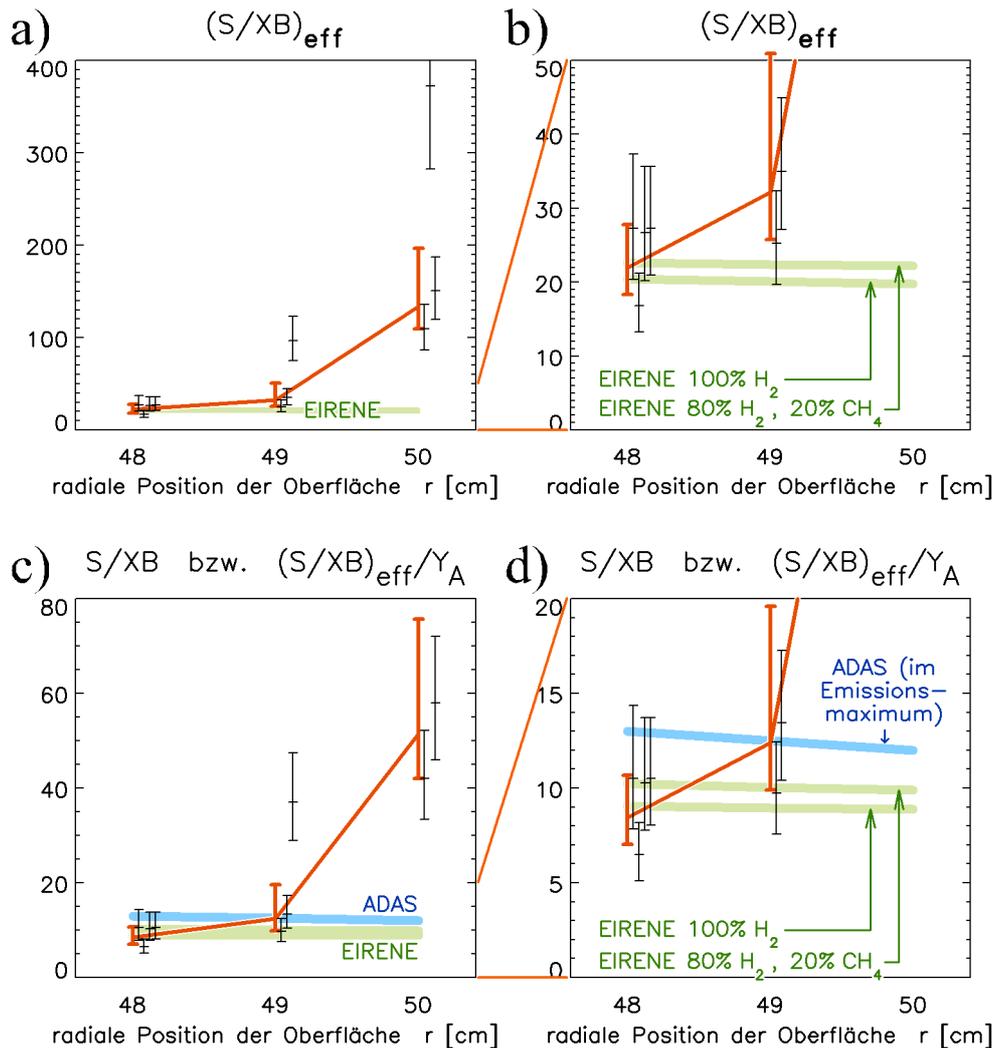


Abb. 6.13: S/XB und $(S/XB)_{eff}$ wie in Abb. 6.12, gemessen simuliert und im Plasma D (niedrige Dichte). Die rechten Bilder stellen jeweils Ausschnittsvergrößerungen dar.

Werte werden dann nach S/XB umgerechnet, die in den übrigen drei Teilbildern (6.12b, 6.13c und d) gezeigt sind. Für die Resultate der Messungen wird hierbei der aus der Probencharakterisierung bekannte Wert $Y_A=2.6$ verwendet. Für die EIRENE-Resultate wird Y_A nach Gleichung 4.13 berechnet. Die rein molekulare Freisetzung ergibt $Y_A=2.0$, die zusätzliche Methanfreisetzung ergibt $Y_A=2.5$. Der angegebene S/XB -Wert aus ADAS wurde entsprechend der Plasmatemperatur und -dichte am Ort mit dem stärksten Emissionsleuchten ausgewählt.

Generell ist zu erkennen, daß der gemessene S/XB -Wert steigt, wenn die desorbierte Oberfläche weiter von der letzten geschlossenen Flußfläche ($r=46$ cm) entfernt wird, was jedoch im Widerspruch zu dem Verhalten steht, das die EIRENE-Simulation und die ADAS-Daten zeigen. Ein größerer S/XB -Wert bedeutet, daß die gleiche Zahl freigesetzter Atome weniger Licht emittiert. Dies legt die Vermutung nahe, daß das Verhalten der gemessenen S/XB -Werte auf ein Unterschätzen der räumlichen Ausdehnung des Emissionsleuchtens zurückzuführen ist. Die Teilchenwolke wäre demnach weiter ausgedehnt, als dies nach der EIRENE-Simulation der Fall sein soll. Die mögliche Abweichung der räumlichen Form und Ausdehnung ist zwar bereits in Form der Meßunsicherheit der Sichtfeldkorrektur in den Meßergebnissen enthalten, weitergehende Abweichungen sind jedoch nicht vollständig auszuschließen.

Für alle weiteren LDS-Messungen in diesem Kapitel werden die gemessenen S/XB -Werte verwendet. Der Wert für Y_A wird in Nachuntersuchungen der desorbierten Oberflächen ermittelt oder aus Erfahrungswerten zur Desorption vergleichbarer Oberflächen abgeleitet. Bei Verwendung der gemessenen $(S/XB)_{eff}$ -Werte kompensieren sich ihre Meßunsicherheit und die der Sichtfeldkorrektur V teilweise. In $(S/XB)_{eff}$ ist nach Gleichung (6.6) der Faktor $1/V$ enthalten; bei einer LDS-Messung wird nach Gleichung (4.16) mit einer neuen Sichtfeldkorrektur multipliziert, die erfahrungsgemäß ähnlich groß ist. Die Fehler von V und $(S/XB)_{eff}$ werden daher mittels quadratischer Fehlerfortpflanzung kombiniert.

6.5 Wasserstoffinventarmessung in der Depositionszone

In diesem Kapitel werden Messungen vorgestellt, in denen die LDS zur In-situ-Bestimmung des Wasserstoffinventars in der Depositionszone eines Testlimiters eingesetzt wird. Mittels verschiedener Methoden werden nach Ausbau der in TEXTOR plasmaexponierten Probe die dort deponierte Schichtdicke und das gebildete Wasserstoffinventar gemessen und mit den Ergebnissen der LDS-Messung verglichen. Die in TEXTOR deponierten Schichten haben Dicken von 50 nm bis 600 nm. Für die Beobachtung des Emissionsleuchtens kommt nicht nur die Dalsa-Kamera aus dem vorigen Abschnitt zum Einsatz, sondern auch die Proxitronic-Kamera. Die Resultate der LDS-Messung und der Nachuntersuchungen werden am Ende dieses Abschnittes in Tabelle 6.4 gegenübergestellt.

Die Sichtfeldkorrektur erfolgte auch hier mit Hilfe der EIRENE-Rechnungen, trotz der um 36° geneigten Probenoberfläche, die lokal zu einer abweichenden Form der Emissionswolke führt. Die angenommene Unsicherheit der Sichtfeldkorrektur ist 30%.

Besonderheiten bei der LDS mit der Proxitronic-Kamera

Bei fünf der folgenden sechs Messungen (die der nummerierten Desorptionsflecke) wurde die langsamere aber ein größeres Sichtfeld bietende Proxitronic-Kamera verwendet. Diese hat eine Integrationszeit von 20 ms pro Bild und beobachtet das gesamte durch den TEXTOR-Flansch begrenzte Sichtfeld. Für die Proxitronic-Kamera existiert keine Absolutkalibrierung. Stattdessen wurde zunächst eine Probe mit bekanntem Wasserstoffinventar desorbiert, analog zu den Messungen im Kapitel 6.4. Dabei ist noch das unterschiedliche Ausgasverhalten der Schichten zu beachten: Wie sich in den Nachuntersuchungen der in TEXTOR deponierten Schichten zeigen wird, setzen diese weniger Kohlenwasserstoffe frei als die präparierte Schicht, mit der k_{Proxi} ermittelt wurde. Dies führt zu einer abweichenden inversen atomaren Ausbeute Y_A für die präparierte Schicht ($Y_{A,prap}=2.6$) und die TEXTOR-Schicht ($Y_{A,TEXTOR}=2.2$). Unter der Annahme einer über die gesamte Bildfläche konstanten Empfindlichkeit der Proxitronic-Kamera wird aus dieser Messung der Kalibrierfaktor k_{Proxi} bestimmt:

$$k_{Proxi} = (3.1 \pm 1.0) \times 10^{10} \frac{\text{Atome}}{\text{counts cm}^2} \quad (6.7)$$

Mit Hilfe von k_{Proxi} kann direkt umgerechnet werden vom sichtfeldkorrigierten Emissionsleuchten in die Wasserstoffflächendichte des Desorptionsflecks

$$N_H/A = k_{Proxi} \times V \times I_{tot} \quad (6.8)$$

Der Kalibrierfaktor k_{Proxi} gilt nur für diese Messungen. Der Konversionsfaktor S/XB bleibt unverändert. Er ist somit bereits in k_{Proxi} enthalten und taucht nicht in Gleichung (6.8) auf.

6.5.1 Nachuntersuchung: Colorimetrische Schichtdickenmessung

Zum Vergleich mit den per LDS gemessenen Wasserstoffflächendichten wird die Dicke der desorbierten Schichten colorimetrisch, anhand der Interferenzfarben der Schicht, bestimmt. Aus der Schichtdicke wird die Flächendichte an Wasserstoff ermittelt, indem mit der Wasserstoff-Volumendichte multipliziert wird. Nach der Desorption verbleibt ein Teil des Kohlenstoffgerüsts der früheren a-C:H-Schicht in Form einer graphitischen Kohlenstoffschicht. Daher wird für die optischen Eigenschaften dieser Kohlenstoffschicht angenommen, sie seien mit denen des Graphitsubstrats identisch. Die Dicken der in den Desorptionsflecken deponierten Schichten werden daher auf die gleiche Weise colorimetrisch gemessen wie die außerhalb der Flecke. Die Dicke der desorbierten Schicht ist die Differenz der so bestimmten Dicken außerhalb und innerhalb des Desorptionsflecks.

Die systematische Unsicherheit der Colorimetriemessung ist hauptsächlich durch die Unsicherheit des Brechungsindex' der a-C:H-Schicht gegeben. Die Interferenzfarbe wird vor allem durch das Produkt aus Brechungsindex und Schichtdicke bestimmt. Die Farbtabelle im Anhang zeigt sehr deutlich die Verschiebung der Interferenzfarben mit der Änderung des Brechungsindex bei konstanter Schichtdicke. Für den Brechungsindex der in der Abschalt-schicht von TEXTOR deponierten a-C:H-Schichten wird $n=2.4 \pm 0.2$ angenommen [Wie90].

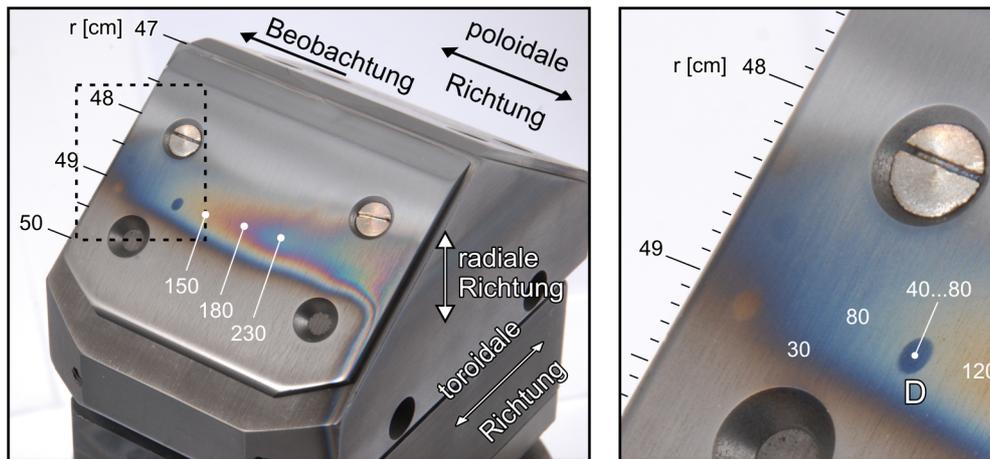


Abb. 6.14: Laserdesorption in TEXTOR: Platzierung der Desorptionflecke auf dem 36°-Dachlimiter. Weiß sind die aus den Interferenzfarben ermittelten Schichtdicken in nm angegeben.

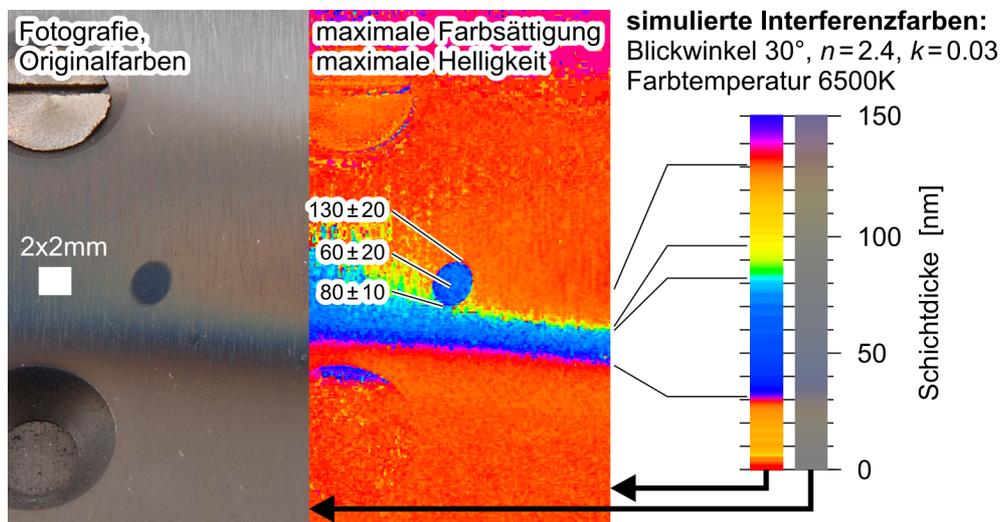


Abb. 6.15: Colorimetrische Bestimmung der Schichtdicke im Desorptionfleck D und seiner Umgebung nach dem Ausbau des Limiters.

Die Bestimmung der Schichtdicke erfolgt nun durch Vergleich der gemessenen Farben mit einem berechneten Farbmuster. Im Fall einer relativ dünnen Schicht (bis ca. 300 nm) kann der Farbverlauf direkt verglichen werden, wie dies in Abb. 6.15 zu sehen ist. Dort wird der Limiter aus Abb. 6.14 in der Umgebung des Desorptionflecks D analysiert. In der Abbildung 6.15 ist links eine Fotografie der Probenoberfläche unter definiertem Winkel (30°) und definierter Beleuchtung (Tageslicht, Farbtemperatur 6500 K) abgebildet. Rechts daneben ist die gleiche Fotografie mit einer erhöhten Farbsättigung gezeigt, so daß die Interferenzfarben leichter identifiziert werden können. Die Schichtdicke kann anhand der beiden Farbbalken abgelesen werden, die aus einer Simulation der Interferenzfarben erhalten wurden. Der rechte Balken zeigt die Originalfarben, für den linken Balken wurde die Farbsättigung der Originalfarben erhöht, wie zuvor in der Fotografie. Die Zuordnung zwischen Fotografie und Simulation ist durch die Verbindungslinien angedeutet. Außerhalb des Desorptionflecks hat die Schicht eine Dicke zwischen 80 und 130 nm. Es liegt offensichtlich ein Gradient der Schichtdicke vor, über den in der weiteren Auswertung gemittelt wird. Innerhalb des Flecks

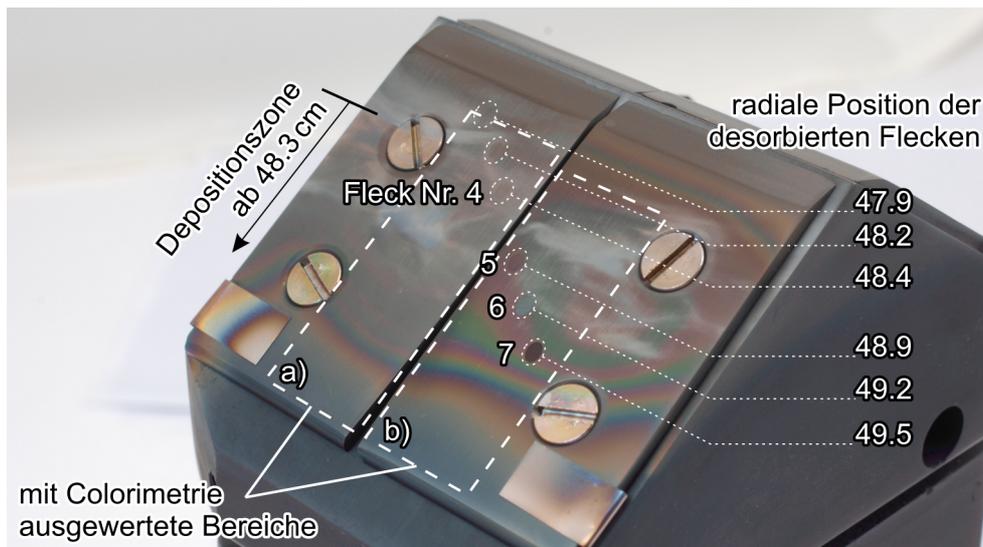


Abb. 6.16: In TEXTOR exponierter Limiter. Desorptionsflecke auf der aufgewachsenen a-C:H-Schicht sind hervorgehoben und mit ihren radialen Positionen beschriftet.

