

Udo von Toussaint

**Anwendung der Bayesschen  
Wahrscheinlichkeitstheorie auf  
Ionenstrahldiagnostiken**

Application of Bayesian Probability Theory on  
Ion-Beam Diagnostics

IPP 9/124  
Juli 2000

MAX-PLANCK-INSTITUT FÜR PLASMAPHYSIK  
Boltzmannstraße 2, D-85748 Garching bei München

**Anwendung der Bayesschen  
Wahrscheinlichkeitstheorie auf  
Ionenstrahldiagnostiken**

Application of Bayesian Probability Theory on  
Ion-Beam Diagnostics

**Udo von Toussaint**

Dieser IPP-Bericht ist als Manuskript des Autors gedruckt. Die Arbeit entstand im Rahmen der Zusammenarbeit zwischen dem IPP und EURATOM auf dem Gebiet der Plasmaphysik. Alle Rechte vorbehalten.

This IPP-Report has been printed as author's manuscript elaborated under the collaboration between the IPP and EURATOM on the field of plasma physics. All rights reserved.

## Zusammenfassung

Ziel der vorliegenden Arbeit war es eine konsistente Auswertung der mit den verschiedenen Ionenstrahldiagnostiken (RBS, ERDA, PIXE) gewonnenen Meßdaten zu ermöglichen. Für dieses inverse Problem konnte mit Hilfe der Bayesschen Wahrscheinlichkeitstheorie eine Lösung gefunden werden, die es erstmals erlaubt nicht nur ein Tiefenprofil zu erhalten, sondern auch das Konfidenzintervall für die Lösung.

Das Grundprinzip beruht auf der Verwendung des Bayesschen Theorems zur Rückführung des inversen Problems auf berechenbare Größen. Zu ihrer Bestimmung wurden umfassende Programme zur Berechnung von Rutherford Rückstreuungsspektren (RBS), von Elastic Recoil Detection Analysis (ERDA) und von Particle Induced X-ray Emission (PIXE) entwickelt. Die Kombination dieser Programme mit einem adaptiven Verfahren zur Ermittlung der von den Daten unterstützten Zahl der Freiheitsgrade, basierend auf Ockham's Razor, ermöglicht die Bestimmung von vorher nicht zugänglichen Tiefenprofilen.

So ergibt sich aus  $^{12}\text{C}$  -  $^{13}\text{C}$  - Sondenexperimenten im Divertor des Fusionsexperimentes ASDEX-Upgrade bei Wasserstoffplasmaentladungen mit einer Ionenenergie von ca. 30eV und einem Fluß von  $1.5 \times 10^{23}$  Wasserstoffionen/m<sup>2</sup>s eine Erosionsrate von 0.0025 Kohlenstoffatome/Wasserstoffion. Bei Deuteriumplasmen ist sie mit 0.009 Kohlenstoffatomen/Deuteriumion deutlich höher. Diese Werte erlauben eine absolute Kalibrierung der spektroskopisch erhaltenen Daten.

Durch die Auswertung von ERDA Daten und den so erhaltenen Tiefenprofilen von Kohlenstoffproben mit niederenergetisch (1-8 keV) implantiertem Deuterium konnte ein 1.5-fach erhöhtes Bremsvermögen von  $\alpha$ -CH-Schichten verglichen mit den Vorhersagen der Braggschen Regel ermittelt werden. Damit zeigt sich die Anwendbarkeit des CAB-Modells zur Berechnung des Bremsvermögens für Energien auch unterhalb von 10keV.

Die durch die Bayessche Wahrscheinlichkeitstheorie mögliche Kombination von Messungen ermöglicht die Nutzung von synergistischen Effekten. Aus der simultanen Auswertung einer Winkelserie von PIXE-Meßdaten konnten Tiefenprofile ermittelt werden, die aus einer einzelnen Messung nicht zugänglich sind. Damit können erstmals mit PIXE-Messungen Tiefenprofile zusammen mit Konfidenzintervallen bestimmt werden. Bei der meßkanalübergreifenden Kombination von Daten ist die gemeinsame Verwendung von RBS und PIXE Messungen besonders vorteilhaft.

---

<sup>1</sup>Diese Arbeit ist identisch mit einer Dissertation gleichen Titels, die im Februar 2000 bei der Universität Bayreuth eingereicht wurde.

### Abstract

The aim of this work was to provide a consistent evaluation of data from different ion beam diagnostics (RBS, ERDA, PIXE). This inverse problem has been solved using Bayesian probability theory, which allows to compute estimates of the depth profile with error bars.

The solution is based on Bayes' theorem which reduces the inverse problem to terms which can be assigned. For this purpose comprehensive programs for the simulation of Rutherford Backscattering (RBS), Elastic Recoil Detection Analysis (ERDA) and Particle Induced X-ray Emission (PIXE) have been developed. An adaptive kernel approach for the determination of the number of effective degrees of freedom enables the calculation of depth profiles even in complicated cases.

The evaluation of tracer experiments of  $^{12}\text{C}$  -  $^{13}\text{C}$  samples, exposed in the divertor of the fusion experiment ASDEX-Upgrade to a hydrogen plasma with an energy of 30 eV and a particle flux of  $1.5 \times 10^{23}$  hydrogen ions/m<sup>2</sup>s results in an erosion rate of 0.0025 carbon atoms/hydrogen ion. An exposure to deuterium plasma increases the erosion rate up to 0.009 carbon atoms/deuterium ion. These results allow an absolute calibration of the spectroscopic measurements.

By ERDA analysis of a-CH samples implanted with low energy (1-8 keV) deuterium ions an 1.5 times increased stopping power compared with the value expected from Bragg's rule is measured. This is in agreement with the cores and bonds model (CAB), indicating its validity in this low energy range.

The Bayesian approach makes possible the use of synergetic effects by the combination of different measurements. A depth profile can be achieved by simultaneous evaluation of PIXE measurements with different incidence angles. This allows for the first time a depth profile estimation with confidence intervals from PIXE data.

Especially advantageous for trace element depth profiling is the combination of the ion beam diagnostics PIXE and RBS.

---

<sup>2</sup>This report is identical with a thesis under the same title which was submitted to the Universität Bayreuth in February 2000.



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Bayessche Wahrscheinlichkeitstheorie</b>	<b>5</b>
2.1	Inverse Probleme . . . . .	5
2.2	Grundlagen der Bayesschen Wahrscheinlichkeitstheorie . . . .	7
2.2.1	Prior-Wahrscheinlichkeit . . . . .	10
	Transformationsinvarianzen . . . . .	10
	Das Maximum-Entropie-Prinzip . . . . .	11
	Kontinuierliche positive und additive Verteilung . . . .	12
2.2.2	Die Likelihood . . . . .	14
2.2.3	Der Regularisierungsparameter $\alpha$ . . . . .	16
2.3	Adaptive Kernel . . . . .	18
<b>3</b>	<b>RBS-Tiefenprofile</b>	<b>23</b>
3.1	Prinzip der RBS-Analyse . . . . .	24
3.2	Die Physik der Rutherford-Rückstreuung . . . . .	25
3.2.1	Der kinematische Faktor . . . . .	26
3.2.2	Rutherfordscher Streuquerschnitt . . . . .	26
3.2.3	Bremsvermögen . . . . .	29
	Elektronischer Energieverlust . . . . .	30
	Der nukleare Energieverlust . . . . .	33
	Braggsche Regel . . . . .	34
3.2.4	Energieverbreiterung in der Probe . . . . .	35
	Elektronische und Nukleare Energieverlustverbreiterung	36
	Mehrfachstreuung . . . . .	37

Vielfachstreuung . . . . .	38
Probeninhomogenitäten . . . . .	39
Geometrische Energieverbreiterung . . . . .	39
3.2.5 Energieverbreiterung in Halbleiterdetektoren . . . . .	40
3.3 Simulation von Rutherford Rückstreuenspektren . . . . .	41
3.3.1 Beschreibung der Probe . . . . .	42
3.3.2 Simulationsimplementierung . . . . .	43
Energieberechnung . . . . .	44
Energieverbreiterung durch die Schichtfolge . . . . .	45
Anzahl der gestreuten Ionen . . . . .	46
3.4 Experiment . . . . .	46
3.4.1 Experimentelle Durchführung . . . . .	47
3.4.2 Analyse . . . . .	49
3.4.3 Fehlerintervalle . . . . .	53
3.5 Ergebnisse . . . . .	53
<b>4 ERDA-Tiefenprofile</b>	<b>59</b>
4.1 Die Grundlagen von ERDA . . . . .	61
4.2 Experiment . . . . .	63
4.2.1 Experimentelle Durchführung . . . . .	64
4.2.2 Analyse . . . . .	65
4.3 Ergebnisse . . . . .	67
<b>5 PIXE</b>	<b>73</b>
5.1 Grundlagen von PIXE . . . . .	74
5.1.1 Linienstruktur . . . . .	74
5.1.2 Wirkungsquerschnitte . . . . .	76
5.1.3 Absorptionsquerschnitte . . . . .	78
5.1.4 Detektor . . . . .	78
5.1.5 Intensität . . . . .	80
5.2 Experiment . . . . .	81
5.2.1 Experimentelle Durchführung . . . . .	81
5.2.2 Auswertung . . . . .	83
5.3 Ergebnisse . . . . .	84

<b>6 Zusammenfassung</b>	<b>89</b>
<b>Anhang</b>	<b>i</b>
<b>A Eigenschaften des linearen Modells</b>	<b>i</b>
<b>B Qualitative Betrachtung der Energieabhängigkeit des Bremsvermögens</b>	<b>v</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>vii</b>

# Kapitel 1

## Einleitung

Das Ziel eines physikalischen Experiments ist der *Erkenntnisgewinn*, der ein Modell oder eine Theorie stützen oder widerlegen kann. Um diesen Erkenntnisgewinn zu maximieren sind verschiedene Schritte nötig. In der Planungsphase eines Experiments muß die Entscheidung für den optimalen Versuchsaufbau getroffen werden: Welche Diagnostik ist am geeignetesten, erlaubt die aussagekräftigsten Messungen? Während der Experimentdurchführung kommt es auf Sorgfalt und Reproduzierbarkeit an. Und schließlich folgt die Datenauswertung. Diese drei Phasen eines Experimentes sind natürlich nicht klar voneinander getrennt, sondern miteinander verwoben. So sollte schon bei der Konzeption des Versuches auf die nachfolgende Datenanalyse geachtet werden, um die bestmöglichen Resultate erzielen zu können.

Eine fundierte, mitunter rechenintensive Datenauswertung kann zu Aussagen führen, die mit weiteren Experimenten sonst nur unter hohem Zeit- und Kostenaufwand erreicht werden könnten. Durch die zunehmende Verfügbarkeit von preiswerten und leistungsfähigen Computern wird dies noch vereinfacht. Unmittelbar zeigen sich die Vorteile einer sorgfältigen Datenanalyse auch bei Messungen, die nicht wiederholt werden können (z.B. bei Daten aus der Astronomie [LOREDO 1990]), oder bei Großexperimenten wie ASDEX Upgrade, bei denen bestimmte Versuchsabläufe aufgrund der Vielzahl von Meßprogrammen nur einmal durchgeführt werden. ASDEX Upgrade ist ein Fusionsgroßexperiment, das die Grundlagen für ein besseres Verständnis des Plasmaverhaltens in Tokamaks schafft. Ein Schwerpunkt der Untersuchungen

bei ASDEX Upgrade ist die Plasma-Wand-Wechselwirkung, die von entscheidender Bedeutung für die Realisierbarkeit von Fusionsreaktoren ist. Die für den Betrieb von ASDEX Upgrade einzuhaltenden physikalischen Parameterbereiche wie Plasmazusammensetzung oder Plasmatemperatur entsprechen jedoch selten denen, die für eine Analyse der Plasma-Wand-Wechselwirkung am geeignetesten wären. Die wenigen, aus speziell geplanten Meßkampagnen stammenden Daten müssen daher bestmöglichst ausgewertet werden.

Für die Untersuchung der Oberflächenbeschaffenheit von Materialien bis in eine Tiefe von ca.  $1 \dots 10 \mu\text{m}$  werden vor allem die Ionenstrahltechniken RBS (Rutherford Backscattering Spectroscopy), ERDA (Elastic Recoil Detection Analysis) und PIXE (Particle Induced X-Ray Emission) verwendet. Im Rahmen dieser Arbeit soll aufgezeigt werden, wie durch die Kombination dieser etablierten Meßverfahren und der Bayesschen Wahrscheinlichkeitstheorie neue und bisher nicht zugängliche Informationen aus den gemessenen Daten gewonnen werden können.

Einen Überblick über die Bayessche Wahrscheinlichkeitstheorie und das Maximum-Entropie-Prinzip wird im 2. Kapitel gegeben. Obgleich die Theorie in Grundzügen schon seit den Zeiten von Laplace existiert [LAPLACE 1812], sind die mit ihrer praktischen Anwendung auf konkrete (größere) Fragestellungen verbundenen mathematischen Probleme erst mit der Rechenleistung moderner Computer bewältigbar geworden [FRENCH und SMITH 1997]. Dies hat die starke Verbreitung der Bayesschen Wahrscheinlichkeitstheorie in den letzten Jahren gefördert [MALAKOFF 1999]. Noch wichtiger aber dürfte die Erkenntnis gewesen sein, daß die meisten Datenauswertungen auf inverse Probleme führen, deren konsistente Behandlung nur mit der Bayesschen Wahrscheinlichkeitstheorie möglich ist.

Die daran anschließenden Kapitel zeigen die Möglichkeiten auf, die durch eine Kombination der Modelle zur Beschreibung der Ionenstrahldiagnostiken zusammen mit dem Bayesschen Theorem für den Rückwärtsschluß gegeben sind. Hierfür werden Simulationsprogramme benötigt, die eine möglichst genaue Abbildung des Meßprozesses gewährleisten.

Zuerst wird die Analyse von Wandkacheln von ASDEX Upgrade mittels Rutherford Rückstreuung (RBS) behandelt. Eines der großen Probleme auf dem Weg zu einer selbsterhaltenden Fusionsreaktion ist die Wechselwirkung des

Plasmas mit den umhüllenden Wänden. Hier sind möglichst exakte Aussagen über die Erosion verschiedener Materialien durch die Plasma-Wand-Wechselwirkung bei unterschiedlichen Betriebsparametern nötig. Auf der einen Seite können sich von der Wand erodierte Partikel im Plasma anreichern und durch erhöhte Abstrahlung zu einer starken Abkühlung des Plasmas führen. Andererseits kann eine Bedeckung von Wandstellen mit an anderen Plätzen erodiertem Material (Redeposition) eine unerwünschte Materialmischung bedingen. Durch Einbringen von Wandproben in ASDEX Upgrade und die Untersuchung der Veränderung der Sonden durch die Plasmaexposition steht prinzipiell ein direkter Nachweis zur Verfügung. Allerdings waren die von den Proben erhaltenen RBS-Spektren bisher nicht mit der erforderlichen Genauigkeit quantitativ auswertbar. Diese, wie auch beliebige andere RBS-Spektren sind nun einer Analyse zugänglich, die nicht nur die gesuchten Tiefenprofile liefert, sondern darüberhinaus auch die Bestimmung von Fehlerintervallen erlaubt.

Ebenso für die Fusionsforschung relevant sind die Untersuchungen an Kohlenstoff- und Wolframsystemen. Da die Strahlungskühlung proportional zu  $Z^{4...5}$  ist, wurde bis vor kurzem die Verwendung von Materialien mit niedriger Kernladungszahl  $Z$  als inneres Wandmaterial favorisiert. Aufgrund der niedrigeren Erosionsraten findet jedoch nun die Verwendung von Hoch- $Z$ -Materialien verstärktes Interesse [DAVIS et al. 1998]. Viele Fragen bedürfen der Klärung, wie z.B. unterscheidet sich das Verhalten von Wasserstoff in beiden möglichen Wandmaterialien, welches Tritiuminventar kann sich in den Wänden aufbauen? Eine besonders geeignete Diagnostik für diese Fragestellung ist ERDA, da hiermit selektiv die leichteren Kerne des Wasserstoffs (und gegebenenfalls der Wasserstoffisotope) in Kohlenstoff bzw. Wolfram nachgewiesen werden können, was mit RBS nicht möglich ist. Auch in diesem Fall erlaubt die Bayessche Wahrscheinlichkeitstheorie die Gewinnung von Tiefenprofilen mit einer Genauigkeit, die andernfalls nur mit einem sehr viel aufwendigeren Instrumentarium zu erzielen gewesen wäre. Damit konnte die Reichweitenverteilung von niederenergetischen Wasserstoffisotopen in Wandmaterialien untersucht werden, die die Höhe des Tritiuminventares bestimmt.

Die im abschließenden Kapitel vorgestellte Analysetechnik PIXE hat ihre Stärken im Gegensatz zu RBS und ERDA beim Nachweis von Elementen,

die nur in Spuren vorkommen. Diese Eigenschaft macht PIXE zu einer in vielen Bereichen wie Archäologie oder Umweltanalytik eingesetzten Technik [JOHANSSON und CAMPBELL 1988]. Leider enthalten die mit PIXE gewonnenen Daten keine direkte Tiefeninformation, die aber in vielen Fällen wünschenswert wäre. Jedoch kann die gemeinsame Berücksichtigung mehrerer Messungen derselben Probe unter Winkel- oder Energievariation die Möglichkeit der Tiefenprofilbestimmung bieten. Die bisherigen Versuche lieferten keine zufriedenstellenden Ergebnisse [PABST 1974] oder waren nur unter engen Voraussetzungen anwendbar [LIEW et al. 1994]. In dieser Arbeit wird nun ein Weg aufgezeigt, wie mit geringem experimentellen Aufwand die Elementverteilung durch PIXE bestimmt werden kann. Dies erweitert die Anwendungsmöglichkeiten von PIXE in einen Bereich der bisher diagnostisch so nicht zugänglich war.

## Kapitel 2

# Bayessche

# Wahrscheinlichkeitstheorie

### 2.1 Inverse Probleme

Jede Auswertung einer Messung erfordert das Lösen eines *inversen Problems* der Form

$$D = \mathcal{O}f + r, \quad (2.1)$$

wobei  $D$  die gemessenen Daten  $d_i, i = 1..N$  repräsentiert,  $r$  das Rauschen und  $\mathcal{O}$  einen Operator der die gesuchte Größe  $f$  in den Datenraum abbildet:

$$\tilde{D} = (\tilde{d}_1, \tilde{d}_2, \dots, \tilde{d}_N) = \mathcal{O}f. \quad (2.2)$$

$\tilde{D}$  ist somit der *ideale* Datenvektor, d.h. er beinhaltet die unverrauschten Daten  $\tilde{d}_i$ . Abhängig von den Eigenschaften des Operators und der Rauschstatistik kann das inverse Problem, d.h. die Bestimmung von  $f$  aus den Daten  $D$ , sehr schwer zu behandeln sein. Beim Ablesen eines Thermometers zur Temperaturbestimmung ist der Operator  $\mathcal{O}$  die Identität und der Fehler  $n$  normalerweise vernachlässigbar. Daher bereitet es in diesem Fall kein Problem aus dem abgelesenen Datum  $D$  die Temperatur  $f$  zu bestimmen. Sehr viel schwieriger ist Gleichung 2.1 beispielsweise zu lösen, falls der Operator  $\mathcal{O}$  einer Faltung mit einer (breiten) Gaußfunktion entspricht:

$$d(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma}} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{x-y}{\sigma}\right)^2} f(y) dy + r(x). \quad (2.3)$$



Obwohl hier der inverse Operator  $\mathcal{O}^{-1}$  analytisch angegeben werden kann, führt die direkte Anwendung des inversen Operators schon bei kleinsten Beiträgen von  $r$  zu sinnlosen Ergebnissen. Das inverse Problem wird durch das Vorhandensein von Rauschen zu einem *schlecht gestellten* (ill-posed) Problem [LOUIS 1989]. Dies wird in Bild 2.1 veranschaulicht. Im oberen Gra-

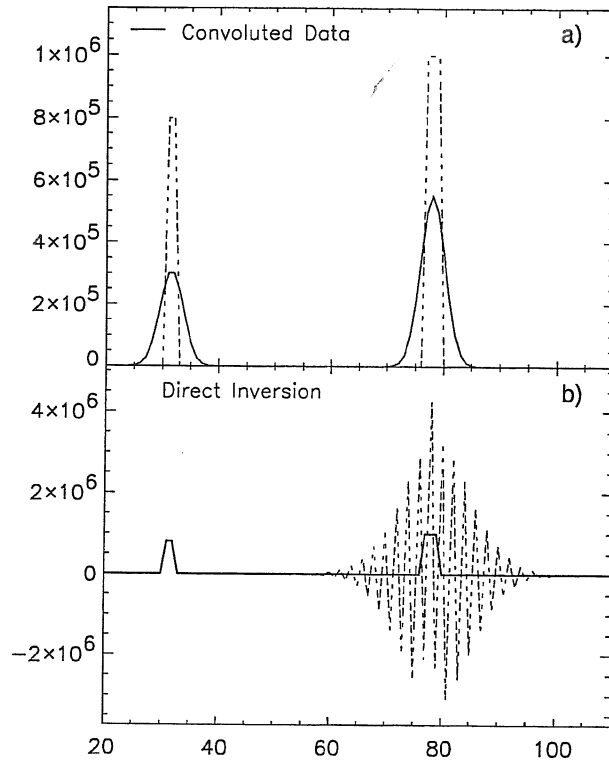


Abbildung 2.1: Bild 2.1a zeigt die Faltung von zwei Peaks mit einer Gaußkurve. Bild 2.1b gibt das Ergebnis der direkten Inversion wieder, wobei in der zu entfaltungenden Kurve in Kanal 79 ein Datenpunkt um einen Zähler ( $= 10^{-4}\%$ ) verändert wurde.

phen ist gestrichelt das Ausgangssignal dargestellt und als durchgezogene Linie das Resultat einer Faltung mit einer Gaußkurve der Varianz 5. Die direkte Inversion des Faltungsergebnisses liefert wieder das Ausgangssignal (durchgezogene Linie in der unteren Bildhälfte). Jede Veränderung der gefalteten Kurve vor der Inversion führt sofort zu unbefriedigenden Resultaten. Als gestrichelte Linie in Bild 2.1b ist das Inversionsergebnis bei einer Erniedrigung der Impulszahl von Kanal 79 um eins (entspricht  $10^{-4}\%$ ) dargestellt.

Die Rekonstruktion ist stark oszillierend und stimmt nicht mehr mit dem Ausgangssignal überein. Stammt das Ausgangssignal aus einem Zählexperiment, wäre bei einer Impulszahl von  $10^6$  die Standardabweichung aufgrund der Zählstatistik 1000. Mit anderen Worten: Bei hinreichend schlecht gestellten Problemen ist es überhaupt nicht möglich, das gesuchte Ergebnis durch direkte Inversion aus den Meßdaten zu gewinnen. Innerhalb der möglichen Variationen der Meßdaten alleine durch den Einfluß des Rauschens existieren beliebig viele Lösungen von Gleichung 2.1 für  $f$ , die in einem weiten Bereich um die unbekannte ‚wahre‘ Lösung streuen können.

In den meisten Fällen ist die Lage aber günstiger. Es liegt neben dem Meßergebnis auch ein konkretes physikalisches Wissen über den behandelten Sachverhalt vor. Die Bayessche Wahrscheinlichkeitstheorie bezieht sowohl die Information aus der Messung als auch das Vorwissen in die Beantwortung der physikalischen Fragestellung mit ein. Damit erlaubt uns die Bayessche Wahrscheinlichkeitstheorie die Beantwortung der Frage: Was ist die Wahrscheinlichkeitsverteilung  $p(f | D, r, I)$  der gesuchten Größe  $f$  unter Berücksichtigung der gemessenen Daten  $D$  mit ihren Fehlern  $r$  und sonstigem Vorwissen  $I$ ?

## 2.2 Grundlagen der Bayesschen Wahrscheinlichkeitstheorie

In der ursprünglichen Bedeutung des Begriffs Wahrscheinlichkeit als Wahrheitsgrad einer Proposition, ist sie ein Maß dafür, wie stark man aufgrund des eigenen Kenntnisstandes glaubt, daß eine Behauptung wahr ist [BAYES 1763, LAPLACE 1812, BERNOULLI 1713]. Diese, der Bayesschen Wahrscheinlichkeitstheorie zugrundeliegende Definition [SIVIA 1996], wurde in der Folgezeit von der zunächst objektiver erscheinenden Betrachtung von Wahrscheinlichkeit als relative Häufigkeit bei einer unendlich großen Zahl von Versuchen abgelöst [RASCH 1995]. Letzteres ist allerdings problematisch, da man meist keine Zufallsexperimente mit einer großen Zahl von Versuchen vorliegen hat, sondern Fragestellungen mit Unsicherheiten aufgrund mangelnder Information behandeln muß. Die orthodoxe Statistik entwickelte eine Vielzahl von

Methoden [SACHS 1972], um mit dieser Problematik umzugehen, welche jedoch keinen klaren Prinzipien unterliegen. Dagegen erlaubt die ursprüngliche Definition, die durch Jeffreys wiederentdeckt wurde [JEFFREYS 1939], eine logisch konsistente Behandlung. Die nötigen Rechenregeln zur quantitativen Beschreibung wurden von Cox [COX 1946] entwickelt.

In der Bayesschen Wahrscheinlichkeitstheorie wird der Wahrheitsgrad einer Hypothese  $H_i$  durch die bedingte Wahrscheinlichkeit

$$p(H_i|I) \quad (2.4)$$

ausgedrückt. Die Wahrscheinlichkeit für  $H_i$  wird durch die Hintergrundinformation  $I$  beeinflusst. Zwei Axiome bilden die Grundlage der Bayesschen Wahrscheinlichkeitstheorie: Die Summenregel

$$p(H|I) + p(\overline{H}|I) = 1 \quad (2.5)$$

und die Produktregel

$$p(H, D|I) = p(H|D, I)p(D|I) = p(D|H, I)p(H|I). \quad (2.6)$$

Wir betrachten Hypothesen  $H$ , die wir aufgrund unseres Vorwissens  $I$  für plausibel halten. Die Summenregel drückt aus, daß die Wahrscheinlichkeit für die Gültigkeit von Hypothese  $H$  zusammen mit der komplementären Wahrscheinlichkeit, daß die Hypothese  $H$  falsch ist ( $= \overline{H}$ ), den Wert 1 hat, also eine Hypothese immer entweder wahr oder falsch ist. Die Produktregel konstatiert, daß die Wahrscheinlichkeit für das gleichzeitige Vorliegen von  $H$  und  $D$  bei einem Hintergrundwissen  $I$  gegeben ist durch das Produkt der Wahrscheinlichkeit für  $H$  bei gegebenem  $D$  und der Wahrscheinlichkeit für  $D$  gegeben  $I$  und umgekehrt. Durch einfache Anwendung der Summen- und Produktregel ergibt sich die wichtige Möglichkeit der Marginalisierung:

$$p(D|H, I) = \int dx p(x|H, I)p(D|x, H, I). \quad (2.7)$$

Sie erlaubt es, Parameter (hier  $x$ ), die für das Modell wichtig sind, aber im Ergebnis nicht explizit erscheinen sollen, zu eliminieren. Voraussetzung für die Gültigkeit von Gleichung 2.7 ist die Existenz der Normierung

$$\int dx p(x|H, I) = 1. \quad (2.8)$$

Wenn wir nun Gleichung 2.6 nach  $p(H|D, I)$  auflösen, so folgt die zentrale Gleichung der Bayesschen Wahrscheinlichkeitstheorie, das **Bayessche Theorem**:

$$p(H|D, I) = \frac{p(D|H, I)p(H|I)}{p(D|I)}. \quad (2.9)$$

Gleichung 2.9 beschreibt, wie die (Posterior-) Wahrscheinlichkeit  $p(H|D, I)$  für eine Hypothese  $H$  im Lichte der Daten  $D$  modifiziert werden muß. Sie besteht aus folgenden Termen:

- **Priorwahrscheinlichkeit**  $p(H|I)$ : die Wahrscheinlichkeit, die wir der Hypothese  $H$  vor (a priori) der Kenntnis der neuen Daten  $D$  aufgrund unseres Vorwissens zuordnen. Dieses Vorwissen kann z.B. aus früheren Messungen oder aus der dem Modell zugrunde liegenden physikalischen Theorie stammen.
- **Likelihood**  $p(D|H, I)$ : gibt die Wahrscheinlichkeit für die gemessenen Daten  $D$ , unter der Voraussetzung daß die Hypothese  $H$  zutrifft, an.
- **Evidenz**  $p(D|I)$ : läßt sich mit Hilfe der (diskreten Form der) Marginalisierungsregel 2.7 als

$$p(D|I) = \sum_{i=1}^n p(H_i|I)p(D|H_i, I) \quad (2.10)$$

schreiben und ist für Modellvergleiche von entscheidender Bedeutung. Bei der Parameterschätzung stellt sie jedoch nur eine einfache Normierungsgröße dar, da sie nicht explizit von der Hypothese  $H$  abhängt.

Die Bedeutung des Bayesschen Theorems liegt in der Möglichkeit, die Rückwärtswahrscheinlichkeit  $p(H|D, I)$  durch die leichter zugängliche Vorwärtswahrscheinlichkeit, der Likelihood, und den Prior zu bestimmen. Diese Rückwärtswahrscheinlichkeit ist in der orthodoxen Statistik nicht zugänglich, da hier nur Vorwärtswahrscheinlichkeiten  $p(D|H)$  bestimmt werden können. Gerade aber bei inversen Problemen, wie sie natürlicherweise in der Datenanalyse vorkommen, ist die Rückwärtswahrscheinlichkeit (Posterior-Wahrscheinlichkeit) die interessierende Größe.

### 2.2.1 Prior-Wahrscheinlichkeit

Die Prior-Wahrscheinlichkeit soll das Vorwissen beinhalten, das man vor der Messung der neuen Daten hat. Damit stellt sich die Frage, wie man erstmalig die Prior-Wahrscheinlichkeiten bestimmt. Die weiteren Umformungen erfolgen dann durch die Anwendung von Summen- und Produktregel, sowie des Bayesschen Theorems. Im wesentlichen gibt es dafür zwei Möglichkeiten: Ausnutzen von Symmetrieeigenschaften des betrachteten Systems und Wahl der Verteilung mit der höchsten Entropie [BRETTHORST 1988] [ROSENKRANTZ 1983].

#### Transformationsinvarianzen

Das Produkt aus Wahrscheinlichkeitsdichte und zugehörigem Volumenelement ist eine dimensionslose Zahl und daher unter Koordinatentransformationen invariant:

$$p(\sigma|I) d\sigma = p(\sigma'|I) d\sigma' = \text{const.} \quad (2.11)$$

Dies kann ausgenutzt werden, um aus vorliegenden Invarianzen die Priorverteilungen zu ermitteln. Beispielsweise ist der Prior für eine Skalenvariable wegen der Beziehung

$$p(\sigma|I) d\sigma = p(\alpha\sigma|I) d(\alpha\sigma) = p(\alpha\sigma|I) \alpha d\sigma \quad (2.12)$$

die zu der Funktionalgleichung

$$p(\sigma|I) = \alpha p(\alpha\sigma|I) \quad (2.13)$$

führt, durch Jeffreys Prior [JEFFREYS 1939]

$$p(\sigma) = \frac{c}{\sigma} \quad (2.14)$$

gegeben. Dieser ist für  $0 \leq \sigma \leq \infty$  nicht normierbar, ein sogenannter *improper* Prior. Für physikalische Größen werden sich aber immer Grenzen angeben lassen  $\sigma_l \leq \sigma \leq \sigma_u$ , wodurch eine Normierung möglich wird.

$$\int_{\sigma_l}^{\sigma_u} \frac{c}{\sigma} d\sigma \stackrel{!}{=} 1. \quad (2.15)$$

Jedoch reichen die Transformationsinvarianzen eines Systems nur in wenigen Fällen aus, um alle benötigten Prior-Wahrscheinlichkeiten zuweisen zu

können. Andererseits existiert fast immer weiteres Vorwissen, welches bei der Wahl der korrekten Prior-Wahrscheinlichkeit berücksichtigt werden muß. Hier hilft das Prinzip der maximalen Entropie weiter.

### Das Maximum-Entropie-Prinzip

Vorwissen kann beispielsweise in Form von Erwartungswerten von Observablen

$$\langle O_\nu \rangle = \sum_i p(A_i|I) O_\nu(A_i), \quad (2.16)$$

wie etwa Mittelwert oder Varianz als überprüfbare Information (*testable information*) vorliegen [JAYNES 1983]. Die gesuchte Wahrscheinlichkeitsverteilung  $p(A_i|I)$  muß damit vereinbar sein. Allerdings gibt es im allgemeinen unendlich viele Wahrscheinlichkeitsverteilungen, die mit den Erwartungswerten (2.16) kompatibel sind, da in den meisten Fällen weniger Erwartungswerte als freie Variablen vorhanden sind. Durch die Einführung einer geeigneten Zusatzbedingung an die Wahrscheinlichkeitsverteilung kann nun die Menge der Wahrscheinlichkeitsverteilungen, die 2.16 erfüllen, geordnet und eine eindeutige Auswahl getroffen werden: man wählt diejenige mit dem niedrigsten Informationsgehalt [KAPUR und KESAVAN 1992]. Eine Verteilung mit höherem Informationsgehalt kann nur durch die Verwendung von zusätzlicher Information gewonnen werden. Da die gesamte zur Verfügung stehende Information aber schon die Menge der zulässigen Wahrscheinlichkeitsverteilungen beschränkt hat, ist unter diesen verbleibenden die Wahrscheinlichkeitsverteilung mit dem niedrigsten Informationsgehalt ausgezeichnet. Als Maß für den Informationsgehalt einer diskreten Wahrscheinlichkeitsverteilung wird die Shannon-Entropie [SHANNON 1948] herangezogen.

$$S(A) = - \sum_i p(A_i|I) \log(p(A_i|I)) . \quad (2.17)$$

Diese konnte von Shannon aus folgenden Bedingungen abgeleitet werden:

- $S$  ist kontinuierlich bezüglich der  $p(A_i|I)$
- Für gleiche Werte von  $p(A_i|I) = 1/n \forall i \in [1, n]$  steigt  $S$  monoton mit wachsendem  $n$

- Die Kombination von Einzelereignissen darf die Entropie nicht erhöhen:  $S(p_1, p_2, p_3, \dots, p_n) \geq S(p_1 + p_2, p_3, \dots, p_n)$

Diese Größe ist bei einem sicheren Ereignis Null, ansonsten positiv und nimmt ihren Maximalwert bei einer Gleichverteilung von  $p$  an. Das Jaynessche Maximum-Entropie-Prinzip besteht nun darin, die Entropie  $S$  unter den Nebenbedingungen (2.16) und der Normierung

$$\sum_i p(A_i|I) = 1 \quad (2.18)$$

zu maximieren [JAYNES 1983]. Zu diesem Zweck wird das Maximum der Lagrange-Funktion

$$\mathcal{L} = S - \lambda_0 \left( \sum_i p(A_i|I) - 1 \right) - \sum_\nu \lambda_\nu \left( \sum_i p(A_i|I) O_\nu(A_i) - \langle O_\nu \rangle \right) \quad (2.19)$$

mittels  $\partial \mathcal{L} / \partial p(A_i|I) = 0$  gesucht. Aufgrund der Form von  $S$  erhält man auf diese Weise immer das globale Maximum [KAPUR und KESAVAN 1992]. Die so erhaltene Wahrscheinlichkeitsverteilung

$$p(A_i|\lambda_1, \dots, \lambda_n, I) = \frac{\exp\left(-\sum_{\nu=1}^n \lambda_\nu O_\nu(A_i)\right)}{\sum_i \exp\left(-\sum_{\nu=1}^n \lambda_\nu O_\nu(A_i)\right)} \quad (2.20)$$

beinhaltet die Nebenbedingungen 2.16 und die Normierung 2.18. Gleichzeitig ist sie die Verteilung mit dem niedrigsten Informationsgehalt (höchster Entropie) der mit den Randbedingungen verträglich ist. Jede andere Verteilung mit einer kleineren Entropie wäre nicht korrekt, da sie aus 2.20 nur durch zusätzliche, hier jedoch nicht vorliegende Einschränkungen gewonnen werden kann [KAPUR und KESAVAN 1992].

