

# Kapitel 1: Einführung

## *1.1 Allgemeine Einführung*

Die Wechselwirkung schwerer Ionen mit Materie spielt nicht nur eine Rolle in der Grundlagenforschung, sondern wird bereits seit Jahren vielfach dazu benutzt, die chemischen und physikalischen Eigenschaften ganz unterschiedlicher Materialien gezielt zu verändern.

So wurde z.B. an der GSI die Krebstherapie mit Schwerionen weiterentwickelt [JK01], welche in naher Zukunft mit einem eigens dafür gebauten Beschleuniger in Heidelberg der Medizin zur Verfügung stehen wird. Die Oberflächenhärte künstlicher Kniegelenke aus einer Titan-Vanadium-Legierung wurde durch Implantation von Stickstoff erhöht, wodurch sich deren Haltbarkeit wesentlich verbessern läßt [NB92]. Das Aufätzen latenter Ionenspuren ( $\equiv$  strukturell veränderte Bereiche in Materie entlang einer Ionenbahn) in Polymeren erlaubt es, feinste Kanäle zu erzeugen, welche sich dann z.B. als Filter oder Maske für die (galvanische) Abscheidung von "Nanonadeln" mit sehr großem Aspektverhältnis verwenden lassen (siehe z.B. [TB93], [DV98]). Im Unterschied zu anderen Methoden ist es dabei durch die Bestrahlung mit einzelnen Ionen möglich, gezielt die Eigenschaften einzelner Löcher oder Nadeln zu untersuchen, wodurch ein direkterer Zugang zum Verständnis der Eigenschaften solcher Objekte möglich wird (z.B. [R94]).

In Hochtemperatursupraleitern können mit Ionen definierte Schädigungsbereiche erzeugt werden, welche als Haftzentren für magnetische Flußlinien dienen [BP93] und eine Erhöhung der kritischen Stromdichte ermöglichen [WW93]. Auch in vielen Experimenten der Kernphysik ist es notwendig, einige grundlegende Vorgänge der Ionen-Festkörper-Wechselwirkung zu kennen, da häufig Festkörper-Targets (wie z.B. bei der Erzeugung neuer überschwerer Elemente [HM00]) oder Festkörper-Detektoren verwendet werden. Auch bei der Simulation von Effekten kosmischer Strahlung in elektronischen Bauelementen [FB98] und zum Verständnis natürlicher Strahlenschäden, wie sie zur Altersdatierung herangezogen werden [LG02], tragen energiereiche Ionen wesentlich bei. Neben der gezielten Veränderung von Materialien im Hinblick auf Anwendungen werden Ionenstrahlen aber auch für Grundlagenuntersuchungen von Festkörpern benutzt. So erlauben z.B. Streuexperimente mit Heliumionen und Protonen unter streifendem Einfall an LiF, etwas über die elektronischen Zustände des Kristalls zu erfahren ([RV99], [KB02]). Diese Liste von Beispielen verdeutlicht, wie nützlich ein genaueres Verständnis von Strahlenschäden durch Ionen für die weitere Entwicklung technologischer, medizinischer und analytischer Verfahren sein würde. Bis

heute existiert nämlich noch kein Modell, welches die Wechselwirkung zwischen Ion und Festkörper umfassend beschreiben kann.

