

Entwicklung eines Detektors zur
3 dimensional ortsauflösenden
Wasserstoffanalytik
mittels Proton-Proton-Streuung

Diplomarbeit

von

Patrick Reichart

Physik Department E12
Technische Universität München

Oktober 1999

Zusammenfassung

Mit dem neuen Raster-Ionenmikroskop SNAKE (Supraleitendes Nanoskop für Angewandte Kernphysikalische Experimente) am Münchener 15 MV Tandembeschleuniger wird eine Einrichtung zur Verfügung stehen, mit der 20 MeV Protonen bei einem Strahlstrom von 100 pA auf einen Strahlfleck von 100 nm Durchmesser fokussiert werden können. Dies eröffnet die Möglichkeit eines sensitiven, 3-dimensionalen Nachweises von Wasserstoffverteilungen unter Anwendung der sogenannten Proton-Proton-Streuung. Dabei ermöglicht die koinzidente Detektion der gestreuten Projektilprotonen und der rückgestreuten Wasserstoffkerne in Transmissionsrichtung hinter der Probe einen untergrundfreien Nachweis der Proton-Proton-Streuereignisse.

In dieser Arbeit werden die wesentlichen Merkmale der Proton-Proton-Streuung für die Wasserstoffanalytik diskutiert und die experimentellen Anforderungen für ein sensitives Detektorsystem zur tiefenaufgelösten Wasserstoff-Mikroskopie erarbeitet.

Der große Vorteil der Methode ist die geringst mögliche Strahlenschädigung in der Wasserstoffanalytik mit Ionenstrahlen, aufgrund eines gegenüber reiner Coulombstreuung 500-fach überhöhten Streuquerschnitts bei hohen Protonenenergien. Zusätzlich kann fast der komplette Raumwinkel hinter der Probe für einen Nachweis genutzt werden. Daher wird das Verhältnis des Nachweisquerschnitts zum Schädigungsquerschnitt größer als in irgendeiner vergleichbaren Ionenstrahl-Analysetechnik und eine Wasserstoffanalyse bei Konzentrationen unter 100 ppm oder die Analyse von biologischen Proben jeweils mit sub- μm -Auflösung möglich.

Tiefenprofile von Wasserstoffverteilungen können durch die Analyse der Summenenergie der beiden Protonen gewonnen werden. Durch die hohe Projektilenergie ist zudem eine Untersuchung von Schichtdicken über 200 μm möglich.

In der Arbeit wurde ein Silizium-Streifendetektor mit 48 Streifen und 16 Sektoren aufgebaut, mit dem es möglich ist, einen Raumwinkel von 2.3 sr für die Proton-Proton-Streuung zu nutzen und gleichzeitig eine optimale Tiefenauflösung zu erreichen. Mit einer Winkelauflösung von unter 1° können die geometrischen Effekte so stark begrenzt werden, daß zur hohen lateralen Auflösung

Tiefenaufösungen unter $10\ \mu\text{m}$ erzielt werden.

Die Signalauslese wurde unter Verwendung einer speziell angepaßten Vielkanal-Elektronik mit einer Integration in das Beschleuniger-Datenaufnahmesystem realisiert. In einem ersten Experiment konnte die Funktion des Detektorsystems und die Sensitivität der Methode demonstriert werden.

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	iii
1 Einleitung	1
2 Wasserstoff–Mikroskopie	5
2.1 Konkrete Fragestellungen	5
2.1.1 Wasserstoff in Diamant	5
2.1.2 Wasserstoff als Spurenelement in Mineralen	7
2.2 Methoden zur Wasserstoff–Mikroskopie	8
2.2.1 IR–Absorptionsspektroskopie	9
2.2.2 NMR–Spektroskopie	10
2.2.3 Analysemethoden mit Ionenstrahlen	10
3 Proton–Proton–Streuung	15
3.1 Wasserstoffnachweis	15
3.1.1 Nachweisrate	16
3.1.2 Absolutbestimmung der Konzentration	17
3.2 Strahlenschädigung	17
3.2.1 Ursachen der Schädigung	17
3.2.2 Überhöhung des Kern–Kern–Streuquerschnitts	18
3.2.3 Abschätzung der Schädigung	21
3.3 Kinematik und Koinzidenztechnik	23
3.4 Tiefeninformation über Energieverlustmessung	26
3.5 Optimierung der Detektorgeometrie	29
3.5.1 Geometrische Effekte	30
3.5.2 Abschätzung des Weglängeneffekts	32
3.5.3 Erreichbare Tiefenauflösung	35
4 Detektorsystem	41
4.1 Detektordesign	41

4.1.1	Experimentelle Anforderungen	41
4.1.2	Ringförmiger Silizium–Streifenzähler	43
4.2	Elektronische Signalverarbeitung	46
4.2.1	Prinzip der Signalauslese	47
4.2.2	Multiplex–Auslesesystem	48
4.2.3	Grenzen bei der Signalauslese	53
5	Erste Experimente mit einem Detektor–Prototyp	55
5.1	Aufbau des Testexperiments	55
5.1.1	Detektor–Prototyp	55
5.1.2	Detektormontierung in der Experimentierkammer	57
5.1.3	Signalauslese	57
5.1.4	Testbedingungen	59
5.2	Nachweis der Proton–Proton–Streuung	59
5.2.1	Gesamtenergiespektrum	60
5.2.2	Multiplizitäten	61
5.2.3	Sektorkoinzidenz	63
5.2.4	Winkelkoinzidenz	64
5.2.5	Nachweisgrenze	66
5.3	Test der Tiefenprofilmessung	67
6	Ausblick	71
	Abbildungsverzeichnis	73
	Literaturverzeichnis	74
	Danksagung	79

Kapitel 1

Einleitung

Das Element Wasserstoff ist in vielen Bereichen der Naturwissenschaften von vielfältiger Bedeutung. Es ist wesentlicher Bestandteil von organischen Molekülen und beeinflusst entscheidend die chemischen Eigenschaften von anorganischen Verbindungen, verändert die Oberflächenbeschaffenheit, die Wärme- und elektronische Leitfähigkeit von Festkörpern, mitunter sogar die Festigkeit und den Schmelzpunkt von Mineralen. In der Chemie, Biologie, Medizin und Geologie, sowie in der Halbleiter-, Oberflächenphysik und den Materialwissenschaften sind daher Methoden zur quantitativen Beurteilung von Wasserstoff in Festkörpern gefragt.

Vor allem bei lateralen Auflösungen im Bereich von $1\ \mu\text{m}$ ist der Nachweis von Wasserstoff bisher nicht möglich. Mit dem Projekt SNAKE am Münchener Tandembeschleuniger (Supraleitendes Nanoskop für Angewandte Kernphysikalische Experimente) wird versucht, den Wasserstoffnachweis in kleinen Dimensionen deutlich zu verbessern. Dabei soll ein Protonenstrahl mit 20 MeV Energie auf einen Durchmesser kleiner als $1\ \mu\text{m}$ fokussiert und die zu untersuchende Probe abgerastert werden. Durch den koinzidenten Nachweis hochenergetischer Protonen aus den elastischen Proton-Proton-Streuereignissen wird hier ein quantitativer Wasserstoffnachweis in Dimensionen unter $1\ \mu\text{m}$ möglich.

Das grundlegende Prinzip ist in Abbildung 1.1 dargestellt. Die zu analysierende Probe wird dabei mit Protonen bestrahlt und ein elastisch gestreutes Proton zusammen mit dem rückgestreuten Wasserstoffkern symmetrisch zur Strahlachse unter einem Streuwinkel von 45° mit Hilfe von positionsempfindlichen Teilchendetektoren nachgewiesen. Unter der Bedingung der zeitlichen Koinzidenz in zwei getrennten Detektorhälften ist eine untergrundfreie Bestimmung der Wasserstoffkonzentration möglich [1]. Über die gemessene Teilchenzahl wird auf die ursprüngliche Wasserstoffkonzentration geschlossen.