Fleck	D	4	5 (1.)	5 (3.)	6	7
Inventar [10^{21} Atome/m ²]	1.0 ±0.4	5.7 ±2.5	1.7 ±0.9	2.8 ±1.4	8.5 ±3.7	9.5 ±4

Tab. 6.1: LDS-Meßergebnisse in den Desorptionsflecken D sowie 4 bis 7. Die Flecke 4 bis 7 sind diejenigen, bei denen die Proxitronic-Kamera für die spektroskopische Messung verwendet wurde.

entspricht die Interferenzfarbe einer Schichtdicke von 60 nm. Diese Schicht wuchs nach der vollständigen Desorption im Fleck D neu auf. Die Depositionsrate ist vermutlich die gleiche wie in der Umgebung des Flecks, daher muß die Dicke der desorbierten Schicht gleich der Differenz der Schichtdicken außerhalb und innerhalb des Flecks sein. In Fleck D wurde also eine Schicht von im Mittel 45 nm Dicke desorbiert.

Sind die Schichten dicker, so wird der Verlauf der Interferenzfarben komplizierter. In den höheren Interferenzordnungen wiederholt sich das Farbmuster zunächst mehrfach, um dann in der Regel nur noch zwischen zwei Farben hin- und herzuspringen. Für die weitere Auswertung ist es nötig, eine „Farbe“ genauer zu beschreiben. Daher folgt hier eine kurze Einführung des HSI-Farbmodells.

Eine Farbe wird durch drei Farbmaßzahlen eindeutig bestimmt, wie zum Beispiel als (Rot, Grün, Blau)-Wert im RGB-System, das auf Computermonitoren eingesetzt wird. Durch geeignete Transformationen [D5033] können Farbmaßzahlen auch in verschiedene andere Farbmaßzahlensysteme überführt werden, wie z.B. das HSI-System. H steht dabei für den Hue-Wert, den Farbtonwinkel, der den Farbton einer Farbe beschreibt. Die anderen beiden Farbwerte des HSI-Systems legen die Farbsättigung (S) und die Helligkeit (I) fest. Die Farbsättigung ist ein Maß für die Verschiedenheit der Farbe vom Grauton, die Helligkeit gibt die relative Position zwischen weiß und schwarz an.

Die Abbildung 6.16 zeigt einen Limiter auf den sehr viel dickere a-C:H-Schichten deponiert wurden als auf dem soeben analysierten aus Abb. 6.14. Dessen kompliziertes Interferenzfarbmuster wird in Abb. 6.17 analysiert: Zunächst werden Fotografien der Probe unter definierter Beleuchtung und Betrachtungswinkel angefertigt. Über diese Bilder werden Isochromen, Konturlinien gleichen Farbtonwinkels, gelegt. Diese Isochromen sind gleichzeitig Linien gleicher Schichtdicke – die Zuordnung von Schichtdicken zu den Isochromen erfolgt entlang einer geeignet über das Bild gelegten Linie: Sie sollte die Isochromen möglichst im rechten Winkel überqueren. Aus der Linie wird das Profil des Farbtonwinkels entnommen, dieses ist unterhalb der Fotografie aufgetragen. Als drittes ist der simulierte Verlauf des Farbtonwinkels über der Schichtdicke aufgetragen. Die horizontalen Gitterlinien sind in beiden Diagrammen in 60°-Schritten (gestrichelt) bzw. 180°-Schritten (durchgezogen) eingezeichnet. Die Abstufungen und Linienstile entsprechen genau denen der Isochromen. Weiterhin sind in beiden Diagrammen die Ordnungen der Interferenzfarben durch unterlegte graue Flächen hervorgehoben: Eine neue Ordnung beginnt beim Übergang von einer grauen in eine weiße Fläche in Richtung der größeren Dicke. Diese Übergänge sind zwischen den beiden Diagrammen durch die schwarzen Linien markiert, die Interferenzordnungen selber sind an dieser Stelle numeriert. In den niedrigen Ordnungen erfolgt der Übergang zwischen den Ordnungen genau dort, wo der Farbtonwinkel 180° beträgt, in den höheren Ordnungen dagegen treten in dem hier simulierten Fall ausschließlich Polstellen beim Übergang in eine andere Ordnung auf. Diese Polstellen werden in dem gemessenen Farbtonwinkelprofil fast nie beobachtet, da der gemessene Farbtonwinkel eines Pixels stets eine Mittelung über die Pixelfläche darstellt.

Anhand des Verlaufs des Farbtonwinkels innerhalb der einzelnen Interferenzordnungen werden nun das gemessene und das simulierte Farbtonwinkelprofil einander zugeordnet. Für eine eindeutige Zuordnung muß die Dicke an einer Referenzstelle auf der Oberfläche bekannt sein. Ausgehend von dieser Stelle muß die Dicke monoton steigen oder fallen. Die Interferenzordnungen können dann nacheinander, der Schichtdicke nach sortiert, zugeordnet werden. Für den Dickenbereich zwischen 60 nm und 390 nm, d.h. von der 2. bis zur 4. Interferenzordnung, erfolgt die Zuordnung auf diese einfache Weise. Bei den niedrigen Schichtdicken der 1. Interferenzordnung ist die Zuordnung jedoch nicht mehr möglich, da sich offenbar die Körperfarbe des unbeschichteten Graphits infolge der Plasmaexposition geändert hat. In der 5. Interferenzordnung erreicht die Schichtdicke ein Plateau, wie sich in den LD-Messungen im nächsten Unterabschnitt zeigen wird. Daher wird die nächste Stelle, an der der Farbtonwinkel gleich 180° ist, nicht als Übergang in die 6., sondern als Übergang zurück in die erste Hälfte der 5. Interferenzordnung bewertet. In der Simulation tritt an dieser Stelle der 5. Interferenzordnung eine Polstelle des Farbtonwinkels auf, die in der Messung nicht beobachtet wird. Diese Abweichungen zwischen der Simulation und der Messung lassen in dieser Interferenzordnung nur eine grobe Abschätzung der Schichtdicke zu.

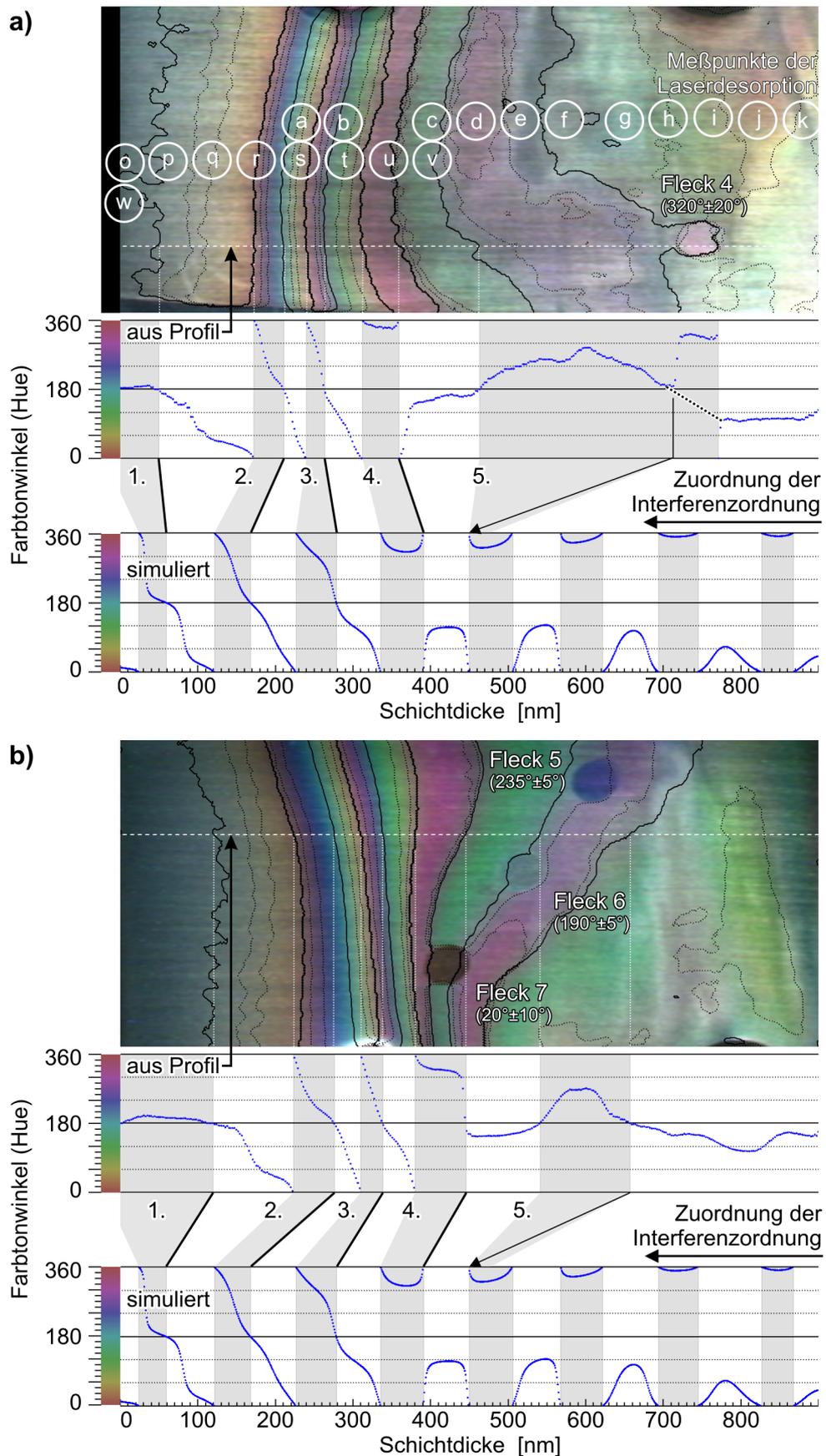


Abb. 6.17: Bestimmung der Schichtdicke mittels Colorimetrie. Die Interferenzfarben sind deutlich zu erkennen, da bei der Fotografie auf eine optimale Platzierung der Lichtquelle geachtet wurde. In a) sind für einen späteren Vergleich die LD-Meßpunkte aus Abb. 3.16 mit eingezeichnet.

Fleck	4	5 (1.)	5 (2.)	5 (3.)	6	7	Gesamte Expositionszeit (nichtdesorbierte Stelle)
OH-Expos. vor Desorption	59	60	19	17	118	132	147
NI-Expos. vor Desorption	42	42	15	12	84	93	96
OH-Expos. nach Desorption	88	19	17	44	29	15	n/a
NI-Expos. nach Desorption	54	15	12	30	12	3	n/a
Anteil der Expositionszeit nach der Desorption an der gesamten Exposition [%]	58	14	12	30	17	7	0

Tab. 6.2: Expositionszeiten [s] der Desorptionsflecke vor und nach ihrer Desorption. Auf Fleck 5 feuerte der Laser dreimal. Die Kameradaten der zweiten Desorption wurden infolge eines technischen Problems nicht gespeichert, die Expositionszeiten sind nur der Vollständigkeit halber mit aufgeführt.

Fleck		D	4	5 (1.)	5 (3.)	6	7
Schichtdicke [nm]	außerhalb des Flecks	105 ± 20	450 ± 30	460 ± 20		450 ± 20	420 ± 40
	innerhalb des Flecks	60 ± 20	250 ± 20	140 ± 10		50 ± 20	30 ± 30
	Differenz (= Dicke der desorbierten Schicht)	45 ± 30	200 ± 20	320 ± 30		400 ± 30	390 ± 50
	Aufteilung der Messung von Fleck 5	n/a	n/a	200 ± 20	60 ± 20	n/a	n/a
Wasserstoffinventar * [10 ²¹ Atome/m ²]		0.9 ± 0.6	4.0 ± 1.1	4.0 ± 1.1	1.2 ± 0.5	8.0 ± 2.1	7.8 ± 2.2

Tab. 6.3: Colorimetrie-Meßergebnisse in den Desorptionsflecken D sowie 4 bis 7.

*) Für die Umrechnung von der Schichtdicke in das Wasserstoffinventar wird eine Wasserstoffvolumendichte von $(2.0 \pm 0.5) \times 10^{19} \text{ m}^{-2} \text{ nm}^{-1}$ angenommen. [Wie90]

Die Bestimmung der Schichtdicken in den Desorptionsflecken erfordert zusätzliche Informationen, da die dort gemessenen Farbtonwinkel mehreren Interferenzordnungen zugeordnet werden können. Mit Hilfe der Expositionszeiten der einzelnen Desorptionsflecke vor und nach ihrer Desorption können Erwartungswerte für die Schichtdicken in den Desorptionsflecken abgeschätzt werden. Diese Expositionszeiten sind in Tabelle 6.2 aufgeführt. Die Werte in der letzten Zeile, die Anteile der Expositionszeit nach der jeweiligen Desorption an der gesamten Expositionszeit des Limiters geben an, wie dick die Schicht innerhalb des Desorptionsflecks relativ zur Schichtdicke außerhalb des Desorptionsflecks ist. Damit kann die Anzahl der möglichen Interferenzordnungen auf jeweils eine reduziert werden, wodurch die Zuordnung eindeutig ist.

Die mit der Colorimetrie gemessenen Schichtdicken werden in Tabelle 6.3 gezeigt. Für die Desorptionen im Fleck 5 wird die bestimmte Schichtdicke auf alle drei Desorptionen aufgeteilt, entsprechend der Expositionszeit vor der jeweiligen Desorption. Für die Umrechnung der Schichtdicke in ein Wasserstoffinventar ist die Annahme einer Volumendichte an Wasserstoff notwendig. Hierfür wird ein Wert von $(2.0 \pm 0.5) \times 10^{19} \text{ m}^{-2} \text{ nm}^{-1}$ angenommen.

6.5.2 Nachuntersuchung mittels Laserdesorption im Labor

Nach den Experimenten in TEXTOR wurden die Graphitproben im Laboraufbau mittels Laserdesorption analysiert. Entlang einer Linie über die Probe wurden mehrere Stellen desorbiert. In Abb. 6.18 sind die Resultate gezeigt, die einzelnen Datenpunkte können dabei direkt den Desorptionsflecken im darüberstehenden Foto zugeordnet werden. Es waren zwei Meßreihen nötig, um die gesamte Probe abzufahren. Für die Analyse wurden die freigesetzten deuterierten Spezies ausgewertet, da nur deren Massen eindeutig im Massenspektrum identifiziert werden können. Für die Ermittlung der im Teilbild b) aufgetragenen Deuteriumflächendichten wurden die QMA-Signale der Spezies HD (Masse 3), D₂ (Masse 4), CD₃H (Masse 19), CD₄ (Masse 20) und C₂D₄ (Massen 30 und 32) ausgewertet. Die Wasserstoffflächendichte aller Isotope im Teilbild d) wird aus der Deuteriumflächendichte und dem H/D-Verhältnis berechnet. Dieses wird aus der Messung des H₂/D₂-Verhältnisses übernommen, das in Teilbild c) zu sehen ist. Dabei wird angenommen, daß sich die beiden Isotope bei der Deponierung und bei der Desorption der Schicht gleich verhalten. Das H/D-Verhältnis der Schichten ist trotz des Deuteriumplasmas nahe 1, da das Plasma durch die Neutralteilchenheizung mit Wasserstoff (H) angereichert wurde (H-in-D-Betrieb). Am Rand der Probe, in den Punkten o, p und w spiegelt der desorbierte Wasserstoff (H) dagegen zunehmend das mittlere, überall in der Probe vorliegende Volumeninventar wieder: Die Schichtdicke nimmt in Richtung dieser Punkte stark ab, und das H/D-Verhältnis steigt. Die gleiche Menge an Wasserstoff (H) wie in diesen Punkten konnte auch aus abgedeckten Stellen freigesetzt werden, die nicht dem direkten Teilchenfluß ausgesetzt waren. Die Freisetzung von Wasserstoff aus dem Graphitvolumen ist aufgrund der geringen Menge vernachlässigbar, d.h. das Wasserstoffinventar korreliert mit der Schichtdicke der a-C:H-Schicht. Der Grund für dieses geringe intrinsische Wasserstoffinventar liegt in der Vorbereitung der Proben: Sie waren vor dem Einbau in TEXTOR über mehrere Tage bei 1000°C ausgegast worden. Zusätzlich wurden nach dem Einsetzen der Proben in TEXTOR die späteren Desorptionsflecke und ihre Umgebung durch Laserbestrahlung ausgeheizt, indem die Oberfläche mit Laserpulsen vom Typ B abgerastert wurde.