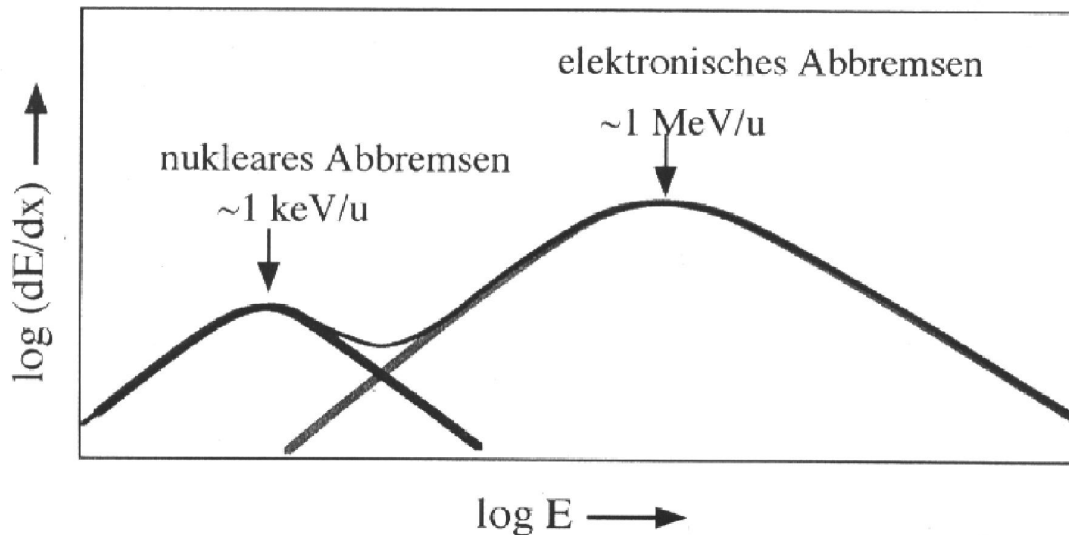
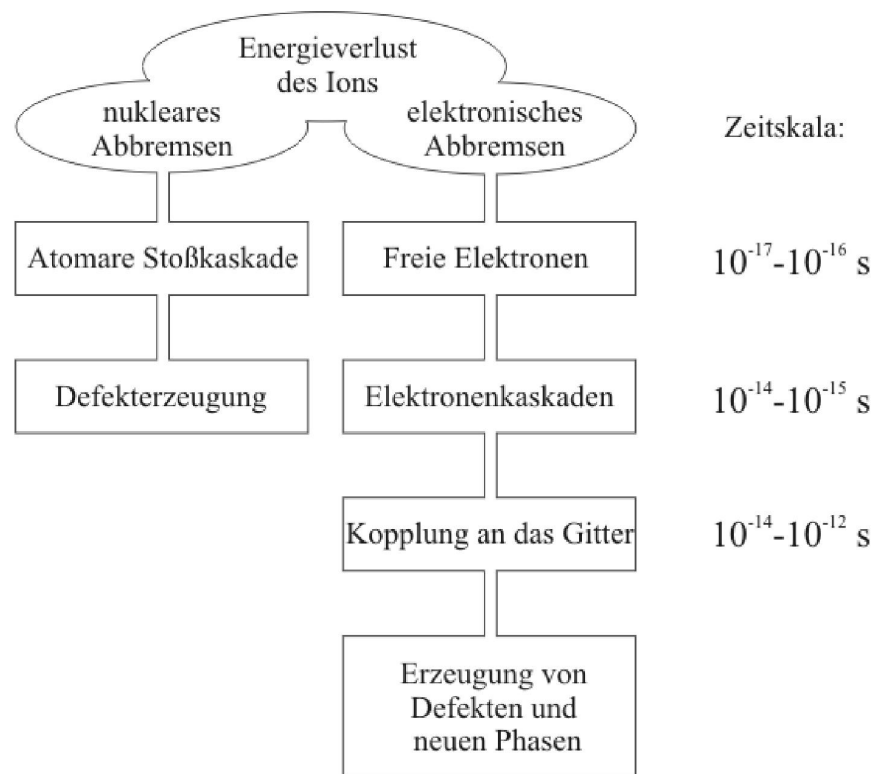


Abb. 1.1:

Schematisch: Energieverlust im Festkörper als Funktion der Projektilenergie in doppelt-logarithmischer Darstellung (aus [S90]).