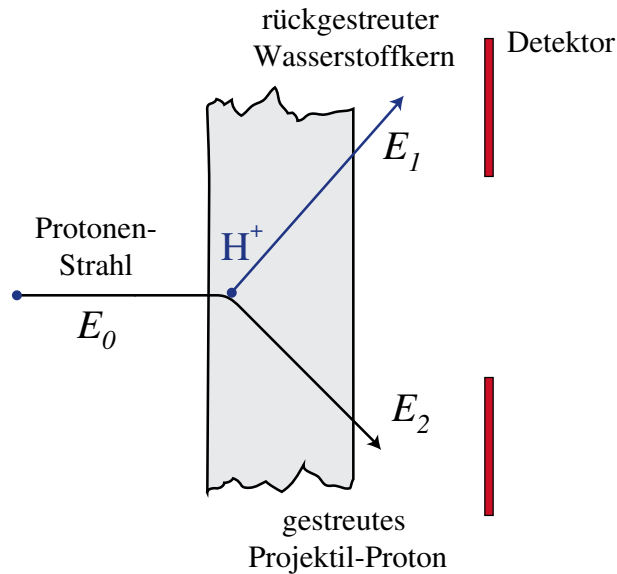


Abbildung 1.1: Prinzip der Proton-Proton-Streuung

Voraussetzung für einen breiten Einsatz der Technik ist eine ausreichend hohe Energie der Protonen. Diese Energien stehen am Münchener Tandembeschleuniger zur Verfügung. Damit ist gewährleistet, daß beide Streuteilchen einige $100\ \mu\text{m}$ dicke Proben durchdringen und somit auch analysiert werden können.

Um laterale Ortsauflösungen im sub- μm -Bereich zu erreichen, werden hohe Anforderungen an den Meßaufbau gestellt. In dieser Arbeit werden die erforderlichen experimentellen Rahmenbedingungen erörtert, um eine Wasserstoff-Mikroskopie mit höchster Sensitivität und bestmöglicher Tiefenaufklärung zu ermöglichen. Mit diesen Ergebnissen wurde ein spezieller Detektor mit einem großen Raumwinkel von $2.3\ \text{sr}$ und einer Winkelaufklärung von etwa 1° aufgebaut und in ersten Experimenten getestet.

In Kapitel 2 werden beispielhaft zwei materialwissenschaftliche Fragestellungen diskutiert, bei denen der Wasserstoffnachweis in kleinen Dimensionen einen entscheidenden Beitrag leisten kann, der jedoch mit bisherigen Analysemethoden nicht zu erreichen ist. Welche Anforderungen an die Wasserstoff-Mikroskopie mittels Proton-Proton-Streuung zu stellen sind, um diese Fragestellungen zu bearbeiten, wird ebenfalls in diesem Kapitel dargestellt.

Kapitel 3 widmet sich der genaueren Beschreibung der Proton-Proton-Streuung und den Möglichkeiten der Energieverlustmessung der gestreuten Protonen zur Erstellung von Tiefenprofilen. Als Ergebnis wird vor allem eine erreichbare Tiefenaufklärung angegeben.

Kapitel 4 enthält eine Beschreibung des neuen, winkelauflösenden Detektors zur Wasserstoffanalyse, dessen Geometrie speziell an die hohen Anforderungen an Sensitivität (Raumwinkel > 1 sr) und Tiefenauflösung (Winkelauflösung $\approx 1^\circ$) angepaßt wurde. Ferner wird in diesem Kapitel kurz das Prinzip der Signalauslese mit einer passenden Vielkanal–Ausleseelektronik vorgestellt.

Anhand eines ersten Experiments mit einem Detektor–Prototyp wird die prinzipielle Funktionsweise des Detektorsystems demonstriert. Die Ergebnisse hierzu sind in Kapitel 5 zusammengefaßt. Abschließend werden in einem Ausblick die noch erforderlichen Schritte zum Ausbau des endgültigen Detektorsystems erörtert und geplante Experimente vorgestellt.

Kapitel 2

Wasserstoff–Mikroskopie

Aufgrund des wachsenden Interesses der Materialwissenschaften an der quantitativen Erfassung des Wasserstoffinhalts von Festkörperstoffen wurde eine Reihe von Techniken für die Wasserstoffanalyse entwickelt. Hier soll zunächst die Vielfalt der Zielsetzungen auf zwei konkrete Fragestellungen reduziert werden, in denen ein orts aufgelöster Nachweis im μm -Bereich erforderlich ist. Eine anschließende Diskussion der vorhandenen Mikroskopiemethoden in diesem Rahmen wird ergeben, daß die Technik der elastischen Proton–Proton–Streuung als einzige Methode den Anforderungen dieser Problematiken gerecht wird.

2.1 Konkrete Fragestellungen

Im folgenden werden zwei Anwendungen aus der Materialanalytik vorgestellt, bei denen vermutet wird, daß Wasserstoff eine entscheidende Rolle in den physikalischen Eigenschaften spielt. Hier ist bislang noch keine Methode zur Wasserstoffanalyse bekannt, die diese Fragestellungen zufriedenstellend beantworten kann.

2.1.1 Wasserstoff in Diamant

Mit seiner einmaligen Kombination extremer Materialeigenschaften wird der Diamant nicht nur als Hartstoff für die Beschichtung von Bohr-, Schneid- und Schleifwerkzeugen eingesetzt, sondern auch für den Einsatz bei Wärmespreizung, für optische Anwendungen bzw. in passiven und aktiven elektronischen Bauelementen diskutiert. Perspektiven liegen vor allem in Hochtemperatur-Anwendungen und im Bereich mit chemisch aggressiver Umgebung. [2, 3]

Mit der Technik der chemischen Gasphasensynthese (Chemical Vapour Deposition, CVD) von Diamant bei niedrigen Drücken (wenige mbar) und mode-

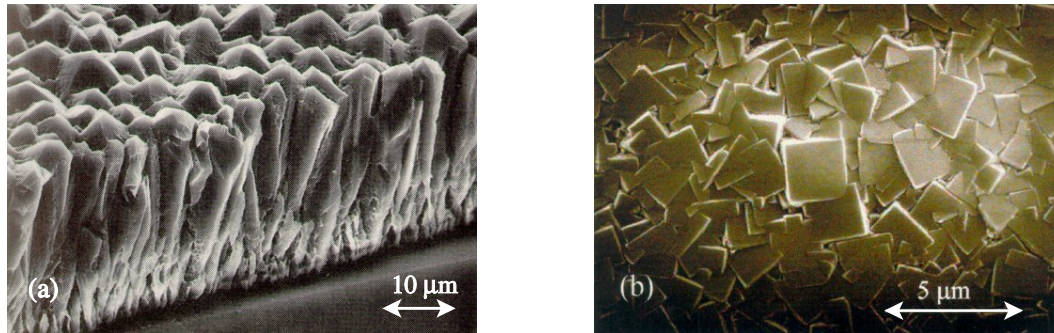


Abbildung 2.1: Raster-Elektronenmikroskopie-Aufnahme eines CVD-Diamanten. (a) Querschnitt einer 30–40 μm dicken CVD-Schicht (aus [7]). Während der Abscheidungsphase ziehen sich aus der Keimbildungsschicht (z. B. ^{13}C) Strukturen mit orientiertem Wachstum von dem Substrat (z. B. Silizium) nach oben. (b) Ansicht von oben auf die Oberfläche einer CVD-Diamantschicht (aus [8]). Es bilden sich orientierte Einkristalle in Bereichen von mehreren μm aus.

raten Temperaturen (700°C – 900°C) [4] ist es heute möglich, großflächig dünne Diamantschichten herzustellen. Dabei wird Diamant aus einem Gemisch von Wasserstoff und geringen Mengen eines Kohlenwasserstoffes (z. B. Methan) als polykristalline Schicht auf Fremdsubstraten wie Silizium abgeschieden.

Für die favorisierte Anwendung von Diamant als passives oder aktives Halbleitermaterial in Detektoren, Hochtemperatur- und Hochleistungsbauelementen werden Diamantschichten höchster Qualität mit einem Minimum an Verunreinigungen bzw. exakten Dotierkonzentrationen benötigt. [2, 5, 6]

Konkret geht es um die Frage, welche Rolle die Wasserstoffatome im Bulkmaterial einer CVD-Diamantschicht für die Leitfähigkeit spielt. Abbildung 2.1 zeigt eine Raster-Elektronenmikroskopie-Aufnahme einer 30–40 μm dicken polykristallinen Schicht, wobei die Kristallite eine Ausdehnung von einigen μm erreichen und, wie die Abbildung zeigt, ein kolumnares Wachstum aufweisen.