### Kontinuierliche positive und additive Verteilung

Die naheliegende Verallgemeinerung der Entropie von diskreten Verteilungen auf kontinuierliche Verteilungen

$$S(A) = - \sum_i p(A_i|I) \log(p(A_i|I)) \Rightarrow S(f(x)) = - \int dx f(x) \log f(x) \quad (2.21)$$

ist nicht korrekt, da sich die so berechnete Entropie unter Koordinatentransformation ändert. Vielmehr ergibt sich für kontinuierliche Verteilungen die Entropie durch

$$S_k(f, m) = - \int dx f(x) \log \frac{f(x)}{m(x)} \stackrel{\text{def.}}{=} -D(f : m), \quad (2.22)$$

wobei  $m(x)$  das Maß auf dem Raum von  $x$  ist [SKILLING 1988]. Kullback und Leibler [KULLBÄCK und LEIBLER 1951] gaben Gleichung 2.22 eine weitere, interessante Bedeutung. Gleichung 2.22 kann, im kontinuierlichen wie im diskreten Fall, auch als Abstand der Wahrscheinlichkeitsverteilung  $p$  von  $m$  aufgefaßt werden. Eine Minimierung von  $D(p : m)$  durch Variation von  $p$  unter Berücksichtigung der Observablen führt zu einer Wahrscheinlichkeitsverteilung die möglichst ‚nahe‘ bei  $m$  liegt. Insofern wirkt  $m$  als Modell von dem  $p$  nur durch zusätzliche Informationen abweicht. Im Grenzfall eines konstanten Modells  $m_i = \text{const.} = 1/n$  ist die Minimierung der Kullback-Leibler-Distanz gleichbedeutend mit der Maximierung der Shannon-Entropie (hier für den diskreten Fall gezeigt):

$$\begin{aligned} D(p : m) &= \sum_{i=1}^n p(A_i|I) \log \frac{p(A_i|I)}{1/n} = \log n - \left( - \sum_{i=1}^n p(A_i|I) \log p(A_i|I) \right) \\ &= \log n - S(A). \end{aligned} \quad (2.23)$$

Für positive und additive Verteilungen (Positive Additive Distributions (PAD))  $f(x)$ , die nicht normiert sein müssen, konnte Skilling folgende Form der Entropie herleiten:

$$S_{PAD}(f, m) = - \int dx \left( f(x) - m(x) - f(x) \log \frac{f(x)}{m(x)} \right), \quad (2.24)$$

die sich für normierte Verteilungen  $p$  und  $m$  auf Gleichung 2.22 reduziert. Beispiele für positive und additive Verteilungen sind Wahrscheinlichkeitsverteilungen, Verteilungen von Atomen oder Photonen auf einem Detektor [SKILLING 1989]. Auch die später betrachteten Elementkonzentrationen fallen in diese Kategorie, da sich die Konzentration einer Spezies  $i$  aus der (positiven) Zahl der von ihr in der Probe vorhandenen (additiven) Atome, normiert auf die Gesamtzahl der Atome, ergibt.

Unter der Annahme, daß nur ein allgemein gültiger Prior für positive und additive Verteilungen existiert, zeigte Skilling, daß er nur folgende Form haben



kann[SKILLING 1989]:

$$p(f|\alpha, m, I) = \frac{\exp(\alpha S_{PAD}(f, m))}{Z(\alpha, m)} \quad (2.25)$$

mit der Normierung

$$Z(\alpha, m) = \int_0^\infty df \exp(\alpha S_{PAD}(f, m)) \quad (2.26)$$

wobei bei der Integration noch die Metrik, auf dem Raum der positiven additiven Verteilungen zu berücksichtigen ist [RODRIGUEZ 1989]. Zur vollständigen Bestimmung des Priors brauchen wir nach Gleichung 2.25 ein Modell  $m$  und den *Regularisierungparameter*  $\alpha$ , auf den weiter unten näher eingegangen wird.

### 2.2.2 Die Likelihood

Um das Bayessche Theorem 2.9 zur Lösung des inversen Problems 2.1 anwenden zu können, müssen wir neben dem Prior den Likelihoodterm spezifizieren. Er gibt die Wahrscheinlichkeit für die gemessenen Daten unter der Annahme der richtigen Modellbeschreibung an. Falls die einzelnen Datenpunkte  $d_i$  eines Datensatzes  $D$  unabhängig voneinander sind, ergibt sich die Wahrscheinlichkeit für  $D$  mittels der Produktregel 2.6 zum Produkt der Einzelwahrscheinlichkeiten

$$p(d_1, d_2, d_3, \dots, d_N | H, I) = \prod_{i=1}^N p(d_i | H, I). \quad (2.27)$$

Aus der Proposition  $H$  berechnen sich Modellwerte  $\tilde{d}_i$  die mit den gemessenen Daten  $d_i$  verglichen werden müssen. Die Abweichung zwischen  $D$  und  $\tilde{D}$  bestimmt über  $p(d_i | \tilde{d}_i(H), I)$  die Wahrscheinlichkeit dafür, daß die zugrundeliegende Proposition  $H$  den gemessenen Datensatz  $D$  hervorgerufen hat.

Die explizite Form der Wahrscheinlichkeiten  $p(d_i | \tilde{d}_i, I)$  hängt von den experimentellen Gegebenheiten ab. Zählexperimente im Bereich der Ionenstrahlanalytik erfüllen die Voraussetzungen für die Anwendung der Poissonstatistik [JOHNSON et al. 1992]. Die Streuquerschnitte für die interessierenden Reaktionen (z.B. Großwinkelstoß (vgl. Kapitel 3)) sind klein und die Anzahl von

wechselwirkenden Ionen ist groß. Damit ergibt sich die Wahrscheinlichkeit

$$p(d|\tilde{d}, I) = \exp(-\tilde{d}) \frac{\tilde{d}^d}{d!} \quad (2.28)$$

für die Messung von  $d$  bei Vorliegen eines Modellwertes  $\tilde{d}$ . Die Gesamtwahrscheinlichkeit für  $D$  bei Modelldaten  $\tilde{D}$  ist somit

$$p(D|\tilde{D}, I) = \prod_{i=1}^N \exp(-\tilde{d}_i) \frac{\tilde{d}_i^{d_i}}{d_i!}. \quad (2.29)$$

Für größere Impulszahlen pro Kanal, d.h.  $d_i > 10$  kann die Poissonverteilung mit hoher Genauigkeit durch eine Normalverteilung mit einer Varianz von  $\sigma_i = \sqrt{\tilde{d}_i}$  approximiert werden[SIVIA 1996]. Dies führt über

$$p(d|\tilde{d}, I) \propto \exp\left(-\frac{(d - \tilde{d})^2}{2\sigma^2}\right) \quad (2.30)$$

zu der bekannten  $\chi^2$ -Statistik:

$$p(D|\tilde{D}, H, I) = \frac{1}{\sqrt{\prod_{i=1}^N 2\pi\sigma_i^2}} \exp\left(-\frac{1}{2}\chi^2\right), \quad (2.31)$$

mit

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^N \left(\frac{d_i - \tilde{d}_i}{\sigma_i}\right)^2. \quad (2.32)$$

Die weite (und vielfach erfolgreiche) Verwendung von Gleichung 2.31 bei Problemen der Datenanpassung, z.B. der Maximum-Likelihood-Methode kann durch das Maximum-Entropie-Prinzip erklärt werden. Sind von einem gemessenen Datensatz nur die Meßwerte und die Standardabweichung bekannt, dann ist die Verteilung mit der höchsten Entropie die Normalverteilung. Dies ist unabhängig von der vorliegenden Fehlerstatistik. Ist zusätzlich die Priorverteilung durch  $p(H|I) = \text{const.}$  gegeben, dann vereinfacht sich der Zusammenhang von Posteriorverteilung  $p(H|D, I)$  und Likelihood  $p(D|H, I)$  zu

$$p(H|D, I) \propto p(D|H, I). \quad (2.33)$$

Damit sind aber auch die Anwendungsbereiche der ML-Methode abgesteckt: Sobald die Priorverteilung nicht mehr konstant ist oder mehr über die Daten bekannt ist als nur Meßwert und Fehler, ist die Anwendung der ML-Methode nicht gerechtfertigt. Ein Beispiel hierfür ist die Bestimmung des

Mischungswinkels zwischen  $\nu_\mu$  und  $\nu_\tau$ -Neutrinos aus Messungen am Super-Kamiokande-Experiment. Hier wurde der wahrscheinlichste Wert für  $\theta$  mit  $\sin^2 2\theta = 1.05$  angegeben [FUKADA et al. 1998], ein Wert der außerhalb des physikalisch sinnvollen Bereichs liegt.

Die in der klassischen Wahrscheinlichkeitstheorie existierenden Schwierigkeiten, vorhandenes Vorwissen über zulässige Parameterwerte in die Berechnung mit einzubeziehen, treten durch die Existenz der Prioren bei dem Bayesschen Ansatz nicht auf. Die gesuchte Verteilung berechnet sich aus dem Produkt von Prior und Likelihood. Mit der Kenntnis der Likelihood und des Priors 2.25 ergibt sich daher die Posteriorverteilung bei Verwendung der Gaußschen Likelihood 2.31 zu

$$p(H|D, I) \propto \exp\left(\alpha S - \frac{1}{2}\chi^2\right) \quad (2.34)$$

und stellt sich somit als Regularisierungsproblem mit dem freien Parameter  $\alpha$  dar.

### 2.2.3 Der Regularisierungsparameter $\alpha$

Der Regularisierungsparameter  $\alpha$  gewichtet den regularisierenden Einfluß der Entropie gegenüber dem Beitrag der Daten. Für kleine Werte von  $\alpha$  bestimmen die gemessenen Daten die Rekonstruktion und der Einfluß des Modells  $m$  bleibt vernachlässigbar. Für große Werte von  $\alpha$  wird hingegen das Modell  $m$  stärker im Vergleich zu den Daten gewichtet. Für die Berechnung der Posteriorwahrscheinlichkeit ist der  $\alpha$ -Parameter unverzichtbar - gleichwohl ist er im Normalfall als Bedingungsterm im Ergebnis unerwünscht. Die Marginalisierungsregel ermöglicht die Entfernung des Hyperparameters durch Integration über alle möglichen Werte von  $\alpha$

$$p(H|D, I) = \int_0^\infty d\alpha p(H|\alpha, D, I) p(\alpha|I). \quad (2.35)$$

Hierfür wird die Priorverteilung von  $\alpha$  benötigt. Für Skalenparameter ohne Kenntnis der Bereichsgröße ist Jeffrey's Prior (Gleichung 2.14) zu verwenden. Die für  $\alpha \rightarrow 0$  auftretende Divergenz ist in den meisten praktischen Problemen ohne Bedeutung, muß aber ‚im Auge‘ behalten werden [STRAUSS et al. 1993, FISCHER et al. 1996b].

Um den numerischen Aufwand der  $\alpha$ -Marginalisierung zu umgehen, gab es Ansätze mit konstanten Werten von  $\alpha$  [GULL 1989]. Es konnte jedoch gezeigt werden, daß die (korrekte) Marginalisierung zu besseren Ergebnissen führt [FISCHER et al. 1996b]. Dies wird in Bild 2.2 verdeutlicht. In Abbildung 2.2a

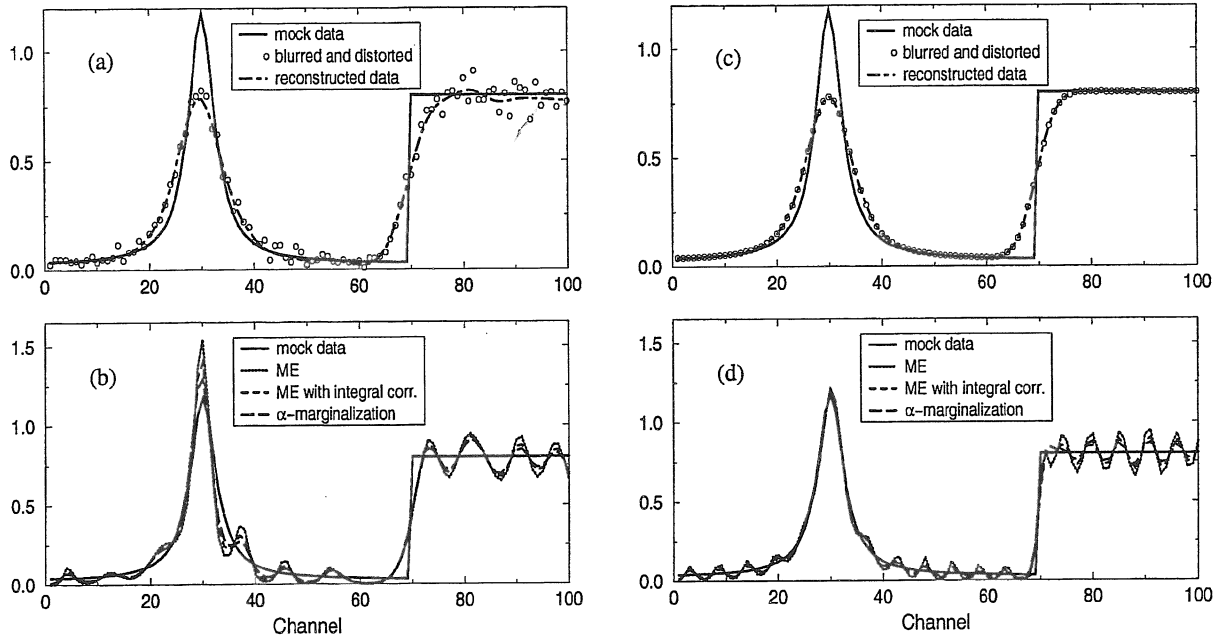


Abbildung 2.2: Obere Bildhälfte zeigt ein Testspektrum (durchgezogene Linie), gefaltet mit einer Gaußverteilung und durch Poissonrauschen mit hoher (Bild 2.2a) bzw. niedriger (Bild 2.2c) Varianz gestört. Die untere Bildhälfte zeigt die Rekonstruktionen mit unterschiedlicher Behandlung des Hyperparameters  $\alpha$ . Die beste Rekonstruktion erfolgt durch die  $\alpha$ -Marginalisierung (aus [FISCHER et al. 1996b]).

ist mit durchgezogener Linie ein ungestörtes Spektrum (‘mock data‘), zusammengesetzt aus einer Lorentzkurve und einer Stufe dargestellt. Die mit einer Gaußverteilung gefalteten und mit Poissonrauschen gestörten Daten sind durch offene Kreise markiert. Unterschiedliche Behandlung des Regularisierungsparameters  $\alpha$  führt zu unterschiedlich guten Rekonstruktionen, von denen die Entfaltung mit  $\alpha$ -Marginalisierung dem ungestörten Spektrum am nächsten kommt (Abbildung 2.2b). In den Teilabbildungen 2.2c und 2.2d ist der Einfluß eines niedrigeren Rauschniveaus gezeigt. Die Rekonstruktionen im Bereich der Lorentzkurve (Abbildung 2.2d, Kanäle 20 – 45) sind besser als die in Abbildung 2.2b. Trotzdem zeigen sich in allen Fällen

deutliche Oszillationen auf dem Plateau überhalb von Kanal 70. Sie setzen sich aus zwei Beiträgen zusammen. Einerseits ein Beitrag aufgrund der Abweichung von Modell  $m$  von der Rekonstruktion, der bei niedrigen Rauschpegeln dominiert (vgl. Abbildungen 2.2c/d) und dem durch das Rauschen verursachten Beitrag (vgl. 2.2a/b) [FISCHER et al. 1996b]. Die Oszillationen überhalb von Kanal 70 in Abbildung 2.2d sind eine Folge der niedrigen Werte der Eigenwerte der Faltungsmatrix (und nicht der verwendeten Maximum-Entropie-Methode, daher treten sie bei jeder Regularisierungsmethode auf) und abhängig von der Abweichung zwischen  $m$  und der exakten Lösung. Bei einem konstanten Modell  $m$  werden sich daher die Oszillationen vor allem an Stufen ausbilden. Auch die Überanpassung der Daten (d.h. Schwankungen im Datensatz die nur durch die Rauschstatistik entstehen und nicht signifikant sind, werden gefittet), führt zu Oszillationen in der Rekonstruktion. Besonders deutlich wird dieses Verhalten, wenn zu viele Freiheitsgrade für die Rekonstruktion zur Verfügung stehen.

Eine Lösung sollte nur dann Strukturen aufweisen, falls sie signifikant in den Daten enthalten sind. Der Maximum-Entropie-Prior favorisiert zwar Lösungen die möglichst nahe am Modell liegen, aber dies sagt nichts über die Glattheit der Lösung aus, da alle Permutationen der Werte von  $f$  die gleiche Entropie aufweisen. Gerade bei der Rekonstruktion von Spektren oder Bildern ist diese Eigenschaft des Entropie-Priors aber nicht günstig. Hier wäre lokale Glattheit, also eine Korrelation zwischen den Punkten wünschenswert. Das Konzept der Adaptiven Kernel ermöglicht nun eine datenangepasste Korrelation der Variablen.

## 2.3 Adaptive Kernel

Die Überanpassung von Daten bei alleiniger Regularisierung durch den Maximum-Entropie-Prior kann auf zwei Ursachen zurückgeführt werden. Die Rekonstruktion erfolgt auf einem vorgegebenen Raster. Dieses wird aber nur in den seltensten Fällen das geeignetste für die Inversion sein. Daher können Bereiche in der Rekonstruktion auftreten, bei denen mehr Freiheitsgrade vorhanden sind, als durch die Daten bestimmt werden können. Dies führt zum Anpassen von Rauschen. Daneben ist eine wichtige (und oft vorhan-

dene) Priorinformation lokale Glattheit. Dieses Vorwissen ist im Entropie-Prior nicht enthalten - in den Axiomen die der Herleitung des Entropie-Priors zugrunde lagen, ist sogar jede Korrelation explizit ausgeschlossen [SKILLING 1989].

Da lokale Glattheit in vielen Fällen eine essentielle Forderung an die Rekonstruktion ist, existieren zahlreiche Ansätze dieses Vorwissen zu berücksichtigen. Naheliegend ist die Einführung weiterer Regularisierungsgrößen wie  $\int dx |f'(x)|$  oder  $\int dx |f''(x)|$ , die global Steigung oder Krümmung reduzieren [TIKHONOV und ARSENIN 1977].

Eine andere Möglichkeit ist, die Verwendung von Faltungen um Korrelationen zwischen den Variablen einzuführen:  $f = K * h$ , wobei die Faltung der unabhängigen Variablen in  $h$  durch  $K$  zu Korrelationen in  $f$  führt [GULL 1989, SKILLING 1991]. Diese Ansätze haben aber ungünstige Eigenschaften, sobald die Verwendung einer einzigen Faltungsmatrix  $K$  sich nicht aus den Daten begründen läßt - falls sich etwa ein Spektrum aus strukturierten und unstrukturierten Bereichen zusammensetzt.

Eine Berücksichtigung des Rekonstruktionsgitters umgeht diese Schwierigkeit. Hierbei kann man entweder die Anzahl der Variablen über einen Modellvergleich optimieren oder die Anzahl der Freiheitsgrade durch zunehmende Korrelation untereinander beschränken. Ersterer Ansatz führte zu einem Rekonstruktionsverfahren, bei dem Anzahl und Position von Splineknoten datenangepasst bestimmt werden [VON DER LINDEN et al. 1996].

Beim Konzept der Adaptiven Kernels wird die Idee einer Faltung durch eine einzige Faltungsmatrix erweitert. Die Breite der faltenden Funktion wird datenangepasst (adaptiv) bestimmt. Der erste Ansatz von Puetter beinhaltete zwar die variable Faltungsbreite [PUETTER 1995], enthielt aber noch viele ad-hoc-Elemente. Darauf aufbauend konnte lokale Glattheit im Rahmen der Bayesschen Wahrscheinlichkeitstheorie in das Rekonstruktionsverfahren integriert werden [FISCHER et al. 1996a]. Die Korrelationen in der Verteilung  $f$  werden durch Faltung des sogenannten *hidden image*  $h$  gewonnen:

$$f(x) = \int dy B\left(\frac{x-y}{b(y)}\right) h(y). \quad (2.36)$$

Dabei ist  $b(y)$  die variierende Breite der Faltungsfunktion  $B$ . Eine mögliche

Wahl für  $B$  ist die Gaussfunktion

$$B\left(\frac{x-y}{b(y)}\right) = \frac{1}{\sqrt{2\pi b(y)}} \exp\left[-\left(\frac{x-y}{b(y)}\right)^2\right], \quad (2.37)$$

wobei die Funktionswahl für die Rekonstruktion dem Problem angepaßt werden kann. Die Berechnung der Posteriorverteilung  $P(f|D, \sigma, I)$  aus den Daten  $D$  und den zugehörigen Fehlern  $\sigma$  erfordert die Zuweisung von Priorverteilungen für einige Größen. Die Variablen des *hidden image*  $h$  sind nach Voraussetzung unkorreliert. Zusammen mit den hier vorliegenden Verhältnissen, daß die Rekonstruktion auf positive und additive Größen angewendet wird, ist der Entropieprior (Gleichung 2.25) zu verwenden:

$$p(h|b, \alpha, I) = p(h|\alpha, I) = \frac{\exp(\alpha S(h))}{Z(\alpha)}, \quad (2.38)$$

wobei  $Z(\alpha)$  die Normierungskonstante ist. Der Prior für  $h$  ist logisch unabhängig von den Kernelbreiten.

Darüberhinaus wird noch der Prior für die Kernelbreiten  $b$  benötigt. Hier kann ein sinnvoller Größenbereich angegeben werden. Kernelbreiten, die einer nahezu vollständigen Lokalisierung entsprechen, folglich auch zu keiner Korrelation zwischen benachbarten Zellen führen, brauchen nicht unterschritten zu werden:  $b > b_{min}$ . Die Obergrenze der Kernelbreite  $b_{max}$  liegt im Bereich der Gesamtzahl der Zellen, da hier eine Zelle Beiträge zu allen anderen liefert und einen konstanten Offset bedeutet. Werte außerhalb dieser Grenzen sollen für  $b$  nicht zulässig sein. Weiterhin erscheint eine zu starke Variation der Kernelbreiten nicht als wünschenswert, da eine Änderung der Zellenkoordinate um eine Position keine deutlich größere Variation der Kernelbreite bewirken sollte. Dies legt die Verwendung eines Gausschen Priors mit einer Varianz von eins nahe, der konstante, aber nicht etwa große Kernelbreiten bevorzugt:

$$p(b|I) \propto \exp\left(-\frac{1}{2} \sum_i (b_i - b_{i-1})^2\right) : b \in [b_{min}, b_{max}]. \quad (2.39)$$

Die treibende Kraft zu größeren Breiten und damit glatten Lösungen ist *Ockham's Razor*. Hier geht das Verhältnis von Likelihoodvolumen zu Priorvolumen ein. Mit einer steigenden Anzahl von Parametern kann das Modell

die Daten besser anpassen und es kommt zu einem Anstieg des Likelihoodbeitrages, der die Zunahme des Priorvolumens überwiegt. Mit weiter wachsender Parameterzahl ändert sich die Güte der Anpassung kaum noch, folglich dominiert hier die Zunahme des Priorvolumens durch die zunehmende Anzahl von Freiheitsgraden. *Ockham's Razor* bevorzugt also bei gleich guter Datenbeschreibung das einfachere Modell.

Beim Verfahren der Adaptiven Kernel bleibt aber die Variablenzahl und damit auch das Priorvolumen konstant. Der Grund für die Bevorzugung großer Kernelbreiten ist die mit steigender Kernelbreite anwachsende Vielfachheit von identischen Verteilungen  $f$  aus unterschiedlichen  $h$ . Mit anderen Worten: Bei kleinen Kernelbreiten ergeben nur wenige Werte von  $h$  eine gute Übereinstimmung von Daten  $D$  und gerechneten Werten  $\tilde{D}(f)$ . Bei großen Werten der Kernelbreite hingegen erzeugen Schwankungen in den Werten von  $h$  nur geringe Änderungen in  $f$  und folglich führen sehr viel mehr Wertekombinationen von  $h$  zu relevanten Likelihoodwahrscheinlichkeiten.

Die Gleichung für die Wahrscheinlichkeitsverteilung  $p(f|D, I)$  der Verteilung  $f$  ergibt sich zu

$$\begin{aligned} p(f|D, I) &= \int d\alpha d^N b d^N h p(f, \alpha, h, b|D, I) = \\ &= \int d\alpha d^N b d^N h \frac{p(D|f, h, \alpha, b, I) p(f, h, \alpha, b|I)}{p(D|I)}, \end{aligned} \quad (2.40)$$

wobei der Term  $p(f, h, \alpha, b|I)$  weiter zerlegt werden kann in

$$\begin{aligned} p(f, h, \alpha, b|I) &= p(f|h, \alpha, b, I) p(h, \alpha, b|I) = \\ &= p(f|h, \alpha, b, I) p(h|\alpha, b, I) p(\alpha|b, I) p(b|I). \end{aligned} \quad (2.41)$$

Die letzten beiden Faktoren sind die Prioren für  $\alpha$  und  $b$  die durch die Gleichungen 2.14 und 2.39 gegeben werden. Die Wahrscheinlichkeit  $p(f|h, \alpha, b, I)$  für  $f$  bei gegebenem *hidden image*  $h$  und Kernelbreiten  $b$  reduziert sich auf eine Deltafunktion, da die Werte von  $f$  sich eindeutig aus  $h$  und der aus  $b$  gebildeten Faltungsmatrix  $B$  ergeben:  $p(f|h, \alpha, b, I) = \delta(f - Bh)$ . Der zweite Term ist identisch mit dem in Gleichung 2.38 bestimmten. Damit sind, bis auf die Berechnung der Daten  $\tilde{D} = \mathcal{O}f$  aus der Verteilung  $f$  alle benötigten Terme spezifiziert und es bleibt nur der numerische Aufwand des Lösens der hochdimensionalen Integrale. Hierzu wurde die Markov-Chain-Monte-



Carlo (MCMC) Methode verwendet [GILKS et al. 1996]. Durch die Betrachtung von Grenzfällen läßt sich die Wirkungsweise der Faltungsmatrix  $B$  besser verstehen. Für kleine Kernelbreiten  $b \rightarrow 0$  wird  $B$  zur Einheitsmatrix, wodurch das *hidden image*  $h(x)$  identisch in die Verteilung  $f(x)$  übergeht. Es erfolgt also eine punktweise Rekonstruktion mit  $N$  Freiheitsgraden. Sind hingegen die Kernelbreiten sehr groß, dann ist der Wert von  $f$  konstant und entspricht dem Mittelwert  $\langle h \rangle = \sum_{i=1}^n h_i$  des *hidden image*. Ein nützliches Maß für die effektive Anzahl der Freiheitsgrade (effective Degrees Of Freedom (eDOF)) ist durch

$$eDOF = \sum_{i=1}^n \sqrt{\text{Eigenwert}_i(B^T B)} \quad (2.42)$$

gegeben. Bei einer Einheitsmatrix sind die  $n$ -Eigenvektoren alle 1, daher ergibt sich  $eDOF = n$ , entspricht also der Variablenzahl. Für große Kernelbreiten  $b \rightarrow 0$  hingegen reduziert sich  $eDOF$  auf 1. Aufgrund der Normierung von  $B$  hat der größte Eigenwert immer den Wert 1.

## Kapitel 3

# RBS-Tiefenprofile

RBS ist die Abkürzung für die englische Bezeichnung ‚Rutherford Backscattering Spectroscopy‘. Sie ist eine der wichtigsten und verbreitetsten Techniken in der Oberflächenanalyse und ermöglicht die quantitative Bestimmung von Oberflächenzusammensetzungen mit einer Genauigkeit von bis zu 1% [JEYNES et al. 1997]. Die nötigen Grundlagen wurden schon zu Beginn des 20. Jahrhunderts von Rutherford [RUTHERFORD 1911] gelegt. Obwohl kurze Zeit später das erste Experiment seine Modellvorstellungen bestätigte [GEIGER und MARSDEN 1913], dauerte es noch knapp 60 Jahre bis die analytischen Fähigkeiten der RBS breiter bekannt wurden. Lange Zeit wurde unter Kernphysikern RBS zwar verwendet um die Anwesenheit von Verunreinigungen zu erkennen, aber eine gezielte Weiterentwicklung der RBS-Methode unterblieb. Erst mit der Untersuchung der Mondoberfläche 1967 mit Hilfe eines RBS-Experiments an Bord von Surveyor V wurde das Potential der Rutherfordstreuung auch außerhalb der Gruppe der Kernphysiker bekannt [TURKEVICH 1968]. In den darauf folgenden Jahren nahm die Zahl der RBS-Anwender stark zu und die Rutherfordstreuung wurde zu einer wesentlichen Diagnostik im Bereich der Oberflächenanalyse und der Halbleiterindustrie. Die Auswertung der mittels RBS erhaltenen Daten ist jedoch in vielen Fällen schwierig, da sich die erhaltenen Spektren verschiedener Elemente überlappen können und eine eindeutige Zuordnung Probleme bereitet.

Im ersten Teil des Kapitels wird die der Rutherfordstreuung zugrundeliegende Physik beschrieben und danach auf die Implementierung des Modells

der RBS-Messung eingegangen. Die Auswertung von Messungen zur direkten Erosionsratenbestimmung von Wandmaterialien innerhalb des ASDEX Upgrade Divertors schließt sich an.

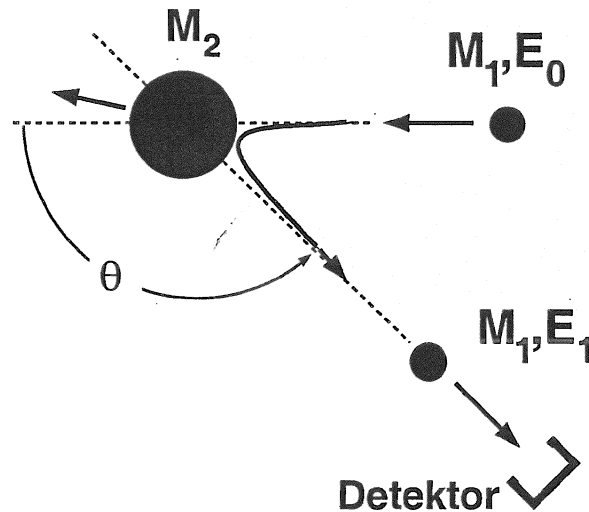
### 3.1 Prinzip der RBS-Analyse

Das Prinzip der Rutherford-Rückstreuungs-Analyse läßt sich in wenigen Sätzen zusammenfassen. Ein Strahl monoenergetischer und gerichteter Ionen wird auf die Probe beschleunigt. Die Ionen mit einer Energie im MeV-Bereich dringen in die zu untersuchende Probe ein und ein Teil von ihnen wird von Probenatomen zurückgestreut. Ein unter einem bestimmten Winkel  $\theta$  zum einfallenden Strahl positionierter Detektor mißt die Energie der rückgestreuten Teilchen. Durch die Diskretisierung der Energieachse ergibt sich ein für die Probe charakteristisches Histogramm von Teilchenzahl in Abhängigkeit von der Energie. Der Energieverlust der rückgestreuten Ionen hängt von verschiedenen Faktoren ab. Die wesentlichen sind

- die Masse des streuenden Probenatoms,
- der Streuwinkel  $\theta$ , und
- die Eindringtiefe des Ions vor dem Stoß.

Da somit sowohl Tiefen- wie auch Massensensitivität vorhanden ist, eignet sich RBS zur Ermittlung von Konzentrationsprofilen einer Probe. Allerdings führt diese gleichzeitige Empfindlichkeit auf beide Größen oft zu schwer interpretierbaren RBS-Daten, da sich die Signale verschiedener Elemente überlappen können. Die Informationstiefe ist abhängig von der Zusammensetzung der Probe, der Ionenenergie und der verwendeten Ionenart und beträgt für Wasserstoffionen typischerweise  $10\mu\text{m}$  und für Heliumionen ca.  $1\mu\text{m}$ .

Da die Wechselwirkung des einfallenden Ions mit den Probenatomen als eine Vielzahl von Einzelereignissen aufgefaßt werden kann, ist der Abstand der Atome und damit die Dichte des Probenmaterials ohne Bedeutung – für die Messung ist nur die Zahl der Streuzentren relevant [CHU et al. 1978]. Die



*Abbildung 3.1: Prinzipbild der elastischen Kollision eines einfallenden Ions der Energie  $E_0$  und Masse  $M_1$  mit einem ruhenden Probenatom der Masse  $M_2$  im Laborsystem.*

geeignete Betrachtungsweise hierfür ist die Projektion der in einem Streuvolumen vorhandenen Atome  $n_{\text{Atom}} \cdot A \Delta x$  auf die Strahlfläche  $A$ , wobei  $n_{\text{Atom}}$  die atomare Dichte und  $\Delta x$  die Höhe des Streuvolumens bezeichnen. Von der Größe  $n_{\text{Atom}} \Delta x$ , mit der Einheit [Atome/cm<sup>2</sup>] (gebräuchlich ist auch [10<sup>15</sup>at/cm<sup>2</sup>]), kann durch Multiplikation mit

$$URF(M_{\text{Atom}}, \rho) = \frac{1.661 M_{\text{Atom}} [\text{amu}]}{10^2 \rho [\text{g/cm}^3]} \quad (3.1)$$

bei bekannter Massendichte  $\rho$  auf die Schichtdicke in Nanometer umgerechnet werden.

### 3.2 Die Physik der Rutherford-Rückstreuung

Die Rutherford-Rückstreuung kann durch wenige physikalische Konzepte beschrieben werden [CHU et al. 1978]. Notwendig ist eine Beschreibung der Energieverluste von Ionen in den Probenmaterialien, da aus dem Energieverlust die Tiefeninformation gewonnen wird. Die Ermittlung der absolut

vorhandenen Materialmenge erfordert die Kenntnis der Streuquerschnitte. Der vom Massenverhältnis abhängige Energietransfer beim Stoß, beschrieben durch den kinematischen Faktor  $k$ , ermöglicht die Unterscheidung verschieden schwerer Probenatome durch RBS. Die statistischen Fluktuationen des Energieverlustes, die Energieverbreiterung, begrenzen das Auflösungsvermögen der Ionenstrahldiagnostiken. Die einzelnen Beiträge werden im folgenden genauer erörtert.