Relativ gut verstanden hingegen ist der primäre Transfer der Energie des Ions auf den Festkörper. Dieser Energietransfer kann abhängig von der Projektilenergie in zwei unterschiedliche Bereiche aufgeteilt werden (siehe Abb. 1.1). Bei relativ kleinen Projektilenergien (bis ungefähr 0,1 MeV/Nukleon) findet der Energieverlust in erster Näherung gemäß Rutherford-Streuung statt, d.h. durch elastische Stöße der Ionen mit den Targetkernen. Man spricht vom sogenannten nuklearen Energieverlust. Bei höheren Energien wird zunehmend die Wechselwirkung mit den Targetelektronen entscheidend, dementsprechend spricht man vom elektronischen Energieverlust. Der elektronische Energieverlust kann insbesondere für große Energien in guter Näherung gemäß der sogenannten Bethe-Bloch-Formel berechnet werden (siehe Lehrbücher der Kernphysik). In der Praxis hat es sich bewährt, den Energieverlust mittels Monte-Carlo-Simulation unter Verwendung des TRIM-Computercodes (TRIM  $\equiv$  Transport and Ranges of Ions in Matter, [ZB85]) für jedes beliebige Material zu berechnen. In der vorliegenden Arbeit ist ausschließlich der elektronische Energieverlust von Bedeutung, welcher jeweils mit der neuesten TRIM-Version SRIM2000.39 (SRIM  $\equiv$  Stopping and Ranges of Ions in Matter, [Z02]) bestimmt wurde. Vergleiche zwischen berechneten und gemessenen Reichweiten [T99] (bzw. Energieverlusten [Z02]) lassen den Schluß zu, daß es mit SRIM nicht möglich

ist, den Energieverlust besser als auf ungefähr 10 % zu berechnen (ein ausführlicherer Vergleich unterschiedlicher Programme, Tabellen und Meßwerte von Energieverlusten in unterschiedlichen Materialien findet sich in [P02]). Diese 10 % werden wir im folgenden stets als Fehler des Energieverlustes annehmen. Aus Gründen der Übersichtlichkeit werden jedoch in allen folgenden Diagrammen entsprechende Fehlerbalken weggelassen.



**Abb. 1.2:**

Zeitlicher Verlauf der verschiedenen Prozesse bei der Bestrahlung mit schweren Ionen.

Im Falle eines elektronischen Energieverlustes kommt es, nachdem nahezu die gesamte Energie auf die Elektronen übertragen wurde, durch Elektron-Elektron-Stöße zu einer Elektronenkaskade, an deren Ende die Energie an die Atomkerne abgegeben wird. Die Art und Weise dieser Übertragung ist Kerninhalt unterschiedlicher Modellierungen (siehe Näheres dazu in Kapitel 4). Danach kann es zur Ausbildung latenter Ionenspuren, d.h. nachweisbarer Veränderungen der Materialstruktur, im Festkörper kommen. Abb. 1.2 vermittelt einen Eindruck über den zeitlichen Verlauf dieser Vorgänge. Latente Ionenspuren in unterschiedlichen Materialien können sehr unterschiedliche Strukturen aufweisen. So kommt es z.B. bei der Bestrahlung von Glimmer zu einer lokalen Amorphisierung [VS98] oder in Polymeren zum Aufbrechen von Bindungen [TB93], weswegen verschiedene Materialklassen unabhängig voneinander betrachtet werden müssen. Die vorliegende Arbeit

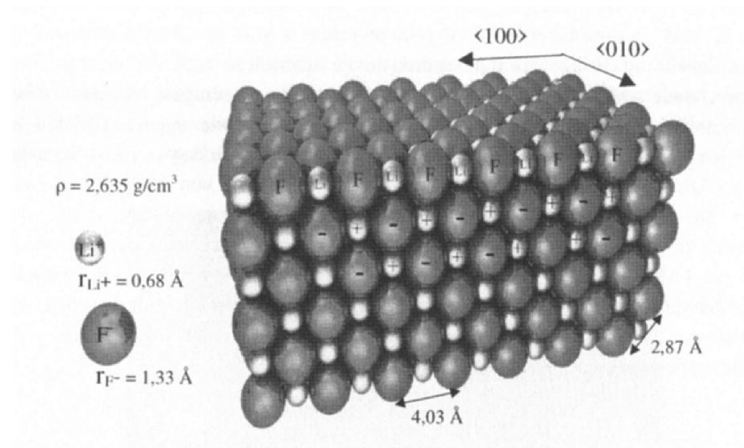
befaßt sich mit Ionenspuren in ionischen Kristallen, genauer gesagt mit deren Oberflächen nach der Bestrahlung mit Schwerionen. Als gute Modellsysteme für ionische Kristalle haben sich unter anderem LiF und CaF<sub>2</sub> bewährt, auf deren Eigenschaften wir im nächsten Abschnitt genauer eingehen wollen.