Untersuchungen an (100)-Oberflächen von CVD-Diamanten mittels Elastic Recoil Detection (ERD) zeigen, daß an der Oberfläche eine Wasserstoffbelegung von etwa $2 \cdot 10^{15}$ at/cm² existiert [9]. Das würde der Absättigung der freien Bindungen des Kohlenstoffs mit Wasserstoffatomen entsprechen. Für die Bulkkonzentration konnte in diesen Messungen eine atomare Wasserstoffkonzentration von etwa $1 \cdot 10^{19}$ at/cm³ (≈ 100 ppm) im Bulkmaterial nachgewiesen werden.

Bisher ungeklärt, aber von entscheidender Bedeutung für die Leitungsmodelle des Diamants, ist die Frage, ob die Wasserstoffatome im Kristallgitter des Diamants oder an den Korngrenzen zwischen den Einkristallen plaziert sind. Um

eine Wasserstoffakkumulation an den Korngrenzen nachzuweisen, ist eine Analysetechnik erforderlich, die geringe Wasserstoffkonzentrationen um 100 ppm mit einer lateralen Auflösung im sub- μm -Bereich nachweisen kann. Zur Abtrennung des Wasserstoffs an der Oberfläche der polykristallinen Struktur muß zudem eine ausreichende Tiefenauflösung gegeben sein.

Die sensitive Methode der Proton-Proton-Streuung wie sie in Kapitel 1 kurz vorgestellt wurde, bietet mit einem Mikrostrahl im sub- μm -Bereich die Möglichkeit diese Anforderungen zu erfüllen. CVD-Diamanten mit orientierten Kristallstrukturen im μm -Bereich können in Dicken von 50 μm mit noch relativ geringem Aufwand hergestellt werden und enthalten eine ausreichende Wasserstoffkonzentration ($> 1 \cdot 10^{16}$ at/cm² oder 100 ppm) oberhalb der Nachweisgrenze. So sollte für die Oberflächenabtrennung eine Tiefenauflösung im Bereich von 10 μm genügen. Dies wird in Kapitel 3 diskutiert.

2.1.2 Wasserstoff als Spurenelement in Mineralen

Auch für geologische Untersuchungen des oberen Erdmantels ist Wasserstoff von großem Interesse. Aus der chemischen Analyse von Gesteinsproben, die durch sogenannte "Kimberlit-Pipes" aus Tiefen bis etwa 150 km an die Erdoberfläche befördert wurden, kann man zeigen, daß es sich hierbei um nominell, d. h. aufgrund ihrer chemischen Formel, wasserfreie Minerale handelt. Sie enthalten jedoch Wasserstoff bzw. Wasser als Spurenelement. Der Wassergehalt solcher Minerale ist in zweierlei Hinsicht von großem Interesse: Mineralogen interessieren sich hierfür, weil Wasser zahlreiche physikalische und chemische Eigenschaften von Mineralen verändert [10]. So kann z. B. die Schmelztemperatur herabgesetzt, Diffusionsraten verändert oder die mechanische Festigkeit beeinflusst werden. Für das geologische Verständnis des globalen Wasserkreislaufs oder beispielsweise für die Beurteilung von Thesen über die Entstehung der Hydrosphäre ist es wichtig, die Löslichkeit und tatsächliche Konzentration von Wasser bzw. Wasserstoff in den Mineralen des oberen Erdmantels zu kennen. (siehe [11] und darin zitierte Literatur)

Die vorkommenden Wasserkonzentrationen in diesen silikatischen Materialien⁽¹⁾ liegen zwischen wenigen Gew.ppm und einigen hundert Gew.ppm H₂O⁽²⁾.

⁽¹⁾Olivin, Pyroxen, pyropreicher Granat (chemische Zusammensetzung siehe [11] und [12])

⁽²⁾Unabhängig davon, in welcher Form Wasserstoff in Mineralen tatsächlich vorhanden ist, wird von Mineralogen und Geologen die Konzentration in der Regel in Gewichtsanteilen (Gew.ppm) des Wassermoleküls angegeben. Die Einheit *ppm* ohne Zusatz wird im folgenden immer auf die atomare Konzentration bezogen.

Zum Nachweis dieser Wasserstoffkonzentrationen benötigt man eine empfindliche Nachweismethode.

Die von Mineralogen und Geologen bevorzugte Nachweismethode ist die IR-Spektroskopie, da diese bei relativ geringem apparativen Aufwand den Vorteil einer großen Empfindlichkeit hat (< 1 Gew.ppm H_2O) – allerdings nur für gebundene Wasserstoffe. Dies wird in Abschnitt 2.2.1 kurz diskutiert. Für die Eichung dieser Messungen ist eine Referenzanalyse mit der Möglichkeit zur absoluten Bestimmung der Wasserstoffkonzentration notwendig, da der Extinktionskoeffizient⁽³⁾ für diese seltenen Minerale nicht genau bekannt ist.

Problematisch ist hauptsächlich die Probenpräparation, da die Mineralproben frei von Rissen und Einschlüssen sein müssen und Bereiche eines Kristalls, die diese Voraussetzung erfüllen, oft nur wenige Millimeter groß sind. Von Interesse für die Geologen sind auch der Wasserstoffgehalt von Proben, die mit gezielter Zusammensetzung synthetisch hergestellt werden. Doch sind diese Proben in der Regel unter 1 mm groß. Dies erfordert bei der Analyse außerdem eine hohe laterale Auflösung.

Bisher wurden die Referenzmessungen an den Mineralen mit der Materialanalyse mittels Kernreaktionen (siehe folgender Abschnitt) durchgeführt [11], allerdings mit der Einschränkung, daß nur Bereiche wenige μm unter der Oberfläche vermessen werden konnten. Auch hier bietet die Technik der Proton-Proton-Streuung mit einem Mikrostrahl bei Energien über 10 MeV die Perspektive, den Wasserstoffgehalt dieser einige 100 μm dicken, inhomogenen Gesteinsproben tiefenaufgelöst zu messen.

2.2 Methoden zur Wasserstoff-Mikroskopie

Diese beiden vorgestellten Beispiele zeigen, daß es in der interdisziplinären Forschung einen großen Bedarf an Wasserstoffanalysemethoden gibt, mit denen ein 3-dimensional orts aufgelöster Nachweis bei geringen Konzentrationen möglich ist. Im speziellen wird für die o. g. Anwendungen eine Analysemethode gefordert, die den Anforderungen aus Tabelle 2.1 genügt.

Im folgenden sollen die für einen sensitiven Wasserstoffnachweis in Frage kommenden Techniken mit Bezug auf diese Zielsetzungen, insbesondere die Ortsauflösung, diskutiert werden (Wasserstoff-Mikroskopie) und die Grenzen der Methoden – soweit möglich – im Vergleich zu den Möglichkeiten der Proton-Proton-Streuung aufgezeigt werden.

⁽³⁾konzentrationsunabhängiger molarer Absorptionskoeffizient der IR-Strahlung

Wasserstoffnachweis	
Nachweisempfindlichkeit	< 100 ppm
laterale Ortsauflösung	$\approx 1 \mu\text{m}$
Tiefenauflösung	< $10 \mu\text{m}$
analysierbare Schichtdicke	> $100 \mu\text{m}$
Schärfentiefe ⁽⁴⁾	> $100 \mu\text{m}$

Tabelle 2.1: Anforderungen an die Analysemethode

In Industrie und Forschung wurden mehrere Standardtechniken entwickelt, die mit relativ geringem Aufwand für die Wasserstoff-Mikroskopie einzusetzen sind. Darüber hinaus gibt es eine Reihe von speziellen Methoden, die mit Hilfe von fokussierten Ionenstrahlen für die Wasserstoff-Mikroskopie in der Materialforschung und Festkörperphysik geeignet sind.

2.2.1 IR–Absorptionsspektroskopie

Diese Technik beruht auf der Tatsache, daß Moleküle durch Einstrahlung von elektromagnetischen Wellen zu Schwingungen um ihre Gleichgewichtslage angeregt werden. Über Absorptionsmessungen der transmittierten Strahlung im infraroten (IR–) Bereich erhält man damit für jede mögliche Schwingung eine charakteristische Absorptionsbande. Für Wasser beobachtet man z. B. eine Bande im Wellenzahlbereich um 3600 cm^{-1} , die durch die OH–Streckschwingungen hervorgerufen wird. Mit der Anregung der Dipolschwingungen von Wasserstoffverbindungen (C–H, B–H, N–H...) besteht die Möglichkeit, auch die chemische Umgebung der Wasserstoffe zu analysieren. Sie ist außerdem mit einfachen apparativen Mitteln einsetzbar und man kann z. B. für den Wassernachweis in Mineralen eine Sensitivität von wenigen Gew.ppm H_2O erreichen [11]. (Detaillierte Beschreibungen finden sich z. B. in [13] oder [14].)