In Abb. 6.18d sind neben den Resultaten aus der Laserdesorptionsmessung auch die colorimetrisch bestimmten Inventare der Meßpunkte aufgetragen. Mit der Colorimetrie wird zwar eine Schichtdicke gemessen, diese kann jedoch über ein Wasserstoffvolumeninventar in das abgebildete Flächeninventar umgerechnet werden. Dieser Vergleich zeigt, daß in der Colorimetriemessung die verschiedenen Ordnungen des Farbtonwinkels korrekt zugeordnet wurden. Insbesondere auf dem Plateau, das zwischen $x = 30$ mm und $x = 50$ mm zu beobachten ist, ist die Zuordnung unsicher.

Eine Besonderheit zeigt der tiefer im Plasma exponierte Bereich $r < 48.2$ mm. Dort ändern sich die Schichteigenschaften offensichtlich drastisch, was sich in Abb. 6.18e in der um den Faktor 2 bis 6 verminderten Freisetzung von Kohlenwasserstoffen zeigt, während gleichzeitig das lokale Wasserstoffinventar (Abb. 6.18d) zurückgeht. Hier erfolgt offenbar auf einer Strecke von 3 mm in radialer Richtung bzw. 5 mm auf der Probenoberfläche der Übergang von der

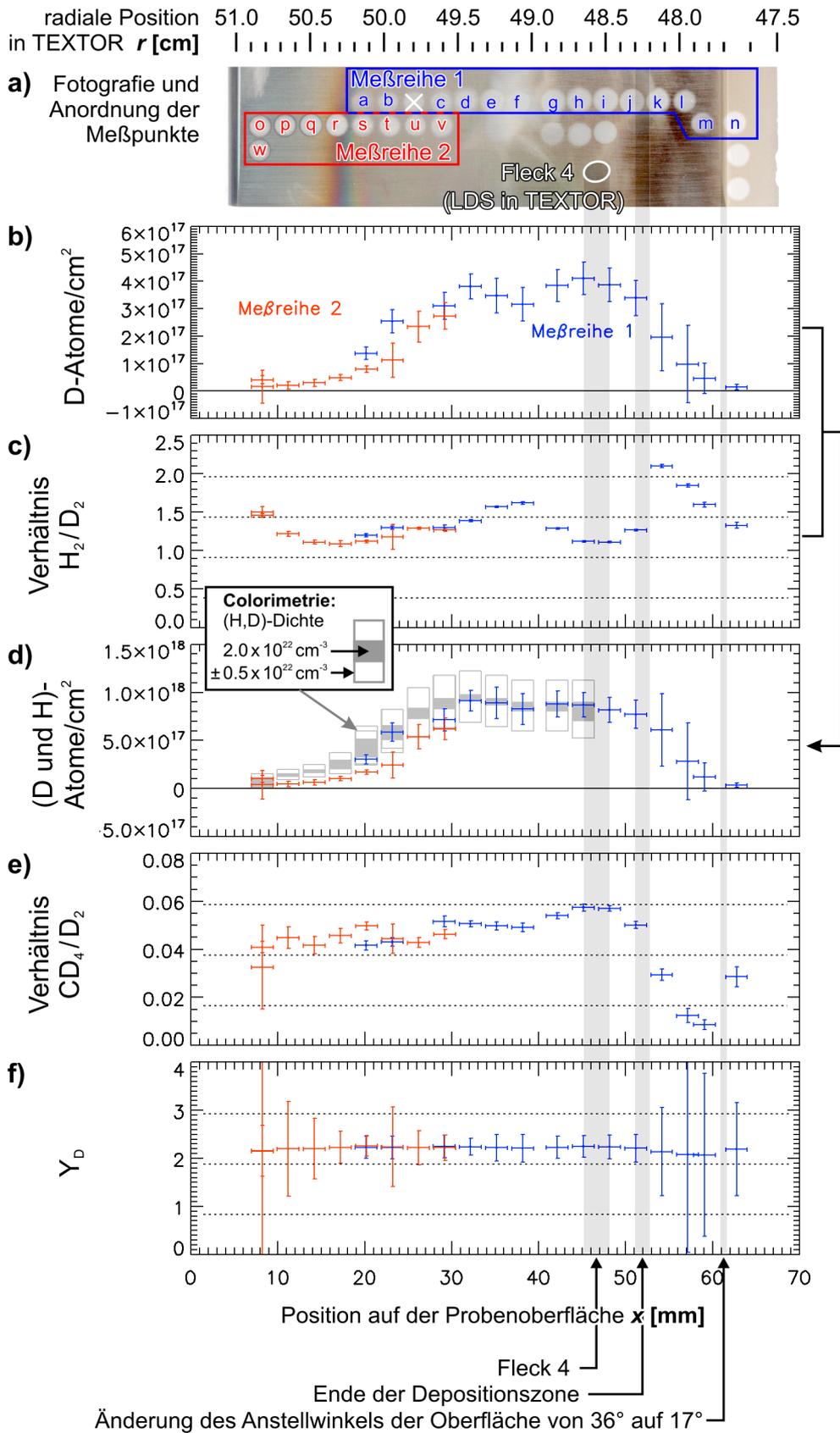


Abb. 6.18: Analyse der Probe aus Abb. 3.15a mittels Laserdesorption: a) Fotografie der Probe, b) bis f) Oberflächenprofil verschiedener Schichteigenschaften. Y_A wird hier explizit zu Y_D , da nur die deuterierten Spezies für die Auswertung verwendet wurden.

depositions- zur erosionsdominierten Zone. In der Erosionszone überwiegt infolge der hohen Wasserstoffionenflüsse das Abtragen von Material. Das dortige Wasserstoffinventar steht in einem dynamischen Gleichgewicht mit den auftreffenden Wasserstoffflüssen. Explizite LDS-Messungen des Wasserstoffinventars in der Erosionszone eines Graphitlimiters folgen in Kapitel 6.6.

Die Abbildung 6.18f zeigt die aus der Speziesverteilung ermittelte inverse atomare Ausbeute Y_D . In diesem Fall handelt es sich zunächst explizit um Y_D und nicht um Y_A , da für die Berechnung nach Gleichung (4.13) nur die deuterierten Spezies verwendet wurden. Im nächsten Schritt erfolgt die Annahme $Y_A = Y_D$. Großen Einfluß auf Y_A hat das Verhältnis von molekularem Wasserstoff und Kohlenwasserstoffen, das in Abb. 6.18e durch das CD_4/D_2 -Verhältnis repräsentiert wird. Werden weniger Kohlenwasserstoffe freigesetzt, so bewegt sich Y_A auf einen Wert von 2 zu, wie er für die reine Freisetzung von molekularem Wasserstoff anzunehmen wäre. Leider wächst mit dem Rückgang der freigesetzten Teilchenflüsse auch der relative Fehler bei ihrer Messung, was sich in einer stark wachsenden Unsicherheit bei der Berechnung von Y_A widerspiegelt.

Der in diesen Messungen in der Depositionszone gefundene Wert $Y_A = 2.22 \pm 0.02$ weicht signifikant von demjenigen ab, der für die vorbeschichteten Proben ermittelt wurde ($Y_A = 2.60 \pm 0.05$). Die in TEXTOR vorherrschenden Wasserstoffflüsse bewirken offenbar einen größeren Anteil an sp^2 -hybridisierten C-Atomen in der a-C:H-Schicht und entsprechend weniger alkanartige Strukturen. Als Schlußfolgerung ist für die verschiedenen Zonen der jeweils eigene Wert für Y_A zu verwenden. Neben den bereits genannten wird dies in der Erosionszone $Y_A = 2.1 \pm 0.1$ sein.

6.5.3 Vergleich der Resultate aus TEXTOR und aus den Nachuntersuchungen

Die Ergebnisse der LDS-Messung in TEXTOR und der Colorimetrie sind in Tabelle 6.4 und in Abb. 6.19 gegenübergestellt. Sie stimmen innerhalb der Fehlergrenzen überein, mit Ausnahme der Resultate im Fleck 5.

Bei der dritten LDS-Messung in Fleck 5 („Fleck 5 (3.)“) ergibt sich in der LDS-Messung ein erhöhter Wert, da der Laser nicht genau den alten Fleck traf, sondern um etwa 0.5 mm versetzt war, ca. 10% des Fleckdurchmessers.

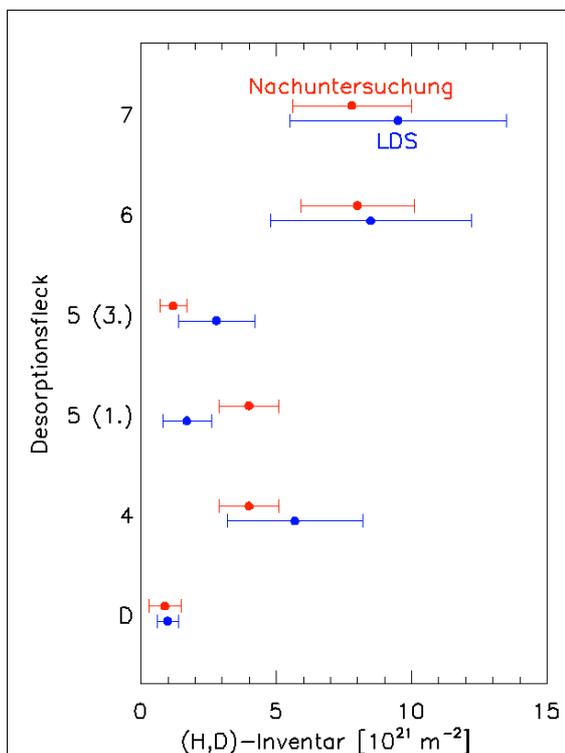


Abb. 6.19: Vergleich der Meßwerte aus der LDS-Messung in TEXTOR und der Nachuntersuchung

Fleck	D	4	5 (1.)	5 (3.)	6	7
Colorimetrie und LD ex-situ	0.9	4.0	4.0	1.2	8.0	7.8
Wasserstoffinventar [10^{21} Atome/m ²]	± 0.6	± 1.1	± 1.1	± 0.5	± 2.1	± 2.2
LDS	1.0	5.7	1.7	2.8	8.5	9.5
Wasserstoffinventar [10^{21} Atome/m ²]	± 0.4	± 2.5	± 0.9	± 1.4	± 3.7	± 4

Tab. 6.4: Vergleich der Resultate der LDS-Messung und der Nachuntersuchungen. Die dominierende (systematische) Unsicherheit bei der Colorimetrie ist das Wasserstoffvolumeninventar. Die Unsicherheit der LDS-Messung wird vor allem von der Sichtfeldkorrektur bestimmt.

Unter Berücksichtigung des zusätzlich desorbierten Wasserstoffs außerhalb des ursprünglichen Flecks stimmt das gemessene Wasserstoffinventar auch hier mit dem Resultat der Nachuntersuchungen überein.

Die erste LDS-Messung in Fleck 5 („Fleck 5 (1.)“) dagegen zeigt ein um den Faktor 2 bis 3 zu niedriges Wasserstoffinventar an. Als Ursache dieser Abweichung kommt lediglich eine Disruption der vorherigen Plasmaentladung infrage. Ein derartiger Effekt war jedoch in ähnlichen Fällen nicht zu beobachten.

Die In-situ-Messung des Wasserstoffinventars von a-C:H-Schichten auf plasmanahen Oberflächen war die Motivation für die Entwicklung dieser Meßmethode. Es konnte gezeigt werden, daß die Methode sehr gut für diese Aufgabe geeignet ist. Die beobachteten Meßunsicherheiten entstehen hauptsächlich durch Unzulänglichkeiten im aktuellen experimentellen Aufbau an TEXTOR. Diese können im Hinblick auf den Einsatz an ITER weitgehend vermieden werden.

6.6 In-situ Messung des Sättigungsinventars in der Erosionszone

Die laserinduzierte thermische Desorption soll nun verwendet werden, um das Wasserstoffinventar einer Graphitoberfläche in der Erosionszone zu bestimmen. Dort werden keine a-C:H-Schichten deponiert, die Oberfläche wird jedoch durch die einströmenden Wasserstoffionen mit Wasserstoff gefüllt. Das dadurch entstehende Wasserstoffinventar setzt sich aus einer langlebigen und einer flüchtigen Komponente zusammen. Die flüchtige Komponente, im folgenden dynamisches Inventar genannt, besteht aus Wasserstoffatomen, die in den Graphit eingebracht wurden, aber nicht gebunden sind, da sie keine Einfangstelle im Graphitgitter oder auf der inneren Oberfläche des Graphits gefunden haben. Nach kurzer Zeit rekombinieren sie mit einem zweiten Wasserstoffatom auf der Oberfläche des Graphits und werden als Moleküle freigesetzt. Bei Temperaturen größer als 1100 K werden zunehmend auch die Atome direkt freigesetzt. Die Atome benötigen eine gewisse Zeit, um an die Oberfläche der Graphitkörner zu diffundieren, daher wächst das dynamische Inventar mit der auftreffenden Ionenflußdichte. Das langlebige Inventar wird im weiteren Verlauf als statisches Inventar bezeichnet. Es wird gebildet, indem Wasserstoffatome des dynamischen Inventars an Fehlstellen des Graphitgitters eingefangen und chemisch an den Kohlenstoff

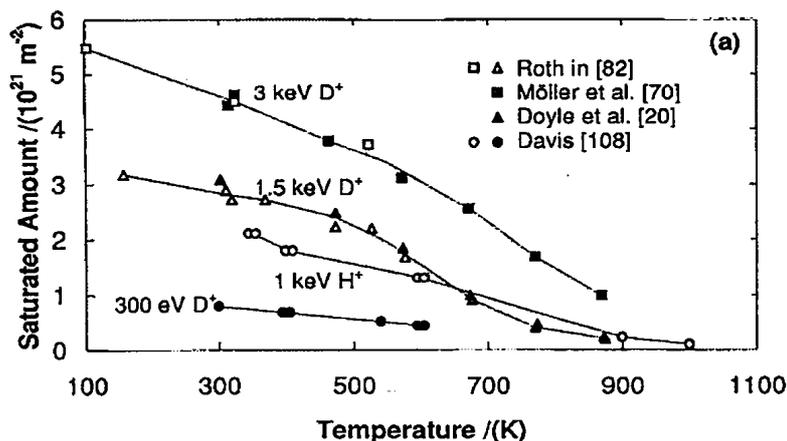


Abb. 6.20: Abhängigkeit des durch Ionenbeschuss implantierten langlebigen Wasserstoffinventars einer Graphitoberfläche von der Temperatur und der Energie der auftreffenden Ionen [Haa95]. Die Flüsse sind von der Größenordnung $10^{19} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$, die erzielten Fluenzen sind von der Größenordnung 10^{23} m^{-2} .

gebunden werden. Erst bei hohen Temperaturen (thermische Desorption) wird der gebundene Wasserstoff wieder mobilisiert. Zusätzliche Fehlstellen werden durch die auftreffenden Ionen und durch Fusionsneutronen erzeugt, wodurch die Fähigkeit des Graphits, Wasserstoff zu binden, mit zunehmender Plasmaexpositionszeit wächst. Es gibt umfangreiche Arbeiten [Dav95, Vie94], die die Einlagerung und die Reemission von Wasserstoff bei der Ionenstrahlimplantation in Graphitoberflächen untersuchten. Darauf aufbauend wurde in [Haa95] das gerade skizzierte Modell entwickelt. Die Bestimmung des eingelagerten Wasserstoffinventars erfolgt in diesen Untersuchungen in der Regel durch Ausgasen der Proben nach der Implantation, wobei nicht das dynamische, sondern das statische Inventar gemessen wurde. Dieses sinkt mit steigender Temperatur und mit abnehmender Ionenenergie, was in Abb. 6.20 gut zu erkennen ist.