### 3.2.1 Der kinematische Faktor

Bei einer elastischen Kollision eines Partikels der Masse  $M_1$  mit einem Partikel  $M_2$  bestimmt sich das Verhältnis  $k$  der Energien vor ( $E_0$ ) und nach ( $E_1$ ) der Kollision (vgl. auch Abbildung 3.1) bei einem Streuwinkel von  $\theta$  aufgrund von Energie- und Impulserhaltung zu

$$k = \frac{E_1}{E_0} = \left[ \frac{\sqrt{\left(1 - \left(\frac{M_1}{M_2}\right)^2 \sin^2 \theta\right)} + \frac{M_1}{M_2} \cos \theta}{1 + \frac{M_1}{M_2}} \right]^2. \quad (3.2)$$

Eine graphische Darstellung der Abhängigkeit des kinematischen Faktors ist in Abbildung 3.2 gezeigt. Die experimentell erreichbare Massenseparation  $\frac{dk}{dM_2}$  ist für Winkel  $\theta \rightarrow 180^\circ$  am besten. Daher werden für RBS große Streuwinkel (typischerweise  $165^\circ$ ) bevorzugt. Die Annahme einer elastischen Kollision ist nur in einem beschränkten Energieintervall für die einfallenden Ionen zulässig. Die Energie muß klein genug sein, um keine Kernreaktionen auszulösen. Die Energieschwelle für Kernreaktionen liegt für Heliumionen bei 2 – 3 MeV, ist aber bei Protonen schon bei 1 MeV erreicht. Bei Stößen mit Teilchen, die leichter als das einfallende Ion sind, werden die Ionen nur in Vorwärtsrichtung  $\theta < 90^\circ$  gestreut und können nicht mit einem Einfachstoß in den Detektor gelangen. Daher ist RBS unempfindlich für Elemente mit niedrigerer Kernmasse als die Ionenmasse.

### 3.2.2 Rutherford'scher Streuquerschnitt

Der Inhalt der vorausgegangenen Abschnitte ermöglicht die Bestimmung der Energie eines in einer Probe reflektierten Ions. Der Streuquerschnitt  $\sigma$  stellt

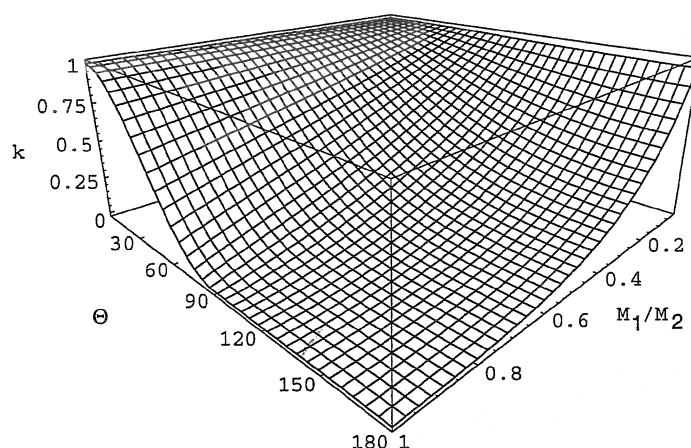


Abbildung 3.2: Der kinematische Faktor ist hier in Abhängigkeit von Massenverhältnis  $M_1/M_2$  und vom Streuwinkel  $\theta$  aufgetragen.

eine quantitative Beziehung zwischen der Anzahl der detektierten, rückgestreuten Teilchen und der Probenzusammensetzung her. Im Falle der elastischen Coulombstreuung ist der differentielle Wirkungsquerschnitt durch den Rutherford'schen Streuquerschnitt

$$\frac{d\sigma_R}{d\Omega} = \left( \frac{Z_1 Z_2 e^2}{16\pi\epsilon_0 E} \right)^2 \frac{4}{\sin^4 \theta} \frac{\left[ \sqrt{1 - \left( \frac{M_1}{M_2} \sin \theta \right)^2} + \cos \theta \right]^2}{\sqrt{1 - \left( \frac{M_1}{M_2} \sin \theta \right)^2}} \quad (3.3)$$

gegeben. Er ist in Abbildung 3.3 aufgetragen. Er steigt für kleine Streuwinkel steil an, variiert jedoch nur schwach mit dem Massenverhältnis. Dennoch haben schwere Elemente einen größeren Streuquerschnitt, da er auch proportional zum Quadrat der Kernladungen ist. Deswegen ist die Empfindlichkeit der RBS-Analyse für schwere Kerne höher als für leichte. Typische Wirkungsquerschnitte für RBS von 2 MeV Helium in Kohlenstoff liegen in der Größenordnung von  $10^{-30} \text{ m}^2$  – eine Rückwärtsstreuung ist also ein seltenes Ereignis.

Für große Streuwinkel  $\theta \rightarrow 180^\circ$  und hinreichend großen Energien der einfallenden Ionen kann die kurzreichweitige Kernkraft zu Abweichungen von Gleichung 3.3 führen, da hier die größte Annäherung an das Probenatom vorliegt. Bozoian [BOZOIAN 1993] gibt folgende Abschätzung für die Ionenenergie  $E_R$  an, bei der die Abweichung von einem reinen Rutherford Streuquerschnitt

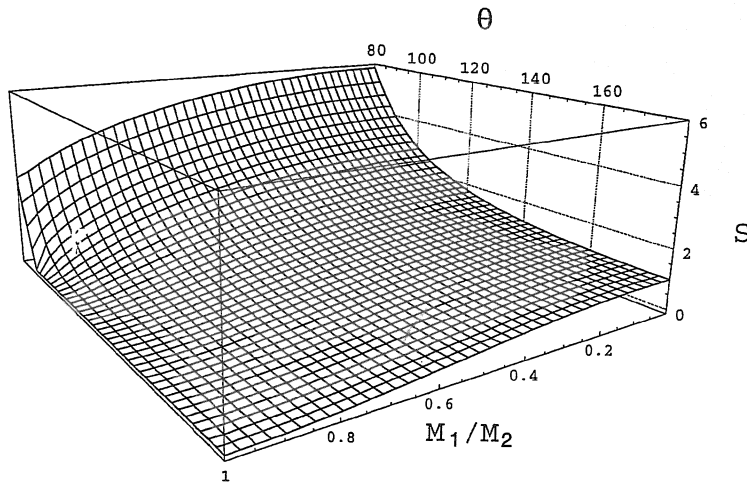


Abbildung 3.3: Der reduzierte Streuquerschnitt  $S = \frac{d\sigma}{d\Omega} / \left( \frac{Z_1 Z_2 e^2}{16\pi\epsilon_0 E} \right)^2$  in Abhängigkeit von Streuwinkel  $\theta$  und Massenverhältnis  $M_1/M_2$  aufgetragen.

4% übersteigt:

$$E_R [\text{MeV}] = \frac{M_1 + M_2}{M_2} \cdot \frac{Z_2}{10} \text{ für } Z_1 = 1 \text{ und} \quad (3.4)$$

$$E_R [\text{MeV}] = \frac{M_1 + M_2}{M_2} \cdot \frac{Z_1 Z_2}{8} \text{ für } Z_1 > 1. \quad (3.5)$$

Für kleine Streuwinkel, gleichbedeutend mit einem größeren Abstand des vorbeifliegenden Ions vom streuenden Kern, führt die zunehmende Abschirmung der Kernladung zu einem von der Rutherford'schen Formel 3.3 differierendem Verhalten des Streuquerschnittes. Dem kann durch Verwendung anderer Potentiale (wie dem KrC-Potential oder dem Lenz-Jensen-Potential) Rechnung getragen werden [WILSON et al. 1977]. Ein empirischer energie- und winkelabhängiger Korrekturfaktor für den Rutherford'schen Streuquerschnitt, der die Abschirmung berücksichtigt, ist von Andersen [ANDERSEN et al. 1980] zu

$$\frac{d\sigma}{d\sigma_R} = F_A = \frac{\left(1 + \frac{1}{2} \frac{V_1}{E_{CM}}\right)^2}{\left(1 + \frac{V_1}{E_{CM}} + \left(\frac{1}{2} \frac{V_1}{E_{CM} \sin\left(\frac{\theta_{CM}}{2}\right)}\right)^2\right)^2} \quad (3.6)$$

angegeben worden und im Programm implementiert. Hierbei sind  $E_{CM}$  und

$\theta_{CM}$  Energie und Streuwinkel im Schwerpunktssystem.  $V_1$  ist durch

$$V_1 [\text{keV}] = 0.04873 Z_1 Z_2 \sqrt{Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3}} \quad (3.7)$$

gegeben.

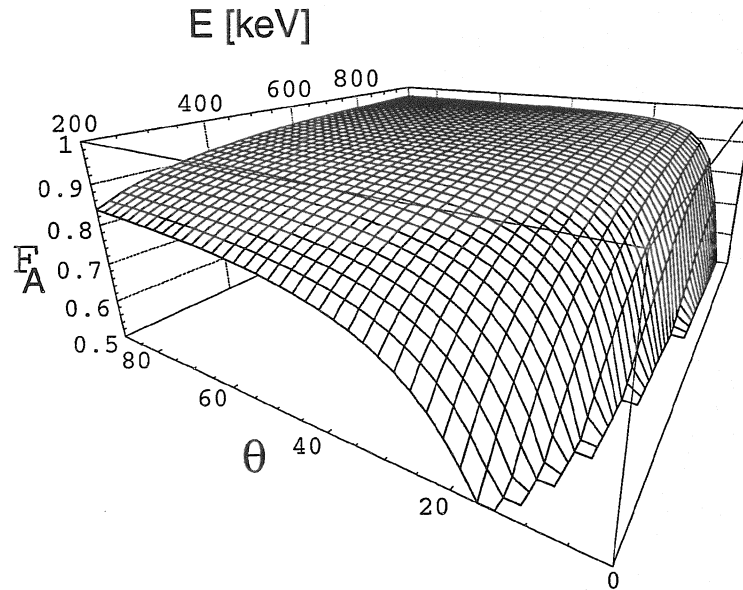


Abbildung 3.4: Der Korrekturfaktor nach Andersen  $F_A$  in Abhängigkeit von Streuwinkel  $\theta$  und Energie aufgetragen.

Für große Energien nähert sich der Korrekturfaktor  $F_A$  1 an. Vor allem für Streuwinkel  $\theta < 90^\circ$ , d.h. für Vorwärtsstreuung, wird  $F_A$  deutlich kleiner als 1 und muß daher für die Auswertung von ERDA-Spektren (vgl. Kapitel 4) berücksichtigt werden.

### 3.2.3 Bremsvermögen

Der wegabhängige Energieverlust der Ionen befähigt RBS tiefensensitiv zu sein. Er ist abhängig von der Ionenart und Ionenenergie, sowie der Zusammensetzung der Probe. Der spezifische Energieverlust pro Wegstrecke der einfallenden Ionen, das *Bremsvermögen* (‘stopping power’) ist definiert als

$$\epsilon(E) = - \lim_{\Delta x \rightarrow 0} \frac{\Delta E}{\Delta x} \stackrel{\text{def.}}{=} \frac{dE}{dx}(E). \quad (3.8)$$

Typische Werte von  $\epsilon$  von  $^4\text{He}$  in Kohlenstoff liegen zwischen  $30 \text{eVcm}^2/10^{15} \text{at}$  und  $45 \text{eVcm}^2/10^{15} \text{at}$  in einem Energieintervall von  $200 \text{keV} \dots 2000 \text{keV}$ . Bei



kleineren und größeren Energien ist der Energieverlust jeweils niedriger. Die dominierenden Effekte des Energieverlustes des Ionenstrahls sind die Wechselwirkungen mit den gebundenen oder freien Elektronen in der Probe, sowie die Wechselwirkung mit den Probenatomkernen.

### Elektronischer Energieverlust

Der Energieübertrag der Ionen auf Probenelektronen kann im Rahmen eines einfachen Modells (vgl. Anhang Seite v) verstanden werden. Elektronen werden durch die Coulombwechselwirkung mit dem vorbeifliegenden Ion beschleunigt und es kommt dadurch zu einem Energieübertrag. Dieser fällt umso geringer aus, je kürzer die Wechselwirkungszeit zwischen Ion und Elektronen ist und ist folglich energieabhängig. Eine Rechnung von Bethe und Bloch [BETHE 1930, BLOCH 1933], die auch quantenmechanische Einflüsse berücksichtigt, ergibt ein etwas geändertes Verhalten des Energieverlusts mit steigender Ionenenergie als das einfache Modell im Anhang, das proportional zu  $(1/E) \cdot \ln(E / \langle E_m \rangle)$  verläuft:

$$\epsilon(E) = -\frac{dE}{dx} = \frac{Z_1^2 e^4 N_e}{4\pi \epsilon_0^2 v^2 m_e} \cdot \left[ \ln \frac{2m_e v^2}{\langle E_m \rangle} - \ln \left( 1 - \frac{v^2}{c^2} \right) - \left( \frac{v}{c} \right)^2 \right]. \quad (3.9)$$

Die Größe  $\langle E_m \rangle$  ist die mittlere Bindungsenergie der Elektronen, die sich aus den verschiedenen Anregungs- und Ionisationszuständen der Probenatome ergibt und schwer zu berechnen ist. Sie wird daher als empirisch zu bestimmende Größe angesehen. Gleichung 3.9 liefert eine gute Beschreibung des Energieverlusts bei hohen Energien ( $E > 200 \text{keV/amu}$ ), muß aber für niedrigere Energien modifiziert werden. Darüberhinaus ermöglicht Gleichung 3.9 die Skalierung des Energieverlustes  $dE/dx$  für verschiedene Ionen ( $a, b$ ) bei gleicher Geschwindigkeit

$$\left. \frac{dE}{dx} \right|_a = \frac{(\gamma_a Z_{1a})^2}{(\gamma_b Z_{1b})^2} \cdot \left. \frac{dE}{dx} \right|_b, \quad (3.10)$$

die nur von den effektiven Ladungszuständen  $\gamma Z$  der Ionen abhängt.

Bei niedrigeren Energien kann das Ion Elektronen einfangen und hat daher einen von seiner Energie abhängigen Ladungszustand, der in Gleichung 3.10 durch den Faktor  $\gamma$  beschrieben wird.  $\gamma$  ist definiert als Verhältnis seiner

$a_0$	0.2865
$a_1$	0.1266
$a_2$	-0.001429
$a_3$	0.02402
$a_4$	-0.01135
$a_5$	0.001475

*Tabelle 3.1: Parameterwerte für Gleichung 3.12.*

effektiven zur nominalen Ladung

$$\gamma \stackrel{\text{def.}}{=} \frac{Z_1^*(v)}{Z_1}. \quad (3.11)$$

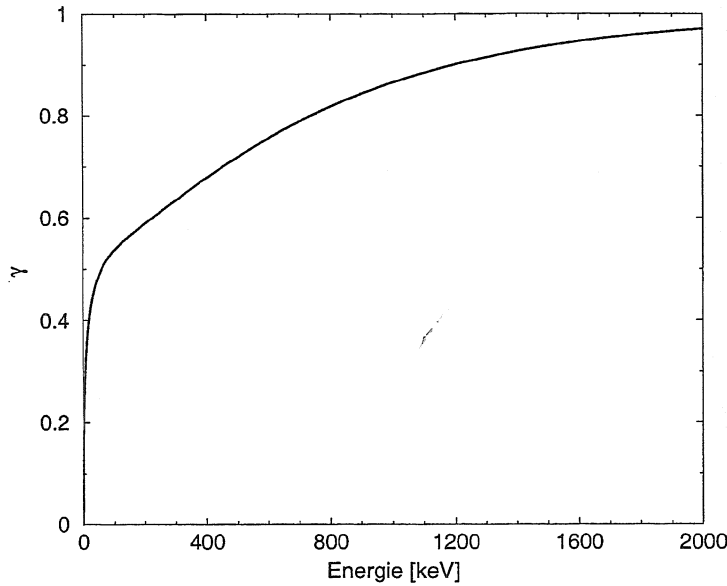
Auch  $\gamma$  ist nur schwer theoretisch zu ermitteln, weswegen die genauesten Werte aus parametrischen Ausgleichsrechnungen mit experimentellen Daten gewonnen werden [HUBERT et al. 1990]. Speziell für  ${}^4\text{He}$ -Ionen geben Ziegler und Manoyan [ZIEGLER und MANOYAN 1988] folgende, auch im Programm implementierte Formel an

$$\gamma_{\text{He}}^2 = 1 - \exp \left\{ - \sum_{i=0}^5 a_i \left[ \ln \left( \frac{E}{M_{\text{He}}} \right) \right]^i \right\}, \quad (3.12)$$

wobei  $E/M$  in Einheiten von [keV/amu] gegeben ist. Die Werte der  $a_i$  sind in Tabelle 3.1 aufgeführt. Eine graphische Darstellung des Verlaufs von  $\gamma$  für  ${}^4\text{He}$  ist in Diagramm 3.5 zu sehen. Für niedrige Energien ist der Ionisationsgrad erniedrigt. Erst bei Energien von mehr als 500keV/amu  $\simeq$  2000keV für  ${}^4\text{He}$  erreicht das Ion nahezu seinen nominellen Ladungszustand. Die Annahme einer konstanten Dichte von freien Elektronen, die der Bethe-Bloch-Formel 3.9 zugrunde liegt, ist bei Ionengeschwindigkeiten von kleiner als der Thomas-Fermi-Geschwindigkeit

$$v_{\text{TF}} = Z_1^{\frac{2}{3}} \frac{2\pi e^2}{h} \quad (3.13)$$

nicht mehr gerechtfertigt. Die inneren Elektronen der Probenatome haben mit sinkender Ionengeschwindigkeit einen immer geringeren Einfluß auf das vorbeifliegende Ion. Dies führt zu einem Absinken der Energieverlustkurve für kleine Energien  $E < E_{\text{TF}} = 1/2 M_{\text{He}} v_{\text{TF}}^2$ . Damit ergibt sich für die



*Abbildung 3.5: Ladungsverhältnis eines  $^4\text{He}$ -Ions bei unterschiedlicher Energie. Bei niedriger Energie kommt es zu zunehmender Neutralisierung des Ions durch Elektroneneinfang.*

Energieverlustkurve ein Maximum in der Nähe der Energie, die der Thomas-Fermi-Geschwindigkeit entspricht. Für größere Ionenenergien fällt sie dann gemäß Gleichung 3.9 ab. Das im Programm verwendete elektronische Bremsvermögen für die unterschiedlichen Ionen wird mittels Gleichung 3.9 aus den für Protonen geltenden Werten ermittelt. Das elektronische Bremsvermögen für Protonen  $S_p$  ist für die Elemente ( $1 \leq Z_2 \leq 92$ ) nach Ziegler und Biersack [ZIEGLER et al. 1985] durch

$$S_p = \frac{S_{\text{Low}} S_{\text{High}}}{S_{\text{Low}} + S_{\text{High}}} \quad (3.14)$$

gegeben. Dabei bestimmen sich  $S_{\text{Low}}$  und  $S_{\text{High}}$  zu

$$S_{\text{Low}} = C_1 E^{C_2} + C_3 E^{C_4} \quad (3.15)$$

und

$$S_{\text{High}} = \frac{C_5}{E^{C_6}} \ln \left( \frac{C_7}{E} + C_8 E \right). \quad (3.16)$$

Für die einzelnen Elemente sind die Fitkoeffizienten  $C_1, \dots, C_8$  tabelliert [TESMER und NASTASI 1995]. Die mittlere Abweichung zwischen den so erhaltenen Energieverlustwerten und den experimentellen Ergebnissen liegt

zwischen 5% und 14% , abhängig von der jeweiligen Ion-Probenmaterial-Kombination [ZIEGLER et al. 1985]. Die Werte des Bremsvermögens für Wasserstoff- und Heliumionen haben einen mittleren Fehler von 7% bzw. 5% . Typische Verläufe des elektronischen Bremsvermögens für Heliumionen in verschiedenen Materialien sind in Bild 3.6 gegenüber der Energie aufgetragen.

### Der nukleare Energieverlust

Nur bei Ionenenergien unterhalb von 200keV/amu ist der nukleare Energieverlust von Bedeutung. Hier wächst der Anteil des Energieübertrags auf die Probenatome, da das elektronische Bremsvermögen mit sinkender Energie stark abnimmt. Da das Ion hier schon größtenteils neutralisiert ist, muß die Wechselwirkung als elastische Streuung zweier abgeschirmter Ladungen beschrieben werden [BOHR 1948, LINDHARD et al. 1963, SIGMUND 1982]. Die analytischen Ansätze ergeben Resultate, die mit den experimentellen Messungen nur größenordnungsmäßig übereinstimmen. Eine Verbesserung der Modelle ist aufgrund der Vielzahl der möglichen Wechselwirkungsprozesse nur sehr schwer möglich. Daher stammen die zuverlässigsten Werte aus semiempirischen Ansätzen. Nach Ziegler [ZIEGLER et al. 1985] ist das nukleare Bremsvermögen durch

$$\epsilon_n(E) = \frac{8.462Z_1Z_2M_1S_n(E_r)}{(M_1 + M_2)(Z_1^{0.23} + Z_2^{0.23})} \text{eVcm}^2/10^{15}\text{at} \quad (3.17)$$

gegeben mit  $E_r$  als reduzierter Energie und  $S_n(E_r)$  als reduziertes nukleares Bremsvermögen. Die reduzierte Energie  $E_r$  ist durch

$$E_r = \frac{32.53M_2E}{Z_1Z_2(M_1 + M_2)(Z_1^{0.23} + Z_2^{0.23})} \quad (3.18)$$

gegeben und das reduzierte Bremsvermögen  $S_n$  bestimmt sich für Werte von  $E_r > 30\text{keV}$  zu

$$S_n(E_r) = \frac{\ln(E_r)}{2E_r}. \quad (3.19)$$

Für  $E_r < 30\text{keV}$  wird  $S_n$  durch

$$S_n(E_r) = \frac{\ln(1 + 1.1383E_r)}{2(E_r + 0.01321E_r^{0.21226} + 0.19593E_r^{0.5})} \quad (3.20)$$

berechnet. Der Beitrag des nuklearen Energieverlustes zur Stopping Power für Heliumionen ist in Bild 3.6 für Gold zu sehen. Nur für sehr niedrige Energien von  $E_{\text{ion}} < 10\text{keV}$  beeinflusst es das Bremsvermögen wesentlich.

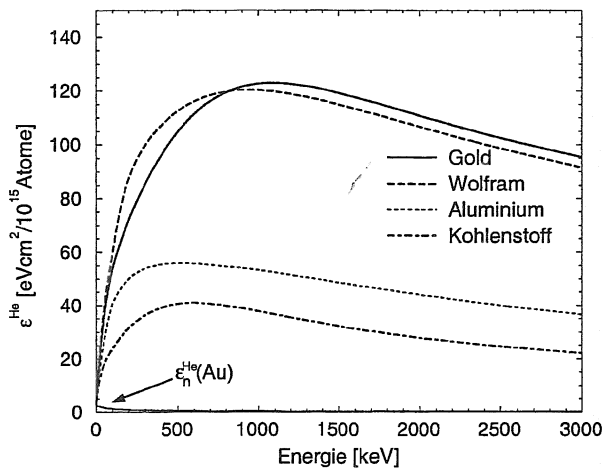


Abbildung 3.6: Elektronisches Bremsvermögen für Heliumionen in verschiedenen Materialien. Das nukleare Bremsvermögen ist nur für Gold angegeben und hebt sich überhalb von 100 keV kaum von der x-Achse ab.

### Braggsche Regel

Das Bremsvermögen ist zwar für alle Elemente ( $1 \leq Z_2 \leq 92$ ) tabelliert (z.B. in [ZIEGLER et al. 1985]), die Bestimmung von Konzentrationsprofilen setzt aber zwingend die Kenntnis des Bremsvermögens in Elementkompositionen mit variierenden Anteilen voraus. Da der elektronische Beitrag zum Bremsvermögen dominierend ist, erscheint ein Einfluß der Bindungsart auf die Ionen plausibel. In der Tat beobachtet man je nach Aggregatzustand unterschiedliches Bremsvermögen eines Elements [THWAITES 1987]. Die Untersuchung der Variation des Bremsvermögens führte zur Entwicklung des *cores and bonds* (CAB)-Modells durch Ziegler [ZIEGLER und MANOYAN 1988], bei dem je nach Bindungstyp unterschiedliche Stopping Power angenommen werden. Es zeigt sich jedoch, daß der Einfluß des Bindungscharakters nur in wenigen Fällen nachzuweisen ist (vor allem für C-H Verbindungen). Daher kann, bis auf die eben erwähnten Ausnahmen, die anteilige Addition der Stopping Power der Einzelkomponenten zur Ermittlung des Gesamtbrems-

vermögens herangezogen werden. Die Braggsche Regel für die Elementzahl  $N_c$  ist somit durch

$$\epsilon(E, x) = \sum_{j=1}^{N_c} c_j(x) \epsilon_j(E) \quad (3.21)$$

gegeben und betrachtet die Einzelkomponenten als nicht miteinander wechselwirkend. Im Programm wird die Stopping Power von Verbindungen durchgehend mit Hilfe der Braggschen Regel bestimmt, da die nötigen Kenntnisse für die Verwendung des CAB-Modells bei der Analyse von Proben im Normalfall nicht vorliegen (eine Ausnahme bildet die Untersuchung der a-C:H-Schichten im nächsten Kapitel).

### 3.2.4 Energieverbreiterung in der Probe

Die Abbremsung von geladenen Partikeln auf ihrem Weg durch das Probenmaterial führt zu einer Verbreiterung der Strahlenergie („straggling“) aufgrund der statistischen Schwankungen des Energieverlustes in die einzelnen Verlustkanäle. Die wesentlichen Komponenten sind hierbei:

- Elektronische Energieverlustverbreiterung durch die statistischen Schwankungen des Energieübertrags der eindringenden Ionen auf die Proben-  
elektronen.
- Nukleare Energieverlustverbreiterung durch die statistischen Schwankungen des Energieübertrags auf die Probenatome, analog dem vorgenannten Prozeß.
- Mehrfache Streuung mit großen Winkeln  $\theta > \theta_{\text{Grenz}}$  (*Mehrfachstreuung*), die die Annahme eines einzelnen Stoßes der Ionen bei der Interpretation von RBS-Spektren verletzt. Typischerweise werden für die Unterscheidung von Groß- zu Kleinwinkelstößen Winkel zwischen  $1^\circ < \theta_{\text{Grenz}} < 5^\circ$  verwendet.
- Vielfache Streuung mit kleinen Winkeln  $\theta < \theta_{\text{Grenz}}$  (*Vielfachstreuung*), die zu einer Energieverbreiterung wie auch zu einer Aufweitung des einfallenden Strahles führt.
- Energieverbreiterung durch Probeninhomogenitäten wie Oberflächen- oder Zwischenflächenrauigkeiten.

- Geometrische Energieverbreiterung aufgrund von unterschiedlichen Streuwinkeln oder Ionenweglängen durch endliche Strahlfleckgröße und Winkelauflösung des Detektors.

### Elektronische und Nukleare Energieverlustverbreiterung

Mehrere Theorien beschreiben die elektronische und nukleare Energieverlustverbreiterung, wobei sich die Anwendungsbereiche im wesentlichen aus der Energie und dem Energieverlust der Ionen bestimmen. Vavilovs Theorie [VAVILOV 1957] [BIRD und WILLIAMS 1989] ist für sehr kleine Ionenenergieverluste geeignet. Hier ist die Energieverteilung der Ionen asymmetrisch, da nur Energieverlustmechanismen existieren und sich daher die Anfangsenergieverteilung der Ionen nur zu kleineren Energien verbreitern kann. Mit zunehmender Anzahl der Kollisionen und damit der stochastischen kleinen Energieverluste kann die Energieverteilung der Ionen durch eine Gaussverteilung [BOHR 1948] beschrieben werden. Die Bohrsche Approximation

$$\kappa_{\text{Bohr}} = 0.26 Z_1^2 Z_2 \Delta x \left[ 10^{18} \text{at/cm}^2 \right] \quad (3.22)$$

geht dabei von einer von der Ionengeschwindigkeit unabhängigen Energieverlustverbreiterung aus. Diese Unabhängigkeit ist jedoch nicht gegeben und führt zu einer Überschätzung der Energieverbreiterung. Eine im Programm implementierte Korrektur für Ionenenergien von  $E < 75 Z_2$  [keV/amu] ist durch

$$\frac{\kappa_e}{\kappa_{\text{Bohr}_e}} = 0.78 (E [\text{keV/amu}] / (25 Z_2))^{0.5} - 0.008 (E [\text{keV/amu}] / (25 Z_2))^{1.5} \quad (3.23)$$

gegeben [LINDHARD und SCHARFF 1953]. Elementspezifische Anpassungen der Energieverbreiterung können durch die Fits von [YANG et al. 1991] vorgenommen werden. Allerdings sind die Schwankungen zwischen den Elementen in vielen Fällen kleiner als der experimentelle Fehler bei der Bestimmung der Verbreiterung.

Die Verbreiterung durch den nuklearen Energieverlust ist deutlich geringer als durch den elektronischen. Auch hier führt die Bohrsche Approximation

$$\kappa_n [\text{keV}^2] = 0.26 Z_1^2 Z_2^2 \left( \frac{M_1}{M_1 + M_2} \right)^2 \Delta x \left[ 10^{18} \text{at/cm}^2 \right] \quad (3.24)$$

zu einer (vernachlässigbaren) Überschätzung.

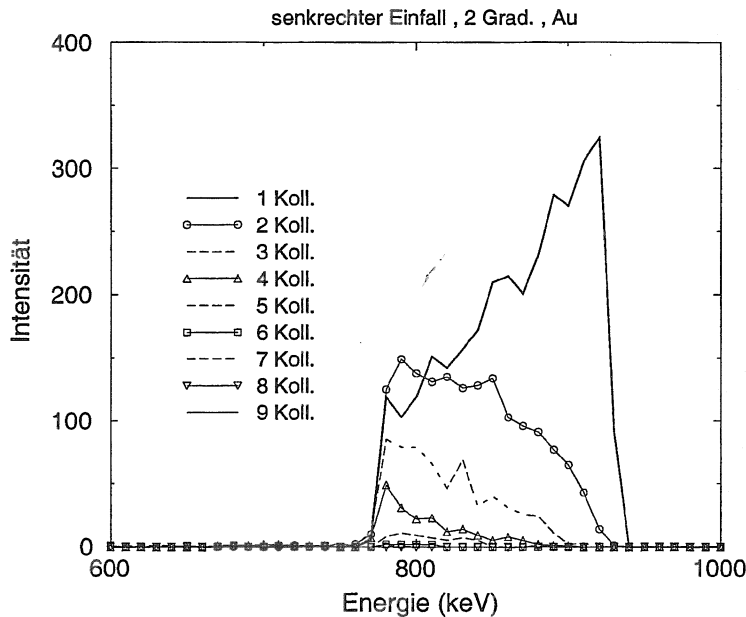
Mit breiter werdender Energieverteilung der Ionen muß die Energieabhängigkeit der Energieverlustkurve berücksichtigt werden. Symons Theorie [KUMAKHOVI und KOMA behandelt die nichtstochastische Verbreiterung der Energieverteilung der Ionen durch den Abfall der Energieverlustkurve (3.6) bei großen Energien. Sofern das Maximum der Ionenenergieverteilung in diesem Bereich liegt, werden Ionen mit der Energie des Verteilungsmaximums stärker abgebremst, als Ionen mit einer darüberliegenden Energie. Dies führt zu einer zusätzlichen Verbreiterung der Energieverteilung. Für Ionenenergien niedriger als das Maximum der Energieverlustkurve, einem Bereich in welchem die Energieverbreiterung durch Theorien von Payne [PAYNE 1969] und Tschalär [TSCHALÄR 1968] beschrieben werden kann, führt die energieabhängige Abbremsung der Ionen zu einer Verschmälerung der Energieverteilung, die aber weiterhin durch eine Gaußkurve beschrieben werden kann.

### Mehrfachstreuung

Die Annahme, daß alle Ionen, die unter einem Winkel  $\theta$  zum einfallenden Ionenstrahl die Probe verlassen, nur einen Streuprozeß mit diesem Ablenkwinkel  $\theta$  erfahren haben, ist nur näherungsweise gültig. Die unter dem Winkel  $\theta$  detektierten Ionen können mehrere Streuprozesse mit verschiedenen Ablenkwinkeln hinter sich haben, die in der Summe zu dem Ablenkwinkel  $\theta$  führen. Da der kinematische Faktor für einen Stoß mit Winkel  $\theta$  kleiner ist als der gesamte kinematische Faktor für zwei Stöße mit Ablenkwinkeln  $\alpha$  und  $\beta$ , wobei  $\theta = \alpha + \beta$ , kann die Energie eines mehrfach gestreuten Ions am Detektor größer sein, als die eines einfach gestreuten. Da jedoch die in der Probe zurückgelegte Weglänge der mehrfach gestreuten Ionen im Regelfall größer ist, als diejenige der direkt in den Detektor gestreuten Ionen, führt die Mehrfachstreuung zu einem über das ganze Spektrum verteilten Untergrund. Die Simulation von Spektren unter Berücksichtigung von zweifach gestreuten Ionen ist möglich und erlaubt qualitative Aussagen darüber, welche Eigenschaften von gemessenen Spektren durch Mehrfachstreuung hervorgerufen werden. Durch das Anwachsen des Streuquerschnittes mit kleiner werdenden Streuwinkeln sind jedoch auch noch signifikante Anteile von öfter



gestreuten Ionen im Spektrum vorhanden, wie in Bild 3.7 gezeigt ist. Der



*Abbildung 3.7: RBS-Spektrum des Goldsignals von  $1 \text{ MeV}^4 \text{ He}$ -Ionen von 107nm-Gold auf 843nm-Silizium. Alle Winkeländerungen von mehr als  $\theta_{\text{Grenz}} = 2^\circ$  sind hierbei als Kollision gezählt und die Einzelbeiträge aufgetragen worden (aus [ECKSTEIN und MAYER 1999]).*

Anteil von mehrfach gestreuten Ionen steigt mit abnehmender Ionenenergie stark an und kann nicht vernachlässigt werden. Dieser lässt sich durch Monte Carlo-Programme wie TRIM [ECKSTEIN und DOHMEN 1997] bestimmen, jedoch ist die Berechnung zeitaufwendig.

### Vielfachstreuung

Der Streuquerschnitt für kleine Ablenkwinkel der Ionen wächst mit der Abnahme des Ablenkwinkels stark an. Daher erfahren die einfallenden Ionen fortwährend Bahnänderungen um kleine Winkelbeträge. Dies hat mehrere Konsequenzen. Zum einen wird der einfallende Ionenstrom zunehmend aufgefächert – es kommt zu einer Winkelverbreiterung. Der Ablenkungswinkel der unter einem Winkel  $\theta$  registrierten Ionen ist um diesen verteilt. Da mit dem Streuwinkel sich auch der Energieübertrag ändert, resultiert daraus eine Verbreiterung der detektierten Ionenenergie. Zum anderen hängt die

von den Ionen in der Probe zurückgelegte Wegstrecke (und damit der Energieverlust) von der Anzahl und Größe der erfahrenen Richtungsänderungen ab. Auch hierdurch kommt es zu einer Verbreiterung der Ionenenergien. Die beiden Komponenten Winkeländerung und Wegstreckenvariation sind aber nicht unabhängig voneinander – eine große Winkelvariation führt auch zu einer Änderung der Wegstrecke – und müssen gemeinsam betrachtet werden. Eine umfassende Darstellung findet sich in [SZILÁGYI et al. 1995].