Die Probleme bei den im vorangegangenen Abschnitt dargestellten Anwendungen liegen zum einen darin, daß bei der Messung der atomare Wasserstoff oder H_2 –Moleküle nicht erfaßt werden, da hier keine Anregung durch Dipolschwingungen möglich ist, zum anderen ist, wie schon erwähnt, die Kenntnis des Extinktionskoeffizienten der IR–Strahlung für die Quantifizierung notwendig und nicht für alle Materialien ausreichend genau bekannt [11]. Die Grenze der

⁽⁴⁾Hier: Maximale Tiefe unter der Oberfläche, bis zu der die Orts- und Tiefenauflösung (Schärfe) noch erreicht werden kann.

lateralen Ortsauflösung ist durch die Wellenlänge der einfallenden IR-Strahlung gegeben. So können keine Auflösungen unter $10\ \mu\text{m}$ erreicht werden und eine Erstellung von Tiefenprofilen ist prinzipbedingt nicht möglich.

Diese Zusammenhänge zeigen, daß die Methode für die Untersuchung der CVD-Diamantschichten nicht und für die geologischen Forschungen nur bedingt geeignet ist.

2.2.2 NMR-Spektroskopie

Die Technik der Magnetischen Kernresonanz-Spektroskopie (Nuclear Magnetic Resonance, NMR) beruht auf der resonanzartigen Zerstörung der Kernpolarisation durch die Einstrahlung eines Hochfrequenz-Feldes. Die Kernpolarisation wird dabei durch ein starkes äußeres Magnetfeld hervorgerufen. Für einen festen Wert des Magnetfeldes ist die Frequenz zur Zerstörung dieser Polarisation für jeden Kern in einer bestimmten chemischen Umgebung charakteristisch und kann durch verschiedene Meßtechniken (CW-Methode oder Puls-Methode) bestimmt werden.⁽⁵⁾

Durch Anlegen von magnetischen Gradientenfeldern in drei Raumrichtungen ist es möglich, eine 3-dimensionale Darstellung der Wasserstoffkonzentrationen zu erhalten [16]. Diese Technik des sogenannten Magnetic Resonance Imaging (MRI) wird insbesondere in der Medizin zur Tomographie eingesetzt. Industrielle Anlagen erreichen in biologischem Gewebe typische Auflösungen unter $100\ \mu\text{m}$ (NMR-Mikroskopie).

Von Spezialisten der NMR-Mikroskopie wird angegeben, daß die apparative Grenze für die Ortsauflösung zur Zeit bei einer Größenordnung von $10\ \mu\text{m}$ liegt [17]. Ob diese Auflösung für die in Abschnitt 2.1 betrachteten Stoffe bei den geringen Wasserstoffkonzentrationen erreicht werden kann, konnte nicht geklärt werden. Prinzipiell ist diese Technik jedoch für die genannten Fragestellungen noch nicht geeignet.

2.2.3 Analysemethoden mit Ionenstrahlen

Keine der bisher diskutierten Techniken kann eine ausreichende laterale Ortsauflösung für die in Abschnitt 2.1 vorgestellten Anwendungen liefern. Hier bietet die Elementanalytik mit Ionenstrahlen eine geeignete Lösung. Der Ionenstrahl, mit dessen Hilfe durch Reaktionen oder Streuungen eine Information über die Elementzusammensetzung in der Probe gewonnen wird, kann durch elektrische

⁽⁵⁾Eine ausführliche Darstellung der Grundlagen findet sich z. B. in [15].

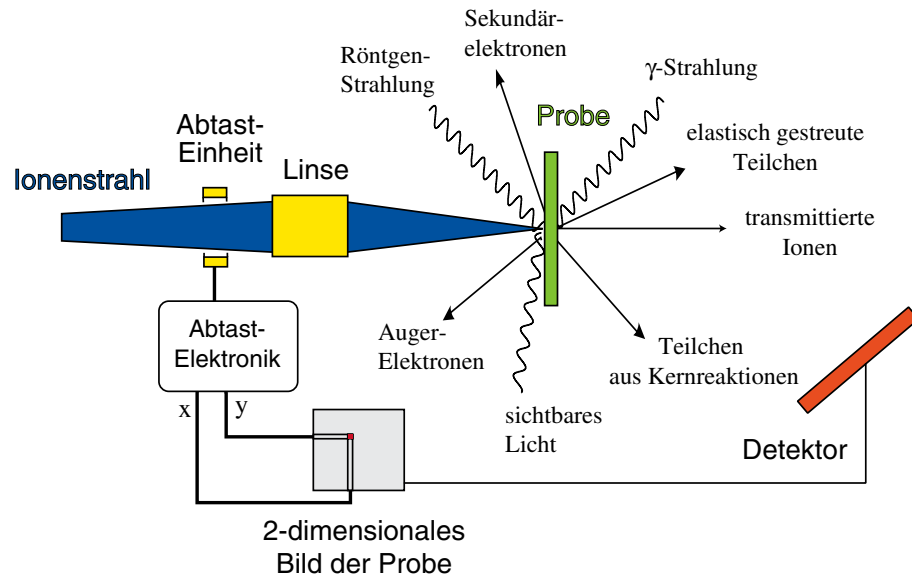


Abbildung 2.2: Prinzipieller Aufbau eines Raster-Ionenmikroskops

und magnetische Felder auf einen Strahlfleckdurchmesser im μm - oder sub- μm -Bereich fokussiert werden [18]. Mit Ablenkeinheiten kann der Strahl über die Probe gerastert werden (Raster-Ionenmikroskopie, RIM) und ein 2-dimensionales Bild der Elementzusammensetzung erstellt werden (siehe Abbildung 2.2). Man kann das weite Gebiet Ionenstrahlanalytik unterteilen in Methoden, bei denen niederenergetische Ionen mit kinetischen Energien im keV-Bereich verwendet werden und solche, wo hochenergetische Ionen aus Teilchenbeschleunigern mit Energien im MeV-Bereich auf die Probe gestrahlt werden. In der ersten Kategorie hat sich besonders eine Technik unter anderem auch für den Wasserstoffnachweis etabliert:

Sekundärionen-Massenspektrometrie (SIMS)

Bei dieser Methode wird die Probe sukzessive durch Ionenzerstäubung („Sputtern“) abgetragen und die gesputterten Ionen massenspezifisch analysiert. Die Dauer der Bestrahlung ist somit ein Maß für die Tiefe, aus der die analysierten Ionen stammen.

Prinzipiell können damit Wasserstoffkonzentrationen unter 100 ppm mit einer Tiefenauflösung besser als 100 nm analysiert werden, wie Untersuchungen an den erwähnten Diamantschichten zeigen [19]. Jedoch können diese Messungen nur eingeschränkt quantitative Ergebnisse liefern, da es durch das Meßprinzip zu einer andauernden Durchmischung der momentanen Probenoberfläche mit den

darunterliegenden Atomlagen kommt. Weitere Einschränkungen ergeben sich durch das Auftreten von sogenannten Matrixeffekten des Probenmaterials, die eine Veränderung der Sputterrate je nach Schichtzusammensetzung zur Folge haben können.

Bei Probendicken von über $10\ \mu\text{m}$ können die Meßzeiten unangenehm lange werden, da bei dem Sputterprozeß jede einzelne Atomlage des Meßbereichs gleichmäßig abgetragen werden muß. Hier haben die Methoden mit hochenergetischen Ionen – insbesondere die in der Einleitung angesprochene elastische Proton-Proton-Streuung – den entscheidenden Vorteil, daß hohe Projektilenergien von einigen MeV im Vergleich zu den niederenergetischen Ionen im keV-Bereich eine Analyse sehr dicker Proben bis über $100\ \mu\text{m}$ erlauben.