In diesem Abschnitt wird nicht mehr zwischen einzelnen Wasserstoffisotopen unterschieden. Die Unterscheidung diente dazu, die vorherige Charakterisierung bzw. Nachuntersuchung von a-C:H-Schichten zu erleichtern. Dies ist nicht länger notwendig, da sich das während der Plasmaentladung vorliegende Sättigungsinventar jeder ex-situ-Analyse entzieht.

6.6.1 Plasmaparameter und Lage der desorbierten Fläche

Analog zu den Messungen in der Depositionszone wurde in der Plasmarandschicht von TEXTOR ein dachförmiger Testlimiter plaziert. Die Neigung des Daches beträgt 36° . Die Oberfläche des Limiters war im Plasma einem steten Strom von Ionen und Elektronen aus dem Plasma von bis zu $2.4 \times 10^{23} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ausgesetzt. Die radialen Positionen der desorbierten Stellen lagen stets bei $(48.2 \pm 0.2) \text{ cm}$, in einer Erosionszone. Die verwendeten Plasmaentladungen waren ohmsche Plasmen mit zugeschalteter NI-Heizung: Nach zwei Sekunden ohmschen Plasmas der Dichte $\bar{n}_e = 3.5 \times 10^{19} \text{ m}^{-3}$ (Plasmatyp A) wurde für drei Sekunden die NI-Heizung zugeschaltet (Plasmatyp B1).

Der Fluß der desorbierten Teilchen und somit das Emissionsleuchten ist ca. 10mal schwächer als bei der Desorption von Schichten in der Depositionszone und liegt damit nur wenig über dem H_α -Untergrund durch das Wasserstoffrecycling. Dieser ist von der gleichen Größenordnung wie bei den bisherigen Messungen, da der verursachende Fluß auf die Oberfläche vergleichbar ist. Die Beobachtung mit der Dalsa-Kamera wird daher an ihrer Empfindlichkeitsgrenze betrieben, und der in Kapitel 4 diskutierte zufällige Fehler wird die Meßunsicherheit dominieren. Die Meßunsicherheiten der Sichtfeldkorrektur V , der inversen atomaren Ausbeute Y_A sowie des Konversionsfaktors S/XB werden erst am Ende der Auswertung eine Rolle spielen, nämlich dann, wenn Inventare explizit als Ergebnis angegeben werden. Sämtliche Zwischenergebnisse werden ohne diese systematischen Fehler aufgeführt, da sie lediglich in Form von Verhältnissen ausgewertet werden.

Aufgrund der geringen Menge desorbierten Wasserstoffs muß die Änderung des Recyclingleuchtens abgeschätzt werden, die durch das Aufheizen der Oberfläche verursacht wird. Bei den hohen Temperaturen gegen Ende des Laserpulses wird der rezyklierende Wasserstoff in atomarer Form ins Plasma freigesetzt, wodurch das Recyclingleuchten um bis zu einem Faktor 2 verstärkt wird. Die Wasserstoffionenflußdichten in den Desorptionsfleck betragen bis zu $1.4 \times 10^{23} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$, seine Temperatur ist für 0.5 ms hoch genug, daß 50% des rezyklierenden Wasserstoffs atomar freigesetzt wird. Dadurch wird ein vermeintliches zusätzliches Inventar von $4 \times 10^{19} \text{ m}^{-2}$ gemessen, was noch einen Faktor 10 weniger als das kleinste gemessene Inventars ist. Das Emissionsleuchten wird also auch bei diesen Messungen von den desorbierten Teilchen bestimmt.

6.6.2 Vorgehensweise bei der Messung

Es soll der Aufbau des lokalen Wasserstoffinventars gemessen werden, d.h. die Abhängigkeit des gemessenen Inventars von der Flußdichte in den Desorptionsfleck und der Fluenz, der zeitlich integrierten Flußdichte. Für jede Desorptionsmessung wird daher die Fluenz bis zum Zeitpunkt der Desorption aus der Vorgeschichte des Desorptionsflecks ermittelt. Die anderen Größen, die das Wasserstoffinventar in der Oberfläche beeinflussen, sind die Energie der Wasserstoffionen aus dem Plasmafluß, die Temperatur der Oberfläche sowie der Graphittyp. Die Energieverteilung der Wasserstoffionen wird gemeinsam mit der Flußdichte durch den Wechsel zwischen zwischen der NI- und der OH-Phase des Plasmas verändert. Die Oberflächentemperatur erhöhte sich im Laufe des Experimentiertages von $(480 \pm 30) \text{ K}$ um 10 bis 30 K pro Plasmaentladung. Der exponierte Limiter bestand aus Graphit EK98.

Den zeitlichen Verlauf der Plasmaentladung und der Laserpulse zeigt Abb. 6.21. Aus der Vorgeschichte der Plasmaexposition vor den Laserpulsen ergeben sich verschiedene Pulstypen. Diese sind in Tabelle 6.5 zusammengefaßt. Der erste Puls innerhalb der Plasmaentladung muß weiter unterteilt werden, da hier drei verschiedene Vorgeschichten auftreten können, die als 1A, 1B und 1C bezeichnet werden. Puls 1A ist die Desorption eines Fleckes, der vor der Plasmaentladung vollständig von seinem Wasserstoffinventar befreit wurde, indem er durch mehrere lange Laserpulse aufgeheizt wurde. Im Fall von Puls 1B wurde der

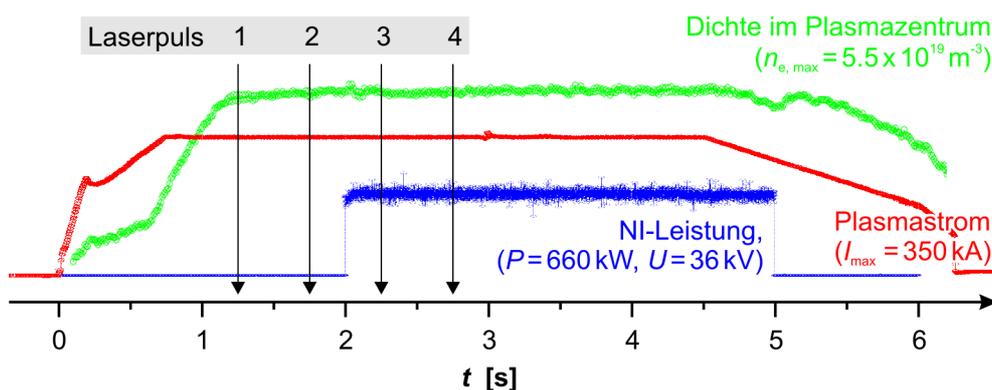


Abb. 6.21: Zeitliches Schema der Plasmaentladung.

Puls- typ	Art und Dauer der Plasmaexposition vor der Laserdesorption des Flecks	Fluenz [10^{23} m^{-2}]	Flußdichte [$10^{23} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$]
1A	1.0 s Typ A (OH)	0.8	0.8
1B	2.25 s Typ B1 (NI), 0.5 s Typ B2 (OH) 1.0 s Typ A (OH),	4.2 *	0.8 **
1C	variabel	variabel *	0.8 **
2	0.5 s Typ A (OH)	0.4	0.8
3	0.25 s Typ A (OH), 0.25 s Typ B1 (NI)	0.6	1.4 **
4	0.50 s Typ B1 (NI)	0.7	1.4

Tab. 6.5: Plasmaexposition vor der Laserdesorption für das Schema in Abb. 6.21, sowie die D^+ -Fluenzen und D^+ -Flußdichten zum Zeitpunkt der Desorption.

* Die Fluenzen von Puls 1B und 1C wurden innerhalb zweier bzw. mehrerer Plasmaentladungen akkumuliert.

** Bei den Pulsen 1B, 1C und 3 war die Flußdichte in den Desorptionsfleck vor der LDS-Messung zeitweise eine andere als während der Messung

Fleck vor der Entladung nicht aufgeheizt, es handelt sich jedoch um einen während der vorherigen Plasmaentladung desorbierten Fleck, d.h. das Wasserstoffinventar konnte sich seit dem vierten Puls der vorigen Entladung aufbauen. Für die Interpretation von Puls 1B ist jedoch zu bedenken, daß in der Pause zwischen den beiden Entladungen ein Teil des eingelagerten Wasserstoffs ausgegast ist. Puls 1C ist die Desorption eines neuen Flecks auf der Limiteroberfläche. Das dort gemessene Inventar setzt sich aus drei Komponenten zusammen: Die Vorgeschichte reicht bis zu der Deuterium-Glimmentladung, durch die ein statisches Anfangsinventar in der Oberfläche deponiert wurde, d.h. die Wasserstoffatome sind in Kristallgitter der Graphitkörner gefangen oder tiefer in das Graphitvolumen diffundiert. Dieses Inventar geht nicht oder nur gering zurück, sobald die Beaufschlagung mit Wasserstoffionen gestoppt wird. Neben diesem statischen Inventar wird im Puls 1C auch aus dem tieferen Volumen des Graphits unterhalb der Implantationszone Wasserstoff freigesetzt. Der Graphit der Testlimiter weist durch den Herstellungsprozeß bereits ein Wasserstoffinventar von $(3 \pm 2) \times 10^{15} \text{ m}^{-2} \text{ nm}^{-1}$ auf. Dieser Wert stammt aus Laserdesorptionmessungen von unbeschichtetem Graphit im Laborexperiment bei 300 K Anfangstemperatur. In den

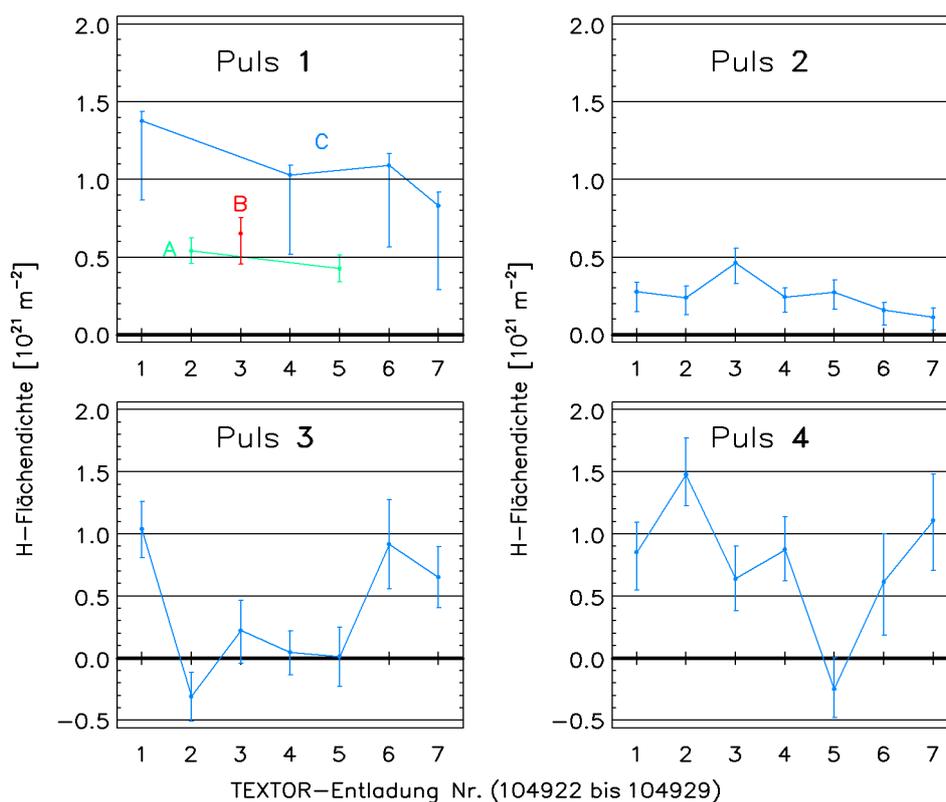


Abb. 6.22: Wasserstoffinventar, **gemessen** während mehrerer Entladungen nach dem Schema aus Abb. 6.21. Die Fehlerbalken geben den zufälligen Fehler infolge der H_{α} -Untergrundfluktuationen wieder sowie Unsicherheiten infolge des Restinventars im Fleckrand und des Anfangsinventars im Graphitvolumen.

Messungen in TEXTOR wird ein Volumen von 0.2 bis 0.5 mm³ unterhalb des 6 mm² großen Laserflecks ausgegast, somit ist ein Untergrund durch das intrinsische Inventar von $(2.5 \pm 2) \times 10^{20} \text{ m}^{-2}$ zu erwarten. Die dritte Komponente ist das dynamische Inventar, das sich während der aktuellen Plasmaentladung aufgebaut hat. Dieses ist maximal von der Größe des im Puls 1A gemessenen Inventars.

6.6.3 Ergebnisse und Diskussion

In Abb. 6.22 sind die gemessenen Wasserstoffinventare nach dem Pulstyp getrennt aufgetragen. Die horizontale Achse gibt die Nummer der Plasmaentladung an dem Meßtag an. Bei Puls 1C ist zu beachten, daß das geschätzte freigesetzte Volumeninventar in den Fehlerbalken berücksichtigt wurde, wodurch diese auffällig asymmetrisch wurden. Der Schätzwert des Volumeninventars basiert auf dem mittleren Inventar, das in Labormessungen aus Graphit freigesetzt wurde. In den Fehlerbalken aller anderen Meßpunkten wurde das Restinventar berücksichtigt, das nach der vorhergegangenen Desorption im Rand des Desorptionsflecks verblieb. Nach den Erfahrungen aus Labormessungen beträgt das Restinventar $(8 \pm 2)\%$ des zuvor gemessenen Inventars.

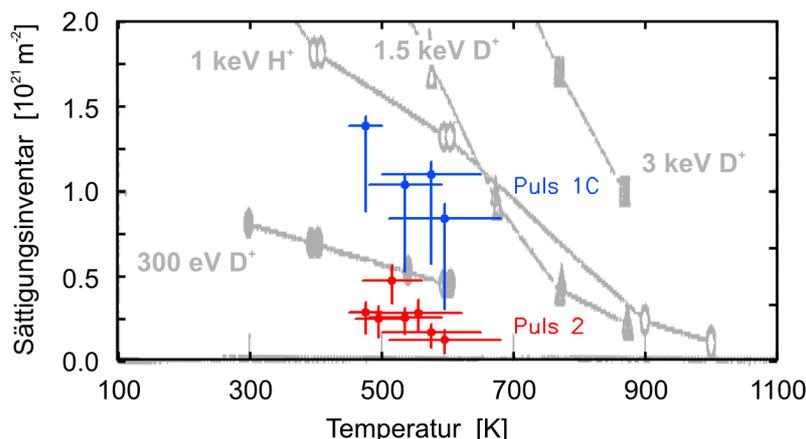


Abb. 6.23: Temperaturabhängigkeit des Inventars, das in der Limiteroberfläche durch die Deuterium-Glimmentladung aufgebaut wurde und während der Plasmaentladung infolge der hohen Oberflächentemperatur zurückgeht. Das unterlegte Bild zeigt einen Ausschnitt aus Abb. 6.20.

Temperaturabhängigkeit des Inventars

Das mit Puls 1C gemessene Inventar eines jeweils neuen Flecks nahm während des Meßtags ab. Dieser Rückgang kann auf die steigende Temperatur des Limiters zurückgeführt werden. In Abb. 6.23 sind die in Puls 1C und Puls 2 gemessenen Inventare über der Temperatur aufgetragen. Die einzelnen Beiträge des gemessenen Inventars werden vermutlich nicht gleich stark durch die höhere Temperatur reduziert: Das Volumeninventar geht in diesem Temperaturbereich vermutlich um weniger als 10% zurück, wie Labormessungen der thermischen Desorptionsspektroskopie (TDS) zeigen. Es wird daher über alle Plasmaentladungen hinweg als konstant angenommen. Für das statische Inventar ist die Abnahme mit steigender Temperatur aus Literaturdaten bekannt. Dies sind die in Abb. 6.23 grau unterlegten Graphen, die bereits in Abb. 6.20 gezeigt wurden. Das Inventar, das sich während der Plasmaexposition aufbaut, zeigt möglicherweise ebenfalls eine Abnahme mit steigender Temperatur, wie in den Meßergebnissen von Puls 2 zu sehen ist: Auch sie nehmen während des Tages ab. Die Streuung und die Meßfehler der Meßwerte von Puls 2 sind leider zu groß, um sichere quantitative Aussagen zu ermöglichen. Die in Puls 1C gemessenen Inventare gehen um 25% pro 100 K Temperaturerhöhung zurück. Um diesen Temperatureffekt während der folgenden Diskussion auszublenden, werden sämtliche Meßergebnisse mit einem Faktor

$$k = 0.64 + 0.070 \times (\text{jeweilige Schußnummer}) \quad (6.9)$$

multipliziert, womit sie auf die Werte verschoben werden, die bei einer Temperatur von (540 ± 40) K zu vermuten sind. Diese korrigierten Meßwerte sind in Abb. 6.24 zu sehen. Die Temperaturkorrektur kann alternativ auch auf Basis der Meßwerte aus Puls 2 erfolgen ($k = 0.37 + 0.131 \text{ Schußnr.}$). In Abb. 6.24 sind die dann erhaltenen korrigierten Meßwerte gestrichelt eingezeichnet. Für die weitere Diskussion werden die Mittelwerte der korrigierten Meßwerte verwendet, die in Abb. 6.25 aufgetragen sind. Ob die Temperaturkorrektur auf Basis von Puls 1C oder Puls 2 erfolgt ändert nichts an der folgenden Diskussion. Die bei der Korrektur über Puls 2 erhaltenen Mittelwerte wären lediglich um $(10 \pm 5)\%$ niedriger als die, die aus der auf Puls 1C basierenden Korrektur hervorgehen.