### Probeninhomogenitäten

Unebenheiten in der Probenoberfläche führen zu einer Verbreiterung des Spektrums, da dann die Tiefenkoordinate vom Auftreffpunkt des Ions auf die Probe abhängt und über den Strahlfleck gemittelt wird. Die resultierende Energieunschärfe bestimmt sich bei einer Dickenvarianz der Probe von  $(\Delta x)^2$  nach [BESENBACHER et al. 1980] zu

$$\kappa_x^2 = \left( \frac{dE}{dx} \right)^2 \cdot (\Delta x)^2 \quad (3.25)$$

und wird im Programm berücksichtigt. Der genaue Einfluß ist von der Oberflächenstruktur abhängig und variiert mit dem Einfallswinkel, nimmt aber mit abnehmendem Einfallswinkel zu. Während sich über Rastersondentechniken (AFM, STM) oder Profilometermessungen noch Informationen über die Oberflächenrauigkeiten erhalten lassen, ist dies für Grenzflächen in der Probe im allgemeinen nicht möglich. Daher werden hier Rauigkeiten unvermeidlich als Konzentrationsverbreiterung aufgefaßt werden. Verborgene Strukturen im  $\mu\text{m}$ -Bereich liessen sich jedoch durch die Kombination von Mikrostrahl-RBS und Techniken analog von [BERGER 1997] auflösen.

### Geometrische Energieverbreiterung

Neben der Strahlaufweitung durch Vielfachstreuung sind auch die Ausdehnungen von Strahlfleck und Detektor Ursachen für die Streuwinkelverteilung der in den Detektor gelangenden Ionen. Die Strahlfleckgröße kann über Blenden und Linsensysteme auf Kosten der Intensität reduziert werden und stellt einen Kompromiß dar. Auch der Raumwinkel des Detektors steht im Spannungsfeld zwischen Winkel- und damit Energieauflösung und der Anzahl der

detektierten Ionen. Die Winkelverbreiterung  $\Delta\beta$  bei einem Austrittswinkel von  $\beta$  ist durch [DIEUMEGARD et al. 1979]

$$(\Delta\beta)^2 = \left(\frac{g_d w}{L_D}\right)^2 + \left(\frac{g_b d \cos \beta}{L_D \cos \alpha}\right)^2 \quad (3.26)$$

gegeben, wobei  $w$  die Detektorapertur,  $L_D$  der Abstand zwischen Probenoberfläche und Detektorblende und  $d$  der Strahldurchmesser ist, der auf der Probenoberfläche bei einem Einfallswinkel von  $\alpha$  effektiv  $\tilde{d} = d/\cos \alpha$  beträgt.  $g_d$  und  $g_b$  sind die jeweiligen Geometriefaktoren für die Detektoröffnung und Strahlform, die für kreisförmige Geometrien und homogenes Strahlprofil den Wert von 0.59 und für rechteckige Formen den Wert 0.68 haben. Diese Winkelunschärfe führt zu einer Streuwinkelunschärfe  $\Delta\theta = -\Delta\beta$ . Somit ergibt sich folgendes Bild: Ein unter einem zu kleinen Winkel  $\theta - \Delta\theta$  gestreutes Ion, welches aufgrund der endlichen Detektoröffnung akzeptiert wird, hat nach dem Streuvorgang eine höhere Energie, als ein unter dem Winkel  $\theta$  gestreutes Ion, legt aber nach dem Streuvorgang einen längeren Weg in der Probe zurück und verliert damit mehr Energie. Die geometrische Energieverbreiterung  $\kappa_w^2$  ist bei RBS-Analysen mit Halbleiterdetektoren bei dem in dieser Arbeit verwendeten experimentellen Aufbau vernachlässigbar [MAYER 1997], muß aber bei ERDA-Untersuchungen berücksichtigt werden.

### 3.2.5 Energieverbreiterung in Halbleiterdetektoren

Der Nachweis der gestreuten Ionen kann prinzipiell mit einer Vielzahl von verschiedenen Detektionssystemen erfolgen [ENGLAND 1974, BROMLEY 1979]. Durch ihre einfache Handhabung, vielseitige Einsetzbarkeit, geeignete Zeit- und angemessene Energieauflösung sind Halbleiterdetektoren inzwischen die am häufigsten eingesetzten Detektorsysteme bei RBS-Messungen. Eine gute Übersicht über Detektorsysteme wird in [KNOLL 1989] gegeben und neuere Entwicklungen wie ladungsgekoppelte Großflächenzähler (CCD-Charged Coupled Device) finden sich in Band 439 der Zeitschrift Nuclear Instruments and Methods in Physics Research (NIM A,439 (2000)).

Ein Halbleiterdetektor kann als eine in Sperrichtung betriebene p-n-Halbleiterdiode betrachtet werden [DEMTROEDER 1998a]. In der p-n-Übergangsschicht entsteht durch die angelegte Spannung eine Verarmung von Ladungs-

trägern. Ein einfallendes Ion erzeugt in dieser Schicht Elektronen-Loch-Paare, die getrennt und auf den jeweiligen Elektroden gesammelt werden. Die Anzahl der erzeugten Elektron-Loch-Paare ist abhängig von der Ionisationsenergie  $\epsilon_i$  des verwendeten Halbleitermaterials ( $\epsilon_i(\text{Si}) = 3.6\text{eV}$ ) und proportional zur Ionenenergie. Daher kann aus der Amplitude des resultierenden Pulses auf die ursprüngliche Ionenenergie geschlossen werden. Die Energieauflösung der Halbleiterdetektoren ist durch verschiedene Einflüsse wie

- statistische Schwankungen in der Erzeugung von Elektron-Loch-Paaren,
- Verlustströme,
- Johnson-Rauschen durch schlechte Kontaktierung,
- unvollständige Ladungsträgersammlung,
- Dickenschwankungen der Sperrschicht und
- Energieverbreiterung der Ionen durch die Sperrschicht

beeinträchtigt. Dazu kommt noch der Rauschanteil des Verstärkersystems. Die typischen Auflösungen liegen im Bereich von 15keV (FWHM). Die Modellierung des Antwortverhaltens der Detektoren ist ein immer noch aktuelles Forschungsgebiet [POPP et al. 2000]. Die Apparatefunktion des Detektors kann durch einen semiempirischen Fit an eine dreikomponentige Funktion, die aus einer zentralen Gaußkurve mit zwei unterschiedlichen exponentiell abfallenden Flanken auf der hoch- und niederenergetischen Seite beschrieben werden [CAMPBELL et al. 1987].

Eine Entfaltung von gemessenen Daten setzt eine genaue Kenntnis der Apparatefunktion voraus. Daher wurde in dieser Arbeit keine Modellfunktionen für die Transferfunktion verwendet, sondern gemessene Apparatefunktionen. Ein typisches Beispiel für die Apparatefunktion des RBS-Detektors findet sich in Bild 3.10.

### 3.3 Simulation von Rutherford Rückstreuenspektren

Um das konkrete (inverse) Problem der Bestimmung von Tiefenprofilen aus RBS-Daten angehen zu können, muß die Beziehung zwischen einem Tiefen-

profil und dem zugehörigen unverrauschten Spektrum  $\tilde{D}$  bekannt sein. Dies bedeutet nichts anderes als die quantitative Kenntnis der physikalischen Vorgänge beim Meßprozeß. Das Modell des Meßprozesses wird durch den Operator  $\mathcal{O}$  beschrieben. Bei den meisten Messungen wird die Aufspaltung des Operators  $\mathcal{O}$  in zwei Beiträge  $\mathcal{A}$  und  $\mathcal{B}$  angemessen sein

$$\mathcal{O} = \mathcal{A}\mathcal{B}. \quad (3.27)$$

Der lineare Operator  $\mathcal{A}$  beschreibt hierbei die Verbreiterung des Spektrums mit der Apparatfunktion und der im allgemeinen nichtlineare Operator  $\mathcal{B}$  den Zusammenhang zwischen der Probenzusammensetzung, dem Konzentrationsprofil  $c(x)$  und dem daraus resultierenden RBS-Spektrum.

### 3.3.1 Beschreibung der Probe

Für die Simulation von RBS-Spektren ist ein geeignetes Modell der Proben notwendig. Die Probe wird senkrecht zur Oberfläche in Schichten (Layer)  $L_i, i = 1, \dots, N_L$  mit Dicken von  $\Delta x_i$  unterteilt. Die Dicken  $\Delta x_i$  müssen klein genug sein, um die in den Daten enthaltene Information rekonstruieren zu können. Für jede Schichtgrenze  $i$  müssen die Konzentrationen  $c_{ij}$  der in der Probe vorhandenen Elemente  $j = 1, \dots, N_c$  angegeben werden. Da die Rückseite der einen Schicht identisch mit der Vorderseite der darauffolgenden Schicht ist, ergeben sich für  $N_c$  Elemente und  $N_L$  Schichten  $(N_L + 1) \cdot N_c$  zu spezifizierende Konzentrationswerte. Dies entspricht  $N = (N_L + 1) \cdot (N_c - 1)$  Freiheitsgraden, da die Summe der Elementkonzentrationen innerhalb einer Schicht sich zu 1 addiert:

$$\sum_{j=1}^{N_c} c_{ij} = 1 \quad \forall \quad i = 1, \dots, N_L \quad (3.28)$$

Innerhalb einer Schicht wird linear zwischen den Konzentrationen an Vorder- und Rückseite interpoliert. Damit ist auch gleichzeitig die Normierung 3.28 für jeden Punkt innerhalb einer Schicht gewährleistet. Das simulierte Spektrum  $\tilde{D}$  ist die Summe aller Streuvorgänge von allen Elementen aus allen Schichten (Bild 3.8).

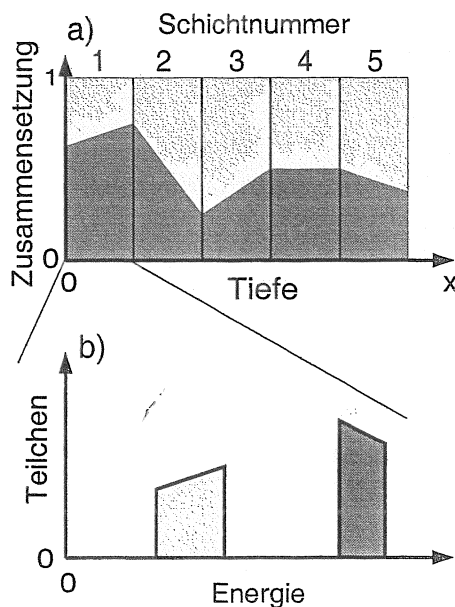


Abbildung 3.8: Schematische Darstellung der Probenzusammensetzung (a) und dem Beitrag einer Schicht zum Spektrum (b).

### 3.3.2 Simulationsimplementierung

Die große Anzahl von Vorwärtsrechnungen, die zur Lösung des inversen Problems nötig sind, beschränkt die zur Verfügung stehende Zeit für die Simulation eines Spektrums. Erst durch die wachsende Leistungsfähigkeit der Computer ist die Berücksichtigung von Effekten wie Energieverbreiterung in der Vorwärtsrechnung überhaupt möglich. Die Verwendung von linearen Konzentrationsprofilen innerhalb einer Schicht ermöglicht die drastische Reduzierung der notwendigen Schichtzahl  $N_L$  zur Beschreibung von glatten Konzentrationsprofilen. Da die Rechenzeit für die Simulation eines Spektrums mit  $N_L^2 N_c$  skaliert, kann sie deutlich durch eine Verringerung der Schichtzahl  $N_L$  verkürzt werden.

Die prinzipielle Vorgehensweise bei der Simulation ist in jeder Schicht identisch und wird schematisch für die Schicht  $i$  aufgezeigt. Eingangsgröße ist der Mittelwert der gaußverteilten Ionenenergie  $E(x_i)$  an der Oberfläche der Schicht  $i$  in der Tiefe  $x_i$ , zusammen mit der Standardabweichung der Energieverteilung  $\Delta E(x_i)$ . Daneben sind noch die Konzentrationen  $c_{ij}$  und  $c_{i+1j}$  der einzelnen Elemente  $j$  an Vorder- und Rückseite der Schicht  $i$  gegeben,

sowie der Verlauf der Energieverlustkurve  $\epsilon_j(E)$  (vgl. Bild 3.6).

### Energieberechnung

Die Energie der Ionen in der Schicht ergäbe sich aus der Lösung der Integralgleichung

$$E(x) = E(x_i) + \int_{x_i}^x \left( \frac{dE}{d\tilde{x}} \right)_{\text{gesamt}} d\tilde{x}. \quad (3.29)$$

Im vielfach verwendeten Algorithmus von Doolittle [DOOLITTLE 1985] wird die Energieverlustkurve in einer Taylorreihe entwickelt, für die konstante Konzentrationen angenommen werden. Unter der Verallgemeinerung linearer Konzentrationsverläufe

$$c_{ij}(x) = a_{ij}x + b_{ij} \quad (3.30)$$

und einer stückweisen linearen Approximation der individuellen Energieverlustkurven

$$\epsilon_{ij}(E) = - \left( \frac{dE}{dx} \right)_{ij} = (d_{ij}E + f_{ij}) \quad (3.31)$$

kann ein selbstkonsistenter Algorithmus für die Berechnung des Energieverlusts innerhalb der Schicht angegeben werden. Mit der Braggischen Regel 3.21 ergibt sich für den Energieverlauf innerhalb der Schicht  $i$  folgende inhomogene Differentialgleichung mit nicht-konstanten Koeffizienten

$$\epsilon_i(E, c(x)) = - \left( \frac{dE}{dx} \right)_i = + \sum_{j=1}^{N_c} (a_{ij}x + b_{ij}) (d_{ij}E + f_{ij}), \quad (3.32)$$

deren analytische Lösung A.8 im Anhang zu finden ist.

*Vorgehensweise:* Mit Hilfe der Braggischen Regel 3.21 wird aus der bekannten Zusammensetzung der Probe, sowie der gegebenen Eintrittsenergie der Ionen in die Schicht  $i$  der gesamte differentielle Energieverlust  $\epsilon(E(x_i))$  an der Vorderseite der Schicht berechnet. Hierbei wird ein konstanter Energieverlust angenommen ( $d_{ij} = 0$ ). Damit lassen sich die Koeffizienten  $a_{ij}$ ,  $b_{ij}$ ,  $c_{ij}$  und  $d_{ij}$  spezifizieren und über Gleichung A.8 die Energie  $E(x_{i+1})$  an der Rückseite der Schicht bestimmen. Damit kann  $\epsilon(E(x_{i+1}))$  ermittelt werden. Aus diesen Werten ergeben sich die neuen Koeffizienten für Gleichung 3.32 (nun im allgemeinen mit  $d_{ij} \neq 0$ ) und nach einigen weiteren Iterationen letztlich ein selbstkonsistenter Werte für die Ionenenergie am Schichtende. Das Verfahren

ist stabil, und in den meisten Fällen werden nur 3-4 Schritte für eine relative Genauigkeit von  $10^{-8}$  benötigt.

### Energieverbreiterung durch die Schichtfolge

Die Energieverbreiterung ist durch die einzelnen Beiträge wie nukleare oder elektronische Energieverbreiterung gegeben. Zusätzlich ist noch der Einfluß des Verlaufs der Energieverlustkurve in der Schicht zu berücksichtigen. Die Varianzen der nuklearen Energieverbreiterung  $\kappa_{ijn}^2$  (Gleichung 3.24) innerhalb von Schicht  $i$  von Element  $j$  und der elektronischen Energieverbreiterung  $\kappa_{ije}^2$  (Gleichung 3.23) können quadratisch addiert werden. Zwar sind die beiden Beiträge nicht unabhängig voneinander [MEYER et al. 1977], da durch die Nähe eines Kernes auch die Elektronendichte beeinflusst wird, aber die statistische Abhängigkeit blieb unter der experimentellen Nachweisgrenze [L'HOIR und SCHMAUS 1984]. Die Beiträge können daher in guter Näherung als unabhängig angesehen werden:

$$\kappa_{ij}^2 = \kappa_{ije}^2 + \kappa_{ijn}^2. \quad (3.33)$$

Für die zusammengesetzte Probe wird, analog zu Braggs Regel 3.21, die gesamte Energieverbreiterung als gewichtete Summe der Einzelkomponenten angenommen [MAYER und RIMINI 1977]. Damit folgt für die gesamte Energieverbreiterung  $\kappa_{iL}^2$  einer zusammengesetzten Schicht

$$\kappa_{iL}^2 = \sum_{j=1}^{N_c} c_{ij} \kappa_{ij}^2. \quad (3.34)$$

Die Änderung der Verteilungsbreite durch die nicht konstante Energieverlustkurve in der Schicht ergibt sich unmittelbar aus A.8. Da die Anfangsenergie linear eingeht, ergibt sich die neue Standardabweichung  $\kappa_i$  der Verteilung durch eine einfache Multiplikation zu

$$\kappa_i^2 = (g_i \cdot \kappa_{i-1})^2 + \kappa_{iL}^2, \quad (3.35)$$

wobei der Vorfaktor  $g$  vom Konzentrations- und Energieverlustkurvenverlauf abhängig ist.



Für die gestreuten Teilchen muß noch der Einfluß des kinematischen Faktors  $k$  auf die Breite der Verteilung berücksichtigt werden, sowie die als gaußförmig genäherte zusätzliche Energieunschärfe  $\kappa_w$  durch die Streuwinkelverteilung um  $\theta$  (vgl. auch 3.26). Damit ergibt sich eine je nach streuendem Element  $j$  unterschiedliche Ionenenergieverteilung,

$$\kappa_j'^2 = (k_j(\theta) \cdot \kappa_i)^2 + \kappa_{wj}^2, \quad (3.36)$$

für die auf dem Weg zum Detektor erneut (mehrfach) Gleichung 3.35 verwendet wird.

### Anzahl der gestreuten Ionen

Bei gegebenem differentiellem Wirkungsquerschnitt  $\frac{d\sigma}{d\Omega}$  ist die Zahl der gestreuten Atome je Schichtdicke  $dx_0$  [at/cm<sup>2</sup>] senkrecht zur Probenoberfläche durch

$$\frac{dN(x)}{dx_0} = \frac{d\sigma}{d\Omega} \Omega N_0 \frac{1}{\cos \theta_1} \quad (3.37)$$

gegeben, wobei  $\Omega$  der Detektorraumwinkel ist,  $N_0$  die Anzahl der eingeschossenen Ionen und  $\theta_1$  der Winkel der Einfallsrichtung zur Probennormalen (typischerweise 0°). Die zugehörige Anzahl von Atomen je Energie erhält man mit  $\epsilon = -dE/dx$  aus

$$\frac{dN(E)}{dE_0} = \frac{d\sigma}{d\Omega} \Omega N_0 \frac{1}{\epsilon \cdot \cos \theta_1}. \quad (3.38)$$

Diese Dichte am Ort des Streuprozesses wird auf dem Weg zum Detektor, genau wie die Breite der Energieverteilung, durch den Verlauf der Energieverlustkurve in der Probe mittels 3.35 modifiziert. Durch Berücksichtigung der jeweiligen Kanalbreite erhält man schließlich die Impulszahl je Kanal im Spektrum.

## 3.4 Experiment

Die Plasma-Wand-Wechselwirkung ist eine der wichtigsten Schlüsselgrößen, die über die Realisierbarkeit eines zukünftigen Fusionsreaktors entscheiden. Die dem Plasma zugewandten Wandseiten sind einem intensiven Beschuß durch Plasmapartikel ausgesetzt, da der magnetische Einschluß des Plasmas

nicht perfekt ist (und auch nicht sein darf) [BEHRISCH und PROZESKY 1990] [REITER et al. 1990]. Die Oberflächen der inneren Wände werden im wesentlichen durch Implantation und Erosion, sowie durch Deposition von Materialien, die an anderer Stelle erodiert wurden, modifiziert.

Kohlenstoff wird als geeignetes Wandmaterial für Fusionsreaktoren erachtet, insbesondere für plasmaexponierte Komponenten, die besonders hohen thermischen Belastungen ausgesetzt sind. Neben der Standzeit des Materials ist der mögliche Aufbau eines Tritiuminventars durch Kodeponierung mit redeponierten Kohlenstoffatomen von entscheidender Bedeutung. Beide Punkte, Standzeit wie auch Tritiuminventar, werden hauptsächlich durch die Kohlenstofferosionsrate bestimmt. Die wesentlichen, zur Kohlenstofferosion führenden Prozesse sind in Fusionsexperimenten die physikalische Zerstäubung und die chemische Erosion.

Die Bedeutung der Erosionsproblematik für die geplanten Fusionsexperimente wird exemplarisch durch die Berechnung der Erosionsrate für ITER belegt [BROOKS et al. 1998]. Die berechnete Gesamterosion des Kohlenstoffdivertors (einer Vorrichtung zur Reduktion von Plasmaverunreinigungen) beträgt bis zu 5m/Betriebsjahr, die durch Redeposition von Material auf ca. 0.5m/Betriebsjahr reduziert wird. Die Simulation der Erosionsraten ist jedoch mit großen Schwierigkeiten versehen, da neben dem komplexen Transport der Kohlenwasserstoffe auch viele Eingangsgrößen (wie z.B. Zerstäubung durch niederenergetische Ionen) nicht genau genug bekannt sind.

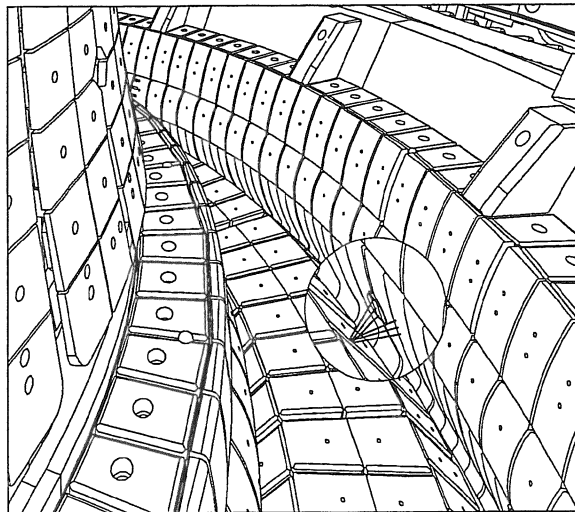
Daher ist die experimentelle Bestimmung von Erosion- und Redepositionsraten von entscheidender Bedeutung für die quantitative Kenntnis der grundlegenden Erosionsprozesse, wie auch für die Modellierung des Wandverhaltens in Fusionsexperimenten. Weiterhin erlaubt die direkte Erosionsmessung die Kalibrierung der spektroskopisch erhaltenen Erosionsraten, die stark von der Genauigkeit der atomaren und molekularen Ratenkoeffizienten abhängen.

### 3.4.1 Experimentelle Durchführung

Als Proben wurden Kohlenstoffziegel aus EK98-Graphit verwendet, aus denen auch der Divertor des Fusionsexperiments ASDEX Upgrade aufgebaut ist. Dies gewährleistet die Übertragbarkeit der experimentellen Ergebnisse.

Um Erosion und Redeposition trennen zu können, wurden sie zusätzlich mit einer 150 nm dicken Schicht des Kohlenstoffisotops  $^{13}\text{C}$  versehen, die mittels einer isopenreinen Hochfrequenz-Methan-Entladung [ANNEN et al. 1998] abgeschieden wurde. Mittels RBS kann nun die obere  $^{13}\text{C}$  Schicht von dem  $^{12}\text{C}$  Substrat unterschieden werden. Gleichzeitig bleibt die chemische Erosion vom Isotopenwechsel unbeeinflusst. Somit ist die Möglichkeit der Unterscheidung von Erosion (des  $^{13}\text{C}$ ) und der Redeposition von  $^{12}\text{C}$  von anderen plasmaexponierten Stellen gegeben. Darüberhinaus ist der elektronische Energieverlust der Ionen innerhalb der beiden Kohlenstoffschichten identisch, wodurch eine ungenaue Kenntnis des elektronischen Energieverlusts das relative Tiefenprofil nicht verfälscht.

Um eine möglichst gute RBS-Tiefenauflösung zu haben, wurden die EK98-Kacheln vor dem Aufbringen der  $^{13}\text{C}$ -Schicht poliert, wodurch  $\kappa_{xz}$  (vgl. Seite 39, Gleichung 3.25) minimiert wird.



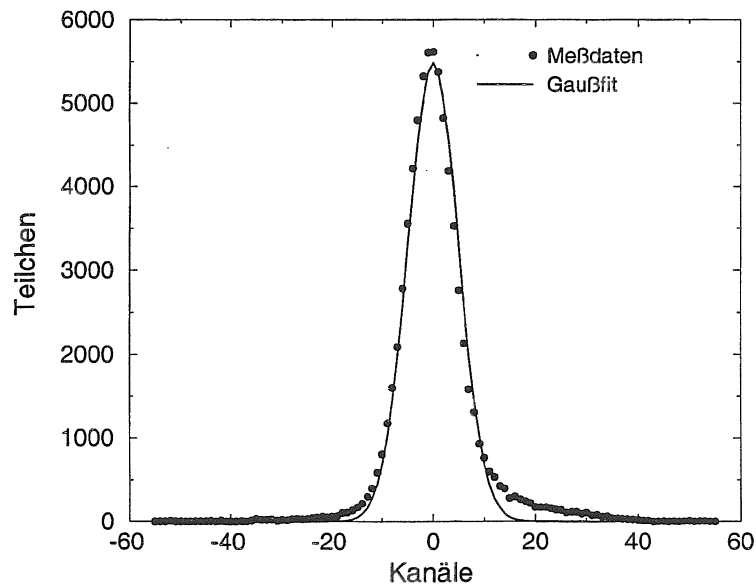
*Abbildung 3.9: Schemazeichnung des ASDEX Upgrade Vakuumgefäßes. Links ist die Innenseite des Gefäßtorus zu sehen. Die Vergrößerung markiert die Position der Divertorprobe.*

Die Proben wurden in der Region des äußeren Auftreffpunkts (*strike point*: der Punkt, in der die äußerste geschlossene magnetische Flußfläche auf die Wand trifft) im ASDEX Upgrade Divertor II angebracht (vgl. Bild 3.9). In diesem Gebiet tritt die größte Materialbelastung auf. Um einen Vergleich

mit spektroskopischen Messungen zu ermöglichen, ist gleichzeitig ein Feld von Glasfasern auf die Oberfläche der Probe gerichtet. Die Sichtlinien sind in der Ausschnittsvergrößerung eingezeichnet. Die Proben wurden in Entladungen mit langen stationären Phasen untersucht, bei denen Teilchenfluß und Plasmatemperatur am Ort der Probe auf einem konstanten Niveau gehalten wurden. Die Zeitdauer einer Entladung beträgt ca. 4s.

### 3.4.2 Analyse

Die Proben wurden vor und nach der Plasmaexponierung mit RBS untersucht<sup>1</sup>. Die Analyseenergie der  $^4\text{He}$ -Ionen war 2.0MeV, die rückgestreuten Teilchen wurden unter  $\theta = 165^\circ$  detektiert. Die für die Bestimmung der Tiefenprofile nötige Apparatefunktion ( $\mathcal{A}$  in 3.27) wurde aus dem RBS-Spektrum (Bild 3.10) eines dünnen (0.7nm) Kobalt-Films auf einem Silizium-Substrat unter gleichen experimentellen Bedingungen (Energie, Ionenart, Detektor, Streuwinkel) gewonnen. Da Kobalt isotopenrein vorkommt, ist der



*Abbildung 3.10: Gemessene RBS-Apparatefunktion einer 0.7nm dicken Kobaltschicht auf Silizium.*

<sup>1</sup>Der Si-Detektor Typ Ortec BE-012-025-100 war über einen Eigenbauvorverstärker Modell ‚Schmidl‘ an einen ADC von Canberra (Modell 8075) angeschlossen. Die Datenerfassung erfolgte durch einen Canberra Series 40 MCA.

RBS-Peak nicht durch Isotope mit anderen Massen verbreitert, die dünne Schichtdicke vermeidet weitgehend eine Verbreiterung der Verteilung durch Vielfachstreuung oder stochastische Energieverlustschwankungen. Das nahezu atomar glatte Siliziumsubstrat reduziert den Einfluß der Grenzflächenrauigkeit. Auf der Hochenergieseite (Kanalzahl  $> 0$ ) weicht die Form der Apparatefunktion deutlich von der einer Gaußkurve ab. Die Apparatefunktion hängt nur schwach von der Energie ab. Daher wurde für alle Energien zwischen 200keV und 800keV dieselbe Apparatefunktion verwendet. Da  $\mathcal{A}$  nicht aus einer idealen Apparatefunktion, sondern aus experimentellen Daten bestimmt wurde, muß ihre aus der Zählstatistik resultierende Unsicherheit in der Berechnung der Likelihood berücksichtigt werden [DOSE et al. 1998]. Mit Gleichung 2.2 und 3.27 sowie der Apparatefunktion  $\mathcal{A}$  kann  $\chi^2$  (Gleichung 2.32) durch

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^N \left( \frac{d_i - \sum_{j=1}^N \mathcal{A}_{ij} (\mathcal{B}f)_j}{\sigma'_i} \right)^2 \quad (3.39)$$

spezifiziert werden. Die für Zählexperimente zu verwendende Varianz  $\sigma_i^2 = d_i$  vergrößert sich durch die Unsicherheit in der Apparatefunktion auf

$$\sigma_i'^2 = \sigma_i^2 + \sum_{k=1}^N \mathcal{C}_{ik}^2 (\mathcal{B}f)_k^2. \quad (3.40)$$

Hierbei ist  $\mathcal{C}$  die Matrix der punktweisen Unsicherheiten von  $\mathcal{A}$ . Für Zählexperimente gilt  $\mathcal{C}_{ij} = \sqrt{\mathcal{A}_{ij}}$ .

Typische gemessene RBS-Spektren sind in Bild 3.11 gezeigt. Vor der Plasmaexponierung ist das  $^{13}\text{C}$ -Signal bei 430 – 580 keV deutlich vom  $^{12}\text{C}$ -Substratsignal getrennt. Nach der Plasmaexponierung ist die  $^{13}\text{C}$ -Kante leicht (ca. 10 keV) zu niedrigeren Energien hin verschoben. Dies zeigt das Verschwinden von  $^{13}\text{C}$  von der Oberfläche an. Der Peak bei 480 keV wird durch die Überlagerung der Signale von  $^{12}\text{C}$  an der Probenoberfläche und dem  $^{13}\text{C}$ -Anteil darunter hervorgerufen. Der Unterschied der Spektren vor und nach der Exponierung liefert die Informationen über Erosions- und Redepositionsraten. Durch die Überlagerung der Signale ist die Bestimmung der vorhandenen  $^{12}\text{C}$ - und  $^{13}\text{C}$ -Mengen nicht mehr durch einfache Integration über den entsprechenden RBS-Peak möglich. Vielmehr muß die Tiefenverteilung der Kohlenstoffisotope herangezogen werden. Aus der Menge der

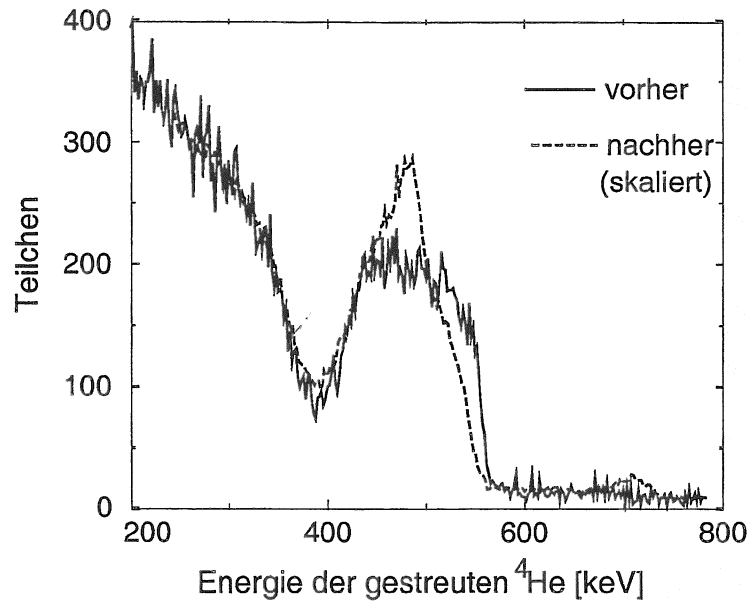


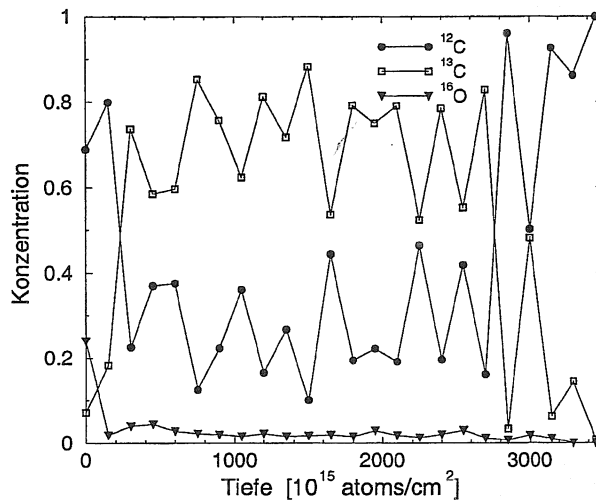
Abbildung 3.11: Typische RBS-Spektren vor und nach der Plasmaexponierung. Man erkennt eine Verschiebung der hochenergetischen Kante des <sup>13</sup>C RBS-Signals.

einzelnen Isotope vor und nach der Exponierung kann dann auf die gesamte Erosion und Redeposition geschlossen werden.

Durch die große Zahl von Freiheitsgraden und die Signalüberlappung der Isotope ist die Gewinnung von Tiefenprofilen aus den <sup>12</sup>C - <sup>13</sup>C - RBS Spektren schwierig. Bei der Auswertung von Hand beschränkt man sich auf eine sehr grobe Unterteilung in wenige Schichten und reduziert dadurch die Anzahl der Freiheitsgrade. Dadurch wird aber möglicherweise Information verschenkt, die in den Meßdaten signifikant enthalten ist.

Die zweite, oft verwendete Vorgehensweise ist die Verwendung von Least-Squares-Fits zur Bestimmung der Tiefenprofile [BARRADAS et al. 1997]. Eine gute Übereinstimmung zwischen Simulation und RBS-Daten bedeutet aber nicht, daß auch ein sinnvolles Tiefenprofil ermittelt wurde, welches nur die Information widerspiegelt, die in den Daten signifikant enthalten ist. Ein unbeschränkter  $\chi^2$ -Fit für die Bestimmung des Konzentrationsprofils aus den in Bild 3.11 dargestellten Meßdaten ergibt negative, also sinnlose Konzentrationswerte. Aber auch eine Anpassung mit den Randbedingungen  $c > 0$  und  $\sum_j c_{ij} = 1$ , d.h. die einzelnen Elementkonzentrationen in

einer Schicht müssen sich auf 1 ergänzen, führt nur auf stark oszillierende Tiefenprofile, wie die in Bild 3.12 gezeigten. Daß schon Änderungen der



*Abbildung 3.12: Tiefenprofilresultate aus einem beschränkten  $\chi^2$ -Fit ( $c > 0$  und  $\sum_j c_{ij} = 1$ ) mit den gestrichelten RBS-Daten aus Bild 3.11. Für diese Simulation wurde die Probe in 23 Schichten mit einer Dicke von jeweils  $150 \times 10^{15}$  Atomen/cm<sup>2</sup> unterteilt.*

RBS-Daten innerhalb der Rauschstatistik zu unterschiedlichen Tiefenprofilen bei der Verwendung von  $\chi^2$ -Anpassungen führen, weist darauf hin, daß die Tiefenprofilszillationen nicht ‚echt‘ sind. Dieses oszillierende Verhalten wird durch die schlechte Konditioniertheit des Inversionsproblems hervorgerufen. Die Hauptgründe hierfür sind die begrenzte Apparatenauflösung, die Ionenenergieverbreiterung in der Probe und die Zählstatistik. Durch all diese Einflüsse enthalten die Meßdaten nicht genügend Information für eine stabile Inversion, sogar im vorliegenden Fall mit 48 Variablen bei 221 Meßpunkten. Für derartige Probleme ist die in Kapitel 2 vorgestellte Methode der adaptiven Kernel gut geeignet. Der statistisch signifikante Informationsgehalt der Daten wird durch die lokal variierende Kernelbreite erhalten, ohne daß das Resultat gegenüber Schwankungen aufgrund der Zählstatistik anfällig wird [VON TOUSSAINT et al. 1998].