Analyse mittels Kernreaktionen (Nuclear Reaction Analysis, NRA)

Die Materialanalyse mittels Kernreaktionen basiert auf einer für den nachzuweisenden Targetkern charakteristischen Kernreaktion, die man mit Hilfe von hochenergetischen Ionen in der Probe resonant auslöst und die dabei entstehenden Reaktionsprodukte nachweist. Für die Wasserstoffanalyse nutzt man die sogenannte ^{15}N -Methode mit der Reaktion $^1\text{H}(^{15}\text{N}, \alpha\gamma)^{12}\text{C}$ mit einer Resonanz bei $E(^{15}\text{N}) = 6.395\ \text{MeV}$ und weist die dabei auftretende γ -Strahlung ($4.43\ \text{MeV}$) nach. Durch Variation der Einschußenergie kann man die scharfe Resonanz ($\Gamma = 1.8\ \text{keV}$) mit Berücksichtigung des Energieverlustes der ^{15}N -Ionen in Strahlrichtung sukzessive in verschiedene Tiefen unter die Oberfläche der Probe verlagern und so ein Tiefenprofil erstellen. [20, 21]

Die Technik ermöglicht die quantitative Analyse von Wasserstoffkonzentrationen unter $10\ \text{ppm}(\text{at})$ [22] bei einer Tiefenauflösung unter $10\ \text{nm}$ in oberflächennahen Schichten, die allerdings aufgrund der Energieverschmierung der ^{15}N -Ionen in höheren Tiefen verschlechtert wird. Die maximal analysierbare Tiefe ist durch die nächsthöhere Resonanz zudem auf einige μm beschränkt, so daß auch diese Methode in der maximal analysierbaren Probendicke begrenzt ist.

Mit der Zerstörung der Probe durch den einfallenden Ionenstrahl ("Strahlenschädigung", siehe Abschnitt 3.2) wird — wie generell bei allen Ionenstrahl-Analysemethoden — der erreichbaren lateralen Auflösung eine Grenze gesetzt, da die Effizienz der Methode nicht ausreicht, um Wasserstoff-Konzentrationen unter $100\ \text{ppm}$ nachzuweisen. Besonders bei der ^{15}N -Methode wird der Probenbereich, in dem die Kernreaktion stattfinden kann, durch die schmale Breite der Resonanz bei lateralen Auflösungen im μm -Bereich so klein, daß das Verhältnis der analy-

sierbaren Kernreaktionen zur Anzahl der durch den Ionenstrahl geschädigten⁽⁶⁾ Wasserstoffkerne bei den geringen Konzentrationen nicht mehr für einen Nachweis ausreicht.

Elastic Recoil Detection Analysis (ERDA) und Proton-Proton-Streuung

Eine weitere, häufig eingesetzte Möglichkeit, Wasserstoff quantitativ mittels hochenergetischer Ionen nachzuweisen, ist die Technik der Elastischen Rückstreuung-Spektroskopie (Elastic Recoil Detection, ERD). Diese Methode basiert auf der Rutherford-Streuung der Ionen am Coulomb-Potential der Kerne in der Probe. Im Gegensatz zur Rutherford-Backscattering-Spectroscopy (RBS), bei der die Identifikation des streuenden Probenatoms indirekt über die Analyse des gestreuten Ions erfolgt, wird bei der ERD das rückgestreute Probenatom direkt nachgewiesen.

Aufgrund der Kinematik ist mit RBS prinzipiell der Wasserstoffnachweis nicht möglich. Bei der ERD dagegen können besonders gut leichte Elemente in einer Matrix von schweren Probenatomen nachgewiesen werden. Die Tiefeninformation erhält man durch die Energiemessung der gestreuten Ionen unter Berücksichtigung des Energieverlustes, den die Ionen auf dem Weg durch die Probe erleiden. Für Wasserstoff erreicht man eine Tiefenauflösung besser als 1 nm an der Oberfläche und eine Nachweisempfindlichkeit von unter 1 ppm [2].

Die bei der ERD-Analyse verwendete Streugeometrie ist für die Wasserstoff-Mikroskopie jedoch ungeeignet, da unter dem flachen Einfallswinkel der Ionen auf die Oberfläche der Probe der Strahlfleck des Mikrostrahls unnötig vergrößert wird. Daneben wird durch den hohen Energieverlust und die Kleinwinkelstreuung der Ionen die analysierbare Tiefe auf einige μm begrenzt, wenn wie üblich schwere Projektilionen verwendet werden. Außerdem wird auch hier die Strahlenschädigung der limitierende Faktor für die Nachweisgrenze, wenn man laterale Auflösungen um sub- μm -Bereich erreichen will.

Hier bietet die Proton-Proton-Streuung mit hochenergetischen Ionen neue Perspektiven, wenn wie in Abbildung 1.1 dargestellt, die elastisch gestreuten Protonen in Transmission, d. h. hinter der Probe, nachgewiesen werden und die Identifikation über eine Koinzidenzmessung beider Protonen erfolgt. Zum einen kann unter Verwendung eines Mikrostrahls — bei einer minimalen Schädigungsrate im Vergleich zu anderen Ionenstrahltechniken — die volle laterale Auflösung

⁽⁶⁾durch Schädigungsprozesse (elastische Stöße oder Ionisationen mit anschließender Diffusion) aus der Probe entfernte Atome

des Strahls genutzt werden. Zum anderen wird bei hohen Ionenenergien durch den geringen Energieverlust der Protonen eine höhere analysierbare Schichtdicke möglich als bei flachem Einfallswinkel mit schweren Ionen. Gegenüber den anderen Methoden mit schwereren oder niederenergetischen Ionen muß allerdings eine Einschränkung in der erreichbaren Tiefenauflösung hingenommen werden.

Mit dem Mikrostrahl SNAKE (Supraleitendes Nanoskop für Angewandte Kernphysikalische Experimente) am Münchener 15 MV Tandembeschleuniger wird in Kürze ein 15–25 MeV Protonenstrahl mit einem Strahldurchmesser im sub- μm -Bereich zur Verfügung stehen [18]. Dies macht erstmals eine Wasserstoff-Mikroskopie mittels Proton-Proton-Streuung bei lateralen Auflösungen unter 1 μm möglich. Die Verwendung der hohen Protonenenergien erlaubt eine analysierbare Schichtdicke von über 100 μm und zudem eine annähernd hohe Schärfentiefe (siehe Fußnote zu Tabelle 2.1), aufgrund der geringen Aufstreuung von Protonen im Vergleich zu schwereren Ionen.

Für die Tiefenauflösung über Energieverlustmessung können zwar nicht die Werte der anderen Ionenstrahl-Analysemethoden erreicht werden, es sind jedoch — wie die Abschätzungen in Abschnitt 3.4 zeigen — noch Tiefenaufösungen unter 10 μm bei Schichtdicken von bis zu 200 μm möglich. Bei geringeren Schichtdicken erwartet man sogar Auflösungen von 1 μm oder weniger [23].

Für die Nachweisgrenze der Proton-Proton-Streuung werden Werte von 1 ppm [1] bzw. einigen pg/cm^2 [23] angegeben. Welche Anforderungen an den Strahlstrom bzw. den Detektor gestellt werden müssen, damit die Methode auch zur Wasserstoff-Mikroskopie mit größter Sensitivität für Konzentrationen unter 100 ppm eingesetzt werden kann, wird im folgenden Kapitel ausführlich diskutiert. Eine entscheidende Rolle spielt dabei die Schädigung der Probe durch den Ionenstrahl, die für alle Hochenergie-Ionenstrahlmethoden der limitierende Faktor für die Nachweisgrenze ist. In Abschnitt 3.2 wird gezeigt, daß diese sogenannte Strahlenschädigung bei der Proton-Proton-Streuung mit hohen Energien im Vergleich zu anderen Methoden auf ein Minimum reduziert werden kann.

Zusammenfassend kann gesagt werden, daß die Proton-Proton-Streuung mit hohen Energien alle Voraussetzungen für einen breiten Einsatz in der Wasserstoff-Mikroskopie erfüllt. Im speziellen besteht damit die Perspektive, die in Abschnitt 2.1 vorgestellten Fragestellungen zu beantworten.

Kapitel 3

Proton–Proton–Streuung

Die grundlegende Idee der Proton–Proton–Streuung wurde bereits in der Einleitung vermittelt. Die Vorteile der Technik liegen zum einen in einer relativ einfach zu realisierenden Koinzidenzmessung mit zwei Detektorhälften, die eine fast untergrundfreie Identifizierung der Proton–Proton–Streuereignisse erlaubt [1]. Zum anderen läßt sich bei einem Streuprozeß aus der Tiefe x über die Messung der Summenenergie beider Protonen ein Wasserstofftiefenprofil erstellen [23], wobei diese Summenenergie bei der elastischen Streuung in erster Ordnung nicht vom Winkel abhängig ist.