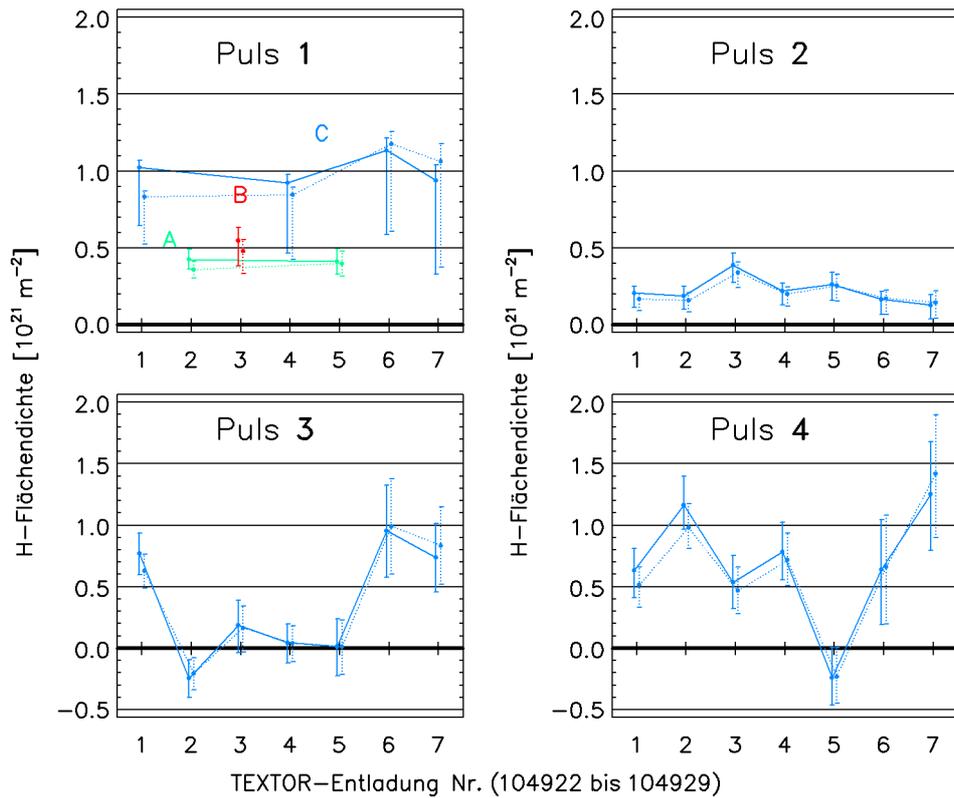


Abb. 6.24: Wasserstoffinventar wie in Abb. 6.21, **korrigiert** um den oberflächentemperaturbedingten Abfall mit steigender Entladungsnummer. (linearer Fit an Puls 1C)

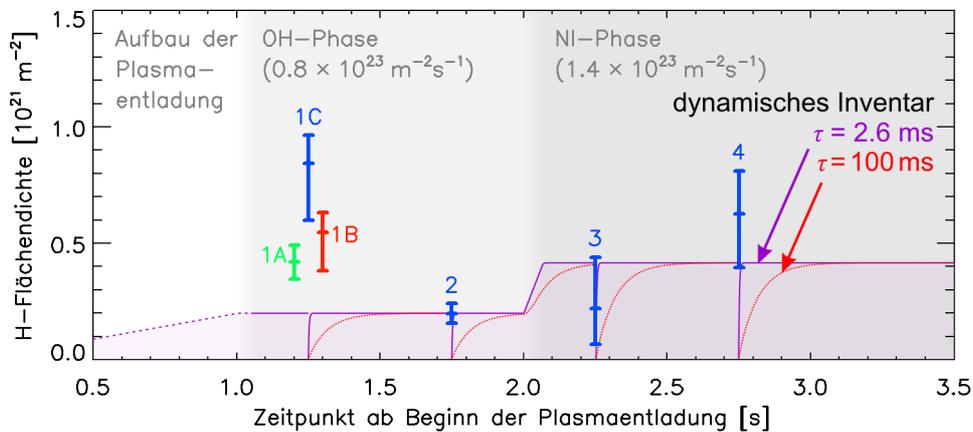


Abb. 6.25: Mittelwerte der temperaturkorrigierten Inventare aus Abb. 6.24, aufgetragen über der Zeit innerhalb der Plasmaentladung. Die Meßpunkte des ersten Laserpulses sind je nach Vorgeschichte (A, B, C) versetzt eingezeichnet. Für verschiedene Ausgaszeiten ist die Entwicklung des dynamischen Wasserstoffinventars eingezeichnet.

Anhand der in Abb. 6.25 gezeigten gemittelten und temperaturkorrigierten Meßwerte kann die Entwicklung des dynamischen und des statischen Wasserstoffinventars ermittelt werden, indem das Ausgasverhalten untersucht wird.

Den Pulsen 1A und 1B ist gemein, daß sie zu Beginn einer Plasmaentladung in einem Fleck messen, der bereits zuvor desorbiert wurde. Bei Puls 1B erfolgte die letzte Desorption durch einen Puls 4 während der letzten Plasmaentladung, bei Puls 1A erfolgte die letzte Desorption dagegen während der Pause zwischen der vorigen und der aktuellen Plasmaentladung. Die

Differenz der beiden Meßwerte muß folglich das langsam wachsende statische Inventar sein, das am Ende der Pause, vor der aktuellen Plasmaentladung, noch in der Oberfläche vorlag. Es beträgt $(0.7 \pm 1.4) \times 10^{20} \text{ m}^{-2}$. Vor der Pause, d.h. am Ende der vorigen Plasmaentladung, enthielt die Oberfläche noch mindestens das Inventar das in Puls 4 gemessen wurde, dies sind $(6 \pm 2) \times 10^{20} \text{ m}^{-2}$. Demzufolge reduziert sich das Wasserstoffinventar der Oberfläche um etwa einen Faktor 10 innerhalb von 6 Minuten nach dem Ende der Plasmaentladung. Diese Zeit verstrich im diskutierten Fall zwischen den beiden Plasmaentladungen. Das Wasserstoffinventar, das in den Pulsen 2, 3 und 4 gemessen wurde, ist daher ein rein dynamisches Wasserstoffinventar, das nach dem Ende der Plasmaentladung zurückgeht.

Mit einigen zusätzlichen Überlegungen kann die Ausgaszeit des dynamischen Inventars präzisiert werden. Es wird die Annahme gemacht, daß sich das dynamische Inventar zum Zeitpunkt der Messung zu mehr als 95% in Sättigung befand. Dies ist nach dem 3fachen der Ausgaszeit der Fall, nach dem Modell, daß das Inventar sich exponentiell seiner Sättigung nähert. Die Annahme ist erfüllt, falls die Ausgaszeit kleiner als 160 ms (für Puls 2 und 4) bzw. 80 ms (für Puls 3) ist. Die Ausgaszeit, d.h. die mittlere Aufenthaltszeit der Wasserstoffatome in der Graphitoberfläche, ergibt sich dann aus dem Quotienten der Flußdichte und des gemessenen Wasserstoffinventars. Aus den gemessenen Inventaren ergeben sich folgende Ausgaszeiten: 2.5 ms (Puls 2), 1.6 ms (Puls 3), 4.5 ms (Puls 4). Der fehlergewichtete Mittelwert ist $2.6_{-0.7}^{+1.0} \text{ ms}$. Das dynamische Inventar wird demnach stets in seinem Gleichgewichtszustand gemessen.

Das dynamische Inventar, das der Ausgaszeit von 2.6 ms entspricht, zeigt die violette Kurve in Abb. 6.25. In der NI-Phase beträgt das dynamische Inventar $4.2_{-2.1}^{+1.6} \times 10^{20} \text{ m}^{-2}$, bei einer Wasserstoffionenflußdichte von $1.4 \times 10^{23} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ und einer Elektronentemperatur von 47 eV. In der OH-Phase können Puls 1A und Puls 2 für das dynamische Inventar ausgewertet werden, die übrigen Pulse dagegen (1B und 1C) enthalten auch einen Anteil des statischen Inventars. Puls 1A und 2 weichen jedoch signifikant voneinander ab. Die Abweichung ist nicht statistischer Natur, das Modell eines rein dynamischen Inventars mit einer Ausgaszeit von 2.6 ms liefert jedoch keine Erklärung für eine Abweichung zwischen den beiden Pulsen. Da die Plasmabedingungen für einen Zeitraum von mehr als 10 ms vor beiden Messung gleich sind, sollten dem Modell zufolge beide das gleiche Resultat zeigen. Während der Aufbauphase des Plasmas wurde anscheinend ein Inventar in der Graphitoberfläche aufgebaut, das mit einer längeren Zeitkonstante ausgast als das dynamische Inventar. Für genauere Aussagen sind allerdings weitere Messungen notwendig.

Ein Vergleich mit den Resultaten anderer Experimente [Kre07] erfolgt in Abb. 3.26. Die Wasserstoffinventare sind dort als Funktion der Fluenz aufgetragen. Die Fluenz wurde für sämtliche Datenpunkte auf die gleiche Weise ermittelt, nämlich aus den Dichte- und Temperaturprofilen, die mit der thermische Heliumstrahldiagnostik an TEXTOR gemessen wurden. Die Datenpunkte aus [Kre07] stammen vom gleichen exponierten Dachlimiter. Sämtliche Meßpunkte liegen innerhalb der Erosionszone. Zwischen den Meßpunkten variiert die radiale Position im Plasma und damit die Fluenz. Mit der radialen Position, d.h. von der

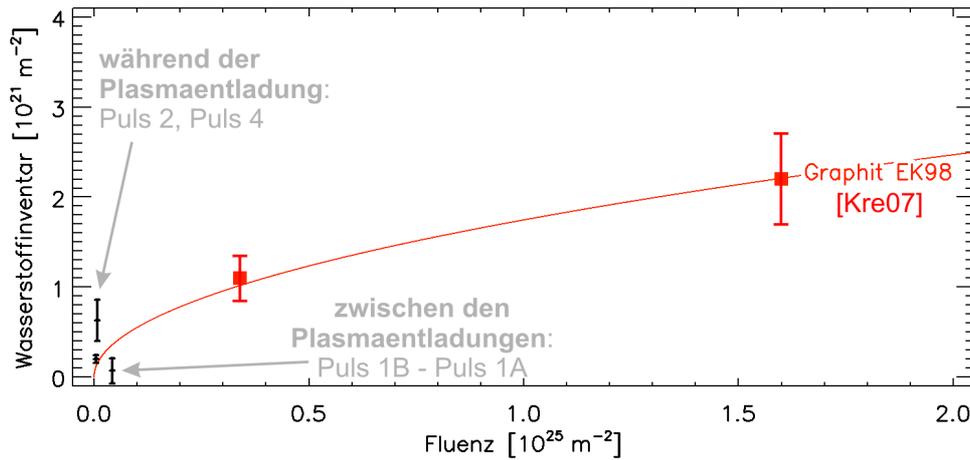


Abb. 6.26: Vergleich der hier gemessenen Wasserstoffinventare mit Resultaten aus [Kre07] (rot). Bei den LDS-Messungen ist eine zusätzliche systematische Meßunsicherheit (infolge V und $(S/XB)_{\text{eff}}$) von $\pm 40\%$ zu berücksichtigen

niedrigen nach der hohen Fluenz variierten die Plasmatemperatur von $T_e = 45 \text{ eV}$ bis 40 eV und die Plasmadichte von $n_e = 1.0 \times 10^{19} \text{ m}^{-3}$ bis $n_e = 3 \times 10^{18} \text{ m}^{-3}$. Die Teilchenenergie ist daher vergleichbar mit der, die bei Puls 3 und 4 vorlagen. Das Inventar, das sich in der Erosionszone aufbaut, skaliert mit der Wurzel der Fluenz. Eine entsprechende Fitkurve ist an die TDS-Datenpunkte gezeichnet. Die LDS-Meßwerte aus Puls 2 und 4 sind als einzige während der Plasmaentladung gemessen. Sie liegen über dem Inventar, das nach den Daten aus [Kre07] zu erwarten ist. Das Inventar dagegen, das zwischen den Plasmaentladungen vorlag, stimmt innerhalb der Meßunsicherheit mit dem langfristigen Inventar überein.

Die gemessenen dynamischen Inventare sind in Abb. 6.27 als Funktion der Ionenflußdichte und der Elektronentemperatur aufgetragen. In erster Näherung wächst das dynamische Inventar linear mit der Flußdichte. Mit der LDS steht nun eine Meßmethode zur Verfügung, mit dem diese Abhängigkeit detailliert untersucht werden kann.

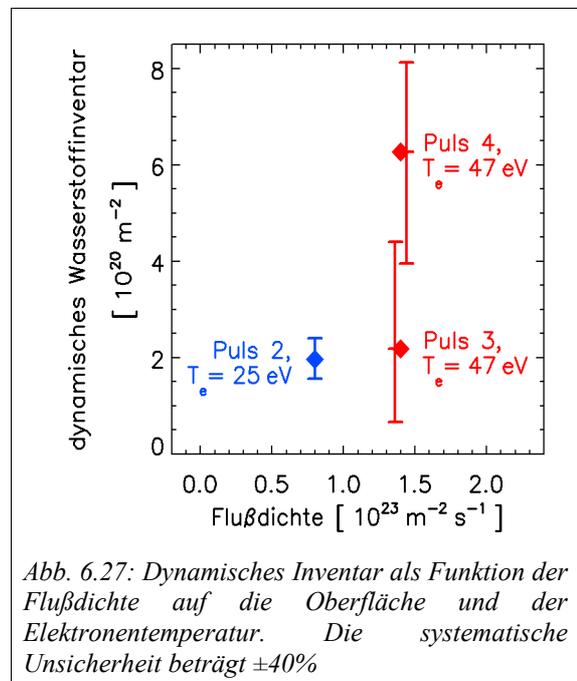


Abb. 6.27: Dynamisches Inventar als Funktion der Flußdichte auf die Oberfläche und der Elektronentemperatur. Die systematische Unsicherheit beträgt $\pm 40\%$

6.7 Fazit

Das Ziel der Messungen an TEXTOR bestand darin, die Grenzen der Laserdesorptionsspektroskopie (LDS) auszuloten und ihre Anwendung zu demonstrieren. Es konnte gezeigt werden, daß die quantitative Bestimmung des Wasserstoffinventars reproduzierbar und mit guter Genauigkeit erfolgen kann. Die LDS-Messung ist dabei nicht auf die Wasserstoffinventare beschränkt, die innerhalb von a-C:H-Schichten gebunden sind. Auch Wasserstoff, der in geringer Konzentration in einer Oberfläche implantiert ist, kann quantitativ gemessen werden. Die Meßmethode wurde erfolgreich an Graphit und an dünnen a-C:H-Schichten auf Graphitsubstraten angewendet. In ITER können bereits nach den ersten Minuten einer Plasmaentladung dickere Schichten entstehen, als dies in TEXTOR getestet wurde. Das Desorptionsverhalten dickerer Schichten muß daher in den kommenden Jahren ebenfalls untersucht werden.

Bei der Durchführung einer LDS-Messung sind verschiedene Punkte zu beachten, die im folgenden erläutert werden.

Die Graphitoberfläche muß auf eine Temperatur von 1400 K bis 2100 K aufgeheizt werden. Bei Unterschreiten dieses Temperaturbereichs erfolgt keine vollständige Desorption, beim Überschreiten kommt es zur Verfälschung der emissionsspektroskopischen Messung im Plasma durch einen erneuten Anstieg des Meßsignals, unabhängig vom desorbierten Wasserstoffinventar. Das Überschreiten der Temperaturobergrenze kann toleriert werden, falls die spektroskopische Beobachtung schnell genug ist (≤ 0.4 ms), um den Wiederanstieg des Emissionsleuchtens zeitlich aufzulösen. Zur Festlegung der Laserpulsparameter wird zunächst die nötige Temperaturerhöhung ermittelt, im zweiten Schritt wird die Pulsdauer gewählt. Bei größerer Pulsdauer dringt wie Wärmewelle tiefer in das Substrat ein, was jedoch auch einen zunehmend inhomogen geheizten bzw. inhomogen desorbierten Desorptionsfleckrand zur Folge hat.