### 3.4.3 Fehlerintervalle

Mit der Kenntnis der Posteriorwahrscheinlichkeit  $P(f|D, \sigma, I)$  kann der Erwartungswert  $\langle f \rangle$  durch

$$\langle f \rangle = \int d^N f f P(f|D, \sigma, I) \quad (3.41)$$

und eine Fehlerangabe aus der Varianz  $\text{var}(f_i) = \langle f_i^2 \rangle - \langle f_i \rangle^2$  berechnet werden. Die Randbedingungen für die Konzentrationswerte  $\sum_j c_{ij} = 1$  und  $c_{ij} \geq 0$  führen jedoch zu einer asymmetrischen Posteriorwahrscheinlichkeitsverteilung. Während der Mittelwert immer noch als beste Schätzung für den wahren Wert angesehen werden kann, verliert die Fehlerangabe durch *einen* Wert an Sinn, da hier implizit ein symmetrischer Schwankungsbereich vorausgesetzt wird. Daher werden in den nachfolgenden Abbildungen als Fehlerintervalle die kürzesten Intervalle verwendet, die den korrekten Wert mit einer Wahrscheinlichkeit von 67% beinhalten:

$$P(f_L \leq f_i \leq f_U | D, \sigma, I) = \int_{f_L}^{f_U} df_i P(f_i | D, \sigma, I) = 0.67. \quad (3.42)$$

## 3.5 Ergebnisse

Bild 3.13(a) zeigt die rekonstruierten  $^{12}\text{C}$ - und  $^{13}\text{C}$ -Tiefenprofile einer Probe vor der Plasmaexponierung, deren RBS-Daten in Bild 3.11 als durchgezogene Linie abgebildet sind. Die Tiefenskala ist in atomarer Flächendichte gegeben. Die Schichtdicke in Nanometer erhält man über die Umrechnungsformel 3.1 und der Schichtdichte  $\rho$ , die jedoch bei diesen (dünnen) Schichten nicht bekannt ist. Mit der Graphitdichte von  $\rho = 2.267 \text{ g/cm}^3$  [LIDE 1995] ergibt sich, daß näherungsweise  $10 \times 10^{15} \text{ Atome/cm}^2$  ungefähr 1 nm entsprechen. Die Konzentrationen in jeder der 23 Schichten addieren sich zu eins. Die Oberflächenkonzentration von  $^{13}\text{C}$  (auf der linken Seite) ist über 90% und nimmt leicht bis zu einer Tiefe von  $2000 \times 10^{15} \text{ Atome/cm}^2$  ab. Die restlichen 10% - 20% an  $^{12}\text{C}$  sind keine Verunreinigung durch die Probenpräparation, da ähnliche  $^{13}\text{C}$ -Schichten, aufgebracht auf ein Siliziumsubstrat mit derselben Entladung, weniger als 5% an  $^{12}\text{C}$  enthalten. Der breite Übergang zwischen der  $^{13}\text{C}$ -Schicht und dem  $^{12}\text{C}$  des EK98 kann mit der Grenzflächenrauigkeit zwischen  $^{13}\text{C}$  und dem Substrat erklärt werden.



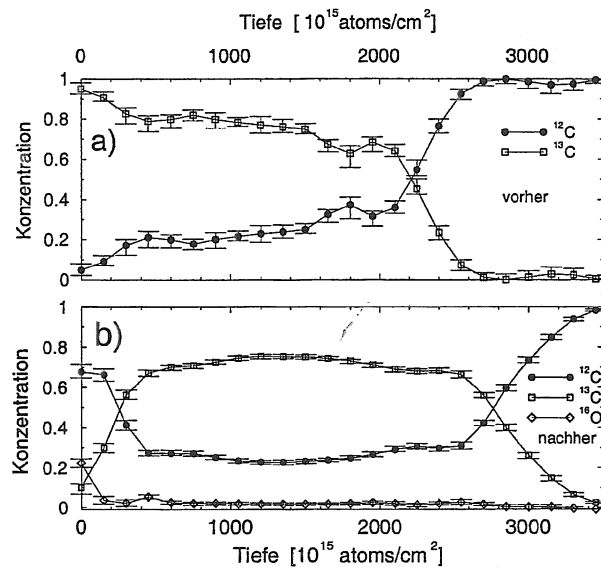
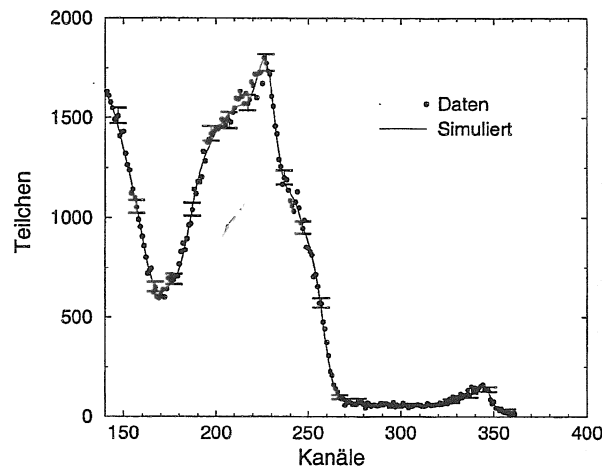


Abbildung 3.13:  $^{12}\text{C}$  und  $^{13}\text{C}$  Tiefenverteilung vor (a) und nach (b) der Plasmaexponierung mit asymmetrischen Fehlerintervallen. Die Tiefenprofile wurden aus den in Bild 3.11 gezeigten Daten ermittelt. Die Probe war in 23 Schichten mit einer Dicke von je  $150 \times 10^{15}$  Atome/cm $^2$  unterteilt.

Nach 4 Sekunden der Plasmaexponierung hat sich das Tiefenprofil erheblich verändert, wie in Bild 3.13 dargestellt ist. Die zugrundeliegenden RBS-Daten sind die in Bild 3.11 als gestrichelte Linie aufgetragenen. Die bessere Zählstatistik (ungefähr die sechsfache Ladungsmenge bei der RBS-Messung im Vergleich mit den dem Tiefenprofil 3.13(a) zugrunde liegenden Daten) führt zu kleineren Fehlerbalken. Es hat sich eine  $^{12}\text{C}$ -Schicht mit einer Dicke von ca.  $250 \times 10^{15}$  Atome/cm $^2$  auf dem  $^{13}\text{C}$  gebildet. Die Maximalkonzentration von  $^{13}\text{C}$  hat abgenommen, jedoch ist die Dicke der  $^{13}\text{C}$  Schicht mit  $2500 \times 10^{15}$  Atome/cm $^2$  nahezu konstant geblieben. Darüberhinaus hat sich eine Minimalkonzentration von 20% von  $^{12}\text{C}$  in der ganzen Probe eingestellt. Der langsame Übergang der  $^{12}\text{C}$  Konzentration an der Oberfläche zu der  $^{12}\text{C}$  Konzentration in der  $^{13}\text{C}$  Schicht kann auf die Porosität des EK98-Substrats zurückgeführt werden. Diese Vermutung wird durch die kleine (5%), aber signifikante Menge (man beachte die kleinen Fehlerbalken) an  $^{16}\text{O}$  innerhalb der ganzen  $^{13}\text{C}$  Schicht gestützt, da Sauerstoff, nach Kohlenstoff, die zweitgrößte Verunreinigung innerhalb des ASDEX Upgradeplasmas ist. In der

deponierten  $^{12}\text{C}$  Lage steigt die Sauerstoffkonzentration bis auf 20% an der Oberfläche der Probe an. In Bild 3.14 sind die RBS-Daten als Punkte ein-



*Abbildung 3.14:* Die gemessenen RBS-Daten sind als Punkte dargestellt, zusammen mit einigen ausgewählten Fehlerbalken und dem simulierten RBS-Spektrum aus dem Tiefenprofil von Bild 3.13(b).

getragen und die Schwankungsbreite aufgrund der Zählstatistik dargestellt. Das simulierte RBS-Spektrum, gewonnen aus dem in Bild 3.13(b) dargestellten Tiefenprofil, stimmt im Rahmen der Zählstatistik mit den gemessenen Werten überein. Die Anzahl der effektiven Freiheitsgrade der Tiefenprofile vor und nach der Exponierung beträgt 7.2 ( $n = 24$ ) bzw. 15.3 ( $n = 48$ ) [VON TOUSSAINT et al. 1999].

Aus einem korrekten Tiefenprofil folgt zwar eine gute Übereinstimmung zwischen den gemessenen Daten und den simulierten Werten, die Umkehrung ist aber bei schlecht konditionierten Problemen nicht richtig. Um eine unabhängige Bestätigung des Tiefenprofils zu erhalten, wurden am Berliner Max-Planck-Institut für Plasmaphysik, Bereich Plasmadiagnostik, von Dr. Hildebrandt SIMS (Secondary Ion Mass Spectroscopy) Messungen durchgeführt. Hierbei rastert ein Ionenstrahl die zu untersuchende Probe ab und erodiert dabei das Material. Gleichzeitig wird über ein Massenspektrometer die Häufigkeit der einzelnen Partikel detektiert. Die zeitliche Variation der einzelnen Anteile ergibt ein Tiefenprofil. Mit dieser Methode können große Analysetiefen erreicht werden. Ein Hauptproblem stellt die Zeit-Tiefenrelation dar,

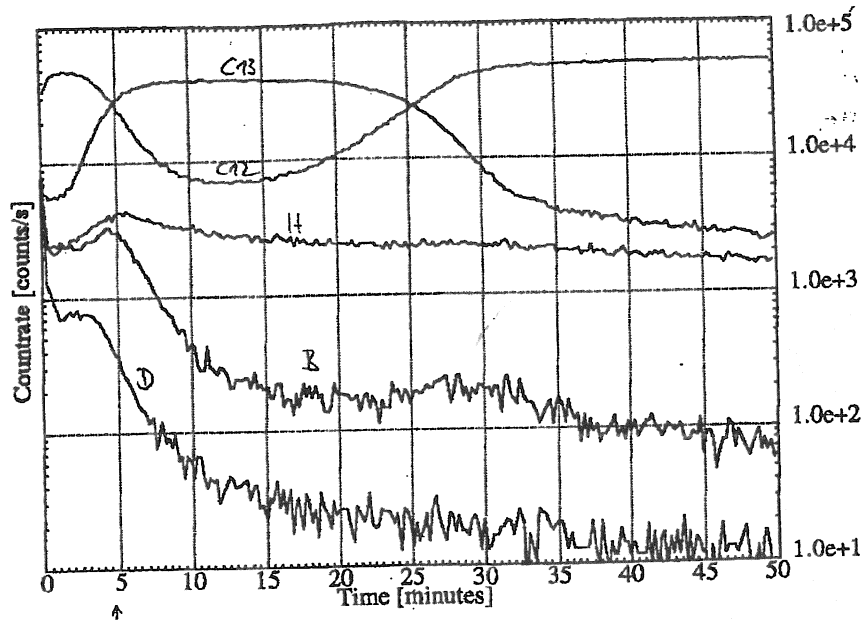


Abbildung 3.15: Durch SIMS erhaltenes Tiefenprofil. Die Analysefläche betrug 16% der erodierten Fläche und der verwendete Sauerstoffionenstrom war 700 nA. Eine Sputterzeit von 5 min entspricht einer Erosionstiefe von 50 nm. Die Messungen wurden am Berliner MPI für Plasmaphysik von Dr. Hildebrandt durchgeführt.

da je nach Materialzusammensetzung die Erodierung unterschiedlich schnell verläuft. Auch kann es zu einer ‚Verschmierung‘ des Tiefenprofils durch präferentielles Erodieren kommen[ECKSTEIN 1991]. In den nahezu reinen Kohlenstoffproben sind diese Probleme aber weniger ausgeprägt, weswegen der Fehler in der Umrechnung von Erodierungszeit (bei konstantem Ionenfluß) in Probtiefe bei 15%–20% liegt [HILDEBRANDT 1998].

Das in Bild 3.15 gezeigte Tiefenprofil (Umrechnung Zeit in Tiefe: 5 min  $\hat{=}$  50 nm) ist mit dem in Bild 3.13(b) gezeigten zu vergleichen. Die Form der Tiefenprofile stimmt ausgezeichnet überein. Sowohl der Oberflächenpeak von  $^{12}\text{C}$  als auch der hohe  $^{12}\text{C}$  Untergrund in der deponierten  $^{13}\text{C}$  Schicht werden gefunden. Die Dicke der  $^{13}\text{C}$  Lage stimmt gut überein, aber die der  $^{12}\text{C}$  Oberflächenschicht ergibt bei der SIMS-Messung einen höheren Wert als bei der RBS-Bestimmung. Dies kann durch zwei Faktoren erklärt werden: Zum einen unterscheiden sich die durch die Dichte der Probe festgelegten Tiefenskalen (nm und Atome/cm<sup>2</sup>) durch die unterschiedlichen Deponierungsbedingun-

gen beim Aufwachsen der  $^{12}\text{C}$  und  $^{13}\text{C}$  Schichten, weswegen die Beziehung zwischen  $\text{min}$  und  $\text{Atome/cm}^2$  vor allem bei der in dem ASDEX Upgrade Divertor gewachsenen  $^{12}\text{C}$  Schicht nicht konstant sein wird. Darüberhinaus existieren, wie die Messungen ergeben haben, starke örtliche Fluktuationen in der Dicke der  $^{12}\text{C}$  Lage, im Unterschied zu der nahezu konstanten Dicke der  $^{13}\text{C}$  Schicht. Da die RBS-Analyse aufgrund der Strahlfleckgröße des Ionenstrahls von  $1\text{ mm} \times 1\text{ mm}$  über einen sehr viel ausgedehnteren Bereich mittelt als SIMS (Meffläche ca.  $200\ \mu\text{m} \times 200\ \mu\text{m}$ ), ist auch hier keine exakte Übereinstimmung zu erwarten. Im SIMS-Diagramm zu erkennende Beiträge durch leichtere Elemente wie Bor, Wasserstoff und Deuterium sind im RBS-Spektrum nicht zu sehen, da der Streuquerschnitt für diese Elemente im Vergleich zum Kohlenstoff deutlich niedriger ist. Darüberhinaus überlappt der Energiebereich dieser Elemente mit dem des Kohlenstoffs. Das in der RBS-Auswertung deutlich zu erkennende Sauerstoffprofil konnte von SIMS nicht registriert werden, da die Zerstäubung mit Sauerstoffionen durchgeführt wurde.

Der mengenmäßige Vergleich ist durch die elementspezifischen Nachweiswahrscheinlichkeiten der bei SIMS genutzten Massenspektrometer schwierig. Jedoch ist aufgrund des Meßprozesses bei bekanntem Tiefenprofil die quantitative Bestimmung der vorhandenen Mengen bei RBS-Analysen sehr präzise (Fehler im Bereich von 1%) [JEYNES et al. 1997].

Aus der Kenntnis der Tiefenprofile lassen sich bei Berücksichtigung der auftretenden Teilchenflüsse Erosions- und Redepositionsraten berechnen. Ein Vergleich mit den semiempirischen Modellen zur Kohlenstofferosion von Roth [ROTH 1999] zeigt, daß die gemessenen Erosionsraten sich am besten durch das Modell mit einer flußabhängigen Erosionsrate reproduzieren lassen [KRIEGER et al. 1999b]. Darüberhinaus existiert durch die direkte Bestimmung der Erosionsraten die Möglichkeit die Ergebnisse der spektroskopischen Messungen zur Kohlenstofferosion [KALLENBACH 1999] zu verifizieren. Ein Vergleich der verschiedenen experimentellen Methoden für Erosion durch Wasserstoff und Deuterium zeigt Bild 3.16. Die Übereinstimmung der direkt ermittelten Ausbeuten (mit Pfeilen markierte Kreise) mit den spektroskopischen Ergebnissen ist sowohl für Deuterium, als auch für Wasserstoff gut. Gleichwohl scheinen bei höheren Teilchenflüssen Abweichungen von dem in

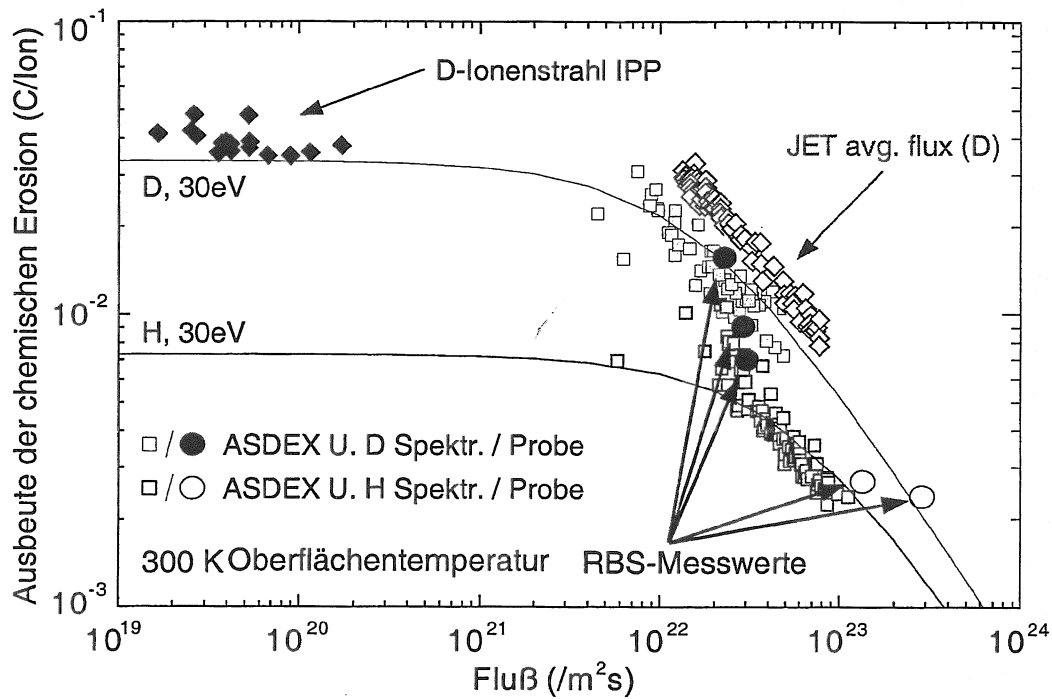


Abbildung 3.16: Vergleich der durch verschiedene experimentelle Methoden bestimmten Werte für die chemischen Erosion von Kohlenstoff (aus [KRIEGER et al. 1999b]).

Bild 3.16 als durchgezogene Linie präsentierten Modell [KALLENBACH 1999] zu existieren. Eine Verifikation dieser Abweichungen ist im Moment nicht möglich, da die wesentliche Fehlerquelle bei der Bestimmung der Erosionsraten im Divertor bei der direkten Messung der Erosion durch die mangelnde Kenntnis der Teilchenflüsse gegeben ist.

## Kapitel 4

# ERDA-Tiefenprofile

Wie im vorherigen Kapitel gezeigt wurde, ist die Analyse von Materialien durch RBS gut zur Untersuchung dünner Schichten ( $d \leq 1 \mu\text{m}$ ) von schweren Elementen auf einer Unterlage mit geringerer Atommasse geeignet. Die durch die schwereren Elemente entstehenden RBS-Signale sind im Spektrum von dem bei niedrigeren Energien auftretenden Substratsignal getrennt und daher gut nachweisbar. Darüberhinaus steigt der Streuquerschnitt mit wachsender Kernladung bzw. Masse des streuenden Atoms, wodurch die Nachweisgrenze abnimmt.

Ebenso besteht aber die Notwendigkeit der Tiefenprofilanalyse von leichten Elementen in einer aus schwereren Elementen gebildeten Matrix. Von besonderem Interesse für die Konzeption des geplanten Fusionsexperimentes ITER (International Thermonuclear Experimental Reactor) ist die Menge und die Verteilung des in die Wände gelangenden Tritiums. Der Eintrag von Tritium beträgt nach Abschätzungen zwischen 10 g und 20 g je Puls von 1000 s Länge [FEDERICI et al. 1999]. Durch die aus Sicherheitsgründen vorgeschriebene Maximalmenge für das radioaktive Tritium ergäbe sich damit eine zulässige Betriebszeit von lediglich einigen Tagen bis Wochen.

Um diese Begrenzung zu umgehen ist eine Entfernung des an den Wänden deponierten Tritiums notwendig. Hierfür werden verschiedene Möglichkeiten untersucht. Dies sind unter anderem:

- Oxidation der deponierten Schichten (z.B. Kohlenstoff) im Plasmagefäß durch hohe Temperaturen [CHIU und HAASZ 1991].

- Zünden eines Reinigungsplasmas [JACOB et al. 1999].
- Laserpulse zum raschen Aufheizen der deponierten Schichten [SKINNER et al. 1998].

Die Wirksamkeit der verschiedenen Methoden hängt stark von den Eigenschaften der deponierten Schichten ab. Für die Schichtbildung lassen sich die Wände innerhalb eines Tokamaks wie ASDEX Upgrade in mehrere Bereiche mit unterschiedlichen Bedingungen aufteilen.

- *Divertor*: Im Divertor ist die Plasmatemperatur niedrig (im Bereich einiger eV). Der Teilchenfluß ist hingegen mit  $10^{22} \dots 10^{24}$  Ionen/(m<sup>2</sup>s), verglichen mit den anderen Gebieten, hoch. Die Erosion ist durch die Bildung von Kohlenwasserstoffen dominiert.
- *Hauptraumwände*: Hier treffen überwiegend Neutralteilchen mit einer breiten Energieverteilung von einigen eV... keV auf. Dies führt zu einer Zerstäubung der Wand und damit zu einer Nettoerosion. Die Teilchenflüsse sind im Bereich von  $10^{18} \dots 10^{20}$  Atomen/(m<sup>2</sup>s).
- *Limiter* im Hauptraum: Diese, das Plasma begrenzenden Teile sind Ionen mit 50-200 eV, einer deutlich höheren Energie als im Divertor, ausgesetzt. Der Fluß liegt bei ca.  $10^{20} \dots 10^{22}$  Ionen/(m<sup>2</sup>s).

Den wechselnden Belastungen kann mit an den Einsatzort angepaßten Materialien begegnet werden. Dies reduziert die Erosionsrate, führt aber durch den Transport von erodiertem Material zu einer Ausbildung von in der Zusammensetzung variierenden Schichten.

Von besonderer Bedeutung ist die Verteilung des Tritiums in den oberen Wandschichten. Reichert es sich an der Oberfläche an, kann z.B. die Erosion dieser Schicht durch die Bildung von gasförmigen Kohlenwasserstoffen die Möglichkeit zum Abpumpen des Tritiums ergeben. Ist das Tritiuminventar jedoch über eine größere Tiefe verteilt (z.B. Diffusion entlang von Korngrenzen im verwendeten Graphit) führt eine Oberflächenerosion zu keiner signifikanten Reduktion des Tritiuminventars.

Für den Nachweis der Wasserstoffisotope eignet sich besonders ERDA (*Elastic Recoil Detection Analysis*). Mit dieser erst seit 1976 existierenden Methode [L'ECUYER et al. 1976] können gezielt die Wasserstoffisotope bis in

eine Tiefe von ca.  $1\ \mu\text{m}$  nachgewiesen werden und bei Verwendung eines *Time Of Flight* (TOF)- oder eines Teleskopdetektorsystems getrennt registriert werden [GEBAUER et al. 1990] [WHITLOW 1990].

Andere Analysemethoden (wie SIMS), die auf der Verwendung von Massenspektrometern beruhen, haben gerade beim Nachweis von Wasserstoffionen Probleme mit der Quantifizierung (Nachweiswahrscheinlichkeit) oder der Unterscheidung von Molekülen (z.B.  $\text{H}_2 \leftrightarrow \text{D}$ ) und Atomen. Eine noch recht neue Methode, AMS (*Accélérator Mass Spectroscopy*), umgeht das Problem der Massenähnlichkeit durch Aufspalten der Moleküle. Da aber die zu beschleunigenden Ionen durch einen Zerstäubungsprozeß der Probe erzeugt werden, ist auch hier (wie bei SIMS) die Möglichkeit einer Tiefenprofilverfälschung durch präferentielle Zerstäubung gegeben. Der Hauptvorteil der AMS ist die sehr hohe Empfindlichkeit. Dies wird bei Datierungen von Proben mit der  $^{14}\text{C}$ -Methode ausgenutzt. Mit der häufig verwendeten Methode der Thermodesorption (TDS) können zwar sehr dicke Proben auf den Gesamtgehalt an Wasserstoffisotopen untersucht werden, jedoch fehlt die Möglichkeit zur Gewinnung eines Tiefenprofils. Daher nimmt ERDA eine dominierende Rolle bei der Erstellung von Tiefenprofilen von leichten Elementen ( $1 \leq Z \leq 9$ ) ein.

## 4.1 Die Grundlagen von ERDA

Die Detektion des gestoßenen Kernes  $M_2$  bei ERDA (vgl. auch Abbildung 3.1 auf Seite 25), anstatt des gestreuten Ions  $M_1$  bei RBS, stellt den Hauptunterschied zwischen den beiden Analysetechniken dar. Die Beschreibung des Energieverlustes der Partikel auf dem Weg durch die Probe ist daher identisch mit der bei RBS. Auch die Energieverbreiterungen (Straggling) erfolgen in gleicher Weise. Da jedoch  $M_2$  nur in Vorwärtsrichtung gestreut wird, ist der bei RBS-Analysen übliche senkrechte Einfall auf die Probe (bei Probendicken größer als die Ionenreichweite) nicht möglich. Typische Einfallswinkel bei ERDA-Analysen sind  $75^\circ$  zur Probennormalen. Der kinematische Faktor  $k_{\text{ERDA}}$  des anfangs im Laborsystem ruhenden Partikels nach dem Stoß ergibt sich aus dem Energiesatz zu  $1 - k_{\text{RBS}}$ , wobei  $k_{\text{RBS}}$  (vgl. 3.2) der kinematische



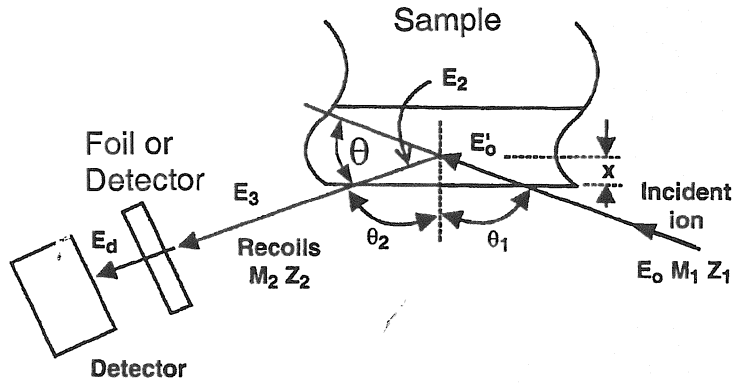


Abbildung 4.1: Prinzip eines ERDA-Experiments. Die unter einem flachen Winkel (typischerweise  $\theta_1 = 75^\circ$ ) auf die Probe auftreffenden Ionen stoßen ein leichteres Probenatom aus der Probe heraus. Dieses wird nach dem Weg durch Abschirmfolie oder Transmissionsdetektor energieaufgelöst registriert (nach [TESMER und NASTASI 1995]).

Faktor des gestreuten Partikels ist. Damit gilt

$$k_{\text{ERDA}} = \frac{E_2}{E_0} = \frac{4M_1M_2 \cos^2 \theta}{(M_1 + M_2)^2}. \quad (4.1)$$

Der Rutherford'sche Streuquerschnitt ergibt sich zu

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left( \frac{Z_1 Z_2 e^2}{8\pi\epsilon_0 E} \right)^2 \frac{(M_1 + M_2)^2}{\cos^3 \theta}. \quad (4.2)$$

Für die typischerweise verwendeten Energien  $E_0$  von Helium-ERDA überhalb von 2.4 MeV ist jedoch kein Rutherford'scher Streuquerschnitt mehr zu erwarten [BOZOIAN et al. 1990]. Speziell für ERDA-Anwendungen zur Tiefenprofilbestimmung von Wasserstoff und Deuterium wurden die Streuquerschnitte für Heliumionen bestimmt und sind als Fitformeln gegeben <sup>1</sup> [KELLOCK und BAGLIN 1993] [BAGLIN et al. 1992]. Die so bestimmten Wirkungsquerschnitte sind gegenüber den Rutherford'schen Streuquerschnitten für Wasserstoff um einen Faktor von ca. 2 erhöht und für Deuterium um einen Faktor von ca. 20 bei 2.5 MeV (vgl. Abbildung 4.2), was die Empfindlichkeit

<sup>1</sup>Vorsicht: Im viel verwendeten Handbuch *Handbook of Modern Ion Beam Materials Analysis* [TESMER und NASTASI 1995], S. 109 sind Teile dieser Fitformeln verkehrt angegeben.

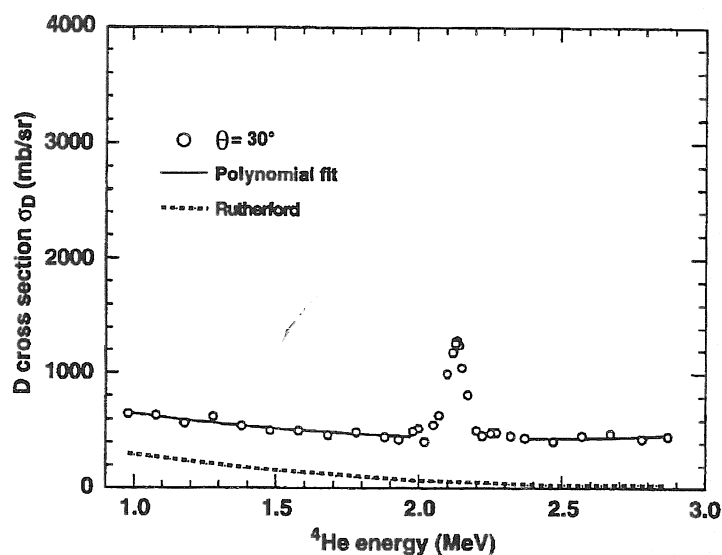


Abbildung 4.2: Wirkungsquerschnitte für Deuterium bei  $\theta = 30^\circ$  für  $^4\text{He}$ -ERDA. Deutlich ist die starke Erhöhung des Wirkungsquerschnittes im Vergleich zum Rutherford'schen Streuquerschnitt zu erkennen (nach [TESMER und NASTASI 1995]).

für Deuterium steigert. Die Resonanz bei etwas über 2MeV ist stark winkelabhängig und die Ionenenergien sollten für die normale ERDA-Analyse entsprechend weit außerhalb der Resonanz gewählt werden.

## 4.2 Experiment

Durch die große Vielfalt von unterschiedlichen Schichtprofilen, die sich innerhalb eines Fusionsexperiments an den Wänden aufbauen, erscheint eine vollständige Modellierung des Deponierungsverhaltens von Tritium aussichtslos. Dies kann für ausgezeichnete Positionen (etwa Limiter) durchführbar sein, im allgemeinen ist jedoch die Zahl der zu berücksichtigenden Einflußgrößen zu hoch. Hier müssen vielmehr die Experimente die Datengrundlage für eine zuverlässige Modellierung bereitstellen.

Vor allem im Bereich niedriger Ionenenergien (wenige eV... keV) existieren kaum Informationen über die Reichweitenverteilung der Wasserstoffisotope in fusionsrelevanten Wandmaterialien. Bei der Verwendung von Kohlenstoff als innere Wand bilden sich durch die fortgesetzten Implantationsvorgänge

mit den Wasserstoffisotopen a-C:H bzw. a-C:D-Schichten (amorphe Kohlenstoff-Wasserstoffschichten) aus [MÖLLER et al. 1987]. Die Kenntnis des Bremsvermögens dieser Schichten im niedrigen Energiebereich ist aber wichtig um

- die Verteilung der Wasserstoffisotope zu modellieren,
- Aussagen über ioneninduzierte Austauschprozesse zu treffen und
- das Gesamtinventar an Tritium abzuschätzen.

Die Annahme eines von der Braggschen Regel abweichenden Bremsvermögens bei a-C:(D/H)-Schichten und niedrigen Energien ( $E \leq 10$  keV) kann nicht ausgeschlossen werden, da Untersuchungen bei hohen Energien ( $E \geq 1.5$  MeV) ein um 40% erhöhtes Bremsvermögen ergeben [BOUTARD et al. 1988].

Durch den Vergleich hochaufgelöster Tiefenprofile von implantierten Wasserstoffisotopen mit Simulationsrechnungen (TRIM) kann das Bremsvermögen in dem niederenergetischen Bereich bestimmt werden. Die Implantierungen wurden mit Deuterium durchgeführt, da das Reichweitenverhalten von Tritium sich durch eine einfache Skalierung mit dem Massenverhältnis der beiden Wasserstoffisotope ergibt, und so die aufwendige Versuchsdurchführung mit dem radioaktiven Material (Sicherheitsbestimmungen) vermieden werden konnte.

#### 4.2.1 Experimentelle Durchführung

Die harten amorphen Kohlenwasserstofffilme ( $H/C$ -Verhältnis  $\leq 0.5$ ) wurden mit einer 13.56MHz-Hochfrequenz-Plasmaentladung aus  $CH_4$  (eine Beschreibung der Beschichtungsanlage findet sich in [ANNEN et al. 1997]) auf Siliziumscheiben mit ca. 10 cm (4 Zoll) Durchmesser abgeschieden, die zuvor mit einer Wasserstoffplasmaentladung gereinigt worden waren. Das Schichtdickenwachstum wurde in-situ interferometrisch mit einem He-Ne-Laser kontrolliert. Der Gasdruck in der Kammer während der Beschichtung betrug 2 Pa. Die Schichtdicke wurde durch eine Profilometermessung zu 420 nm bestimmt und der Brechungsindex der Schicht betrug  $n = 2.17$ , typisch für harte a-C:H-Schichten. Die Bestimmung der Kohlenstoffmenge mit 1.5 MeV Protonen-RBS und der Wasserstoffmenge mit 2.6 MeV He-ERDA ergab über

einen lateralen Bereich von ca. 5 cm ein nahezu konstantes H/C-Verhältnis von  $0.49 \pm 0.04$  [LINDIG 1998]. Die so gewonnenen harten a-C:H-Proben wurden mit jeweils  $10^{17}$  at/cm<sup>2</sup> Deuteriumionen mit einer Energie zwischen 0.3 keV und 8 keV implantiert. Hierfür werden die Ionen zuerst mit 8 keV beschleunigt und kollimiert. Vor der Probe werden sie dann mit einer entsprechend gewählten Gegenspannung auf die gewünschte Implantationsenergie abgebremst. Details der hierfür benutzten Hochstromionenquelle finden sich in [BAY et al. 1977]. Bei der gewählten Fluenz ist noch keine Sättigung zu erwarten [STAUDENMAIER et al. 1979].