Diese Zusammenhänge sollen im folgenden näher daraufhin untersucht werden, welche experimentellen Anforderungen der Einsatz dieser Technik für eine 3-dimensional ortsauflösende Wasserstoff–Mikroskopie am Raster–Ionenmikroskop SNAKE hat.

3.1 Wasserstoffnachweis

Für Raster–Mikroskopieuntersuchungen, wie sie hier betrachtet werden, ist in erster Linie die Dauer einer Messung entscheidend. Für ein komplettes Abbild des zu untersuchenden Bereichs ist eine Meßzeit von 1 h noch akzeptabel. Um einen realistischen Probenbereich von $20 \times 20 \mu\text{m}^2$ mit einer Auflösung von $1 \mu\text{m}$ zu vermessen, müssen bereits 400 Bildpunkte abgetastet werden. Damit bleibt für einen $1 \mu\text{m}^2$ großen Bildpunkt noch etwa 10 s Meßzeit.

Für eine quantitative Messung mit ausreichender Genauigkeit ($< 10\%$) ist innerhalb dieser Zeit der Nachweis von mindestens 100 Proton–Proton–Streuereignissen erforderlich. Dies macht ein effizientes Detektorsystem mit einem großen Raumwinkel bei einem ausreichenden Strahlstrom notwendig.

3.1.1 Nachweisrate

Für die am Raster–Ionenmikroskop SNAKE verwendeten Energien um 15–25 MeV liegt der differentielle Proton–Proton–Streuquerschnitt $(d\sigma/d\Omega)_{\text{pp}}$ im Laborsystem bei Streuwinkeln um 45° bei etwa 100 mb/sr [1, 24]. Dieser Wert liegt etwa um einen Faktor 500 über dem, der aufgrund reiner Coulombstreuung zu erwarten wäre. Erst dadurch wird die Proton–Proton–Streuung überhaupt für einen effizienten Wasserstoffnachweis einsetzbar.

Mit einem vorgegebenen Detektorraumwinkel $\Delta\Omega$ und der Rate der einfallenden Protonen n_i ergibt sich die Nachweisrate der Proton–Proton–Streuereignisse n_{pp} bei einer atomaren Wasserstoffflächenbelegung $\rho_{\text{H}}dx$ (in at/cm²)

$$n_{\text{pp}} = f_{\text{pp}} \cdot n_i \cdot \rho_{\text{H}}dx \cdot \int_{\Delta\Omega} \left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{\text{pp}} d\Omega \quad . \quad (3.1)$$

f_{pp} ist dabei die Nachweiseffizienz des Detektors für Proton–Proton–Ereignisse⁽¹⁾.

Der differentielle Streuquerschnitt im Laborsystem ändert sich in einem Winkelbereich von 200 mrad um 45° weniger als 20 % [24]⁽²⁾ und wird für die Integration in erster Näherung als konstant angenommen. Bei der oben gewünschten Meßzeit und Auflösung mit der Nachweisrate von 10 Hz wird bei einem großen Detektionsraumwinkel von 1 sr etwa ein Strahlstrom I von

$$I = n_i \cdot e \approx 100 \text{ pA} \quad (3.2)$$

benötigt⁽³⁾, falls eine atomare Wasserstoffflächenbelegung von $1 \cdot 10^{17}$ at/cm²⁽⁴⁾ mit obiger Genauigkeit orts aufgelöst nachgewiesen werden soll. Diese Abschätzung zeigt, daß sowohl ein hoher Strahlstrom von mindestens 100 pA als auch eine effiziente Messung mit einem großen Detektionsraumwinkel (> 1 sr) notwendige Voraussetzungen für Wasserstoff–Mikroskopie mittels Proton–Proton–Streuung ist.

⁽¹⁾Verhältnis der gemessenen Zählrate zur tatsächlichen Rate der eintreffenden Streuereignisse

⁽²⁾z. B. bei Protonenenergien $E = 19.80$ MeV

⁽³⁾Elementarladung e

⁽⁴⁾Der Wert entspricht etwa 100 ppm(at) in einer 100 μm dicken Kohlenstoffschicht.

3.1.2 Absolutbestimmung der Konzentration

Die Gesamtzählrate der gestreuten Protonen ist analog zu Gleichung (3.1) mit dem gesamten Streuquerschnitt $(d\sigma/d\Omega)_{\text{tot}}$ gegeben durch

$$n_{\text{tot}} = f_{\text{tot}} \cdot n_i \cdot \rho_0 dx \cdot \int_{\Delta\Omega} \left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{\text{tot}} d\Omega \quad . \quad (3.3)$$

f_{tot} ist dabei die Nachweiseffizienz des Detektors für Protonen und ρ die Atomdichte der Probe bei einer Dicke dx .

Die Wasserstoffkonzentration ergibt sich so aus

$$c_{\text{H}} = \frac{\rho_{\text{H}}}{\rho_0} = \frac{f_{\text{pp}} \cdot n_{\text{tot}} \cdot \sigma_{\text{pp}}}{f_{\text{tot}} \cdot n_{\text{pp}} \cdot \sigma_{\text{tot}}} \quad , \quad (3.4)$$

wenn die Nachweiseffizienzen und die Streuquerschnitte hinreichend genau bekannt sind. Überdies kann mit Gleichung (3.3) die Konzentration absolut bestimmt werden, wenn die Rate der einfallenden Teilchen gemessen wird. Die Streuquerschnitte und Nachweiseffizienzen können über Messungen an Referenzproben mit bekannter Dichte ρdx aus Gleichung (3.1) bzw. (3.3) bestimmt werden bzw. für die Streuquerschnitte sind teilweise tabellierte Werte in der Literatur zu finden (siehe z. B. [25, 26, 24]).

3.2 Strahlenschädigung

Durch den Beschuß mit Ionenstrahlen werden Atome aus der Probe entfernt bzw. die Elementverteilung in der Probe verändert. Dieser Eingriff der Messung in den Originalzustand steht bei allen Ionenstrahlanalysemethoden in Konkurrenz mit dem Prozeß der Messung selbst. Diese „Strahlenschädigung“ limitiert maßgeblich die Nachweisgrenze (Sensitivität) der Methode.

Bei dem Nachweis von Wasserstoff mittels Ionenstrahlen ist – wie gezeigt wird – diese Schädigung besonders kritisch zu bewerten und muß hier ausführlicher behandelt werden.

3.2.1 Ursachen der Schädigung

Für die Schädigung einer Probe sind im wesentlichen zwei primäre Wechselwirkungsprozesse der Ionen verantwortlich. Beide führen aufgrund der übertragenen Energie zu einem Energieverlust der Ionen. Ersteren nennt man den nuklearen Energieverlust $(dE/dx)_{\text{nucl}}$, letzteren den elektronischen Energieverlust $(dE/dx)_{\text{el}}$.

- Elastische Stöße der Ionen mit den Probenatomen führen zu einer **Versetzung** der Atome, falls die übertragene Energie größer als die Bindungsenergie ist. Wird genügend Energie übertragen, so kann das gestoßene Atom weitere Atome versetzen (nukleare Stoßkaskaden)⁽⁵⁾.

Eine Versetzung kann langreichweitig (makroskopisch) oder kurzreichweitig (wenige Atomlagen) sein, führt aber in vielen Fällen, speziell aber bei Wasserstoff in Kombination mit einer anschließenden Diffusion dazu, daß das Atom aus dem Volumen der Messung entfernt wird und damit für diese verloren ist.

- Die Wechselwirkung der Ionen mit den Atomelektronen kann zu **Ionisationen** und damit zum Aufbrechen der Bindungen der Probenatome führen, was wiederum in Verbindung mit einer anschließenden Diffusion einen Verlust des Atoms für die Messung bedeutet.

Wasserstoff ist wegen seines einen Bindungselektrons für diesen Effekt besonders anfällig, da der Bruch dieser einzigen Bindung zu einer Erhöhung der ohnehin schon hohen Beweglichkeit und zur Diffusion an die Oberfläche führen kann.