## *1.2 LiF und CaF<sub>2</sub> als Modellsysteme*

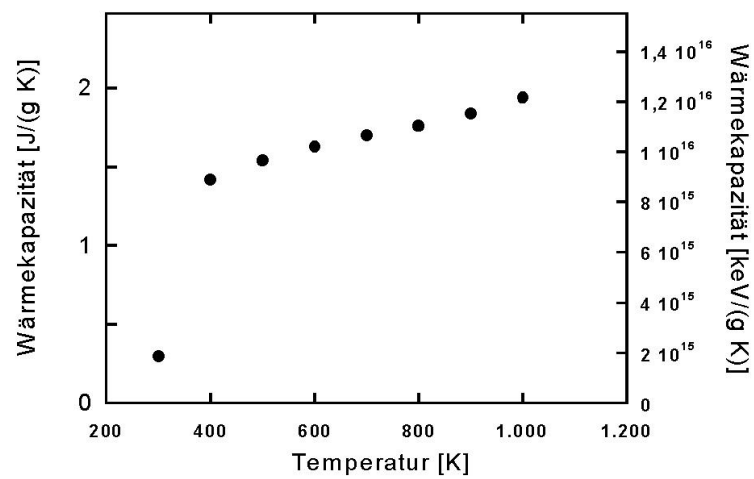
### *Lithiumfluorid, LiF*

LiF wurde einmal (unserer Meinung nach zu Recht) als das "Wasserstoffatom" der ionischen Kristalle bezeichnet [FG77]. Kein anderer Kristall verkörpert die Eigenschaften ionischer Kristalle besser als dieses Alkalihalogenid. Bereits seit den 30er Jahren des 20. Jahrhunderts wurden viele unterschiedliche experimentelle und theoretische Arbeiten zu diesem Material veröffentlicht (siehe z.B. [ES36]). Es besitzt unter allen Nichtleitern mit ionischer Bindung die größte Bandlücke (etwa 14 eV) und seine Bindungen sind praktisch vollkommen ungerichtet, also von perfekt ionischem Charakter. Da sich auch deshalb LiF als Modellsystem anbietet, sind sehr viele physikalische Informationen über diesen Festkörper verfügbar (siehe als kleinen Auszug Abb. 1.3 und Tabelle 1.1). Das Interesse an LiF auch als theoretisches Modell besteht dabei auch noch bis in unsere Zeit, da sich hier vergleichsweise einfach quantenmechanische Konzepte (siehe z.B. [KS54], [S00]) formulieren und überprüfen lassen.

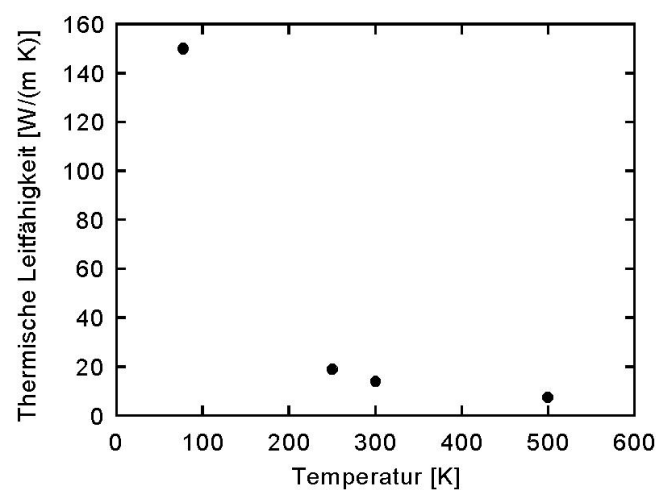
Bereits in den frühen 50er Jahren begann man sich für das Verhalten von Defekten in LiF zu interessieren. Klassische Bestrahlungen (d.h. mit Röntgenstrahlen, Elektronen und Neutronen) ermöglichen es, gezielt verschiedene Defekte zu erzeugen und deren Verhalten zu beobachten (als einige Beispiele seien repräsentativ [BS54], [BS55], [BV02] und [EG00] genannt). Eine ausführliche Beschreibung von LiF unter klassischer Bestrahlung könnte ein Buch füllen, obwohl auch in diesem Feld immer noch viele Fragen offen sind, was sich in der immer noch andauernden Flut an Veröffentlichungen bis heute widerspiegelt. Als guten Überblick zum strahlenspezifischen Verhalten ist die Lektüre von [L01] als Ausgangspunkt empfehlenswert. Als zunehmend Beschleuniger verfügbar wurden und auch in der Festkörperphysik und Materialforschung zum Einsatz kamen, zeigte sich, daß die Bestrahlung mit schweren Ionen nicht einfach als klassische Bestrahlung (im oben beschriebenen Sinn) extrem hoher Dosis verstanden werden kann (siehe dazu z.B. [PB90]).