Das Resultat einer LDS-Messung ist eine Anzahl beobachteter H_α -Photonen $N_{H\alpha}$. Diese wird mittels verschiedener Konversionsfaktoren umgerechnet in die Anzahl freigesetzter Atome N_H . Zusammen mit der desorbierten Fläche A resultiert daraus das Wasserstoffinventar der Probenoberfläche, die Wasserstoffflächendichte N_H/A

$$\frac{N_H}{A} = N_{H\alpha} \frac{S}{XB} Y_A V \frac{1}{A} . \quad (6.10)$$

Die übrigen Konversionsfaktoren sind die inverse Photoneneffizienz S/XB , die inverse atomare Ausbeute Y_A sowie die Sichtfeldkorrektur V . Der Konversionsfaktor S/XB dient zur Umrechnung der gemessenen Photonenflüsse in die atomaren Wasserstoffflüsse. Für die Angabe von S/XB müssen die Elektronendichte und die -temperatur am Ort der Desorption bekannt sein. Der Konversionsfaktor Y_A ist der Kehrwert der Ausbeute neutraler Wasserstoffatome aus den freigesetzten Molekülen (H_2 , CH_4 , C_2H_4 , ...), wenn diese im Plasma zerfallen. In Y_A geht die Zusammensetzung der freigesetzten Moleküle ein. Das Produkt aus Y_A und S/XB wird auch als $(S/XB)_{eff}$ bezeichnet. Es wird mit Hilfe des Neutralteilchentransportcodes

EIRENE für die verschiedenen freigesetzten Molekülarten berechnet. Die Sichtfeldkorrektur V ist der Quotient aus emittiertem und beobachtetem Emissionsleuchten. Sie wird durch den gegebenen experimentellen Aufbau bestimmt. Auch für die Ermittlung von V kommt der EIRENE-Code zum Einsatz.

Bei der Desorption einer unbekanntes Oberfläche müssen daher Annahmen über die Zusammensetzung der freigesetzten Spezies gemacht werden, um das gemessene Emissionsleuchten korrekt zu interpretieren: Eine stärkere Freisetzung von Kohlenwasserstoffen wird zu einem höheren Y_A bzw. einem höheren $(S/XB)_{eff}$ und möglicherweise einer anderen Sichtfeldkorrektur führen.

7. Zusammenfassung

Mit dem zur Zeit im Bau befindlichen Fusionsexperiment ITER soll demonstriert werden, daß die Kernfusion als zuverlässige Energiequelle dienen kann. An plasmabegrenzenden Komponenten in ITER werden Energieflüsse von kurzzeitig bis zu 25 MW/m^2 erwartet, weshalb dort der Einsatz von kohlefaserverstärktem Graphit geplant ist. Die Verwendung von Kohlenstoff hat zur Folge, daß amorphe Kohlenwasserstoffschichten (a-C:H-Schichten) auf der Innenwand des Reaktors deponiert werden, die eine beträchtliche Menge an Wasserstoff einschließen können. In ITER wird dies zu einem stetig wachsenden Tritiuminventar bis hin zum Überschreiten der Sicherheitsgrenze von 350 g im Reaktorgefäß führen. Die Größe des Inventars kann durch Bilanzierung des eingelassenen, fusionierten und abgepumpten Wasserstoffs bestimmt werden – für die flexible Messung seiner räumlichen Verteilung auf den plasmanahen Oberflächen und der zeitlichen Dynamik der Deposition fehlt jedoch bislang eine Diagnostik.

Die vorliegende Arbeit schließt diese Lücke. Zu diesem Zweck werden zwei etablierte Meßmethoden eingesetzt, die thermische Desorption, für die hier laserinduziertes Aufheizen zum Einsatz kommt (Nd:YAG, $\lambda = 1064 \text{ nm}$), sowie die passive H_α -Emissionsspektroskopie an Wasserstoffatomen. Die Kombination beider, die Laserdesorptionsspektroskopie (LDS, auch LID), konnte erfolgreich für verschiedene In-situ-Messungen in TEXTOR eingesetzt werden.

Eine LDS-Messung erfolgt in zwei Schritten: Die Oberfläche der zu untersuchenden plasmanahen Oberfläche wird während der Plasmaentladung durch einen Laserpuls auf einer Fläche von einigen Quadratmillimetern auf 1400 bis 2100K aufgeheizt. In der Oberfläche gefangener Wasserstoff wird infolge des Aufheizens in das Plasma freigesetzt, wo er elektronisch angeregt wird und Linienstrahlung emittiert. Dieses Emissionsleuchten wird quantitativ gemessen und mittels zweier Konversionsfaktoren in die Anzahl freigesetzter Wasserstoffatome umgerechnet.

Die freigesetzten Teilchenflüsse wurden zeit- und temperaturlaufgelöst gemessen. Der Vergleich zwischen dem langsamen Ausheizen der gesamten Probe mit niedriger Heizrate und der laserinduzierten Desorption einer dünnen Oberflächenschicht zeigt eine Übereinstimmung des Zeitverlaufs der Teilchenflüsse im Rahmen der Meßunsicherheit. Auch für die Laserdesorption gelten daher die etablierten Vorstellungen der Desorptionsprozesse: Während des Aufheizens kommt es ab einer Temperatur von 700 K zur Freisetzung von Kohlenwasserstoffen aus der Schicht. Dabei verlassen zunächst sp^3 -gebundene Kohlenstoffatome die Schicht. Der Anteil sp^2 -gebundener Kohlenstoffatome steigt, und die Schicht verliert ihre optische Transparenz. Oberhalb von 900 K überwiegt die Freisetzung von molekularem Wasserstoff. Zwischen 1100 K und 1700 K erfolgt der kontinuierliche Übergang

von der molekularen zur atomaren Wasserstofffreisetzung. Die Freisetzung von atomarem Wasserstoff ist jedoch vernachlässigbar, da die Schicht bei Erreichen der nötigen Temperaturen bereits nahezu vollständig entleert ist.

Über die Änderung der optischen Transparenz wird ein Fleckrand definiert, der in guter Näherung ($\pm 10\%$) die effektiv desorbierte Fläche begrenzt. Durch eine Temperatursimulation können die desorbierte Fläche und auch das desorbierte Substratvolumen genauer ermittelt werden.

Die Temperaturentwicklung in der bestrahlten Probe wurde mit Hilfe einer dreidimensionalen numerischen Simulation berechnet, um detailliert die desorbierten Flächen und Volumina beschreiben zu können. Für Schichten dünner als $10\ \mu\text{m}$ genügt es, den Temperaturverlauf auf der Oberfläche zu beschreiben, da sie in die Tiefe annähernd homogen aufgeheizt werden. Die Wärmeleitung parallel zur Oberfläche führt zu einem kontinuierlichen Abfall der Oberflächentemperatur über den Rand des bestrahlten Flecks hinweg. Diese Unschärfe in der Temperatur hat eine Unschärfe im Desorptionsgrad zur Folge, die mit der Dauer des Laserpulses steigt. Unabhängig von der Laserpulsdauer hat sie ein Minimum, wenn am Ort des steilsten Temperaturgradienten etwa die Hälfte des Wasserstoffs freigesetzt wurde. Dies ist für eine a-C:H-Schicht mit $H/C=0.6$ bei einer Temperatur von 800 bis 900 K der Fall. Mit abnehmendem H/C-Verhältnis erhöht sich diese Temperatur bis auf etwa 1000 K. Der steilste Temperaturgradient befindet sich stets dort, wo die Temperatur die Hälfte der Temperaturerhöhung des Fleckzentrums beträgt.

Für die LDS-Messung auf Graphit muß eine Temperaturobergrenze von $T_{max}=(2250\pm 150)\text{K}$ eingehalten werden, sofern das Emissionsleuchten nicht hinreichend zeitlich aufgelöst wird: Nach Überschreiten von T_{max} wird eine zusätzliche H_α -Emission gemessen, die nicht von dem Wasserstoffinventar in der Oberfläche abhängt und die emissionsspektroskopische Messung verfälscht. Die Ursache ist möglicherweise sublimierender Kohlenstoff, der das Plasma lokal kühlt, was zu einer effektiveren Anregung des rezyklierenden Wasserstoffs führt.

Mit dem Wissen um die Desorptionsprozesse und die Temperaturentbreitung kann ein Standard-Laserpuls für die Laserdesorptionsmessungen festgelegt werden. In dieser Arbeit wurde eine Pulsdauer von 1.5 ms und einer Leistungsdichte auf der Probenoberfläche von 700MW/m^2 gewählt. Dieser Standardpuls muß lediglich bei sehr hohen Probenoberflächentemperaturen angepaßt werden, um T_{max} nicht zu überschreiten. Bei einem Einsatz an ITER können die Leistungsdichte niedriger und die Pulsdauer länger gewählt werden: Der Laserfleck wird vermutlich nicht so scharf abgebildet werden können wie in TEXTOR, weshalb die Wärmeleitung parallel zur Oberfläche keine zusätzliche Unschärfe des Fleckrands erzeugt.

Die quantitative Messung des freigesetzten Wasserstoffs mittels passiver H_α -Emissionsspektroskopie erfordert, das gesamte H_α -Emissionsleuchten der freigesetzten Teilchen zu erfassen. Die Umrechnung der gemessenen Photonenzahlen in die freigesetzte Wasserstoffmenge erfolgt mit Hilfe des Konversionsfaktors $(S/XB)_{eff}$. Dieser hängt ab von Plasmatemperatur und -dichte am Ort der Emission sowie von den Anteilen, die die einzelnen freigesetzten Spezies

(H₂, CH₄, etc.) an der Gesamtfreisetzung haben. Er ist das Produkt aus S/XB , der inversen Photoneneffizienz (ionisierte Atome pro Photon) der Wasserstoffatome, und Y_A , der inversen atomaren Ausbeute an Wasserstoffatomen aus dem Zerfall der freigesetzten Moleküle. S/XB wird vor allem durch die Plasmadichte bestimmt, Y_A durch die Zusammensetzung der freigesetzten Moleküle und deren Zerfallsweg. Es wurde stets nur 20–40% des gesamten Emissionsleuchtens beobachtet. Der nichtbeobachtete Anteil wurde durch Simulationen des Emissionsleuchtens mit Hilfe des Monte-Carlo-Neutralteilchentransportcodes EIRENE ermittelt. Die EIRENE-Simulationen ermöglichten zusätzlich die Berechnung von $(S/XB)_{eff}$ für die jeweils simulierte LDS-Messung. Diese Werte dienen jedoch nur als Vergleichsgrößen für die $(S/XB)_{eff}$ -Werte, die in TEXTOR bei der Desorption präparierter a-C:H-Schichten bei repräsentativen Plasmabedingungen gemessen wurden. Diese gemessenen $(S/XB)_{eff}$ -Werte wurden für die Messung des Wasserstoffinventars von Schichten verwendet, die in TEXTOR aufgewachsen waren. Entsprechend des sich ändernden Faktors Y_A , wurden die gemessenen $(S/XB)_{eff}$ -Werte dafür modifiziert. Y_A wurde bei Nachuntersuchungen der desorbierten Schichten außerhalb TEXTORs ermittelt.

Die Meßunsicherheit der LDS-Messung setzt sich zusammen aus den Fehlern der Emissionsmessung, der Fleckgröße, der Sichtfeldkorrektur und dem Fehler von $(S/XB)_{eff}$. Der zufällige Fehler der Emissionsmessung beträgt $\pm 10^{13}$ Photonen, was in dieser Arbeit im Mittel einem Wasserstoffinventar von $8 \times 10^{19} \text{ m}^{-2}$ bzw. einer Schicht von weniger als 5 nm Dicke entspricht. Ein stark fluktuierender Plasmalichtuntergrund kann diesen Fehler auf das Vierfache wachsen lassen. Der *gesamte* systematische Fehler einer LDS-Messung beträgt $\pm 50\%$ bis $\pm 60\%$: Die Größe der desorbierten Fläche kann auf ca. $\pm 10\%$ genau bestimmt werden. Die Unsicherheit von Y_A , mit dem das Ausgasverhalten der jeweiligen Oberfläche berücksichtigt wird, beträgt $\pm 3\%$. Falls keinerlei Informationen oder Erfahrungswerte über das Ausgasverhalten der Oberfläche vorliegen, so trägt Y_A mit $\pm 11\%$ zur Meßunsicherheit bei. Der Fehler des Produkts aus der Sichtfeldkorrektur und den gemessenen $(S/XB)_{eff}$ -Werten beträgt $\pm 40\%$. Einzeln für sich betrachtet weisen beide eine Unsicherheit von $\pm 30\%$ auf, jedoch ist in den gemessenen $(S/XB)_{eff}$ -Werten der Kehrwert der Sichtfeldkorrektur enthalten, wodurch ihre Fehler teilweise kompensiert werden. Dies wird durch die Anwendung quadratischer Fehlerfortpflanzung berücksichtigt.

Es wurden LDS-Messungen des Wasserstoffinventars eines in TEXTOR exponierten Testlimiters durchgeführt, mit denen die Eignung für die ursprünglich geplante Verwendung als Wasserstoffinventar-Diagnostik gezeigt wurde. Zunächst wurden Werte für $(S/XB)_{eff}$ in Referenzplasmen gemessen. Anschließend wurden mit Hilfe dieser Werte die Inventare in a-C:H-Schichten gemessen, die in TEXTOR deponiert wurden. Darüberhinaus zeigt sich bei Messungen in der Erosionszone des Limiters das Potential dieser Meßmethode für die Bestimmung des bislang experimentell nicht zugänglichen dynamischen Wasserstoffinventars, das sich für die Dauer der Plasmaentladung durch den Ionenfluß auf die Wand aufbaut.

Der Konversionsfaktor $(S/XB)_{eff}$ wurde bei verschiedenen Plasmabedingungen gemessen, die repräsentativ für Randschichtplasmen in Fusionsexperimenten sind ($T_e=22..30$ eV und $n_e=1..10 \times 10^{18} \text{ m}^{-3}$ bzw. $T_e=51..74$ eV und $n_e=1..5 \times 10^{18} \text{ m}^{-3}$). Dazu wurden präparierte Graphitproben in TEXTOR desorbiert, deren Wasserstofffreisetzung zuvor im Laborversuch charakterisiert wurde. Die gemessenen $(S/XB)_{eff}$ -Werte stimmen im Rahmen der Meßgenauigkeit mit denen überein, die aus EIRENE-Simulationen ermittelt wurden. Nur wenn sich die desorbierte Oberfläche weiter als 3 cm entfernt von der LCFS befindet, wird insbesondere bei niedrigen Plasmadichten weniger Emissionsleuchten beobachtet als nach der EIRENE-Simulation zu erwarten ist. Die Ursache hierfür konnte nicht geklärt werden.

Mit der LDS wurden erstmals In-situ-Messungen des Wasserstoffinventars eines Testlimiters während der Plasmaentladung durchgeführt. Hierfür wurde ein Graphitlimiter im TEXTOR-Randschichtplasma exponiert. Bei Plasmadichten von $1-3 \times 10^{18} \text{ m}^{-3}$ und Plasmatemperaturen von 35 bzw. 25 eV wurde innerhalb von 240 s eine bis zu 400 nm dicke a-C:H-Schicht deponiert (8×10^{21} Wasserstoffatome/ m^2 , H/C=0.3). Während der Deponierung wurde regelmäßig auf wechselnden Stellen der Limiteroberfläche das Wasserstoffinventar gemessen. Die gemessenen Inventare konnten nach dem Ausbau des Testlimiters in Nachuntersuchungen bestätigt werden. Damit wurde die Aufgabe, die am Anfang dieser Arbeit stand, nämlich die Entwicklung dieser In-situ-Meßmethode, erfolgreich abgeschlossen. Die Laserdesorptionsspektroskopie eignet sich ohne Einschränkungen, um während der Plasmaentladung das Wasserstoffinventar dünner Schichten auf Graphitkomponenten nahe der LCFS zu messen.

Die LDS kann mit dem derzeitigen Aufbau an TEXTOR Wasserstoffflächendichten bis hinunter zu wenigen 10^{20} m^{-2} messen. Dadurch ermöglicht sie In-situ-Untersuchungen in der Erosionszone von plasmabegrenzenden Komponenten, d.h. dort, wo die Erosion der Oberfläche stärker ist als die Deponierung von Schichten. Erstmals konnte mit der LDS ein dynamisches Wasserstoffinventar gemessen werden, das während der Plasmaentladung infolge des Wasserstoffrecyclings in der Oberfläche des Testlimiters vorliegt. Es baut sich praktisch instantan (1.9–3.6 ms) unter Plasmaeinfluß auf und gast nach dem Ende der Plasmaentladung vermutlich genauso rasch wieder aus, daher ist es Ex-situ-Analysen nicht zugänglich. Ein dauerhaftes Inventar von dieser Größenordnung baut sich in der Erosionszone ca. 100mal langsamer auf. Etwa 1% des dynamischen Wasserstoffinventars wird demnach dauerhaft an Einfangstellen im Graphit gebunden. Das dynamische Inventar wurde für zwei verschiedene Sätze von Plasmaparametern auf $(2.0 \pm 0.4) \times 10^{20} \text{ m}^{-2}$ ($T_e=20$ eV und $\Gamma=8 \times 10^{22} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$) bzw. $4.2_{-2.1}^{+1.6} \times 10^{20} \text{ m}^{-2}$ ($T_e=47$ eV und $\Gamma=1.4 \times 10^{22} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$) bestimmt.