3.2.2 Überhöhung des Kern-Kern-Streuquerschnitts

Die Schädigung muß bei der Ionenstrahlanalytik in Bezug auf die Meßausbeute betrachtet werden. Eine mögliche Definition der Schädigung ist

$$\text{Schädigung} = \frac{n_D}{n_{pp}} = \frac{\text{Anzahl Ionisationen} + \text{Anzahl Versetzungen}}{\text{nachgewiesene Ionen}}. \quad (3.5)$$

Im optimalen Fall, daß alle herausgeschlagenen und diffundierten Probenatome in einem Detektor nachgewiesen werden, wäre diese Zahl gleich eins. Für den realen Fall wird sie jedoch abhängig von der Analysemethode und untersuchtem Material viele Größenordnungen darüber liegen. Diese Definition gibt dabei ein oberes Maß für die tatsächliche Schädigung an, da nicht jede Ionisation oder Versetzung zu einem Entfernen des Probenkerns aus dem zu messenden Probenvolumen führt.

Ionisationen und Versetzungen werden beide hauptsächlich durch Rutherford-Streuprozesse der Ionen am Coulombpotential der Elektronen bzw. der Probenatome verursacht, falls der Energieübertrag T des einfallenden Ions über einem

⁽⁵⁾Diese Prozesse können mit dem Monte-Carlo-Simulationsprogramm TRIM [27] quantitativ abgeschätzt werden.

minimalen Wert $T_{min}^{(6)}$ liegt, der notwendig ist, um das Probenatom zu ionisieren oder von seinem Platz zu schlagen. Ist der Energieübertrag groß genug, so können weitere sekundäre Ionisationen und Versetzungen stattfinden.

Die Wahrscheinlichkeit für diese Prozesse berechnet man durch Integration über den jeweiligen Streuquerschnitt $d\sigma/dT$ von dem minimalen Energieübertrag T_{min} bis zu einem maximalen Energieübertrag T_{max} , der durch die Kinematik der Streuung vorgegeben ist.⁽⁷⁾ Die Anzahl n_D der versetzten bzw. ionisierten Atome erhält man so aus der Beziehung

$$n_D = n_i \cdot \rho dx \cdot \int_{T_{min}}^{T_{max}} \frac{d\sigma}{dT} dT \quad , \quad (3.6)$$

mit der Rate n_i der einfallenden Protonen und der atomaren Flächendichte ρdx der Elektronen (bei Ionisation) bzw. der jeweils betrachteten Probenkerne (bei Versetzung).

Der Rutherford'sche-Streuquerschnitt $(d\sigma/dT)_{Ruth}$ in Abhängigkeit vom Energieübertrag T läßt sich allgemein schreiben als

$$\left(\frac{d\sigma}{dT} \right)_{Ruth} = \pi \cdot \left(\frac{Z_1 Z_2 e^2}{4\pi\epsilon_0} \right)^2 \cdot \frac{m_1}{m_2} \cdot \frac{1}{E_1 \cdot T^2} \quad . \quad (3.7)$$

Dabei sind Z_1 , Z_2 , m_1 und m_2 jeweils die Kernladungszahlen und die Massen der beiden Streuteilchen, E_1 die kinetische Energie des Projektils im Laborsystem und $e^2/4\pi\epsilon_0 = 1.44 \text{ MeV} \cdot \text{fm}$.

Für die Proton-Proton-Streuung bei 20 MeV sind die Streuquerschnitte in Abbildung 3.1 dargestellt. Die Kurve oben links zeigt den Streuquerschnitt für die Streuung der Protonen an Elektronen (Schädigung durch Ionisation). Er liegt etwa 3 Größenordnungen über dem Streuquerschnitt für Coulomb-Streuung an Protonen und ist im äußersten linken Bereich bis zu einem maximalen Energieübertrag von etwa 80 keV (freie Elektronen) relevant. Für die Streuung der Protonen an Wasserstoffkernen muß zusätzlich berücksichtigt werden, daß es sich um Streuung identischer Teilchen handelt. Für diese sogenannte Mott-Streuung ergibt sich ein modifizierter Rutherford-Streuquerschnitt (durchgezogene Kurve in Abbildung 3.1).

Bei kleinen Energieüberträgen, die für die Teilchenidentifikation nicht nutzbar sind, liegen die Streuquerschnitte um Größenordnungen über denen bei großen

⁽⁶⁾ $T_{min} \approx 5 \text{ eV}$ für C-H-Matrizen [28]

⁽⁷⁾Für nukleare Stoßkaskaden kann die Strahlenschädigung mit dem Monte-Carlo-Simulationsprogramm TRIM beschrieben werden [27].

Energieüberträgen (schraffierter Bereich in Abbildung 3.1), somit entsteht die Strahlenschädigung im wesentlichen bei diesen kleinen Energieüberträgen.

Im schraffierten Bereich in Abbildung 3.1, der für eine koinzidente Detektion der Protonen genutzt werden kann, trägt der Streuquerschnitt auch zur Nachweisrate n_{pp} bei. Speziell bei der Proton-Proton-Streuung mit 20 MeV Protonen ist der Streuquerschnitt in diesem Bereich um einen Faktor 500 im Vergleich zum Mott-Streuquerschnitt erhöht, da hier zusätzlich Kern-Kern-Streuquerschnitte beitragen. Dies ist in Abbildung 3.1 zur Verdeutlichung in logarithmischem Maßstab skizziert (gestrichelte Linie).

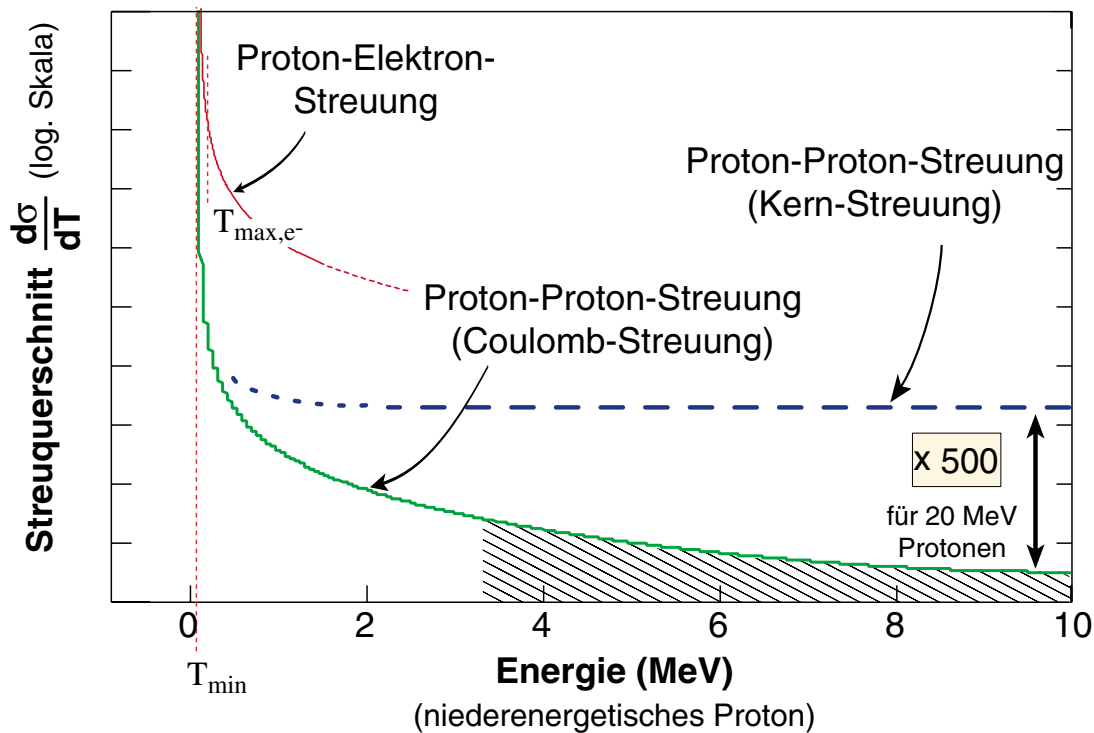


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung der Streuquerschnitte zur Illustration der Strahlenschädigung. Aufgetragen ist jeweils logarithmisch der differentielle Streuquerschnitt in Abhängigkeit des Energieübertrags für Streuung der Protonen an Elektronen (Kurve oben links) bzw. in Abhängigkeit der Energie des niederenergetischen Protons für Mott-Streuung identischer Teilchen (durchgezogene Kurve). Der linke Bereich trägt zur Schädigung der Probe bei. Der schraffierte Bereich kann zur Proton-Detektion genutzt werden. Hier ist für 20 MeV Protonen der Streuquerschnitt um einen Faktor 500 über dem Mott-Streuquerschnitt überhöht (gestrichelte Linie). Damit wird das Verhältnis "Schädigungsereignisse zu Nachweisereignisse" im Vergleich zu anderen Ionen minimal.