a)



b)



c)

**Abb. 1.3:**

**a)** Kristallstruktur von LiF (NaCl-Typus, Bild entnommen aus [M99\_2]. **b)** Wärmekapazität von LiF als Funktion der Temperatur. **c)** Thermische Leitfähigkeit von LiF als Funktion der Temperatur. (Die gezeigten Werte in a) und b) stammen aus unterschiedlichen Quellen, siehe dazu Referenzen auf Zusatz-CD).

**Tabelle 1.1:**

Einige der wichtigsten Materialkonstanten von LiF.

Kubische Elementarzelle:	4,0173 Å
Molekulargewicht:	25,939 amu
Dichte:	2,635 g/cm <sup>3</sup>
Elastizitätsmodul:	110 GNm <sup>-2</sup>
Schubmodul:	45 GNm <sup>-2</sup>
Kompressibilität:	65 GNm <sup>-2</sup>
Schmelztemperatur:	1115 K
Thermische Ausdehnung:	34,4·10 <sup>-6</sup> K <sup>-1</sup>

Ganz neue Ansätze sind erforderlich, um das Verhalten von Festkörpern bei Einwirkung schneller Ionen zu verstehen (siehe dazu auch Kapitel 4), was bis heute allerdings noch immer nicht vollständig gelungen ist. Diese Arbeit wird versuchen, die immer noch bestehende Lücke an verfügbaren Daten zu verkleinern. Dabei wird das Augenmerk gänzlich auf die Oberflächen der Kristalle gelegt, da hier, wie man in Kapitel 3 sehen wird, nicht nur unerwartete Effekte auftreten (bisher wurden auf allen untersuchten ionischen Kristallen nach Ionenbestrahlung kleine Hügel gefunden und nicht, wie Modellierungen und Absputtermessungen vermuten ließen, kleine Krater), sondern auch die Menge an verfügbaren Messungen bisher sehr gering war.

Es sollte allerdings nicht der Eindruck entstehen, daß LiF nur für die Theorie ein interessanter Festkörper ist. Dieses Material, insbesondere auch in Form bestrahlter Kristalle, findet heute schon vielfältige technische Anwendungen. Eine der frühesten war sicher die Verwendung als Dosimeter. Aufgrund der besonderen optischen Eigenschaften bei Bestrahlung, insbesondere der Bildung sogenannter F-Zentren (Farb-Zentren, Elektronen auf Anionenplätzen, [N67], [SE01]), lassen sich einfach auszulesende und wieder ausheilbare Dosimeter herstellen, welche bis zu höchsten Dosen zuverlässig die Strahlenbelastung anzeigen können [BK01]. Dabei ist es von besonderem Vorteil, daß die F-Zentren in LiF besonders stabil und somit Informationsverluste ausgeschlossen sind. Eine weitere, wichtige Anwendung von bestrahltem LiF ist die Herstellung von CCL-Lasern (CCL  $\equiv$  Farbzentren-Laser, engl: Colour Center Laser). Diese Laser können durchstimmbare im sichtbaren Spektralbereich oder im nahen Infrarot hergestellt werden (z.B. [T99\_2], [T00] und [T00\_2]). In der Zukunft könnte LiF auch als Wellenleiter oder zur Herstellung integrierter Optiken eine wichtige Verwendung finden. Auch in diesem Bereich könnten die Ergebnisse der Untersuchung latenter

Ionenspuren einen Beitrag leisten, insbesondere weil es mit Ionen möglich ist, lokal sehr große Dosen zu applizieren.