#### 4.2.2 Analyse

Die für die Entfaltung benötigte Apparatefunktion für den Nachweis der Wasserstoffisotope wurde mit einer Erbiumhydridprobe bestimmt. Auf einem monokristallinen Si-Substrat wurden in einer Elektronenstrahlaufdampfanlage 2 nm Erbium aufgebracht. Erbium wird an Luft nicht oxidiert und ist daher als Eichprobe geeignet [NEUMÜLLER 1981]. Anschließend wurden zwischen  $40$  und  $8000 \times 10^{15}$  at/cm<sup>2</sup> Deuteriumatome mit einer Energie von 20 eV implantiert [LINDIG 1998]. Von den Erbiumproben zur Bestimmung der Apparatefunktion ergab nur die mit der höchsten Implantationsdosis von Deuterium ein verwertbares ERDA-Spektrum.

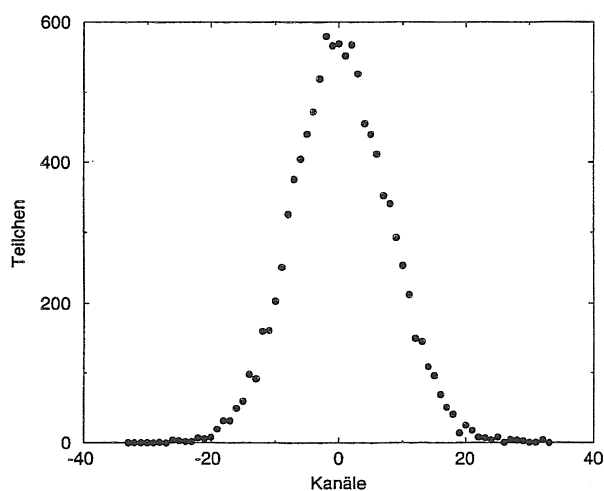
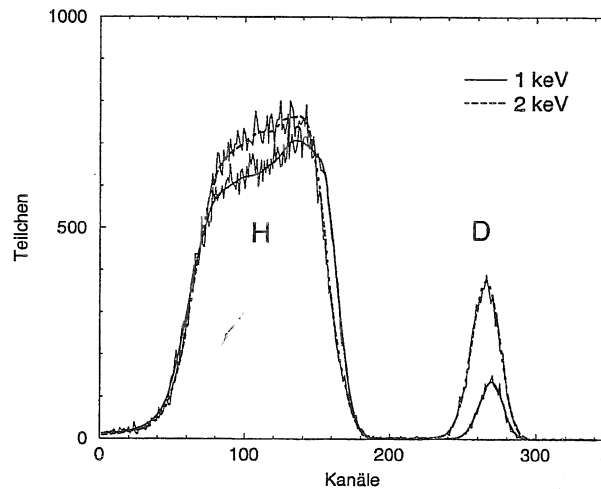


Abbildung 4.3: Mit einem mit  $8000 \times 10^{15}$  at/cm<sup>2</sup> Deuteriumatomen implantiertem 2 nm Erbium-Eichtarget bestimmte Apparatefunktion für 2.6 MeV He-ERDA.

Es kann nicht ausgeschlossen werden, daß Deuteriumionen, trotz der niedrigen Implantierungsenergie, auch in das Siliziumsubstrat implantiert wurden [LINDIG 1998], aber der Einfluß der Tiefenunschärfe der implantierten Ionen ist im Vergleich zu den sonstigen Beiträgen zur Breite der Apparatefunktion (z.B. Energieschwankungen des Beschleunigers, elektronisches Rauschen des Detektors) klein, weswegen die gemessene Apparatefunktion dennoch zur Entfaltung herangezogen werden kann.

Trotz der hohen implantierten Menge ist die Signalintensität klein, weswegen die bei der Apparatefunktion erreichte Zählstatistik einen deutlichen Einfluß auf den Gesamtfehler hat. Die Asymmetrie der Apparatefunktion ist nur sehr schwach ausgeprägt und sie kann gut durch eine Gaußkurve mit einer Breite von  $\text{FWHM}=17$  (*Full Width Half Maximum*) Kanälen angenähert werden. Die Energieverbreiterung des Meßsignals durch die Apparatefunktion und ‚Straggling‘ wird bei dem Standardauswerteprogramm LORI nicht berücksichtigt, was zu erheblichen Fehlern führen kann [BORGESSEN et al. 1983].

Die deuteriumimplantierten a-C:H-Schichten wurden mit 2.6 MeV Helium-ERDA untersucht. Der Einfallswinkel betrug  $\theta_1 = 75^\circ$  und die unter einem Winkel von  $\theta = 30^\circ$  gestreuten Teilchen wurden vom Sperrschichtdetektor unter  $\theta_2 = 75^\circ$  energieaufgelöst registriert. Eine  $5.1 \mu\text{m}$ -dicke Nickelfolie vor dem Detektor läßt nur die Wasserstoffisotope passieren, da das Bremsvermögen der Nickelfolie für die schwereren Heliumionen größer ist als für die Wasserstoffisotope. Die Energie der Deuteriumatome ist durch das Massenverhältnis und der geringen Implantationstiefe größer als die der Wasserstoffatome, weswegen es zu keinem Überlapp der Signale kommt. Zwei der für verschiedene Implantationsenergien (1keV und 2keV) gemessenen ERDA-Spektren sind in Abbildung 4.4 dargestellt. Das Deuteriumsignal ist zwischen den Kanälen 200 und 300 zu sehen, das entsprechende Wasserstoffsignal unterhalb von Kanalnummer 200. Der Kohlenstoffanteil ist im ERDA-Signal nicht zu erkennen. Auffällig ist die deutlich höhere Deuteriumsignalintensität bei der mit größerer Energie implantierten Probe. Dies ist auf die mit abnehmender Implantationsenergie zunehmende Gegenspannung und der dadurch schlechter werdenden Kollimierung der Deuteriumionen zurückzuführen, die zu einer Verringerung der Flächendichte der implantierten Ionen führt.



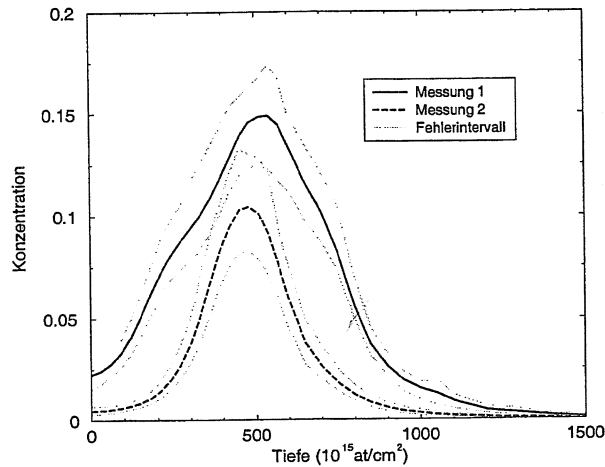
*Abbildung 4.4: Mit 2.6 MeV He-ERDA gemessene Spektren von mit unterschiedlicher Energie deuteriumimplantierten a-C:H-Schichten. Die ‚glatten Linien‘ (durchgezogen und gestrichelt) stellen die mit den rekonstruierten Tiefenprofilen simulierten ERDA-Spektren dar. Der Streuwinkel betrug  $\theta = 30^\circ$ , der Einschufswinkel zur Oberflächennormalen  $\theta_1 = 75^\circ$ , der Detektionswinkel zur Oberflächennormalen  $\theta_2 = 75^\circ$ . Das Deuteriumsignal zwischen den Kanälen 200 und 300 ist deutlich vom Wasserstoffsignal unterhalb von Kanalnummer 200 getrennt.*

### 4.3 Ergebnisse

Zwei rekonstruierte Tiefenprofile für die Implantationsenergie 2 keV sind in Abbildung 4.5 dargestellt. Die rekonstruierten Verteilungen weisen eine nur geringe Unsicherheit in der Lage des Maximums auf. Die Positionen der Maxima stimmen im Rahmen der Fehler überein. Die unterschiedlichen Gesamtkonzentrationen sind eine Folge der inhomogenen Implantation, die bei visueller Kontrolle des Implantationsflecks zu erkennen ist [LINDIG 1998].

Bei den ermittelten Konzentrationen ist die Unsicherheit im Vergleich zur Positionsunsicherheit deutlich größer. Dies ist im wesentlichen eine Folge der Ungenauigkeit der Ladungsmessung. Da die genaue Konzentration des Matrixelementes Kohlenstoff nicht bekannt ist, äußert sich die Unsicherheit bei der Ladungsmessung direkt in der Konzentration. Dieses Verhalten, eine größere Unsicherheit in der Konzentration der Wasserstoffisotope im Vergleich zu der Tiefenlokalisierung, ist daher allen Profilen gemeinsam.

Die Unsicherheit in der Ladungsmessung kann durch die Berücksichtigung



*Abbildung 4.5: Ermittelte Deuteriumprofile für mit 2 keV implantierte Proben an verschiedenen Probenorten. Obwohl die Fehlerintervalle bezüglich der Konzentration groß sind und sich auch die implantierten Mengen unterscheiden, ist das Konzentrationsmaximum in der Tiefe gut bestimmt und stimmt bei beiden Messungen im Rahmen der Fehler überein.*

eines gleichzeitig registrierten RBS-Spektrums beseitigt werden. Das Matrixsignal des Kohlenstoffs ist direkt proportional zur verwendeten Ladungsmenge was die genaue Bestimmung des Deuteriumgehalts zulässt. Diese Kombination von Meßmethoden, die bei PIXE erst die Tiefenauflösung erlaubt (vgl. Kap. 5), konnte hier leider nicht verwendet werden. Die Konstruktion des verwendeten Probenhalters verhinderte bei den für ERDA-Analysen nötigen flachen Einfallswinkeln eine gleichzeitige Messung von ERDA und RBS-Spektren.

Die Ergebnisse der Simulationen mit TRIM stammen aus je Energie gerechneten  $10^5$  implantierten Deuteriumionen, deren Reichweitenverteilung ermittelt wurde. Das Wechselwirkungspotential wurde durch ein Krypton-Carbon (Kr-C-) Potential angenähert, das elektronische Bremsvermögen ist für hohe Ionenenergien durch die Werte von Ziegler [ZIEGLER et al. 1985] gegeben. Bei niedrigen Ionenenergien wurde zu gleichen Teilen das Stopping nach Lindhard-Scharf [LINDHARD und SCHARFF 1961] sowie von Oen-Robinson herangezogen [OEN und ROBINSON 1976]. Ein Vergleich der Ergebnisse ist in Bild 4.6 zu sehen. Die Positionen der Maxima stimmen für Implantati-

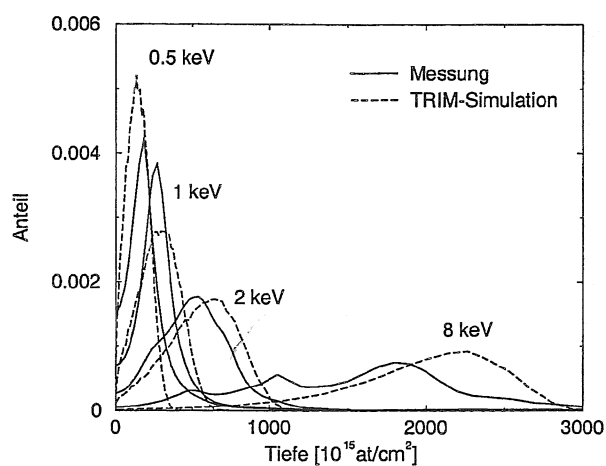


Abbildung 4.6: Vergleich von mit TRIM simulierten Implantationsprofilen und aus 2.6 MeV He-ERDA-Messungen gewonnenen Tiefenprofilen. Die Kurvenflächen sind auf 1 normiert.

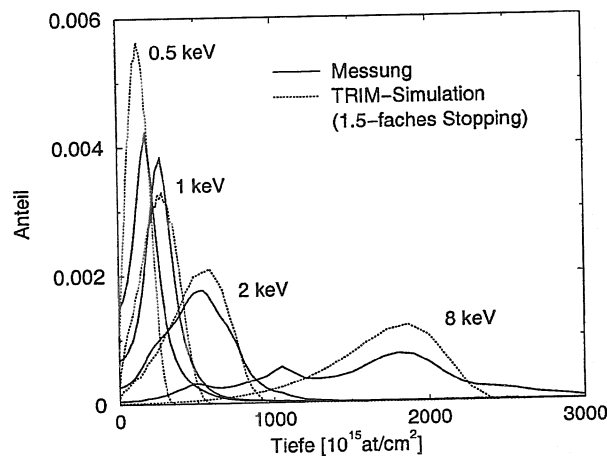
onsenergien von 1 keV und 2 keV gut überein, die Abweichungen sind kleiner als 20%. Bei 500 eV und 8 keV Implantationsenergie sind die relativen Abweichungen größer.

Die unterschiedliche Kurvenhöhe zwischen den TRIM-Simulationen und den aus den Meßdaten gewonnenen Profilen sind eine Folge der Kurvenflächennormierung, die für einen Vergleich von Simulation und Messung nötig war. Hier werden die Maximalhöhen stark durch die langen Ausläufer in den Konzentrationsprofilen beeinflusst. Darüberhinaus kommt es zu einer Abweichung in der Oberflächenschicht. Da die TRIM-Simulation mit einer ideal glatten Oberfläche rechnet, kann sie die durch Rauigkeitseinflüsse verursachte Verbreiterung [BEHRISCH et al. 1998] der Konzentrationsverteilung hier nicht berücksichtigen. Mit zunehmender Implantationstiefe verliert dieser Unterschied an Bedeutung.

Die relative Lage der Positionen der Kurvenmaxima verschiebt sich systematisch. Mit wachsender Implantationsenergie ist die Position des Schwerpunktes bei den simulierten Profilen in größere Tiefen verschoben. Dies ist bei der maximalen Implantationsenergie von 8 keV am deutlichsten ausgeprägt. Da das Programm TRIM ausschließlich die Braggsche Regel zur Bestimmung des Bremsvermögens heranzieht, ist die Abweichung verständlich, falls erhöhtes



Stopping durch die Struktur der a-C:H-Schicht auch bei den Implantationsenergien im keV-Bereich vorhanden ist. Dies verschiebt die simulierten Peaks im Vergleich zur Messung in größere Tiefen. Um den Einfluß eines dem CAB (*Cores And Bonds*)-Modell angenäherten Bremsvermögens in den a-C:H-Schichten zu berücksichtigen, wurde das von TRIM verwendete elektronische Bremsvermögen um den Faktor 1.5 erhöht. In Abbildung 4.7 zeigt sich eine deutlich bessere Übereinstimmung in den Positionen der Peakmaxima im Vergleich zu den Peaklagen bei unkorrigiertem Bremsvermögen in Abbildung 4.6. Dies ist besonders bei den mit hohen Energien implantierten Deuteriumionen zu erkennen. Bei den niedrigen ( $E \leq 1$  keV) Implantationsener-



*Abbildung 4.7: Vergleich von mit TRIM simulierten Implantationsprofilen und aus 2.6 MeV He-ERDA-Messungen gewonnenen Tiefenprofilen. Die Kurvenflächen sind auf 1 normiert. Das elektronische Bremsvermögen wurde um den Faktor 1.5 erhöht.*

gien, bei denen das nukleare Bremsvermögen einen wesentlichen Anteil des Gesamtbremsvermögens darstellt, erlangen strukturelle Eigenschaften (Rauigkeiten der Probenoberfläche) einen dominierenden Einfluß. Aussagen zu den Bremsvermögen für Ionen mit Energien unterhalb von 500 eV sind mit der derzeitigen Meßanordnung nicht verlässlich zu erhalten, obwohl sich die Oberflächenrauigkeit durch entsprechend dünnere a-CH-Filme für niedrige Implantationsenergien verringern ließe. Die durch den Probenhalter entstehende Einfallswinkelunsicherheit [LINDIG 1998] verhindert eine genauere

Tiefenprofilanalyse. Mit dem zunehmenden Anteil des nuklearen Stoppings am Gesamtbremsvermögen bei sinkender Implantationsenergie sollte aber der Einfluß der Bindungsverhältnisse abnehmen. Dies wird auch durch Ergebnisse von MD-(*Molecular Dynamics*)Rechnungen gestützt, die bei sehr niedrigen Implantationsenergien (einige eV) keine Abweichung der Reichweiten von den TRIM-Ergebnissen gezeigt haben [SIGMUND et al. 1989].

Daher lassen sich folgende Punkte festhalten: Zumindest bei den technisch wichtigen a-C:H-Filmen ergeben die bei TRIM verwendeten Potentiale eine hinreichend gute Beschreibung der niederenergetischen Implantationsprofile, sofern das elektronische Bremsvermögen durch das CAB-Modell beschrieben wird. Die aus ERDA-Messungen rekonstruierten Tiefenprofile mit ihren Fehlern zeigen eine gute Tiefenlokalisierung. Für den konkreten Fall der Deuteriumimplantation in amorphen Kohlenwasserstoffschichten konnten dadurch die relativ leicht zugänglichen und gut bekannten Werte für Bremsvermögen im MeV-Bereich genutzt werden, um die experimentell deutlich schwieriger zu bestimmende Reichweitenverteilung von niederenergetisch implantierten Ionen zu ermitteln. Dies eröffnet einen konzeptionell einfachen Weg, die für die Simulationen der Plasma-Wand-Wechselwirkung (PWW) und des Tritiuminventares benötigte Datenbasis (geeignete Potentiale, Reichweitenverteilung und Bremsvermögen bei niedrigen Energien in verschiedenen Materialien) aufzubauen.

Eine genauere Festlegung der absoluten Konzentrationswerte der Wasserstoffisotope in a-C:H-Schichten ist durch die Kombination mehrerer Meßkanäle (ERDA und RBS) möglich, da hierbei auch das Matrixelement Kohlenstoff bestimmt wird. Die Vorteile einer Kombination mehrerer Messungen zeigen sich besonders deutlich im 5. Kapitel bei der Auswertung von PIXE-Daten.

## Kapitel 5

# PIXE

Die beiden bisher behandelten Oberflächenanalysetechniken (RBS und ERDA) haben ihre Stärken bei der Tiefenprofilbestimmung und ergänzen sich durch ihre komplementären Eigenschaften. Die Sensitivität beider Methoden ist jedoch beschränkt (Nachweisgrenze bei einer relativen Konzentration von etwa  $10^{-4}$  [CHU et al. 1978]) und in vielen Fällen nicht ausreichend. PIXE (*Particle Induced X-Ray Emission*) hingegen ist eine Analysemethode, die ihre Stärke vor allem im Nachweis von Spurenelementen mit einer Kernladung  $Z \geq 11$  hat (besser als  $10^{-6}$  [BERÉNYI et al. 1978]).

Die mit PIXE mögliche große Analysetiefe von einigen  $10 \mu\text{m}$ , kombiniert mit hoher Empfindlichkeit und einfacher Detektion durch Si(Li)-Halbleiterdetektoren, führte zu einer raschen Verbreitung von PIXE mit Anwendungen in der Archäologie [SWANN 1982], Biologie [LEGGE 1984] und der Kunstgeschichte [ELDRED et al. 1984]. Wird der Analysestrahl zusätzlich fokussiert (Mikrostrahl-PIXE) und über die Probenoberfläche gerastert, können lateral aufgelöste Spektren aufgenommen [COOKSON et al. 1972] und entfaltet werden [BERGER 1997].

Große Probleme bereitet jedoch die Tiefenprofilbestimmung von Spurenelementen. Gerade in der Halbleiterindustrie besteht ein erhebliches Interesse daran, Dotierungsprofile zu bestimmen, ohne die zu untersuchenden Proben zu zerstören. Hierfür existiert keine geeignete Analysetechnik. Entweder ist sie zu unempfindlich (RBS, ERDA), hat eine zu geringe Analysetiefe (EIXE (*Electron Induced X-Ray Emission*)) oder ist bei mehreren

nachzuweisenden Elementen sehr aufwendig (Kernreaktionsanalyse (NRA)). Auf sukzessivem Abtragen von Material beruhende Methoden wie SIMS oder AMS, zerstören die Probe und haben eine geringere Tiefenauflösung [WATT und GRIME 1987].

Ein tiefensensitives PIXE hätte diese Nachteile nicht. Aber ein PIXE Spektrum enthält nicht genug Informationen um die Tiefenverteilung der Elemente zu bestimmen. Allenfalls können, unter der Annahme einer homogenen Probenzusammensetzung, Aussagen über die Konzentration der im PIXE-Spektrum detektierten Elemente getroffen werden.

In diesem Kapitel soll aufgezeigt werden, wie die gleichzeitige Auswertung mehrerer PIXE Spektren, gemessen unter verschiedenen Nachweiswinkeln, es ermöglicht, Tiefenprofile durch alleinige Verwendung von PIXE Messungen zu bestimmen.

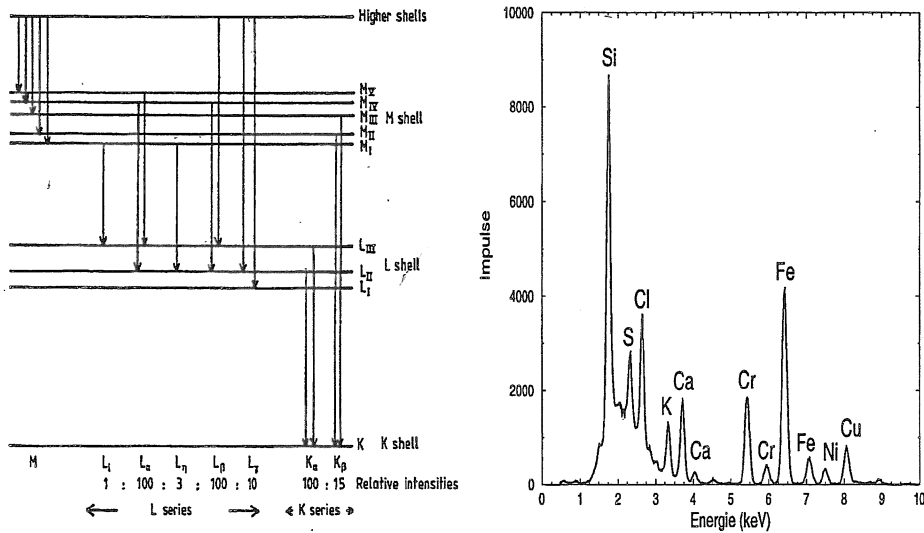
## 5.1 Grundlagen von PIXE

Die bei PIXE detektierte und für jedes Element charakteristische Röntgenstrahlung wird durch den auf die Probe fallenden Ionenstrahl (in den allermeisten Fällen Protonen<sup>1</sup>) ausgelöst. Die hochenergetischen Protonen schlagen Elektronen aus den inneren Schalen heraus und die entstehenden Leerstellen werden durch Elektronen aus den äußeren Schalen besetzt. Dabei kommt es zur Emission von Röntgenstrahlung und Auger-Elektronen.

### 5.1.1 Linienstruktur

Die möglichen Übergänge bei der Besetzung einer Leerstelle sind in Abbildung 5.1 eingezeichnet. Durch die große Zahl der erlaubten Übergänge und der Spurenelementempfindlichkeit von PIXE wird verständlich, daß PIXE-Spektren aus einer Vielzahl von Linien zusammengesetzt sein können. Ein typisches Beispiel ist ein mit 2.6 MeV Protonen aufgenommenes PIXE-Spektrum (Abbildung 5.1 rechts) einer Kohlenstoffdivertorkachel aus AS-DEX Upgrade. Bei Energien oberhalb von 5 keV sind Metallverunreinigungen zu erkennen, die sich zusammen mit Kohlenstoff auf der Kachel abgelagert

<sup>1</sup>Aus diesem Grund wird für PIXE auch oft Proton Induced X-Ray Emission gesetzt. Im weiteren wird ausschließlich auf Protonen Bezug genommen.



*Abbildung 5.1: Das linke Bild zeigt die schematische Darstellung der Schalenstruktur eines Atoms und der wesentlichen Röntgenübergänge (aus [WATT und GRIME 1987]). Die angegebenen Intensitätsverhältnisse sind vom Element abhängig (vgl. auch 5.2). Rechts ist das PIXE Spektrum einer ASDEX Upgrade Divertorkachel aus Kohlenstoff dargestellt. Neben den einzelnen Elementsignalen ist der zu niedrigen Energien anwachsende Bremsstrahlungsuntergrund zu erkennen.*

haben. Der starke Siliziumpeak bei 1.74 keV resultiert aus einer Silizierung der ASDEX-Wände. Die weiteren Signale (S, Cl, K, Ca) weisen auf eine Verunreinigung durch Hautkontakt hin.

Der zu niedrigeren Energien (zwischen 1.5 keV und 3 keV) ansteigende Untergrund resultiert aus Bremsstrahlung. Eine ausführliche Darstellung der zum Untergrund beitragenden Prozesse wie Protonen-Bremsstrahlung, Elektronen-Bremsstrahlung, Gammastrahlung aus Kernreaktionen und Sekundär-Floureszenz, findet sich in [JOHANSSON und CAMPBELL 1988]. Da der Untergrund bei PIXE nur langsam mit der Energie variiert, kann er in den meisten Fällen durch entsprechende Programme von den Signalen separiert werden [FISCHER et al. 2000].

Der Abfall der Signalintensität zu noch niedrigeren Energien ( $E \leq 1$  keV) wird durch eine Absorberfolie vor dem Detektor hervorgerufen. Die Absorberfolie ist notwendig, um eine zu hohe Totzeit des Detektors durch Unter-

grundsignale zu vermeiden, die durch von der Probe reflektierte Protonen hervorgerufen werden.

Um bei überlappenden Signalen in PIXE Spektren eine Auswertung durchführen zu können, ist nicht nur die Kenntnis der elementspezifischen Röntgenenergien notwendig, sondern auch das relative Intensitätsverhältnis der Linien eines Elements zueinander. Während die Energie für die Elemente sehr genau bekannt ist (der Verlauf mit der Kernladungszahl  $Z$  ist in Bild 5.2 links gezeigt), gibt es bei dem Verhältnis von  $b_{\alpha}^K = K_{\alpha}/K_{\text{Gesamt}}$  kleinere Abweichungen zwischen Theorie und Experimenten. Bei den Verhältnissen der L-Linien sind die Unterschiede deutlich größer (hier treten Abweichungen bis zu 80% auf [COHEN und HARRIGAN 1986]) und können zu Problemen bei der Zuordnung der einzelnen Signale führen. In Abbildung 5.2 ist der experimentelle Wert (gestrichelt) für das Verhältnis  $K_{\alpha}/K_{\beta}$  mit theoretischen Vorhersagen (durchgezogene Linie) verglichen.

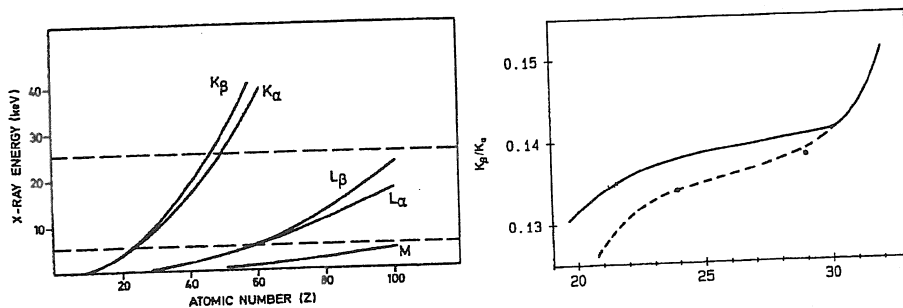


Abbildung 5.2: Im linken Bild ist die mit steigender Kernladung anwachsende Röntgenenergie der K (L, M)-Übergänge dargestellt. Die Auflösung der Si(Li)-Detektoren bestimmt, wie gut die Linien separiert werden können. Im rechten Bild ist als durchgezogene Linie die theoretische Vorhersage des  $K_{\beta}/K_{\alpha}$ -Verhältnisses als Funktion der Kernladung aufgetragen. Die experimentellen Daten folgen der gestrichelten Kurve (aus [JOHANSSON und CAMPBELL 1988]).

### 5.1.2 Wirkungsquerschnitte

Für die Empfindlichkeit von PIXE ist hauptsächlich der hohe Wirkungsquerschnitt im Vergleich zu den anderen Beschleunigeranalysemethoden (z.B. RBS) verantwortlich. Die genauesten theoretischen Berechnungen von Wirkungsquerschnitten für die K-Schalen-Ionisation wurden von Brandt et al.

	K-Schale	L-Schale
$B_0$	$3.700 \times 10^{-2}$	$1.77650 \times 10^{-1}$
$B_1$	$3.112 \times 10^{-2}$	$2.98937 \times 10^{-3}$
$B_2$	$5.440 \times 10^{-5}$	$8.91297 \times 10^{-5}$
$B_3$	$-1.250 \times 10^{-6}$	$-2.67184 \times 10^{-7}$

*Tabelle 5.1: Koeffizienten für die Berechnung der Röntgenstrahlungswahrscheinlichkeit bei Existenz einer Leerstelle in der K- oder L-Schale. Koeffizienten für die K-Schale nach [BAMBYNEK et al. 1972], für die L-Schale nach [COHEN 1987].*

durchgeführt [BRANDT und LAPICKI 1981]. Die so erhaltenen Werte wurden mit den vorhandenen experimentellen Daten verglichen und Referenzwirkungsquerschnitte ermittelt [PAUL und SACHER 1989]. Bei den von ihnen angegebenen Kurven wird der Fehler in den Wirkungsquerschnitten mit 10% abgeschätzt, obwohl er in Einzelfällen (Silber) bis zu 36% betragen kann.

Generell steigen die Wirkungsquerschnitte für die K-Schalen-Ionisation mit der Energie, bis die Geschwindigkeit der Protonen die klassische Bahngeschwindigkeit der Elektronen erreicht haben. Danach nimmt er mit steigender Energie langsam ab. Außerdem fällt der Wirkungsquerschnitt mit steigender Kernladung  $Z$  des Atoms bei den typischerweise für PIXE verwendeten Protonenenergien von 1...3 MeV.

Die mögliche Bildung von Auger-Elektronen anstelle der Röntgenemission muß berücksichtigt werden. Dies kann durch die Einführung eines Faktors  $\omega_K$  geschehen. Die Wahrscheinlichkeit  $\omega_K$  für die Emission von Röntgenstrahlung nach der Bildung einer Leerstelle auf der K-Schale steigt monoton mit wachsender Kernladungszahl  $Z$ . Der Verlauf wird gut (Fehler ist kleiner als 5%) von folgender, semi-empirischer Formel beschrieben:

$$\left(\frac{\omega_K}{1 - \omega_K}\right)^{1/4} = \sum_{i=0}^3 B_i Z^i, \quad (5.1)$$

wobei die Fitkoeffizienten  $B_i$  (auch für die L-Linien) in Tabelle 5.1 angegeben sind.

### 5.1.3 Absorptionsquerschnitte

Bei der Analyse von dünnen Proben mit PIXE geht man üblicherweise davon aus, daß die Absorption von Röntgenstrahlung in der Probe vernachlässigbar ist. Für dickere Proben ist diese Annahme nicht mehr gerechtfertigt. Vielmehr wird ein Großteil der registrierten Röntgenstrahlung aus oberflächennahen Schichten kommen, da die Strahlung aus tieferen Schichten absorbiert wird [CAMPBELL und COOKSON 1984]. Die elementabhängigen Absorptionsquerschnitte sind für verschiedene Energien tabelliert. Für die später verwendeten Probenmaterialien sind sie in Abbildung 5.3 dargestellt. Deutlich sind die sprunghaften Anstiege bei den Bindungsenergien der einzelnen Schalen zu erkennen, auch die Unterstruktur der Nb-L-Schale.

Da die Energie der emittierten Röntgenstrahlung nur etwas niedriger als die Bindungsenergie des herausgeschlagenen Elektrons ist, sind die Kantenpositionen ein guter Anhaltspunkt für die Energie der Röntgenstrahlung des betreffenden Elementes. Daher kann Abbildung 5.3 entnommen werden, daß die von Niob emittierte Röntgenstrahlung mit ca. 2.2 keV von Silizium stärker absorbiert wird, als die von Silizium stammende Strahlung bei ca. 1.8 keV durch Niob.

### 5.1.4 Detektor

Die hohe Sensitivität von PIXE ist, neben den relativ hohen Wirkungsquerschnitten, auch auf die Existenz geeigneter Detektoren für die Röntgenstrahlung zwischen 2 keV und 30 keV zurückzuführen. Da die Wechselwirkungswahrscheinlichkeit von Röntgenstrahlen mit dem Detektor im Vergleich zu Ionen geringer ist, muß das sensitive Volumen des Detektors vergrößert werden. Bei Si(Li)-Detektoren kann die aktive Schicht durch Dotierung mit Lithium bis zu 10 mm dick gefertigt werden. Damit ist die Effizienz  $\eta(E)$  für Röntgenenergien unter ca. 30 keV für PIXE-Anwendung hoch genug [GALLAGHER und CIPOLLA 1974]. Ein weiterer Vorteil ist der sehr gleichmäßige Verlauf der Effizienzkurve, die zwischen 5 keV und 20 keV nahezu konstant ist [CAMPBELL und MCGHEE 1986].

Die Auflösung der Si(Li)-Detektoren ist typischerweise 150 eV (FWHM) bei der Mn- $K_{\alpha}$  Linie (5.895 keV), die als Referenz verwendet wird. Die Appa-



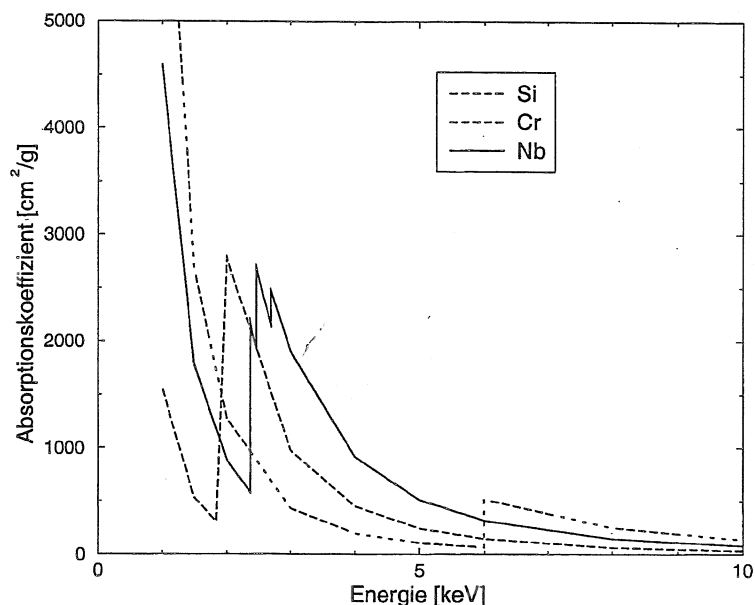


Abbildung 5.3: Absorptionskoeffizienten für die Materialien Si, Cr und Nb. Die Schalenstruktur ist deutlich in den Sprüngen der Absorptionsquerschnitte zu erkennen.

ratefunktion der Si(Li)-Detektoren kann gut durch eine Gaußkurve angenähert werden [KNOLL 1989]. Um eine Verschlechterung der Detektoreigenschaften durch Diffusion zu vermeiden, werden sie durch Flüssigstickstoff gekühlt betrieben. Ein Nachteil der großen aktiven Schicht ist die geringere Zeitaufösung, da eine vollständige Ladungssammlung eines Impulses länger dauert. Dies kann bei höheren Zählraten zu einer Überlagerung von Impulsen führen (*pile-up*), die deutliche Verzerrungen im Spektrum hervorrufen. Durch elektronische *pile-up*-Detektion [WIELOPOLSKI und GARDNER 1976] oder die sogenannte *beam-on-demand* Technik können die Störungen im Spektrum reduziert werden [MINGAY und BARNARD 1978]. Weiterhin kann *pile-up* durch die Verwendung von CCD-Detektoren mit hohen Ausleseraten bis ca.  $10^6$  Impulsen/s weitgehend reduziert werden [LECHNER 1996].