Aufgrund der einmaligen diagnostischen Möglichkeiten als ITER-Diagnostik, aber auch für existierende Fusionsexperimente, ist die Weiterentwicklung der LDS dringend zu empfehlen. Dies bedeutet die Untersuchung anderer Substratmaterialien, insbesondere von Wolfram, sowie die Messung unter anderen Plasmaparametern. Im Divertorbereich von ITER werden kältere Plasmen erwartet, als die, in denen die bisherigen Messungen stattfanden. Weitere Fragestellungen sind die, ob dickere, inhomogene Schichten hinreichend gleichförmig aufgeheizt werden können: In ITER könnten innerhalb weniger Plasmaentladungen 10- bis

100fach dickere Schichten aufgebaut werden, als sie in dieser Arbeit untersucht wurden. Die vermutlich plasmakühlende Wirkung des Flusses freigesetzter Moleküle und sublimierten Kohlenstoffs bei der Desorption dickerer Schichten oder größerer Flächen ist zu untersuchen. Die spektroskopische Messung kann erweitert werden, um die Verhältnisse der freigesetzten Wasserstoff- und Kohlenwasserstoffmoleküle und der Wasserstoffisotope zu messen. Die technische Weiterentwicklung hat das Ziel eines integrierten coaxialen Systems aus Laser- und Beobachtungsoptiken. Im Hinblick der Verwendung als Diagnostik in ITER muß außerdem der Einsatz von Spiegeln anstelle von Linsen und Lichtleitern berücksichtigt werden. Die kontinuierliche Weiterentwicklung der HYDKIN-Datenbank und ihre Einbindung in den EIRENE-Code verspricht eine genauere Interpretation der bei der LDS gemessenen Photonenzahlen.

Anhang

Materialeigenschaften von EK98

Dichte	1.85 g/cm ³
Porosität	8%
Korngröße	10 μm
Porengröße	2 μm
Permeabilität (Luft, $T = 20^{\circ}\text{C}$)	0.015 cm ² /s

Allgemeine thermische Eigenschaften von Graphit

Wärmekapazität [J/g/K]	$1.47 + (3.66 \times 10^{-4}) T - (7.54 \times 10^{-4}) T^{-2}$
Sublimationstemperatur (bei $p = 1$ bar)	3640 K \pm 25 K
Sublimationswärme	59.9×10^6 J/kg

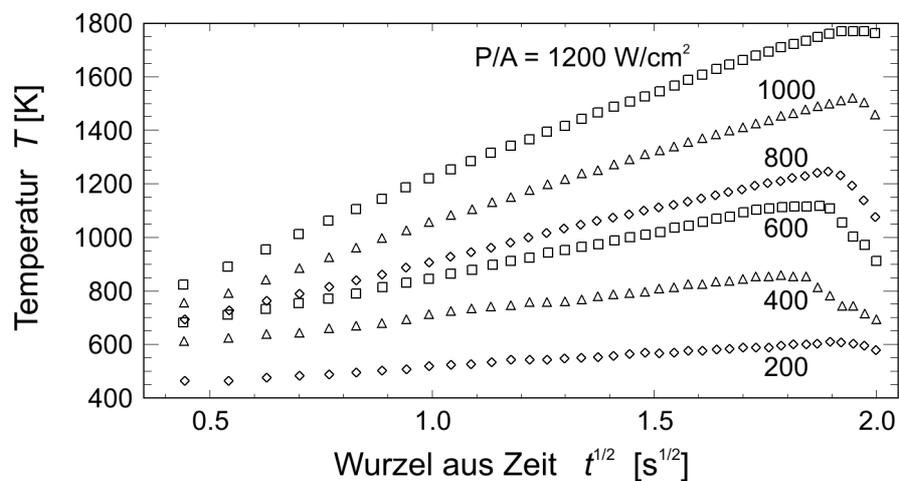


Abb. A1: Aufheizen von Graphit EK98 mittels eines Elektronenstrahls [A. Huber, 1999]

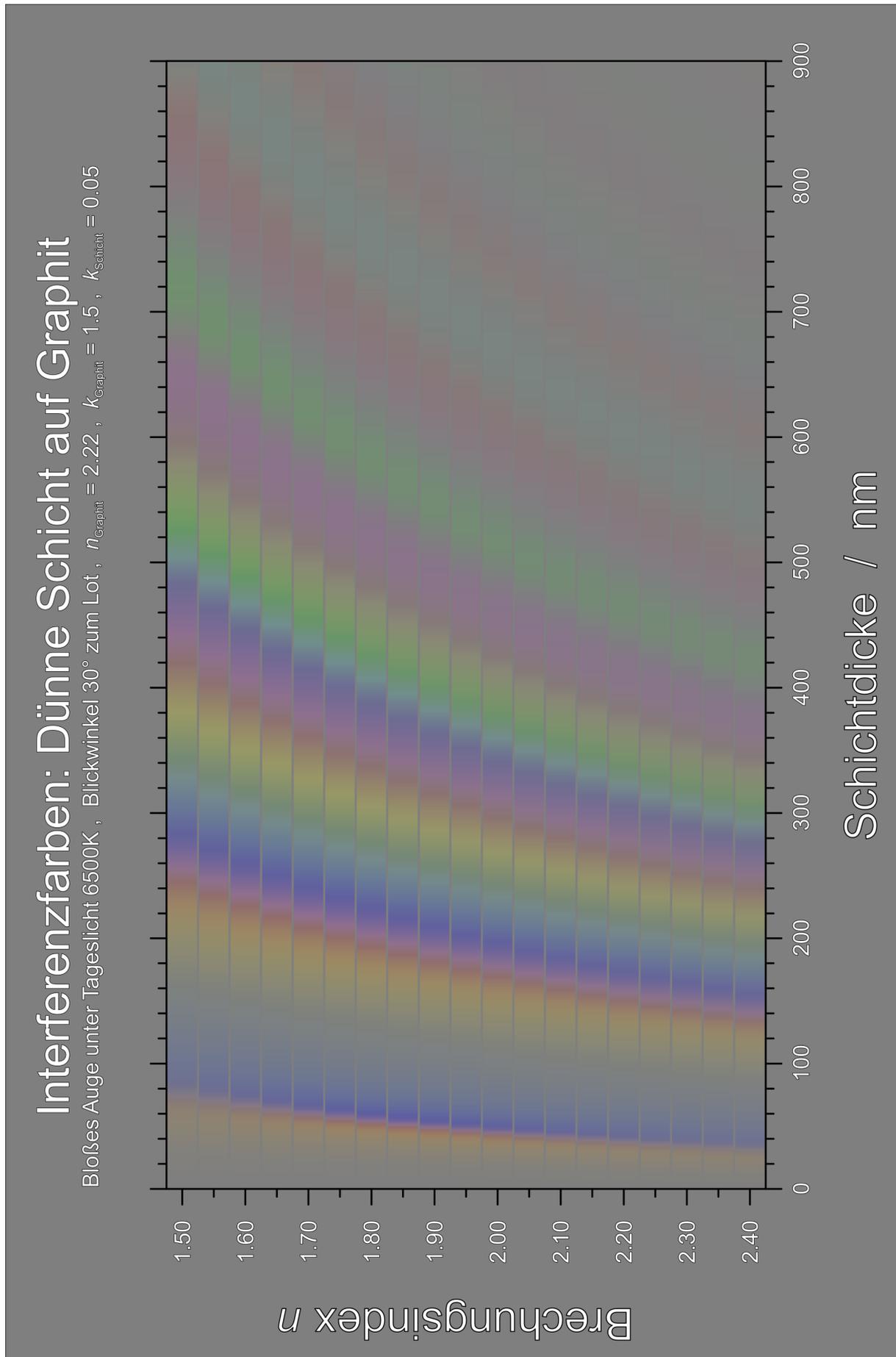


Abb. A2: Farbtafel zu den Interferenzfarben der $a\text{-C:H}$ -Schichten auf Graphit, berechnet nach [Wes93]

Literaturverzeichnis

- [ADAS] *Atomic Data Analysis Structure*
<http://adas.phys.strath.ac.uk>
- [Bre01] S. Brezinsek, P.T. Greenland, J.D. Hey, M. Lehnen, Ph. Mertens, A. Pospieszczyk, U. Samm, B. Schweer, G. Sergienko, E. Vietzke
ECA Vol. **25A** (2001) 2077-2080
Interplay between D^0 and D_2 in front of a graphite surface
- [Bre02] S. Brezinsek
Berichte des Forschungszentrums Jülich, JUEL-3962, Jülich 2002
Untersuchung von atomarem und molekularem Wasserstoff vor einer Graphitoberfläche in einem Hochtemperatur-Randschichtplasma
- [Bre03] S. Brezinsek, P.T. Greenland, Ph. Mertens, A. Pospieszczyk, D. Reiter, U. Samm, B. Schweer, G. Sergienko
Journal of Nuclear Materials **313–316**, (2003), 967–971
On the measurement of molecular particle fluxes in fusion boundary plasmas
- [Bre05] S. Brezinsek, G. Sergienko, A. Pospieszczyk, Ph. Mertens, U. Samm, P.T. Greenland
Plasma Physics and Controlled Fusion **47**, No. 4 (April 2005) 615-634
Characterization of the deuterium recycling flux in front of a graphite surface in the TEXTOR tokamak
- [Bre07] S. Brezinsek, A. Pospieszczyk, D. Borodin, M.F. Stamp, R. Pugno, A.G. McLean, U. Fantz, A. Manhard, A. Kallenbach, N.H. Brooks, M. Groth, Ph. Mertens, V. Philipps, U. Samm, TEXTOR-, ASDEX-Upgrade-, DIII-D-Teams, JET-EFDA Contributors
Journal of Nuclear Materials **363–365** (2007) 1119–1128
Hydrocarbon injection for quantification of chemical erosion yields in tokamaks
- [Bul00] A.J. Bullen, K.E. O'Hara, D.G. Cahill
Journal of Applied Physics **88** (2000) 6317-6320
Thermal conductivity of amorphous carbon thin films
- [Car] H.S. Carslaw, J.C. Jaeger
Conduction of heat in solids
Oxford Clarendon press 1959, ISBN 0-19-853368-3
- [Coa01] J.P. Coad, N. Bekris, J.D. Elder, S.K. Erents, D.E. Hole, K.D. Lawson, G.F. Matthews, R.-D. Penzhorn, P.C. Stangeby
Journal of Nuclear Materials **290–293** (2001) 224–230
Erosion/deposition issues at JET

- [D5033] DIN5033 Teil 3 (Farbmessung, Farbmaßzahlen)
- [Dav95] J.W. Davis, A.A. Haasz
Journal of Nuclear Materials **220-222** (1995) 832-835
Reemission and thermal desorption of D⁰, D₂ and CD₄ from graphite
- [Dit08] T. Dittmar, A. von Keudell, A. Kreter
Veröffentlichung in Vorbereitung (Mai 2008)
Development of an in-situ ellipsometer for the use at the first wall of a tokamak
- [EIREN] D. Reiter
Berichte der Kernforschungsanlage Jülich, JUEL-2599, Jülich 1992
The EIRENE Code, User Manual
auch: <http://www.eirene.de>
- [Haa95] A.A. Haasz, P. Franzen, J.W. Davis, S. Chiu, C.S. Pitcher
Journal of Applied Physics **77** (1995) 66-86
Two-region model for hydrogen trapping in and release from graphite
- [Hin95] E. Hintz, B. Schweer
Plasma Phys. Control. Fusion **37** No 11A (1995) A87-A101
Plasma edge diagnostics by atomic beam supported emission spectroscopy – status and perspectives
- [Hof90] H. Hoffschultz
Diplomarbeit Universität Bonn 1990
Beziehung zwischen Interferenzfarbe und Dicke von amorphen Kohlenstoffschichten und ihre Anwendung in TEXTOR
- [Hub01] A. Huber, M. Mayer, V. Philipps, A. Pospieszczyk, T. Ohgo, M. Rubel, B. Schweer, G. Sergienko, T. Tanabe
Physica Scripta, **T94** (2001), 102-105
In-situ measurement of trapped hydrogen by laser desorption in TEXTOR-94
- [HYDKI] *Reaction kinetics analysis, for Hydrocarbon catabolism in hydrogen plasmas*
<http://www.eirene.de/eigen/>
- [IEA07] IEA-Statistiken: *Key World Energy Statistics 2007*
<http://www.iea.org/textbase/nppdf/free/2005/ElecCost.pdf>
- [Ish06] Y. Ishimoto, Y. Gotoh, T. Arai, K. Masaki, N. Miya, N. Oyama, N. Asakura
Journal of Nuclear Materials **350** (2006) 301-309
Thermal properties of redeposition layers in the JT-60U divertor region
- [ITERw] *Offizielle Webseite der ITER-Organisation*
<http://www.iter.org>
- [ITMat] *ITER-Material-Handbuch*
<http://fusionnet.seas.ucla.edu/fusionnetwork/>
- [Jac98] W. Jacob
Thin Solid Films **326** (1998) 1-42
Surface reactions during growth and erosion of hydrocarbon films

- [Jac05] W. Jacob
Journal of Nuclear Materials **337-339** (2005) 839-846
Redeposition of hydrocarbon layers in fusion devices
- [JaR02] R. Janev, D. Reiter
Physics of Plasmas **9** (2002) 4071-4081
Collision processes of CH_y and CH_y^+ hydrocarbons with plasma electrons and protons
- [Kre07] A. Kreter, S. Brezinsek, M. Rubel, B. Emmoth, M. Freisinger, P. Pelicon, V. Philipps, O. Schmitz, P. Sundelin, G. Sergienko, TEXTOR team
17th International Vacuum Congress (IVC-17), Stockholm, July 2-6, 2007
accepted for publication in Journal of Physics: Conference Series
Deuterium retention in different carbon materials exposed in TEXTOR
- [Küp95] J. Küppers
Surface Science Reports **22** (1995) 249-321
The hydrogen surface chemistry of carbon as a plasma facing material
- [May01] M. Mayer, V. Philipps, P. Wienhold, H.G. Esser, J. von Seggern, M. Rubel
Journal of Nuclear Materials **290-293** (2001) 381-388
Hydrogen inventories in nuclear fusion devices
- [McK82] D.R. McKenzie, R.C. McPhedran, L.C. Botten, N. Savvides, R.P. Netterfield
Applied Optics **21** (1982) 3615-3622
Hydrogenated carbon films produced by sputtering in argon-hydrogen mixtures
- [Mer01] Ph. Mertens, S. Brezinsek, P.T. Greenland, J.D. Hey, A. Pospieszczyk, D. Reiter, U. Samm, B. Schweer, G. Sergienko, E. Vietzke
Plasma Phys. Control. Fusion **43** (2001) A349-A373
Hydrogen release from plasma-facing components into fusion plasmas – recent results from a spectroscopic approach
- [Möl95] W. Möller, W. Fukarek, K. Lange, A. von Keudell, W. Jacob
Jpn. J. Appl. Phys. **34** (1995) 2163-2171
Mechanisms of the Deposition of Hydrogenated Carbon Films
- [Neu05] O. Neubauer, G. Czymek, B. Giesen, P. W. Hüttemann, M. Sauer, W. Schalt, J. Schruoff
Fusion Science and Technology **47** (2005) 76-86
Design Features of the Tokamak TEXTOR
- [Num] W.H. Press
Numerical Recipes: The art of scientific computing
Cambridge University Press 2007 – ISBN 978-0-521-88407-5
- [Oya05] Y. Oya, Y. Hirohata, T. Tanabe, T. Shibahara, H. Kimura, M. Oyaidzu, T. Arai, K. Masaki, Y. Gotoh, K. Okunod, N. Miyae, T. Hino, S. Tanaka
Fusion Engineering and Design **75-79** (2005) 945-949
Hydrogen isotope distributions and retentions in the inner divertor tile of JT-60U