### *Kalziumfluorid, $\text{CaF}_2$*

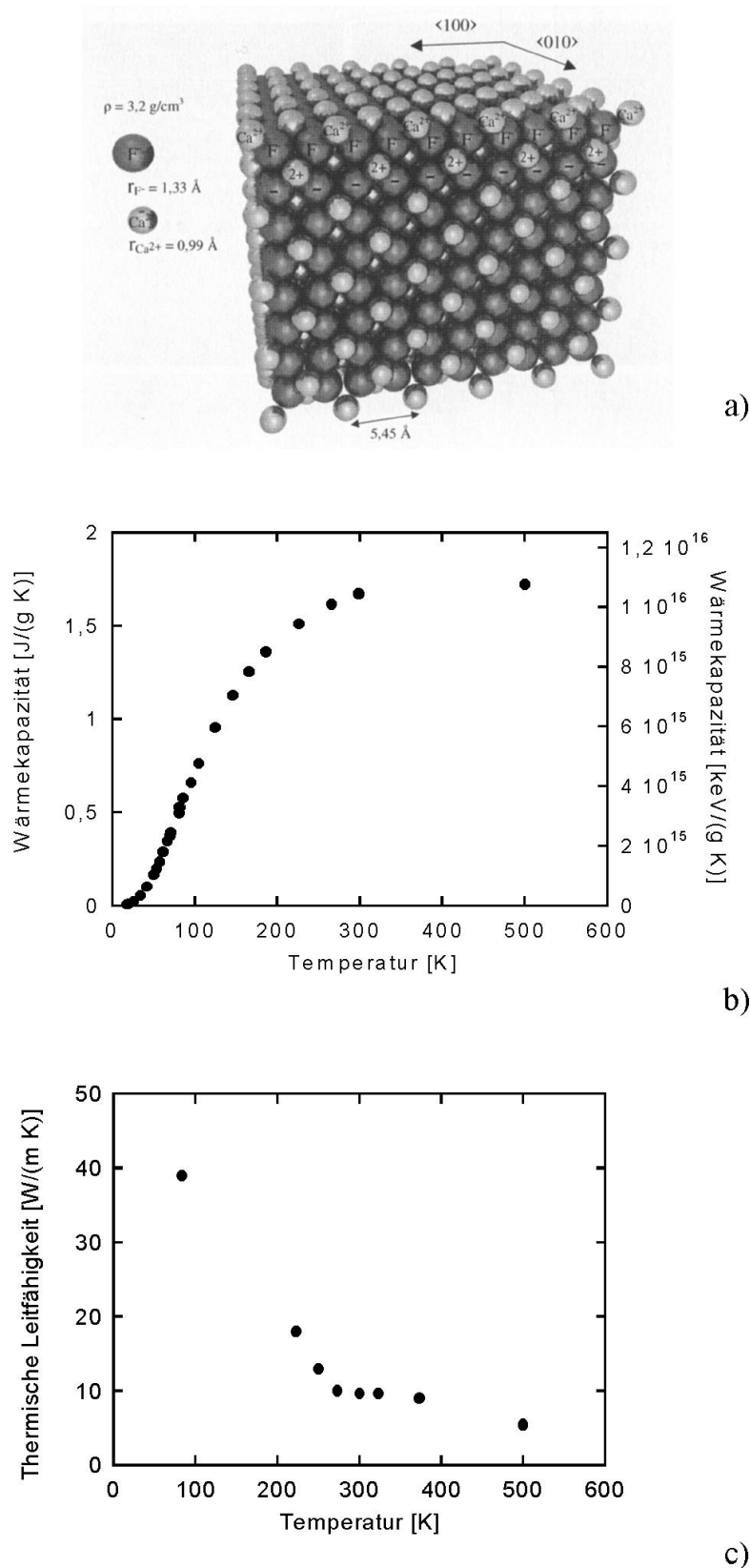
Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich nicht nur speziell mit Ionenspuren auf LiF. Um einen Beitrag zu einem breiteren Verständnis der Spurbildung zu liefern, wurden die Messungen auf ein weiteres Modellsystem ausgedehnt, was zur Überprüfung einer allgemeineren Gültigkeit der gefundenen Sachverhalte beitragen soll. Deshalb fiel die Wahl des zweiten in dieser Arbeit betrachteten Materials auf  $\text{CaF}_2$  (abschließend in Kapitel 4 werden wir versuchen, einen Zusammenhang zu weiteren Kristallsorten herzustellen).