Bei den hier durchgeführten Messungen wurde die elektronische *pile-up* Unterdrückung des KeveX-Verstärkersystems verwendet, jedoch ließ sich *pile-up* nicht vollständig vermeiden.

### 5.1.5 Intensität

Die Intensität einer bestimmten Röntgenlinie  $R_\zeta$  (z.B.  $K_\alpha$ ) eines Elementes  $j$  mit der Energie  $E_R$  aus einer Schicht  $n$  bestimmt sich durch das Konzentrationsprofil  $c_j(x)$ , den von der Protonenenergie  $E_P$  und vom Element abhängigen Ionisationsquerschnitt  $d\sigma_j/d\Omega(E_P)$  und der Detektoreffizienz  $\eta(E)$  zu

$$Y(R_\zeta, n) = N_0 \omega_R b_\zeta^R \eta(E_R) \Omega \int_{x_n}^{x_{n+1}} dx \frac{1}{\cos \theta_1} \frac{d\sigma_j}{d\Omega}(E_P(x)) c_j(x) T(x_n, x). \quad (5.2)$$

Hierbei gibt  $N_0$  die Zahl der einfallenden Ionen und  $\Omega$  den Raumwinkel des Detektors an. Die Winkel  $\theta_1$  und  $\theta_2$  sind die Winkel zwischen Probennormalen und Protoneneinfallrichtung bzw. zwischen Probennormalen und Detektor (vgl. Abbildung 4.1). Dabei ist  $\omega_R b_\zeta^R$  der Anteil der erzeugten Leerstellen, der die Röntgenlinie  $R_\zeta$  emittiert. Durch

$$T(x_1, x_2) = \exp \left[ - \int_{x_1}^{x_2} dx \frac{1}{\cos \theta_2} \sum_{k=1}^{N_c} \mu_k(E_R) c_k(x) \right] \quad (5.3)$$

wird die Absorption der Röntgenstrahlung beschrieben, die von der Zusammensetzung der Probe  $c_k$  aus den  $N_c$  Elementen, dem Absorptionsquerschnitt  $\mu_k(E_R)$  der einzelnen Elemente  $k$  für die betrachtete Linienenergie  $E_R$  und dem Winkel der Probennormalen zum Detektor  $\theta_2$  abhängt. Da der Absorptionskoeffizient  $\sum \mu_k c_k$  linear mit der Konzentration variiert, ist das Integral in Gleichung 5.3 bei der als linear angenommenen Konzentrationsvariation innerhalb einer Schicht analytisch lösbar.

Die Intensität der aus Schicht  $n$  stammenden Röntgenstrahlung wird durch alle darüberliegenden Schichten abgeschwächt, weswegen sich die Oberflächenintensität zu

$$Y(R_\zeta, 0) = \left( \prod_{i=1}^{n-1} T(x_i, x_{i+1}) \right) Y(R_\zeta, n) \quad (5.4)$$

ergibt. Die gesamte Signalintensität einer Linie ist die Summe aller Beiträge aus den einzelnen Schichten. Bei der Berechnung der Intensität wurden Effekte durch Sekundärfluoreszenz (Intensitätserhöhung einzelner Linien) nicht berücksichtigt, da bei den hier verwendeten Elementen kein nennenswerter Beitrag zu erwarten ist [REUTER et al. 1975].

## 5.2 Experiment

PIXE wird meist verwendet um Spurenelemente nachzuweisen. Für die Matrix wird in diesem Fall eine konstante Zusammensetzung angenommen. Um zu demonstrieren, daß es nicht nur möglich ist, eine Spurenelementverteilung zu rekonstruieren, was durch das in diesem Fall (nahezu) konstante Bremsvermögen erleichtert wird (und der damit einhergehenden Reduktion der Zahl der Freiheitsgrade), wurden Proben mit stark tiefenabhängiger Zusammensetzung herangezogen. In diesem Fall muß auch der Einfluß der Konzentrationsverteilung auf das Bremsvermögen berücksichtigt werden. Um gleichzeitig eine Verifikation der ermittelten Tiefenprofile zu ermöglichen, wurden Elemente verwendet, die die Aufnahme genau auszuwertender RBS-Spektren erlaubten.

### 5.2.1 Experimentelle Durchführung

Für das Experiment wurden zwei verschiedene Schichtproben hergestellt, die sich in der Schichtabfolge unterschieden. Als Substrat diente in beiden Fällen ein polierter Siliziumwafer. In einer Vakuumapparatur wurde durch Elektronenstrahlverdampfung auf der einen Probe (Probe 1) die Schichtabfolge Cr-Nb aufgebracht, auf der anderen Probe (Probe 2) Nb-Cr. Das Dickenwachstum wurde durch die Frequenzverschiebung eines Schwingquarzes kontrolliert.

Die Proben wurden anschließend mit 2.0 MeV  $^4\text{He}$ -RBS und 1.5 MeV Protonen-RBS untersucht, und mittels des in Kap. 3 beschriebenen Verfahrens die jeweiligen Tiefenprofile ermittelt. Um die effektive Nachweiswahrscheinlichkeit  $\omega_{\text{R}} b_{\zeta}^{\text{R}} \eta(E_{\text{R}}) \Omega$  für die einzelnen Röntgenlinien zu erhalten, wurden auf der Grundlage des durch RBS erhaltenen Profils PIXE-Spektren für die Si-Cr-Nb-Probe (Probe 1) simuliert und mit den gemessenen Daten verglichen. Um beim Vergleich den Einfluß einer möglicherweise ungenauen Messung der auftreffenden Ionenladung auszuschließen, wurden PIXE- und RBS-Spektren simultan aufgenommen und die verwendete Ladungsmenge aus der Höhe der hochenergetischen RBS-Nb-Kante bestimmt. Die PIXE Messungen wurden mit 1.5 MeV Protonen durchgeführt. Aus dem Verhältnis der Linienintensitäten der gemessenen und simulierten PIXE-Spektren ergibt sich bei bekannter

Ladung die effektive Nachweiswahrscheinlichkeit. Gerade für die Silizium-Linien ist sie deutlich niedriger als für die Chromlinien. Neben der geringeren Detektoreffizienz ist dies auch eine Folge der vor dem Si(Li)-Detektor angebrachten 19  $\mu\text{m}$  dicken Abschirmfolie aus Mylar.

Für die Si-Nb-Cr-Probe (Probe 2) wurde anschließend eine 1.5 MeV-PIXE Meßreihe mit einer Variation des Winkels zwischen Probennormalen und Protoneneinfallrichtung durchgeführt, jeweils simultan mit einer RBS-Messung, um die verwendete Ladung ermitteln zu können<sup>2</sup>. Dies ist experimentell einfacher zu realisieren als die ebenfalls mögliche Änderung der Protonenenergie [LIEW et al. 1994, FRONTIER et al. 1986]. Es wurden 10 Messungen mit Winkeln zwischen 0° und 80° aufgenommen. Der Einfluß der Oberflächenrauigkeit auf die Intensitäten ist klein [CAMPBELL et al. 1985] und kann vernachlässigt werden. Die in Abbildung 5.4 abgebildeten Spektren bei 10°,

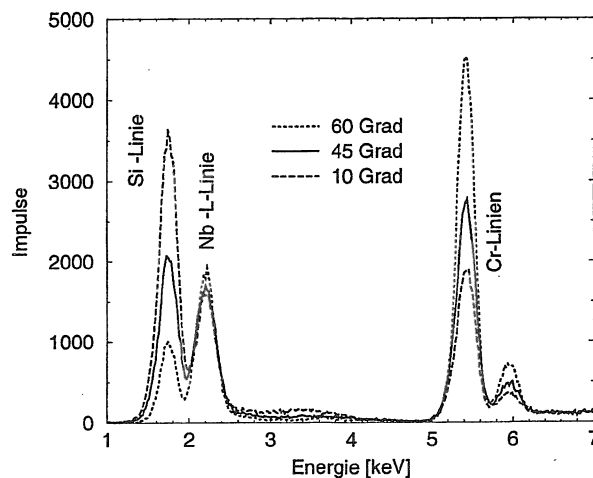


Abbildung 5.4: 1.5 MeV PIXE Messungen von Probe 2, normiert auf gleiche Ladung. Die Variation der einzelnen Linienintensitäten mit dem Drehwinkel verläuft bei Silizium und Chrom entgegengesetzt, während die Intensität der Nioblinie sich nur schwach verändert.

45° und 60° zeigen eine deutliche Abnahme der Silizium-K Linie mit zunehmendem Winkel, da die Protonen durch die längere Wegstrecke bis zum Silizi-

<sup>2</sup>Verwendet wurde ein Si(Li)-Röntgendetektor Modell 3600-0290 von KeveX, gekühlt mit LN<sub>2</sub>, ein KeveX 45611 Puls-Prozessor zur Pulsformung und ein Vorverstärker KeveX Modell 2003.

umsubstrat eine geringere Energie haben und daher der Wirkungsquerschnitt für Röntgenemission geringer ist. Für Chrom kommt es zu einer starken Zunahme in der Linienintensität durch die Vergrößerung des Einfallswinkels  $\theta_1$ . Im Gegensatz dazu verändert sich das Niobsignal nur schwach.

Die einzelnen Linien wurden durch Gaußkurven mit festgelegter Position gefittet und die Gesamtsignalintensität aus den Integralen der ermittelten Gaußkurven bestimmt. Dieses Verfahren erlaubte insbesondere bei den überlappenden Signalen des Siliziums und Niobs eine Trennung der Einzelbeiträge [DELBROUCK-HABARU et al. 1984]. Eine Untergrundkorrektur wurde nicht durchgeführt, da der Verlauf des Untergrunds zwischen 1.6 keV und 2.4 keV nicht bekannt war. Die unterschiedlich hohen Untergrundintensitäten zwischen 2.8 keV und 4 keV weisen auf *pile up* hin, der bei größeren Winkeln auch bei der Chromlinie in Erscheinung tritt.

### 5.2.2 Auswertung

Die Rekonstruktion der Tiefenverteilungen erfolgte aus den unter verschiedenen Einfallswinkeln gemessenen PIXE-Spektren. Die Messungen wurden simultan ausgewertet, wobei sich der gemeinsame Datenvektor aus den  $k$  Einzelmessungen zusammensetzt. Damit erweitert sich die Gleichung 2.32

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^N \left( \frac{d_i - \bar{d}_i}{\sigma_i} \right)^2 \quad (5.5)$$

auf

$$\chi^2 = \sum_{l=1}^k \sum_{i=1}^{N_l} \left( \frac{d_{il} - \bar{d}_{il}}{\sigma_{il}} \right)^2, \quad (5.6)$$

mit der Datenzahl

$$N = \sum_{l=1}^k N_l. \quad (5.7)$$

Gleichung 5.6 ermöglicht die gemeinsame Auswertung von Messungen einer Probe. Da diese auch von verschiedenen Diagnostiken stammen können, können komplementäre Meßmethoden zur Probencharakterisierung kombiniert werden.

Als Priorinformation wurde verwendet, daß ein Siliziumsubstrat vorlag, d.h. die Siliziumkonzentration wurde in einer Tiefe von  $50 \times 10^{18}$  at/cm<sup>2</sup> auf 1

gesetzt. Für alle geringeren Tiefen wurden konstante Konzentrationen für das Modell verwendet.

Die Bestimmung der Intensitäten der einzelnen Linien ist aufgrund des unbekanntes Untergrundes, des *pile ups* und des Überlapps von Silizium- und Niobsignal, sowie der Zählstatistik mit einem Fehler verbunden. Dieser wurde mit 10% abgeschätzt. Ein Fehler dieser Größenordnung ist vergleichbar mit den Unsicherheiten der Ladungsmessung, die sich ohne Normierung auf RBS-Daten in diesem Bereich bewegen.

Auf die Bestimmung der Apparatefunktion konnte durch die alleinige Berücksichtigung der Peakintegrale verzichtet werden. Dies reduzierte überdies den numerischen Aufwand für die Berechnung von  $\chi^2$  beträchtlich, da jedes der zehn Spektren durch sechs Zahlen (jeweils die drei Linienintensitäten mit ihrem Fehler) beschrieben werden konnte.

Die Intensitäten der Röntgenlinien in Abhängigkeit vom Winkel  $\theta_1$  sind in Abbildung 5.5 gezeigt. Im oberen Teil der Abbildung ist das mit größer werdendem Winkel  $\theta_1$  abnehmende Siliziumsignal zu sehen. Da schon bei senkrechtem Einfall der Protonenstrahl komplett im Silizium gestoppt wird, verändert sich bei einer Winkeländerung nur die Einfallenergie der Protonen im Substrat. Gleichzeitig nimmt die Absorptionsweglänge der darüberliegenden Schichten zu. Dies führt zu einer durchgehenden Reduzierung der Signalintensität mit zunehmendem Winkel. Das Chromsignal steigt mit  $\theta_1$ , da die effektive Dicke mit  $1/\cos \theta_1$  zunimmt. Das Sättigen des Meßsignals bei großen Winkeln ist im wesentlichen eine Folge des mit zunehmender Signalintensität an Bedeutung gewinnenden *pile-ups*. Bei der doppelten Energie der Chromlinie ist dann in den PIXE-Spektren ein deutlicher Peak zu erkennen. Beim Niob hält sich die Zunahme der effektiven Schichtdicke mit der Verringerung des Wirkungsquerschnittes durch die sinkende Protonenenergie und der zunehmenden Absorption im darüberliegenden Chrom die Waage. Erst bei großen Winkeln  $\theta_1 \geq 50^\circ$  kommt es zu einem Abfall der Signalintensität.

### 5.3 Ergebnisse

Die Bestimmung von Konzentrationsverläufen der Matrixelemente ist mit PIXE in mehrfacher Hinsicht ein schwieriges Problem. Die zu invertierende

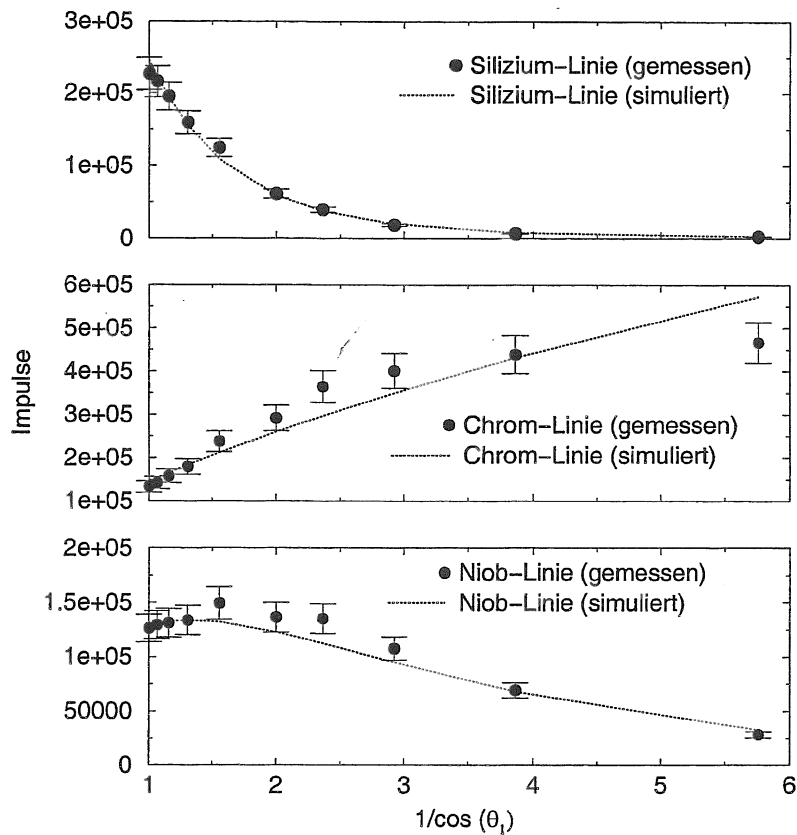


Abbildung 5.5: Intensitäten der einzelnen Röntgenlinien in Abhängigkeit vom Winkel  $\theta_1$  zwischen Probennormale und Einfallrichtung der Protonen (vgl. Text).

Integralgleichung ist schlecht konditioniert und dadurch die Inversion numerisch instabil [PABST 1974], da die Wirkungsquerschnitte nur schwach von der Protonenenergie abhängen. Zusätzlich beeinträchtigt die nur kleine Energieänderung der Protonen mit der Tiefe (geringes Bremsvermögen für Protonen) die Tiefenauflösung. Dies unterscheidet PIXE von EIXE, bei der die Energie sehr viel stärker abfällt, hat aber den Vorteil der großen Reichweite. Darüberhinaus liegen, im Unterschied zu ERDA und RBS, als Meßgröße nur die Intensitäten bei elementspezifischen Röntgenenergien vor.

Das aus RBS-Daten rekonstruierte Tiefenprofil in Abbildung 5.6 zeigt deutlich die Schichtstruktur der untersuchten Probe. An der Oberfläche befindet sich Chrom bis in eine Tiefe von  $3500 \times 10^{15} \text{at/cm}^2$  ( der entsprechende Verlauf ist aus Gründen der Übersichtlichkeit nicht eingezeichnet). In ei-

nem Bereich von  $3500 \times 10^{15} \text{at/cm}^2$  bis etwa  $4700 \times 10^{15} \text{at/cm}^2$  steigt der Niobgehalt rasch von unter 1% (der Nachweisgrenze für RBS) auf 98% an. Die Konzentration von  $800 \times 10^{15} \text{at/cm}^2$  bleibt bei diesem Wert, bevor sie innerhalb einer Schichtdicke von  $1500 \times 10^{15} \text{at/cm}^2$  wieder unter die Nachweisgrenze sinkt und sich das Siliziumsubstrat anschließt.

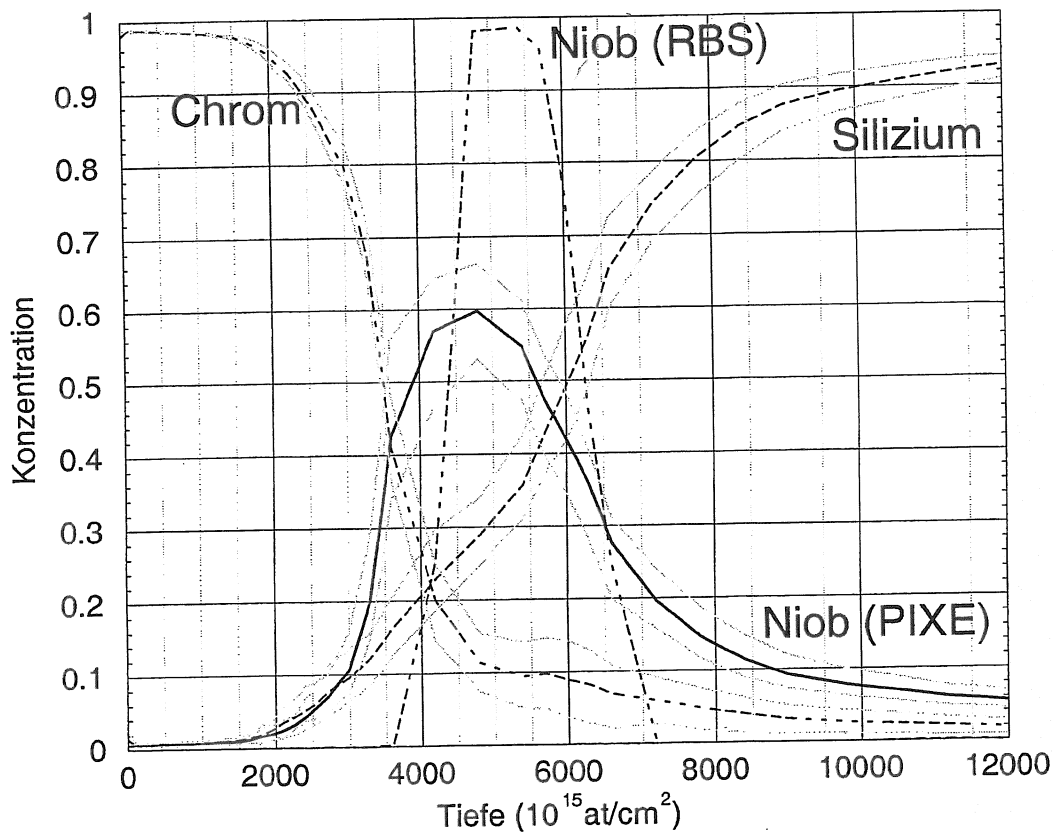


Abbildung 5.6: Aus PIXE Messungen ermitteltes Tiefenprofil im Vergleich mit aus RBS Daten rekonstruiertem Niobprofil.

Die Rekonstruktion des Tiefenprofils aus PIXE-Daten ist in Abbildung 5.6 zusammen mit dem Fehlerband dargestellt. An der Oberfläche beträgt die Konzentration des Chroms über 98%, der restliche Anteil ist Niob. Ab einer Tiefe von  $2000 \times 10^{15} \text{at/cm}^2$  steigen sowohl die Niob- wie auch die Siliziumkonzentration an. Bei  $3000 \times 10^{15} \text{at/cm}^2$  trennen sich die beiden Konzentrationskurven. Die Siliziumkonzentration steigt kontinuierlich weiter an, und erreicht in einer Tiefe von  $10000 \times 10^{15} \text{at/cm}^2$  90% des Substratwertes.



Die Niobkonzentration hat ihr Maximum mit 60% in einer Tiefe von  $4800 \times 10^{15} \text{at/cm}^2$ , stimmt also gut mit der Position des Maximalwertes, der aus den RBS-Daten ermittelt wurde, überein. Der Anstieg der Niobkonzentration unterscheidet sich jedoch in der Position zwischen RBS- und PIXE-Rekonstruktion um 20%. Wie Simulationen mit generierten Daten zeigen, wird die Rekonstruktion durch den durch *pile-up* bedingten Verlauf des Chroms bei größeren Winkeln beeinflusst. Dies führt zu einer Verschiebung der Kantenpositionen. Bei größeren Tiefen ( $x \geq 8000 \times 10^{15} \text{at/cm}^2$ ) ist ein glatter Verlauf der einzelnen Konzentrationskurven zu den Priorwerten (Siliziumkonzentration von 1 in  $50 \times 10^{18} \text{at/cm}^2$  Tiefe) zu erkennen. Aus diesem Bereich sind in den Meßdaten keine signifikanten Informationen enthalten. Bei Berücksichtigung der für PIXE ungünstigen Probeneigenschaften ist die Rekonstruktion gut.

Bei für PIXE-Messungen typischen Verwendungen (Tiefenprofilanalyse von Spurenelementen) spielt die in diesem Testbeispiel durch *pile-up* aufgetretene Beeinträchtigung der Messung keine Rolle, da hier die interessierenden Signalintensitäten um mehrere Größenordnungen niedriger sind. Das starke Matrixsignal kann durch geeignete Filter ausgeblendet (‘funny filter’) [HARRISON und ELDRED 1973] und z.B. mit RBS detektiert werden.

Es war damit erstmals möglich, eine formfreie und adaptive Rekonstruktion eines Tiefenprofils einer Probe durch die Kombination mehrerer PIXE-Messungen mit unterschiedlichem Einfallswinkel durchzuführen. Daher stehen nun die Vorteile der PIXE-Analyse (hohe Empfindlichkeit, hohe Reichweite, gleichzeitiger Nachweis mehrerer Elemente, Zerstörungsfreiheit) zur Verfügung, ohne den bisherigen Hauptnachteil der fehlenden Tiefenauflösung in Kauf nehmen zu müssen.

## Kapitel 6

# Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wird gezeigt, daß mit der Methode der adaptiven Kernel zur formfreien Rekonstruktion von Verteilungen in schlecht konditionierten Inversionsproblemen Tiefenprofile aus Ionenstrahldiagnostiken bestimmt werden können.

Diese Auswertemethode erweist sich als robust gegenüber statistischen Schwankungen der Daten (Zählstatistik).

Im Fall der Ionenstrahldiagnostiken ist die Bestimmung von Tiefenprofilen aus Meßdaten ein schlecht gestelltes, inverses Problem, dessen direkte Inversion durch die Verstärkung des statistischen Fehlers zu sinnlosen Werten führt. Der Fehlereinfluß muß daher berücksichtigt werden. Das Inversionsproblem wird durch das Bayessche Theorem auf Wahrscheinlichkeitsverteilungen zurückgeführt, die berechnet werden können. Durch die Einführung einer Regularisierung über die Maximum-Entropie-Methode in Verbindung mit einer variablen Faltungsmatrix (adaptiver Kernel) wird über eine Korrelation der Parameter die Zahl der Freiheitsgrade reduziert. Eine Anpassung an statistisch nicht signifikante Strukturen wird so verhindert, ohne die in den Daten enthaltenen Informationen zu verlieren.

Für die Anwendung der adaptiven Kernel auf die nichtlinearen Probleme der Ionenstrahldiagnostiken wurden für die wichtigsten Ionenstrahlanalysetechniken (RBS, ERDA, PIXE) Simulationsprogramme entwickelt.

Die Verwendung von linearen Konzentrationsprofilen und die Berücksichtigung der wesentlichen Beiträge zur Energieverbreiterung (z.B. ‚Stragglings‘)

verbessert deutlich die Qualität der Vorwärtsrechnung gegenüber den bisher verwendeten Codes zur Tiefenprofilberechnung (z.B. LORI). Die Berücksichtigung von Mehrfachstößen ermöglicht es, die Gültigkeitsbereiche des Modells im Einzelfall zu bestimmen.

Durch die Anwendung der Bayesschen Wahrscheinlichkeitstheorie auf die einzelnen Ionenstrahldiagnostiken konnten erstmals Tiefenprofile mit Fehlerangaben gewonnen werden, die Aussagen über die Genauigkeit des rekonstruierten Profils und die Qualität der zugrunde liegenden Messungen erlauben.

RBS ist die am häufigsten eingesetzte Ionenstrahldiagnostik zur Oberflächenanalyse, da es mit seiner Fähigkeit der quantitativen und tiefenaufgelösten Analyse für die schwereren Elemente vielseitig verwendbar ist. Allerdings kann es durch die Vermischung der Element- und Tiefeninformation zu komplexen Spektren kommen. Die für die Bestimmung der Erosionsraten in ASDEX Upgrade eingesetzten Divertorsonden zeigten sich stark überlagernde RBS-Signale der verwendeten Kohlenstoffisotope. Die Auswertung mit der erforderlichen Genauigkeit ist erst durch die im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Vorwärtsrechnung möglich geworden.

Die so erhaltenen Tiefenprofile erlauben nun bei bekanntem Fluß die direkte Bestimmung der Erosions- und Redepositionsraten und die Kalibrierung der spektroskopischen Methoden. Die ermittelten Werte für die Flußabhängigkeit der wasserstoffinduzierten Kohlenstofferosion sind in Einklang mit einem, aus spektroskopischen Messungen entwickelten Modell. Die Erosionsrate konnte für einen Deuteriumfluß von  $3 \times 10^{22}$  Deuteriumionen/ $m^2s$  zu 0.009 Kohlenstoffatome/Deuteriumion bestimmt werden. Bei 30eV Wasserstoffionen liegt die Erosionsrate bei einem Fluß von  $1.5 \times 10^{23}$  Wasserstoffionen/ $m^2s$  mit 0.0025 Kohlenstoffatome/Wasserstoffion niedriger. Bei sehr hohen Flüssen ( $\geq 2 \times 10^{23}$  Ionen/ $m^2s$ ) existieren Abweichungen, bei denen noch nicht geklärt ist, ob sie aus Ungenauigkeiten der Flußmessung stammen, oder eine Modifikation des Modells der Flußabhängigkeit erforderlich machen.

Die direkte Messung der Erosionsraten bei verschiedenen Materialien wird nun genutzt, um die Variation der Erosionsrate bei unterschiedlichen Betriebsparametern zu diagnostizieren.

ERDA ist eine der wichtigsten Methoden zur Tiefenprofilbestimmung von

leichten Elementen, für die RBS keine ausreichende Empfindlichkeit hat. Die Höhe des Tritiuminventares ist von zentraler Bedeutung für den Betrieb von geplanten Fusionsexperimenten. Um die Menge an Tritium modellieren zu können, ist die Kenntnis der Reichweiten, der Sättigungskonzentrationen und etwaiger Austauscheffekte der Wasserstoffisotope in den vorgesehenen Wandmaterialien und Materialgemischen notwendig. Die Inversion von ERDA-Messungen ermöglicht eine Tiefenauflösung, die eine Messung dieser schwer zugänglichen Größen erlaubt und somit die nötigen Parameter für eine Modellierung liefert. Bei Messungen des Bremsvermögens von Deuterium in a-C:H-Schichten bei Implantationsenergien von 1 keV...8 keV konnte ein um den Faktor 1.5 gegenüber der Braggschen Regel erhöhter Wert festgestellt werden. Dieser Faktor stimmt gut mit der von dem CAB-Modell vorhergesagten Erhöhung von 1.4 überein. Bei den jetzt durchgeführten Messungen begrenzte die vorhandene Streuwinkelunsicherheit die erreichbare Tiefenauflösung. Einer weiteren Steigerung der Tiefenauflösung durch flachere Einfallswinkel steht der wachsende Einfluß der Oberflächenrauigkeit entgegen. PIXE ist durch die Eigenschaftskombination von Spurenelementempfindlichkeit und großer Analysetiefe ausgezeichnet. Durch die Kombination von Messungen mit unterschiedlichem Einfallswinkel konnte erstmalig ein formfreies und adaptives Tiefenprofil gewonnen werden. Da eine Winkelvariation experimentell sehr einfach durchzuführen (und auch zu automatisieren) ist, sind die Voraussetzungen geschaffen worden, um mit PIXE in bisher nicht erreichter Präzision Spurenelementverteilungen tiefenaufgelöst zu messen. Es wurden an einer Si-Nb-Cr-Probe Messungen mit 1.5 MeV Protonen unter zehn verschiedenen Winkeln durchgeführt und die Spektren simultan ausgewertet. Durch die Schichtstruktur und die damit notwendige Berücksichtigung der Änderungen des Bremsvermögens und der Transmission ist dies ein besonders schwer zu rekonstruierender Fall. Die Position des Maximums konnte korrekt bestimmt werden, wie sich durch den Vergleich mit RBS-Messungen zeigte.

Durch die jetzt mögliche Kombination von Daten aus unterschiedlichen Diagnostiken kann es zu synergistischen Effekten kommen. Beispielsweise kann die gute Tiefenauflösung für Matrixelemente von RBS mit der Spurenelementempfindlichkeit von PIXE vereint werden.

Diese synergistischen Effekte sollten bei der Planung und Durchführung von Ionenstrahlexperimenten berücksichtigt werden, um den erreichbaren Erkenntnisgewinn zu maximieren.

## Anhang A

# Eigenschaften des linearen Modells

Die inhomogene Differentialgleichung (3.32) auf Seite 44

$$\epsilon_i(E, c(x)) = - \left( \frac{dE}{dx} \right)_i = + \sum_{j=1}^{N_c} (a_{ij}x + b_{ij}) (d_{ij}E + f_{ij}) \quad (\text{A.1})$$

kann analytisch gelöst werden. Der Index  $i$  indiziert die Schichtenfolge und ist im folgenden konstant, d.h. es wird die Energie für ein Ion innerhalb der Schicht  $i$  berechnet. Mit den Substitutionen

$$\alpha = \sum_{j=1}^{N_c} a_{ij}d_{ij}, \quad (\text{A.2})$$

$$\beta = \sum_{j=1}^{N_c} a_{ij}f_{ij}, \quad (\text{A.3})$$

$$\gamma = \sum_{j=1}^{N_c} b_{ij}d_{ij} \text{ und} \quad (\text{A.4})$$

$$\delta = \sum_{j=1}^{N_c} b_{ij}f_{ij} \quad (\text{A.5})$$

ergibt sich

$$\epsilon_i(E, c(x)) = - \left( \frac{dE}{dx} \right)_i = \alpha x E + \beta x + \gamma E + \delta. \quad (\text{A.6})$$

Mit der Randbedingung  $E(x=0) = E_0$  und der Definition

$$\operatorname{Erfi}[z] \stackrel{\text{def.}}{=} \frac{1}{i} \operatorname{Erf}[iz] = \frac{2}{i\sqrt{\pi}} \int_0^{iz} dt e^{-t^2} \quad (\text{A.7})$$

ergibt sich für  $E(x)$  folgender Ausdruck:

$$\begin{aligned} E(x) = & E_0 e^{-(\gamma x + \frac{1}{2} \alpha x^2)} + \frac{\beta}{\alpha} \left[ e^{-(\gamma x + \frac{1}{2} \alpha x^2)} - 1 \right] + \\ & + \sqrt{\frac{\pi}{2\alpha^3}} (\beta\gamma - \alpha\delta) e^{-\frac{(\gamma + \alpha x)^2}{2\alpha}} \left( \operatorname{Erfi} \left[ \frac{\gamma + \alpha x}{\sqrt{2\alpha}} \right] - \operatorname{Erfi} \left[ \frac{\gamma}{\sqrt{2\alpha}} \right] \right). \end{aligned} \quad (\text{A.8})$$

Die Anfangsenergie  $E_0$  erscheint linear in Gleichung A.8. Daher wird die Standardabweichung einer Energieverteilung  $\Delta E$  durch das Bremsvermögen der modellierten Schicht modifiziert. Die Standardabweichung nach der Schicht ergibt sich zu:

$$\Delta E' = g \Delta E = e^{-(\gamma x + \frac{1}{2} \alpha x^2)} \Delta E. \quad (\text{A.9})$$

Die in Gleichung A.8 für reelle Argumente der Erfi-Funktion auftretenden Terme der Form

$$\int_0^x dt e^{t^2} \quad (\text{A.10})$$

ergeben zwar sehr große Funktionswerte, können aber mit den gleichzeitig vorhandenen exponentiellen Vorfaktoren zusammen ausgewertet werden. Die kombinierte Funktion

$$F_{\text{Dawson}}(x) = e^{-x^2} \int_0^x dt e^{t^2} \quad (\text{A.11})$$

ist als *Dawsons Integral* bekannt [ABRAMOWITZ und SEGUN 1968] und auch als Funktion in den NAG-Bibliotheken (S15AFF) vorhanden.