- [Pea99] A.T. Peacock, P. Andrew, P. Cetier, J.P. Coad, G. Federici, F.H. Hurd, M.A. Pick, C.H. Wu
Journal of Nuclear Materials **266-269** (1999) 423-428
Dust and flakes in the JET MkIIa divertor, analysis and results
- [Phi05] V. Philipps
Fusion Science and Technology **47** (2005) 119-125
Wall conditioning on TEXTOR
- [Pil89] J. Pillath
Berichte des Forschungszentrums Jülich, Jül-2292, Jülich 1989
Untersuchungen zum Transport von Wasserstoff und seiner Freisetzung an amorphen, wasserstoffhaltigen Kohlenstoffschichten (a-C:H)
- [Pos93] A. Pospieszczyk
Diagnostic of edge plasmas by optical methods, Hrsg. R.K. Janev, H.W. Drawin
Elsevier Science Publishers 1993 – ISBN 0-444-81630-5
Atomic and Plasma-Material Interaction Processes in Controlled Thermonuclear Fusion
- [Pos99] A. Pospieszczyk, Ph. Mertens, G. Sergienko, A. Huber, V. Philipps, D. Reiter, D. Rusbüldt, B. Schweer, E. Vietzke, P.T. Greenland
J. Nucl. Mat. **266-269** (1999) 138-145
In situ measurement and modeling of hydrogen recycling and transport processes – the role of molecules
- [Rei84] D. Reiter
Berichte der Kernforschungsanlage Jülich, JUEL-1947, Jülich 1984
Randschicht-Konfiguration von Tokamaks: Entwicklung und Anwendung stochastischer Modelle zur Beschreibung des Neutralgasstroms
- [Rob02] J. Robertson
Materials Science and Engineering R Reports (2002) **37** 129-281
Diamond-like amorphous carbon
- [Rot99] J. Roth
Journal of Nuclear Materials **266-269** (1999) 51-57
Chemical erosion of carbon based materials in fusion devices
- [Rub01] M. Rubel, P. Wienhold, D. Hildebrandt
Journal of Nuclear Materials **290-293** (2001) 473-477
Fuel accumulation in co-deposited layers on plasma facing components
- [Smi05] O. Schmitz
Berichte des Forschungszentrums Jülich, JUEL-4220, Jülich 2006
Experimentelle Untersuchung der Plasmastruktur und Charakterisierung des Transportverhaltens in der laminaren Zone einer stochastisierten Plasmarandschicht

- [Swa99] T. Schwarz-Selinger, A. von Keudell, W. Jacob
Journal of Applied Physics **86** (1999) 3988-3996
Plasma chemical vapor deposition of hydrocarbon films: The influence of hydrocarbon source gas on the film properties
- [Swa03] T. Schwarz-Selinger, M. Meier, C. Hopf, A. von Keudell, W. Jacob
Vacuum **71** (2003) 361-376
Can plasma experiments unravel microscopic surface processes in thin film growth and erosion? Implications of particle-beam experiments on the understanding of a-C:H growth
- [Swe05] B. Schweer, S. Brezinsek, H. G. Esser, A. Huber, Ph. Mertens, S. Musso, V. Philipps, A. Pospieszczyk, U. Samm, G. Sergienko, P. Wienhold
Fusion Science and Technology **47** (2005) 138-145
Limiter lock systems at TEXTOR: Flexible tools for plasma-wall investigation
- [Swf05] B. Schweer, A. Huber, G. Sergienko, V. Philipps, F. Irrek, H.G. Esser, U. Samm, M. Kempenaars, M. Stamp, C. Gowers, D. Richards
Journal of Nuclear Materials, **337-339** (2005) 570-574
Laser desorption of deuterium retained in re-deposited carbon layers at TEXTOR and JET
- [Swe07] B. Schweer, F. Irrek, G. Sergienko, V. Philipps, U. Samm
Journal of Nuclear Materials **363-365** (2007) 1375-1379
In situ diagnostic for monitoring of deuterium and tritium in re-deposited carbon layers by laser induced desorption
- [Unt05] B. Unterberg, S. Brezinsek, G. Sergienko, C.C. Chu, P. Dumortier, J.D. Hey, D. Kalupin, A. Kreter, M. Lehnen, A.M. Messiaen, Ph. Mertens, A. Pospieszczyk, U. Samm, B. Schweer, M.Z. Tokar, G. Van Wassenhove, the TEXTOR-team
Journal of Nuclear Materials **337-339** (2005) 515-519
Local effects of gas fuelling and their impact on transport processes in the plasma edge of the tokamak TEXTOR
- [Vie94] P. Franzen, E. Vietzke
Journal of Vacuum Science & Technology A **12** (1994) 820-825
Atomic release of hydrogen from pure and boronized graphites
- [Wesso] John Wesson
Tokamaks
Oxford Clarendon Press 2004 – ISBN 0-19-8509227
- [Wie90] P. Wienhold, J. von Seggern, H.G. Esser, J. Winter
Journal of Nuclear Materials **176-177** (1990) 150-157
Impurity redeposition in the SOL of TEXTOR after boronization
- [Wie94] P. Wienhold, F. Weschenfelder, J. Winter
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B **94** (1994) 503-510
Colorimetry of interference colours to investigate thickness changes of protective coatings in TEXTOR

- [Wie03] P. Wienhold, V. Philipps, A. Kirschner, A. Huber, J. von Seggern, H.G. Esser, D. Hildebrandt, M. Mayer, M. Rubel, W. Schneider
Journal of Nuclear Materials **313–316** (2003) 311–320
Short and long range transport of materials eroded from wall components in fusion devices

Abbildungsverzeichnis

Abb. 2.1:	H/C-Verhältnis, Massendichte und Brechungsindex von a-C:H-Schichten.....	20
Abb. 3.1:	Unterscheidung zwischen Laserablation und -desorption.....	23
Abb. 3.2:	Ebene Projektion einer a-C:H-Struktur mit H/C=0.4.....	26
Abb. 3.3:	Partialdruckverlauf beim langsamen Ausheizen einer a-C:H-Schicht.....	26
Abb. 3.4:	SIMS-Tiefenprofil einer a-C:H-Schicht vor und nach der Laserdesorption.....	27
Abb. 3.5:	Wärmeleitung in einen halbbunendlichen Körper: Tiefenprofil der Temperatur.....	30
Abb. 3.6:	Gitter der Temperatursimulation.....	32
Abb. 3.7:	Schichtdicke an Bruchkanten der Graphitproben.....	35
Abb. 3.8:	Resultate der Temperatursimulation $T(r,z)$	36
Abb. 3.9:	Änderung der Isothermenfläche A_{900} bei Variation der Substrattemperatur.....	37
Abb. 3.10:	Änderung der Isothermenvolumina V_{900} und V_{1200} bei Variation der Substrattemperatur.....	38
Abb. 3.11:	Optischen Eigenschaften der a-C:H-Schicht während des Aufheizens.....	40
Abb. 3.12:	Reflektivität der a-C:H-Schicht während des Aufheizens.....	40
Abb. 3.13:	Rauhigkeit von Schicht und Substraten.....	43
Abb. 3.14:	Messung der Schichtdicke auf den Siliziumproben.....	44
Abb. 3.15:	Rißbildung in der a-C:H-Schicht.....	45
Abb. 3.16:	Ablösen der Schicht vom Graphitsubstrat durch Bildung von Bläschen.....	46
Abb. 3.17:	Zu hohe Temperatur und Sublimation.....	47
Abb. 3.18:	Beginn der Sublimation an der Oberseite der Schicht.....	47
Abb. 3.19:	Massenspektren der durch laserinduziertes Aufheizen freigesetzten Gase.....	49
Abb. 3.20:	Zeitaufgelöste Messung der freigesetzten Gasspezies durch wiederholte Desorption einer frischen Stelle.....	50
Abb. 3.21:	Temperatur im Fleckzentrum über die Pulsdauer / Aus der Schicht desorbierte Teilchen, aufgetragen über der Temperatur.....	50
Abb. 3.22:	berechnete Isothermenflächen A_T als Funktion von T_Z	50
Abb. 3.23:	Ermittlung der temperaturabhängigen Desorptionsrate durch sukzessiven, kumulativen Fit der Isothermen an die Datenpunkte (Entfaltung).....	52
Abb. 3.24:	Freisetzung der Gasspezies bei thermischer Desorption als Funktion der Temperatur (LDS und TDS).....	52
Abb. 3.25:	Beispiele für die Signale durch Spezies, die nicht aus der Schicht stammen.....	54
Abb. 3.26:	Temperaturanstieg als Funktion des Wärmeflusses und der Zeit für EK98.....	55
Abb. 4.1:	S/XB als Funktion von Elektronendichte und -temperatur nach ADAS.....	59
Abb. 4.2:	EIRENE-Simulation des H_α -Emissionsleuchtens ; Sichtfeldkorrektur.....	64
Abb. 4.3:	Variation der Sichtfeldkorrektur bei Verschiebung des Kamerasichtfeldes.....	65
Abb. 4.4:	Normiertes H_α -Emissionsleuchten des desorbierten Wasserstoffs: Messung und EIRENE-Simulation.....	66
Abb. 4.5:	Radiale und toroidale Profile aus den Bildern in Abb. 4.4.....	66

Abb. 5.1: Typische Laserpulsform.....	68
Abb. 5.2: Aufbau des Laserresonators.....	69
Abb. 5.3: LWL-Ein- und Auskopplung.....	70
Abb. 5.4: Schwenkbare Optik zur Lasereinkopplung in TEXTOR.....	70
Abb. 5.5: Laboraufbau.....	71
Abb. 5.6: Beispiel des zeitlichen Verlaufs einiger QMS-Signale.....	72
Abb. 5.7: Pyrometrische Temperaturmessung.....	73
Abb. 5.8: Meßanordnung in TEXTOR.....	75
Abb. 5.9: Taktdiagramm einer typischen LDS-Messung.....	77
Abb. 5.10: Proxitronic- und Dalsa-Bilder des Emissionsleuchtens – Offset in der Datenerfassung.....	78
Abb. 5.11: Skizze zur Veranschaulichung der Offsetkorrektur.....	79
Abb. 5.12: Anwendungsbeispiel des Untergrundabzugs, Frequenzspektren der OH- und der NI-Phase.....	81
Abb. 5.13: Untergrundermittlung und -abzug schematisch.....	82
Abb. 6.1: Plasmaentladung A.....	85
Abb. 6.2: Plasmaentladung B1.....	86
Abb. 6.3: Plasmaentladung B2.....	86
Abb. 6.4: Plasmaentladung C.....	87
Abb. 6.5: Plasmaentladung D.....	87
Abb. 6.6: Zeitaufgelöstes Emissionsleuchten.....	89
Abb. 6.7: Neuerlicher Anstieg der H_{α} -Emission bei hoher Oberflächentemperatur.....	91
Abb. 6.8: Weitere Beispiele für starke H_{α} -Emission nach Ende des Desorptionsvorgangs..	92
Abb. 6.9: Anordnung der Desorptionsflecke auf der Graphitprobe.....	94
Abb. 6.10: H/D-Verhältnisse der Desorptionsflecke ; Deuteriuminventare.....	95
Abb. 6.11: Anordnung der Graphitproben im tellerförmigen Probenhalter in TEXTOR.....	97
Abb. 6.12: Gemessene bzw. mit EIRENE simulierte Werte für $(S/XB)_{eff}$ im Plasma A.....	98
Abb. 6.13: Gemessene bzw. mit EIRENE simulierte Werte für $(S/XB)_{eff}$ im Plasma D.....	98
Abb. 6.14: Platzierung der Desorptionflecke auf dem 36°-Dachlimiter.....	101
Abb. 6.15: Colorimetrische Bestimmung der Schichtdicke im Desorptionsfleck D.....	101
Abb. 6.16: In TEXTOR exponierter Limiter.....	102
Abb. 6.17: Bestimmung der Schichtdicke mittels Colorimetrie.....	104
Abb. 6.18: Analyse der Probe aus Abb. 3.15a mittels Laserdesorption.....	107
Abb. 6.19: Vergleich der Meßwerte aus der LDS-Messung in TEXTOR und der Nachuntersuchung.....	108
Abb. 6.20: Temperatur- und Ionenenergieabhängigkeit des implantierten Inventars.....	110
Abb. 6.21: Zeitliches Schema der Plasmaentladung und der LDS-Messung.....	112
Abb. 6.22: Wasserstoffinventare nach dem Schema aus Abb. 6.21.....	113
Abb. 6.23: Temperaturabhängigkeit des gemessenen Inventars.....	114
Abb. 6.24: Wasserstoffinventare wie in Abb. 6.21, Oberflächentemperatur-Korrektur.....	115
Abb. 6.25: Mittelwerte der temperaturkorrigierten Inventare aus Abb. 6.24.....	115
Abb. 6.26: Vergleich der hier gemessenen Inventare mit Resultaten aus [Kre07].....	117
Abb. 6.27: Dynamisches Inventar als Funktion von Flußdichte und Elektronentemperatur.	117
Abb. A1: Aufheizen von Graphit EK98 mittels eines Elektronenstrahls.....	125
Abb. A2: Farbtafel zu den Interferenzfarben der a-C:H-Schichten auf Graphit.....	126

Danksagung

Ich möchte an dieser Stelle Herrn Prof. U. Samm für die Betreuung meiner Arbeit und die kritischen und anregenden Diskussionen in der langen Endphase der Arbeit danken. Herrn Prof. G. Pretzler danke ich für das Übernehmen des Koreferats.

Herr Dr. H.-B. Schweer unterstützte mich sehr durch seine intensive Betreuung bei der Planung, dem Aufbau und der Durchführung meiner Experimente. Es war ein langer Weg für mich, die Zeitskalen und die technischen Hürden eines solchen Projekts realistisch einzuschätzen.

Herr Dr. S. Brezinsek half mir bei der Durchführung und der Interpretation der emissions-spektroskopischen Messungen. Ich danke Dir für die Motivation beim Schreiben, Sebastijan.

Herrn Prof. D. Reiter und Frau P. Börner möchte ich für die Diskussionen zur Erstellung der EIRENE-Rechnungen danken.

Ich danke Herrn Dr. P. Wienhold für die Einführung in die Colorimetrie, das sehr ausführliche Korrekturlesen und seine Hinweise zur Didaktik des Schreibens.

Herr Dr. V. Philipps verhalf mir mit seiner Erfahrung zu vielen Ideen und neuen Sichtweisen.

Herr Dr. Ph. Mertens hat ein einzigartiges Auge für Fehler in meinem Manuskript bewiesen, selbst wenn seine Arme inzwischen mitunter zu kurz waren.

Herrn M. Zlobinski danke ich für die Messungen im Labor und an TEXTOR, die er für mich durchgeführt hat, während ich schon am Zusammenschreiben dieser Arbeit saß. Ich wünsche ihm viel Erfolg bei der Weiterentwicklung der Laserdesorptionsspektroskopie.

Mein Dank gilt Herrn Dr. Andrew Litnovsky für die Einführung in die Profilometrie- und SIMS-Messungen.

Herrn Dr. A. Pospieszczyk möchte ich für die Diskussionen zur Emissionsspektroskopie und für die Bereitstellung der ADAS-Daten danken.

Herrn Dr. A. Kreter danke ich für seine Hinweise bei der Interpretation der Meßergebnisse.

Für die Bereitstellung und Diskussion der Heliumstrahl Daten danke ich Herrn Dr. O. Schmitz.

Herrn Dr. H.G. Esser und Herrn D. Jolovic danke ich für die Hilfe beim Beschichten der Graphitproben. Herrn Jolovic gilt auch mein Dank für die Ellipsometriemessungen.

Bei Herrn Dr. T. Hirai und Herrn Dr. E. Wessel möchte ich mich für die Hilfe bei der Planung und Durchführung der Rasterelektronenmikroskopie bedanken.

Allen Technikern danke ich herzlich für ihre Unterstützung. Ohne sie lief überhaupt nichts. Besonders danken möchte ich Herrn K. Klören. Er wußte, was ich aufbauen wollte, bevor ich

mir selbst gänzlich im klaren darüber war und hatte es am nächsten Tag bereits aufgebaut. Kein Scotty™ kann da mithalten. Herrn K.-D. Schüller danke ich für die Steuerungselektronik des Lasers. Herr W. Müller bereitete meine Proben und Testlimiter vor. Frau M. Freisinger danke ich für die Durchführung der TDS-Messungen.

Ich danke den Kollegen, die mich im TEXTOR-Kontrollraum unterstützten und auch denen, die mir den gefährlichen Weg zwischen Kontrollraum und Bunker ersparten.

Herrn Dr. M. Krychowiak, damals noch Doktorand in Jülich, und Herrn E. Uzgel, mit denen ich das Büro teilte, möchte ich danken, wie auch den anderen Bewohnern des Doktoranden- und Diplomandenflügels, für die Unterstützung und die Atmosphäre, die sie verbreiteten. Besonders Herr M. Mitri wurde nicht müde, immer neue soziale Aktivitäten anzustoßen.

Meiner Familie möchte ich für die Unterstützung aus dem fernen Mecklenburg-Strelitz danken. Meiner Mutter, die mich immer auf dem laufenden hält, meiner Schwester und ihrer Familie, meiner Großmutter und meinem Vater, der mich stets in allem unterstützte.