#### **Tabelle 1.2:**

Einige der wichtigsten Materialkonstanten von  $\text{CaF}_2$ .

Kubische Elementarzelle:	5,46295 Å
Molekulargewicht:	78,07 amu
Dichte:	3,1815 g/cm <sup>3</sup>
Elastizitätsmodul:	110 GNm <sup>-2</sup>
Schubmodul:	42,5 GNm <sup>-2</sup>
Kompressibilität:	85,7 GNm <sup>-2</sup>
Schmelztemperatur:	1424 K (Phasenübergang)
Thermische Ausdehnung:	18,9·10 <sup>-6</sup> K <sup>-1</sup>

Im Falle von  $\text{CaF}_2$  ist die Situation ähnlich wie bei LiF. Zwar sind die Eigenschaften nicht ganz so umfassend untersucht wie bei LiF, aber auch hier finden sich zahlreiche Informationen in der Literatur (siehe Abb. 1.4 und Tabelle 1.2). Ferner gibt es auch bei  $\text{CaF}_2$  bereits zahlreiche Untersuchungen nach klassischen Bestrahlungen und nach Einwirkung von Ionen (z.B. [BV95]), an welche direkt angeknüpft werden kann.

**Abb. 1.4:**

**a)** Kristallstruktur von  $\text{CaF}_2$  (eigener Gittertyp: Fluorit-Typus, Bild entnommen aus [M99\_2]). Sie entsteht durch Ineinandersetzung eines primitiven F-Würfels in ein flächenzentriertes Ca-Gitter. **b)** Wärmekapazität von  $\text{CaF}_2$  als Funktion der Temperatur. **c)** Thermische Leitfähigkeit von  $\text{CaF}_2$  als Funktion der Temperatur. (Die gezeigten Werte in a) und b) stammen aus unterschiedlichen Quellen, siehe dazu Referenzen auf Zusatz-CD).