Der für rein imaginäre Argumente der Erfi-Funktion entstehende Term der Form

$$G(x) = e^{x^2} \int_x^\infty dt e^{-t^2} \quad (\text{A.12})$$

ist immer kleiner als  $\sqrt{\pi}/2$  und monoton fallend. Er kann effizient durch eine wenige Glieder enthaltende Kettenbruchentwicklung ausgewertet werden [ABRAMOWITZ und SEGUN 1968]:

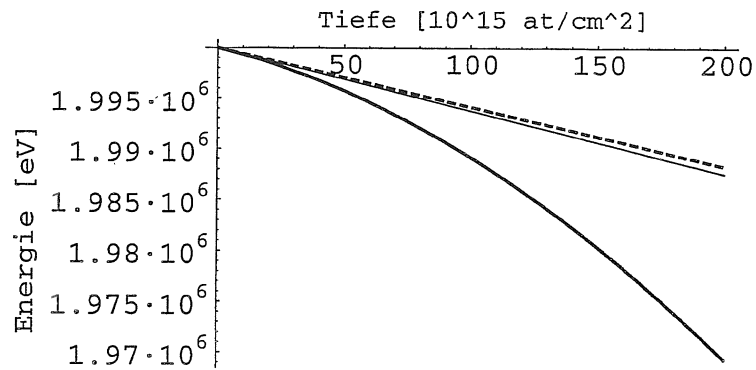
$$2e^{x^2} \int_x^\infty dt e^{-t^2} = \frac{1}{x + \frac{1/2}{x + \frac{1}{x + \frac{3/2}{x + \frac{2}{x + \dots}}}}} \quad (\text{A.13})$$

Die Reihenentwicklung für Gleichung A.8 um  $x = 0$  bis zur zweiten Ordnung ist durch

$$E(x) = E_0 - (\delta + \gamma E_0)x + \frac{1}{2} (\gamma (\delta + \gamma E_0) - (\beta + \alpha E_0)) x^2 + O[x^3] \quad (\text{A.14})$$

gegeben.

Für eine Kohlenstoffschicht mit  $200 \times 10^{15} \text{at/cm}^2$  Dicke (ca. 10 nm), deren Zusammensetzung sich linear von 90% C und 10% W auf 10% C und 90% W ändert (ein typischer Fall für die seit kurzem verwendeten Wolframkacheln innerhalb des Divertors [KRIEGER et al. 1999a] mit einer deponierten Schicht aus Kohlenstoff [ZUHR et al. 2000]), ist in Abbildung A.1 für 2 MeV He-RBS die Energie des Ions gegenüber der Eindringtiefe aufgetragen. Sowohl der ex-



*Abbildung A.1: Energie eines 2 MeV Heliumions beim Eindringen in eine Kohlenstoff-Wolfram-Schicht mit linear variierender Konzentration. Die dünne durchgezogene Linie zeigt den exponentiellen Abfall der Energie unter der Annahme konstanter Konzentrationen innerhalb einer Schicht und konstanter Stopping Power. Die oberhalb verlaufende, gestrichelte Kurve ist nach dem Algorithmus von Doolittle berechnet. Die durchgezogene, dickere Linie zeigt den mit Gleichung A.8 iterativ berechneten Energieverlauf. Die mit der Reihenentwicklung A.14 iterativ berechnete Kurve ist ebenfalls abgebildet, aber in der Abbildung nicht von dem Ergebnis von Gleichung A.8 zu unterscheiden.*

ponentielle Abfall der Energie (dünne Linie) unter Annahme von konstantem Bremsvermögen in der Schicht, als auch das nach dem vielfach verwendeten Algorithmus von Doolittle [DOOLITTLE 1985] [MAYER 1997] bestimmte Polynom 3. Ordnung (gestrichelte Linie) zeigen deutliche Abweichungen vom Verlauf der durch Gleichung A.8 ermittelten Kurve (dicke Linie).



Die Reihenentwicklung bis zur quadratischen Ordnung (Gleichung A.14) ergibt Werte, die innerhalb einer Tiefe von  $200 \times 10^{15} \text{at/cm}^2$  maximal 50eV von den Ergebnissen der Gleichung A.8 abweichen und daher in der graphischen Darstellung nicht von der dicken Linie in Abbildung A.1 zu unterscheiden ist. Wie Abbildung A.1 zeigt, ist gerade bei Materialmischungen von Elementen mit hoher und niedriger Stopping Power der Einfluß des Konzentrationsverlaufs dominierend. Auch eine Simulation mit einer Unterteilung in (kleine) Energieintervalle von 10 keV (wie in [MAYER 1997] vorgeschlagen) kann daher zu großen Abweichungen führen. Im gezeigten Beispiel beträgt die Abweichung bei einer Energiediskretisierung von 10keV schon 20keV(!) von den exakten Werten. Die Skalierung der Rechenzeit mit dem Quadrat der Schichtzahl ermöglicht aber nur begrenzt den Ausweg der feineren Unterteilung. Für geschwindigkeitskritische Anwendungen ist daher Gleichung A.14 dem Algorithmus von Doolittle vorzuziehen.

## Anhang B

# Qualitative Betrachtung der Energieabhängigkeit des Bremsvermögens

Ein qualitatives Verständnis des Verlaufs der Energieverlustkurve kann über folgendes einfaches Modell erhalten werden. Ein Ion wechselwirkt mit einem freien Elektron durch die Coulombkraft

$$F_C = \frac{Z_1 e^2}{4\pi\epsilon_0 (x^2 + b^2)}. \quad (\text{B.1})$$

Dabei ist  $Z_1$  die Ladung des Ions,  $\epsilon_0$  die Dielektrizitätskonstante und  $x$  und  $b$  sind in Abbildung B.1 aufgetragen. Wie das Ergebnis zeigen wird, kann bei großen Ionengeschwindigkeiten der Einfluß des Kerns vernachlässigt werden. Der Impulsübertrag bestimmt sich zu

$$\Delta p = \int_{-\infty}^{\infty} F dt \approx \frac{1}{v} \int_{-\infty}^{\infty} F_{\perp} dx = \frac{e}{v} \int_{-\infty}^{\infty} E_{\perp} dx, \quad (\text{B.2})$$

da sich die Komponente  $F_{\parallel}$  nahezu ausmittelt. Das letzte Integral kann mit Hilfe des Gaußschen Satzes ausgewertet werden

$$\frac{e}{v} \int_{-\infty}^{\infty} E_{\perp} dx = \frac{1}{2\pi b} \int_A E dA = \frac{Q}{2\pi b\epsilon_0} = \frac{Z_1 e}{2\pi b\epsilon_0}. \quad (\text{B.3})$$

Für die übertragene Energie gilt daher

$$\Delta E = \frac{\Delta p^2}{2m_e} = \frac{1}{8\pi^2\epsilon_0^2 m_e} \left( \frac{Z_1 e^2}{vb} \right)^2. \quad (\text{B.4})$$

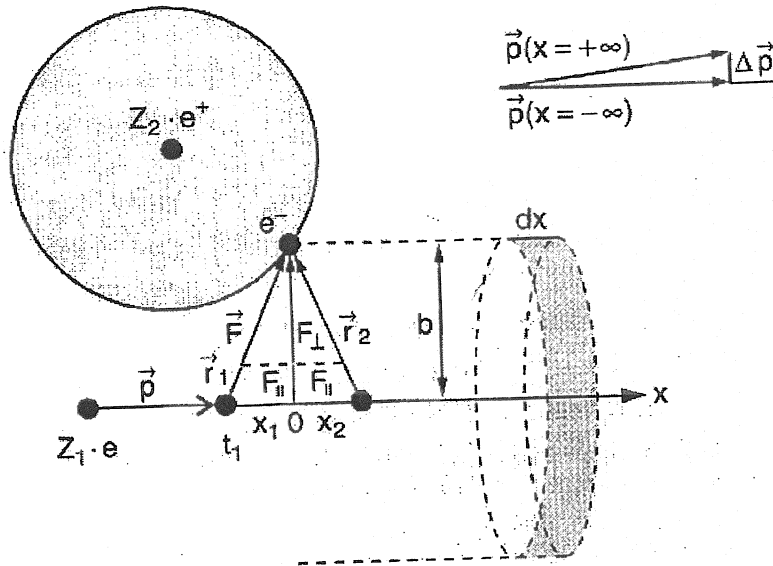


Abbildung B.1: Schematische Darstellung des Einflusses eines schnellen Ions auf ein Elektron. Aus [DEMTROEDER 1998b] entnommen.

Bei einer Elektronendichte von  $N_e$  und der Annahme einer Gleichverteilung der Abstände  $b$  in den Integrationsgrenzen  $b_{\min}$  und  $b_{\max}$  ergibt sich für die Anzahl der wechselwirkenden Elektronen in einem Hohlzylinder mit Länge  $\Delta x$ , einem Radius von  $b$  und einer infinitesimalen Dicke von  $db$  zu

$$n(b) = 2\pi N_e b \Delta x db. \quad (\text{B.5})$$

Integration über den Bereich von  $b$  führt zu

$$dE = - \left( \int_{b_{\min}}^{b_{\max}} \Delta \epsilon(b) 2\pi N_e b \Delta x db \right) dx, \quad (\text{B.6})$$

und ergibt damit für den Energieverlust

$$\frac{dE}{dx} = - \frac{Z_1^2 e^4 N_e}{4\pi \epsilon_0^2 v^2 m_e} \cdot \ln \frac{b_{\max}}{b_{\min}}. \quad (\text{B.7})$$

Der Energieverlust ist also proportional zur Elektronendichte und zum Quadrat der Ionenladung, fällt aber mit steigender Energie des Ions. Darüberhinaus ist der Energieverlust umgekehrt proportional zur Masse. Daher ist die Wechselwirkung mit den Probenkernen deutlich geringer als mit den Elektronen und kann in guter Näherung vernachlässigt werden.

# Literaturverzeichnis

- [ABRAMOWITZ und SEGUN 1968] M. ABRAMOWITZ und I. SEGUN. *Handbook of Mathematical Functions*. Dover, New York (1968).
- [ANDERSEN et al. 1980] H. ANDERSEN, F. BESENBACHER, P. LOFTAGER und W. MOELLER. *Phys. Rev. A*, 21, 1891 (1980).
- [ANNEN et al. 1997] A. ANNEN, R. BECKMANN und W. JACOB. *J. Non-Cryst. Solids*, 209, 240 (1997).
- [ANNEN et al. 1998] A. ANNEN, M. SASS, R. BECKMANN, A. VON KEUDEL und W. JACOB. *Thin Solid Films*, 312, 147 (1998).
- [BAGLIN et al. 1992] J.E.E. BAGLIN, A. KELLOCK, M. CROCKETT und A. SHIH. *Nucl. Instrum. Methods B*, 64, 469 (1992).
- [BAMBYNEK et al. 1972] W. BAMBYNEK, B. CRASEMANN, R. FINK und H. F. ET AL. *Revs. Mod. Phys.*, 44, 716 (1972).
- [BARRADAS et al. 1997] N.P. BARRADAS, C. JEYNES und R. WEBB. *Simulated annealing analysis of Rutherford backscattering data*. *Appl. Phys. Lett.*, 16 (1997).
- [BAY et al. 1977] H.L. BAY, J. ROTH und J. BOHDANSKY. *Light-ion sputtering yields for molybdenum and gold at low energies*. *J. Appl. Phys.*, 48, 4722 (1977).
- [BAYES 1763] T. BAYES. *An essay towards solving a problem in the doctrine of chances*. *Phil. Trans. Roy. Soc.*, 53, 370 (1763).
- [BEHRISCH et al. 1998] R. BEHRISCH, S. GRIGULL, U. KREISSIG und R. GRÖTZSCHEL. *Influence of surface roughness on measuring depth profiles and the total amount of implanted ions by RBS and ERDA*. *Nucl. Instrum. Methods B*, 136-138, 628-632 (1998).
- [BEHRISCH und PROZESKY 1990] R. BEHRISCH und V. PROZESKY. *Nuclear Fusion*, 30, 2166 (1990).

- [BERÉNYI et al. 1978] D. BERÉNYI, G. HOCK, S. RICZ, B. SCHLENK und A. VALEK. *J. Phys. B: At. Molec. Phys.*, 11, 769 (1978).
- [BERGER 1997] E. BERGER. *Anwendung der Wavelet-Transformation in der Plasmaphysik*. Doktorarbeit, Universität Würzburg (1997).
- [BERNOULLI 1713] J. BERNOULLI. *Ars conjectandi*. Thurnisiorum, Basel (1713).
- [BESENBACHER et al. 1980] F. BESENBACHER, J. U. ANDERSEN und E. BONDERUP. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 168, 1 (1980).
- [BETHE 1930] H. A. BETHE. *Ann. Phys.*, 5, 325 (1930).
- [BIRD und WILLIAMS 1989] , Hrsg. J.R. BIRD und J. WILLIAMS. *Ion Beams for Materials Analysis*. Academic Press, Sydney (1989).
- [BLOCH 1933] F. BLOCH. *Ann. Phys.*, 16, 287 (1933).
- [BOHR 1948] N. BOHR. *Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk.*, 18, 8 (1948).
- [BORGESSEN et al. 1983] P. BORGESSEN, B. SCHERZER, R. BEHRISCH, L. SVENDSEN und S. ESHILDSEN. *Computer Program for the Evaluation of Ion-Beam-Spectra*. IPP-Report, 9-42 (1983).
- [BOUTARD et al. 1988] D. BOUTARD, W. MÖLLER und B. SCHERZER. *Influence of H-C bonds on the stopping power of hard and soft carbonized layers*. *Phys. Rev. B*, 38, 2988-2994 (1988).
- [BOZOIAN 1993] M. BOZOIAN. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 82, 602 (1993).
- [BOZOIAN et al. 1990] M. BOZOIAN, K. HUBBARD und M. NASTASI. *Nucl. Instrum. Methods B*, 51, 311 (1990).
- [BRANDT und LAPICKI 1981] W. BRANDT und G. LAPICKI. *Phys. Rev. A*, 23, 1717 (1981).
- [BRETTHORST 1988] G. L. BRETTHORST. *Bayesian Spectrum Analysis and Parameter Estimation*. Springer-Verlag, Berlin (1988).
- [BROMLEY 1979] D.A. BROMLEY. *Detectors in Nuclear Science*. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 162 (1979).
- [BROOKS et al. 1998] J. N. BROOKS, D. ALMAN, G. FEDERICI, D. N. RUZIC und D. G. WHITE. *Erosion/redeposition analysis: status of modeling and code validation for semi-detached edge plasmas*. In: *13th International Conference on Plasma Surface Interactions in Controlled Fusion Devices*. San Diego, California (1998).

- [CAMPBELL und COOKSON 1984] J.L. CAMPBELL und J. COOKSON. Nucl. Instr. Meth. B, 3, 185 (1984).
- [CAMPBELL et al. 1985] J.L. CAMPBELL, R. LAMB, R. LEIGH, B. NICKEL und J. COOKSON. Nucl. Instr. Meth. B, 12, 402 (1985).
- [CAMPBELL und MCGHEE 1986] J.L. CAMPBELL und P. MCGHEE. Nucl. Instr. Meth. A, 248, 393 (1986).
- [CAMPBELL et al. 1987] J.L. CAMPBELL, A. PERUJO und B. MILLMAN. X-ray Spectrom., 16, 195 (1987).
- [CHIU und HAASZ 1991] S. CHIU und A. HAASZ. J. Vac. Sci. Technol. A, 9, 747 (1991).
- [CHU et al. 1978] W. CHU, J. MAYER und M. NICOLET. *Backscattering Spectrometry*. Academic Press, New York (1978).
- [COHEN 1987] D.D. COHEN. Nucl. Instr. Meth. B, 22, 55 (1987).
- [COHEN und HARRIGAN 1986] D.D. COHEN und M. HARRIGAN. *Calculated L-Shell X-Ray Line Intensities for Proton and Helium Impact*. Atomic Data and Nuclear Data Tables, 34(3), 393–414 (1986).
- [COOKSON et al. 1972] J.A. COOKSON, A. FERGUSON und F. PILLING. *Proton microbeams, their production and use*. J. Radioanal. Chem., 12, 39–52 (1972).
- [COX 1946] R. T. COX. *Probability, frequency and reasonable expectation*. Am. J. Phys., 14, 1 (1946).
- [DAVIS et al. 1998] J. DAVIS, V. BARABASH, A. MAKHANKOV, L. PLÖCHEL und K. SLATTERY. *J. Nucl. Mat.*, 308, 258 (1998).
- [DELBROUCK-HABARU et al. 1984] J.M. DELBROUCK-HABARU, G. ROBAYE, G. WEBER, I. ROELANDTS und H. IDELOUALI. *Influence of the Statistical Quality of Data on the Choice of the Method for Separating a Peak Doublet*. Nucl. Instr. Meth. B, 3, 315–318 (1984).
- [DEMTROEDER 1998a] W. DEMTROEDER. *Experimentalphysik*, Bd. 3. Springer Verlag, Berlin (1998a).
- [DEMTROEDER 1998b] W. DEMTROEDER. *Experimentalphysik*, Bd. 4. Springer Verlag, Berlin (1998b).
- [DIEUMEGARD et al. 1979] D. DIEUMEGARD, D. DUBREUIL und G. AMSEL. Nucl. Instr. Meth., 166, 431 (1979).
- [DOOLITTLE 1985] L. R. DOOLITTLE. Nucl. Instr. and Meth. B, 9, 291 (1985).

- [DOSE et al. 1998] V. DOSE, R. FISCHER und W. VON DER LINDEN. *Deconvolution based on Experimentally Determined Apparatus Functions*. In: *Maximum Entropy and Bayesian Methods*, Hrsg. J. RYCHERT, G. ERICKSON und R. SMITH. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht (1998).
- [ECKSTEIN 1991] W. ECKSTEIN. *Computer Simulation of Ion-Solid Interactions*. Springer Verlag, Berlin (1991).
- [ECKSTEIN und DOHMEN 1997] W. ECKSTEIN und R. DOHMEN. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 129, 327 (1997).
- [ECKSTEIN und MAYER 1999] W. ECKSTEIN und M. MAYER. *Rutherford backscattering from layered structures beyond the single scattering model*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 153, 337-344 (1999).
- [ELDRED et al. 1984] R.A. ELDRED, B. KUSKO und T. CAHILL. Nucl. Instr. Meth. B, 3, 579-583 (1984).
- [ENGLAND 1974] J.B.A. ENGLAND. *Techniques in Nuclear Science*. Halstead Press, New York (1974).
- [FEDERICI et al. 1999] G. FEDERICI, R. ANDERL, P. ANDREW, J. BROOKS, R. CAUSEY, J. COAD, D. COWGILL, R. DOERNER, A. HAASZ, G. JANESCHITZ, W. JACOB, G. LONGHURST, R. NYGREN, A. PEACOCK, M. PICK, V. PHILIPPS, J. ROTH, C. SKINNER und W. WAMPLER. *J. of Nuclear Materials*, 266-269, 14-29 (1999).
- [FISCHER et al. 2000] R. FISCHER, K. HANSON, V. DOSE und W. VON DER LINDEN. *Background estimation in experimental spectra*. Phys. Rev. E, 61 (2000).
- [FISCHER et al. 1996a] R. FISCHER, W. VON DER LINDEN und V. DOSE. *Adaptive Kernals and occams's razor in inversion problems*. In: *Maximum Entropy and Bayesian Methods*, Hrsg. S. SIBISI und J. SKILLING. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht (1996a).
- [FISCHER et al. 1996b] R. FISCHER, W. VON DER LINDEN und V. DOSE. *On the Importance of  $\alpha$  Marginalization in Maximum Entropy*. In: *Maximum Entropy and Bayesian Methods*, Hrsg. R. N. SILVER und K. M. HANSON. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht (1996b).
- [FRENCH und SMITH 1997], Hrsg. S. FRENCH und J. Q. SMITH. *The Practice of Bayesian Analysis*. Arnold, London (1997).
- [FRONTIER et al. 1986] J.P. FRONTIER, P. REGNIER, L. BRILLIARD und I. BRISSAUD. Nucl. Instrum. Meth. B, 14, 348-352 (1986).

- [FUKADA et al. 1998] Y. FUKADA, T. HAYAKAWA und E. ICHIHARA. *Evidence for oscillation of atmospheric neutrinos*. <http://xxx.lanl.gov/abs/hep-ex/9807003>, v2, 1–6 (1998).
- [GALLAGHER und CIPOLLA 1974] W.J. GALLAGHER und S. CIPOLLA. *Nucl. Instr. Meth.*, 122, 405 (1974).
- [GEBAUER et al. 1990] B. GEBAUER, D. FINK, P. GOPPELT, M. WILPERT und T. WILPERT. In: *High Energy and Heavy Ion Beams in Materials Analysis*, Hrsg. J.R. TESMER, C. MAGGIORE, M. NASTASI, J. BARBOUR und J. MAYER. Materials Research Society, Pittsburgh, Pennsylvania (1990).
- [GEIGER und MARSDEN 1913] H. GEIGER und E. MARSDEN. *Phil. Mag.*, 25, 606 (1913).
- [GILKS et al. 1996], Hrsg. W. R. GILKS, S. RICHARDSON und D. J. SPIEGELHALTER. *Markov Chain Monte Carlo in Practice*. Chapman and Hall, London (1996).
- [GULL 1989] S.F. GULL. *Developments in Maximum Entropy Data Analysis*. In: *Maximum Entropy and Bayesian Methods*, Hrsg. J. SKILLING, S. 53–71. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht (1989).
- [HARRISON und ELDRED 1973] J.F. HARRISON und R. ELDRED. *Adv. X-ray Anal.*, 17, 560 (1973).
- [HILDEBRANDT 1998] D. HILDEBRANDT. Persönliche Mitteilung (1998).
- [HUBERT et al. 1990] F. HUBERT, R. BIMBOT und H. GAUVIN. *Atomic and Nuclear Data Tables*, 46, 1 (1990).
- [JACOB et al. 1999] W. JACOB, B. LANDKAMMER und C. WU. *Removal of codeposited layers by ECR discharge cleaning*. *J. Nucl. Mater.*, 266-269, 552–556 (1999).
- [JAYNES 1983] E. T. JAYNES. *Prior Probabilities*. In: *Papers on Probability, Statistics and Statistical Physics*, Hrsg. R.D. ROSENKRANTZ, S. 114. Kluwer, Dordrecht (1983).
- [JEFFREYS 1939] H. JEFFREYS. *Theory of Probability*. Clarendon Press, Oxford (1939).
- [JEYNES et al. 1997] C. JEYNES, Z. H. JAFRI, R. P. WEBB, A. C. KIMBER und M. J. ASHWIN. *Surface and Interface Analysis*, 25, 254 (1997).
- [JOHANSSON und CAMPBELL 1988] S.A.E. JOHANSSON und J. CAMPBELL. *PIXE: A Novel Technique for Elemental Analysis*. Wiley, Chichester, New York (1988).



- [JOHNSON et al. 1992] , Hrsg. N. L. JOHNSON, S. KOTZ und A. W. KEMP. *Univariate Discrete Distributions*. John Wiley, New York (1992).
- [KALLENBACH 1999] A. KALLENBACH. *J. of Nucl. Mat.*, 266-269, 343 (1999).
- [KAPUR und KESAVAN 1992] J. N. KAPUR und H. K. KESAVAN. *Entropy Optimization Principles with Applications*. Academic Press, San Diego (1992).
- [KELLOCK und BAGLIN 1993] A.J. KELLOCK und J. BAGLIN. *Nucl. Instrum. Methods B*, 79, 493 (1993).
- [KNOLL 1989] G.F. KNOLL. *Radiation detection and measurement*. John Wiley & Sons, New York (1989).
- [KRIEGER et al. 1999a] K. KRIEGER, H. MAIER, R. NEU und THE ASDEX UPGRADE TEAM. *Conclusions about the use of tungsten in the divertor of ASDEX Upgrade*. *Journal of Nuclear Materials*, 266-269, 207-216 (1999a).
- [KRIEGER et al. 1999b] K. KRIEGER, U. TOUSSAINT und THE ASDEX UPGRADE TEAM. *Direct measurement of carbon erosion rates in the divertor of ASDEX Upgrade*. In: *26<sup>th</sup> EPS Conf. on Contr. Fusion and Plasma Physics* , Hrsg. E. VIETZKE B. SCHWEER, G. VAN OOST, Bd. 23J, S. 1529-1532. European Physical Society (1999b).
- [KULLBACK und LEIBLER 1951] S. KULLBACK und R. A. LEIBLER. *On Information and Sufficiency*. *Ann. Math. Stat.*, 22, 79-86 (1951).
- [KUMAKHOVI und KOMAROV 1989] M.A. KUMAKHOVI und F. KOMAROV. *Energy Loss and Ion Ranges in Solids*. Gordon and Breach Science Publishers, New York (1989).
- [LAPLACE 1812] P. S. LAPLACE. *Théorie analytique des probabilités*. Courcier Imperieur, Paris (1812).
- [LECHNER 1996] P. LECHNER. *Silicon Drift Detectors for high Resolution Room Temperature X-ray Spectroscopy*. *Nucl. Instr. Meth. A*, 377, 346-351 (1996).
- [L'ECUYER et al. 1976] J. L'ECUYER, C. BRASSARD, C. CARDINAL, J. CHABBAL, L. DESCHENES, J. LABRIE, B. TERRAULT, J. MARTEL und R. ST.-JACQUES. *J. Appl. Phys.*, 47, 881 (1976).
- [LEGGE 1984] G.J.F. LEGGE. *Microprobes and their application to PIXE analysis*. *Nucl. Instr. Meth. B*, 3, 561-571 (1984).
- [L'HOIR und SCHMAUS 1984] A. L'HOIR und D. SCHMAUS. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 4, 1 (1984).

- [LIDE 1995] , Hrsg. D.R. LIDE. *CRC Handbook of Chemistry and Physics*. CRC Press, Boca Raton (1995).
- [LIEW et al. 1994] S.C. LIEW, K. LOH und S. TANG. *Nucl. Instr. and Methods B*, 85, 621–626 (1994).
- [VON DER LINDEN et al. 1996] W. LINDEN VON DER, V. DOSE und R. FISCHER. *Spline-based adaptive resolution image reconstruction*. Proceedings of the Maximum Entropy Conference, S. 154 (1996).
- [LINDHARD und SCHARFF 1953] J. LINDHARD und M. SCHARFF. *Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk*, 27, 15 (1953).
- [LINDHARD und SCHARFF 1961] J. LINDHARD und M. SCHARFF. *Phys. Rev.*, 124, 128 (1961).
- [LINDHARD et al. 1963] J. LINDHARD, M. SCHARFF und H. SCHIØTT. *Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk*, 33, 14 (1963).
- [LINDIG 1998] S. LINDIG. *Aufbau eines dE-E-Teleskopdetektors für ERDA und Reichweitenmessung von Wasserstoff in oberflächennahen a-C:H bzw. a-C:D Schichten mit ERD-Ionenstrahlanalyse*. IPP-Report, 9/121 (1998).
- [LOREDO 1990] T. J. LOREDO. In: *Maximum Entropy and Bayesian Methods* , Hrsg. P. F. FOUGÈRE. Kluwer Academic, Dordrecht (1990).
- [LOUIS 1989] A.K. LOUIS. *Inverse und schlecht gestellte Probleme*. Teubner, Stuttgart (1989).
- [MALAKOFF 1999] D. MALAKOFF. *Bayes Offers a 'New' Way to Make Sense of Numbers*. *Science*, 286, 1460–1464 (1999).
- [MAYER und RIMINI 1977] J. W. MAYER und E. RIMINI. *Ion Handbook for Material Analysis*. Academic Press, New York (1977).
- [MAYER 1997] M. MAYER. *SIMNRA user's guide*. Max-Planck-Institut für Plasmaphysik, Technical Report, 9, 113 (1997).
- [MEYER et al. 1977] L. MEYER, M. KLEIN und R. WEDELL. *Phys. Stat. Sol. b*, 83, 451 (1977).
- [MINGAY und BARNARD 1978] D.W. MINGAY und E. BARNARD. *Nucl. Instrum. Meth.*, 157, 537 (1978).
- [MÖLLER et al. 1987] W. MÖLLER, P. BORGESSEN und B. SCHERZER. *Nucl. Instrum. Methods B*, 19/20, 826 (1987).
- [NEUMÜLLER 1981] O. A. NEUMÜLLER. *Römpps Chemie Lexikon*. Francksche Verlagsbuchhandlung, Stuttgart (1981).

- [OEN und ROBINSON 1976] O.S. OEN und M. ROBINSON. *Nucl. Instrum. Methods*, 132, 647 (1976).
- [PABST 1974] W. PABST. *Nucl. Instr. and Methods*, 120, 543 (1974).
- [PAUL und SACHER 1989] H. PAUL und J. SACHER. *Fitted Empirical Reference Cross Sections for K-Shell Ionization by Protons*. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 42(1), 105–156 (1989).
- [PAYNE 1969] M.G. PAYNE. *Phys. Rev.*, 185, 611 (1969).
- [POPP et al. 2000] M. POPP, R. HARTMANN, H. SOLTAU und L. STRÜDER. *Modeling the energy response of pn-CCDs*. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 439, 567 (2000).
- [PUETTER 1995] R.C. PUETTER. *Pixon-Based Multiresolution Image Reconstruction and the Quantification of Picture Information Content*. *Int. J. Image Sys. & Tech.*, 6 (4), 314 (1995).
- [RASCH 1995] D. RASCH. *Mathematische Statistik*. Johann Ambrosius Barth, Heidelberg, Leipzig (1995).
- [REITER et al. 1990] D. REITER, G. WOLF und H. KLEVER. *Nuclear Fusion*, 30, 2141 (1990).
- [REUTER et al. 1975] W. REUTER, A. LURIO, F. CARDONE und J. ZIEGLER. *J. Appl. Phys.*, 46, 3194 (1975).
- [RODRIGUEZ 1989] C. C. RODRIGUEZ. In: *Maximum Entropy and Bayesian Methods*, Hrsg. J. SKILLING, S. 415–422. Kluwer Academic, Dordrecht (1989).
- [ROSENKRANTZ 1983], Hrsg. R. D. ROSENKRANTZ. *E. T. Jaynes: Papers on Probability, Statistics and Statistical Physics*. Kluwer, Dordrecht (1983).
- [ROTH 1999] J. ROTH. *J. of Nucl. Mat.*, 266-269, 51 (1999).
- [RUTHERFORD 1911] E. RUTHERFORD. *Phil. Mag.*, 21, 669 (1911).
- [SACHS 1972] L. SACHS. *Statistische Auswertungsmethoden*. Springer, Berlin (1972).
- [SHANNON 1948] C. E. SHANNON. *A Mathematical Theory of Communication*. *Bell System Tech. J.*, 27, 379, 623 (1948).
- [SIGMUND 1982] P. SIGMUND. *Phys. Rev. A*, 26, 2497 (1982).

- [SIGMUND et al. 1989] P. SIGMUND, M. ROBINSON, M. BASKES, M. HAUTALA, F. CUI und W. ECKSTEIN. *Round Robin Computer Simulation of Ejection Probability in Sputtering*. Nucl. Instr. Mat. B, 36, 110–123 (1989).
- [SIVIA 1996] D. S. SIVIA. *Data Analysis - A Bayesian Tutorial*. Oxford University Press, Oxford (1996).
- [SKILLING 1988] J. SKILLING. *Axioms of Maximum Entropy*. In: *Maximum Entropy and Bayesian Methods*, Hrsg. C. R. SMITH G. J. ERICKSON, S. 173–187. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht (1988).
- [SKILLING 1989] J. SKILLING. *Classic Maximum Entropy*. In: *Maximum Entropy and Bayesian Methods*, Hrsg. J. SKILLING, S. 45. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht (1989).
- [SKILLING 1991] J. SKILLING. *Fundamentals of MaxEnt in data analysis*. In: *Maximum Entropy in Action*, Hrsg. B. BUCK und V. A. MACAULAY, S. 19. Oxford Science, Oxford (1991).
- [SKINNER et al. 1998] C.H. SKINNER, H. KUGEL und D. MUELLER. Proceedings of the 17<sup>th</sup> IEEE/NPSS Symposium on Fusion Engineering, 1, 321 (1998).
- [STAUDENMAIER et al. 1979] G. STAUDENMAIER, J. ROTH, R. BEHRISCH, J. BOHDANSKY, W. ECKSTEIN, P. STAIB, S. MATTESON und S. ERENTS. *Trapping of deuterium implanted in carbon and silicon*. J. of Nucl. Mat., 84, 149–156 (1979).
- [STRAUSS et al. 1993] C.E.M. STRAUSS, D. WOLPERT und D. WOLF. *Alpha, Evidence, and the Entropic Prior*. In: *Maximum Entropy and Bayesian Methods*, Hrsg. A. MOHAMMED-DJAFARI. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht (1993).
- [SWANN 1982] C.P. SWANN. Nucl. Instr. Meth., 197, 237–242 (1982).
- [SZILÁGYI et al. 1995] E. SZILÁGYI, F. PÁSZTI und G. AMSEL. Nucl. Instr. Meth. B, 100, 103 (1995).
- [TESMER und NASTASI 1995], Hrsg. J. TESMER und M. NASTASI. *Handbook of Modern Ion Beam Materials Analysis*. Materials Research Society, Pittsburgh, Pennsylvania (1995).
- [THWAITES 1987] D.I. THWAITES. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 27, 293 (1987).
- [TIKHONOV und ARSENIN 1977] A. N. TIKHONOV und V. Y. ARSENIN. *Solution of ill-posed problems*. Wiley, New York (1977).

- [VON TOUSSAINT et al. 1999] U. TOUSSAINT VON, R. FISCHER, K. KRIEGER und V. DOSE. *Depth Profile Determination with Confidence Intervals from Rutherford Backscattering*. New Journal of Physics, 1, 11.1–11.13 (1999).
- [VON TOUSSAINT et al. 1998] U. TOUSSAINT VON, K. KRIEGER, R. FISCHER und V. DOSE. *Depth Profile Reconstruction from Rutherford Backscattering Data*. In: *Maximum Entropy and Bayesian Methods (1998)*, Hrsg. R. FISCHER und R. PREUSS W.V.D. LINDEN, V. DOSE. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht (1998).
- [TSCHALÄR 1968] C. TSCHALÄR. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 64, 237 (1968).
- [TURKEVICH 1968] A. L. TURKEVICH. *Surveyor Project Final Report*. California Inst. of Technol., Jet Propulsion Lab., Rep. 32-1265, Part II, 303–387 (1968).
- [VAVILOV 1957] P.V. VAVILOV. Soviet Physics J.E.T.P., 5, 749 (1957).
- [WATT und GRIME 1987] , Hrsg. F. WATT und G. GRIME. *Principles and Applications of High-Energy Ion Microbeams*. Hilger, Bristol (1987).
- [WHITLOW 1990] H.J. WHITLOW. In: *High Energy and Heavy Ion Beams in Materials Analysis*, Hrsg. J.R. TESMER, C. MAGGIORE, M. NASTASI, J. BARBOUR und J. MAYER. Materials Research Society, Pittsburgh, Pennsylvania (1990).
- [WIELOPOLSKI und GARDNER 1976] L. WIELOPOLSKI und R. GARDNER. Nucl. Instr. Meth., 133, 303 (1976).
- [WILSON et al. 1977] W.D. WILSON, L. HAGGMARK und J. BIRSACK. Phys. Rev. B, 15, 2458 (1977).
- [YANG et al. 1991] Q. YANG, D. O'CONNOR und Z. WANG. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 61, 149 (1991).
- [ZIEGLER et al. 1985] J. ZIEGLER, J. BIRSACK und U. LITTMARK. *The Stopping and Ranges of Ions in Matter*, Bd. 1. Pergamon Press, New York (1985).
- [ZIEGLER und MANOYAN 1988] J. ZIEGLER und J. MANOYAN. Nucl. Instr. Meth. B, 35, 215 (1988).
- [ZUHR et al. 2000] RAY A. ZUHR, J. ROTH, W. ECKSTEIN und U. VON TOUSSAINT. *Implantation and Retention of W in Carbon*. In: *Proceedings of the 14th International Conference on Plasma Surface Interactions*, Amsterdam. Elsevier Science. (to be published) (2000).