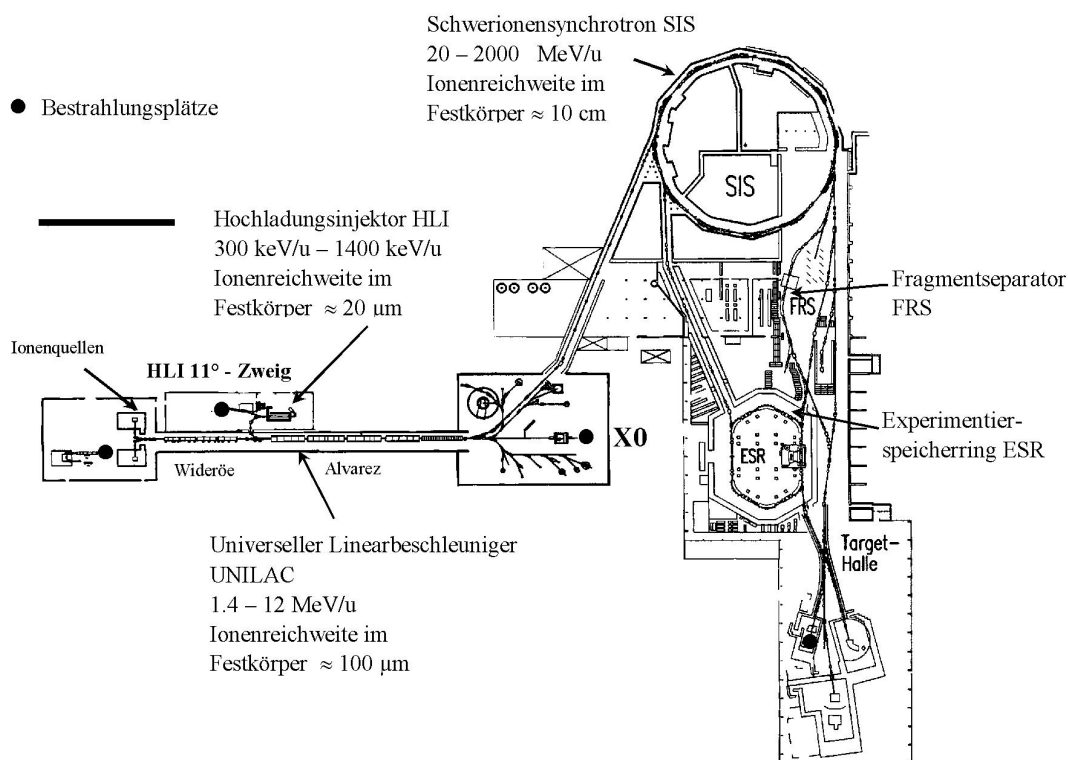


Es ist dabei natürlich von entscheidender Bedeutung, daß auch  $\text{CaF}_2$ -Kritalle als fast perfekte ionische Verbindungen aufgefaßt werden können [G74] und deshalb auch als Modell für die Klasse der ionischen Kristalle dienen können.

Auch  $\text{CaF}_2$  hat bereits viele Anwendungen gefunden, deren wichtigste sicher in der Optik als Linsen und Vakuumfenster zu finden sind (siehe u.a. [RH86], [SF86] and [TR88]).

### 1.3 Bestrahlungen

Bei der GSI stehen uns für die Bestrahlung von Proben mit Ionen zwei gruppeneigene Strahlplätze zur Verfügung. Zum einen am sogenannten  $11^\circ$ -Zweig des Hochladungsinjektors (HLI), zum anderen in der Experimentierhalle im Anschluß an den Linearbeschleuniger UNILAC (engl.: Universal Linear Accelerator).



**Abb. 1.5:**

Schematische Übersicht über die Beschleunigeranlagen der GSI (Bild entnommen aus [M99\_2]). Die Strahlplätze der Materialforschung am HLI- $11^\circ$ -Zweig und in der Experimentierhalle (X0) sind gekennzeichnet.

Abb. 1.5 zeigt einen schematischen Überblick über die Beschleunigeranlagen der GSI (entnommen aus [MM99\_2], siehe auch [TR96]). Die Positionen der Strahlplätze des Bereichs Materialforschung sind darin gekennzeichnet. Es ist möglich, alle Elemente von Helium bis einschließlich Uran zu beschleunigen, in der Praxis werden aber üblicherweise keine Ionen erzeugt, welche leichter als Kohlenstoff sind. Nach dem HLI haben die Ionen eine spezifische Energie von bis zu 1,4 MeV/u. Der UNILAC ermöglicht es, beliebige Energien zwischen 1,4 MeV/u und ca. 12 MeV/u zu erreichen. Vereinzelt wurden vom Bereich Materialforschung auch schon Proben am Schwerionensynchrotron (SIS) bestrahlt, was für diese Arbeit wegen der sehr hohen Energien am SIS jedoch keine Rolle spielt. Zusätzlich ermöglichen es Kollaborationen mit GANIL (Caen, Frankreich) und JAERI (Tokai, Japan), auch deren Beschleuniger für die Bestrahlung von Proben zu nutzen. Falls bei einer Messung Proben verwendet wurden, welche außerhalb der GSI bestrahlt wurden, so wird dies im Text stets ausdrücklich gekennzeichnet.