Das Verhältnis der Anzahl der Schädigungen n_D zur Anzahl n_{pp} der nachgewiesenen Proton–Proton–Streuereignisse (siehe Gleichung (3.1)) wird im Vergleich zu anderen Projektilionen minimal: Der Faktor 500 der Überhöhung kann wegen der niedrigen Ladung der Protonen nur für diese erreicht werden. Mit schweren Projektilionen ist eine Reduzierung des Verhältnisses von Versetzungen zu nachgewiesenen Wasserstoffatomen deutlich weniger ausgeprägt.

Für Protonen ergibt sich, daß die Proton–Proton–Streuung die Ionenstrahlmethode mit der geringstmöglichen Schädigung ist. Für eine höchste Sensitivität ist zudem generell auch die Maximierung des Detektionsraumwinkels von oberster Priorität, wie aus Gleichung 3.1 und aus Abbildung 3.1 ersichtlich ist.

Wie die folgende Abschätzung zeigt, kann auf diese Weise die Zerstörung der Probe durch den Ionenstrahl so reduziert werden, daß man selbst unter Verwendung eines stark fokussierten Mikrostrahls noch genügend Meßereignisse für eine ausreichende Statistik von mindestens 100 Koinzidenz–Ereignissen erhält, bevor die Probe zerstört ist.

3.2.3 Abschätzung der Schädigung

Mit Gleichung (3.6) und (3.1) läßt sich die Schädigung n_D/n_{pp} über die Integration der Streuquerschnitte abschätzen. Der Schädigungsquerschnitt σ_D läßt sich in grober Näherung schreiben als

$$\sigma_D \approx \int_{T_{min}}^{T_{max}} \left(\frac{d\sigma}{dT} \right)_{Ruth} dT = \pi \left(\frac{Z_1 Z_2 e^2}{4\pi\epsilon_0} \right)^2 \frac{m_1}{m_2} \frac{1}{E_1} \cdot \left(\frac{1}{T_{min}} - \frac{1}{T_{max}} \right) \quad , \quad (3.8)$$

mit dem Rutherford-Streuquerschnitt aus Gleichung (3.7). Sekundäreffekte ergeben einen zusätzlichen Anteil (siehe z. B. [29]), der den Querschnitt nochmal um eine Größenordnung erhöht, bei dieser Abschätzung jedoch zunächst unberücksichtigt bleiben soll. Der minimale Energieübertrag T_{min} ist abhängig von der betrachteten Probenzusammensetzung und liegt im Bereich einiger eV. Der maximale Energieübertrag T_{max} ist gegeben durch

$$T_{max} = \frac{4m_1 m_2}{(m_1 + m_2)^2} \cdot E_1 \quad , \quad (3.9)$$

und liegt bei den betrachteten Protonenenergien von 20 MeV viele Größenordnungen über T_{min} , so daß der zweite Summand in Gleichung (3.8) vernachlässigt werden kann.

Man erhält damit einen Schädigungsquerschnitt für Ionisationen von etwa 10^{10} mb und für die Versetzungen der Wasserstoffe bzw. Kohlenstoffe rund 10^7 mb. Mit

$$\frac{n_D}{n_{pp}} \approx \frac{\rho dx \cdot \sigma_D}{\rho_H dx \cdot \sigma_{pp} \cdot \Delta\Omega} \quad (3.10)$$

kann für einen Detektorraumwinkel von 2 sr bei $\sigma_{pp} \approx 100$ mb/sr die Schädigung durch Ionisation oder Versetzungen abgeschätzt werden. Mit einer Wasserstoffkonzentration von 100 ppm(at) in Kohlenstoff ergibt sich z. B. :

$$\left(\frac{n_D}{n_{pp}} \right)_{\text{Ionisation}} \approx 10^{11} \quad \text{und} \quad \left(\frac{n_D}{n_{pp}} \right)_{\text{Versetzung}} \approx 10^8 \quad . \quad (3.11)$$

Für eine Diamantprobe, in der die Diffusion von Wasserstoff vernachlässigbar ist, kann die Schädigung durch Ionisation unberücksichtigt bleiben. Zusätzlich kann angenommen werden, daß höchstens jede zehnte Versetzung makroskopisch ist. Damit erhält man eine tatsächliche Schädigung von 10^6 – 10^7 . Bei der Analyse einer atomaren Wasserstoffbelegung von

$$\rho_H dx \approx 10^9 \frac{\text{at}}{\mu\text{m}^2} \quad (200 \text{ ng/cm}^2)$$

mit einem $1 \mu\text{m}^2$ -Mikrostrahl können so noch 10–100 Ereignisse nachgewiesen werden, bevor aller Wasserstoff in dem bestrahlten Volumen entfernt ist. Somit sind noch laterale Konzentrationsschwankungen von ca. 10 % mit einem $1 \mu\text{m}$ großen Protonenstrahl (20 MeV) bei einer Konzentration von 100 ppm(at) Wasserstoff nachzuweisen.

Polymere oder ähnliche C–H-haltige Materialien sind allerdings deutlich empfindlicher für Schädigung durch Ionisation. Hier muß angenommen werden, daß etwa der zehnte Bruchteil der ionisierten Wasserstoffatome keinen Bindungspartner mehr findet, bevor er aus dem bestrahlten Mikrometer-Bereich diffundiert. Bei einem Wasserstoffgehalt von ca. 50 %(at) liegt die notwendige Flächenbelegung, mit der eine Konzentrationsänderung um 5 %(at) noch nachweisbar ist (100 Ereignisse), ebenso bei etwa

$$\rho_H dx \approx 10^9 \frac{\text{at}}{\mu\text{m}^2} \quad .$$

Mit der Technik der Proton-Proton-Streuung ist also durch die große Überhöhung des Streuquerschnitts bei hohen Energien oberhalb der Coulombschwelle eine sensitive Wasserstoff-Mikroskopie möglich. Wie diskutiert wurde, ist ein Strahlstrom von mindesten 100 pA dazu ebenso unerlässlich, wie ein großer Detektorraumwinkel über 1 sr. Für die Nachweisgrenze ist jedoch auch die Reduzierung

des Untergrundes durch zufällige Koinzidenzen von entscheidender Bedeutung. Welche Möglichkeiten die Methode dafür bietet, wird im folgenden Abschnitt demonstriert.

3.3 Kinematik und Koinzidenztechnik

Für die elastische Streuung gleichschwerer Teilchen berechnet man die Energie E_1 des gestreuten Protons aus Energie- und Impulserhaltung in nichtrelativistischer Näherung zu:

$$E_1(\theta) = \cos^2 \theta \cdot E_0 \quad (3.12)$$

mit dem Streuwinkel θ und der Energie E_0 des einfallenden Protons. $\theta_{max} = 90^\circ$ ist dabei der maximal mögliche Streuwinkel im Laborsystem. Für den elastisch rückgestreuten Wasserstoffkern erhält man entsprechend mit $E_1(\theta) + E_2(\phi) = E_0$

$$E_2(\phi) = \cos^2 \phi \cdot E_0 = \sin^2 \theta \cdot E_0$$

Die beiden Streuwinkel θ und ϕ im Laborsystem ergeben somit zusammen einen Winkel von 90° , also

$$\theta + \phi = \frac{\pi}{2} \quad (3.13)$$

Mott–Streuung

Da das Projektil und das Rückstoßion bei der Proton-Proton-Streuung identische Teilchen sind, können das Projektil und der Targetkern nach der Streuung nicht mehr unterschieden werden. Wie schon erwähnt, wird diese Art der Streuung als "Mott–Streuung" bezeichnet. Aufgrund der Ununterscheidbarkeit der Streuteilchen ergeben sich interessante quantenmechanische Interferenzeffekte⁽⁸⁾. Eine Modulation des Streuquerschnitts bei Variation des Streuwinkels ist jedoch bei der Mott–Streuung von Protonen kaum zu beobachten, da die Modulationslänge im Bereich von 100° liegt.

Koinzidenztechnik

Für Kohlenstoff, Sauerstoff, Stickstoff u. ä. Kerne liegt der Streuquerschnitt für 20 MeV–Protonen im Bereich $10\text{--}10^3$ mb/sr im Laborsystem (θ zwischen 30° und

⁽⁸⁾Eine quantenmechanische Beschreibung des Problems ist z.B. in [30] zu finden.

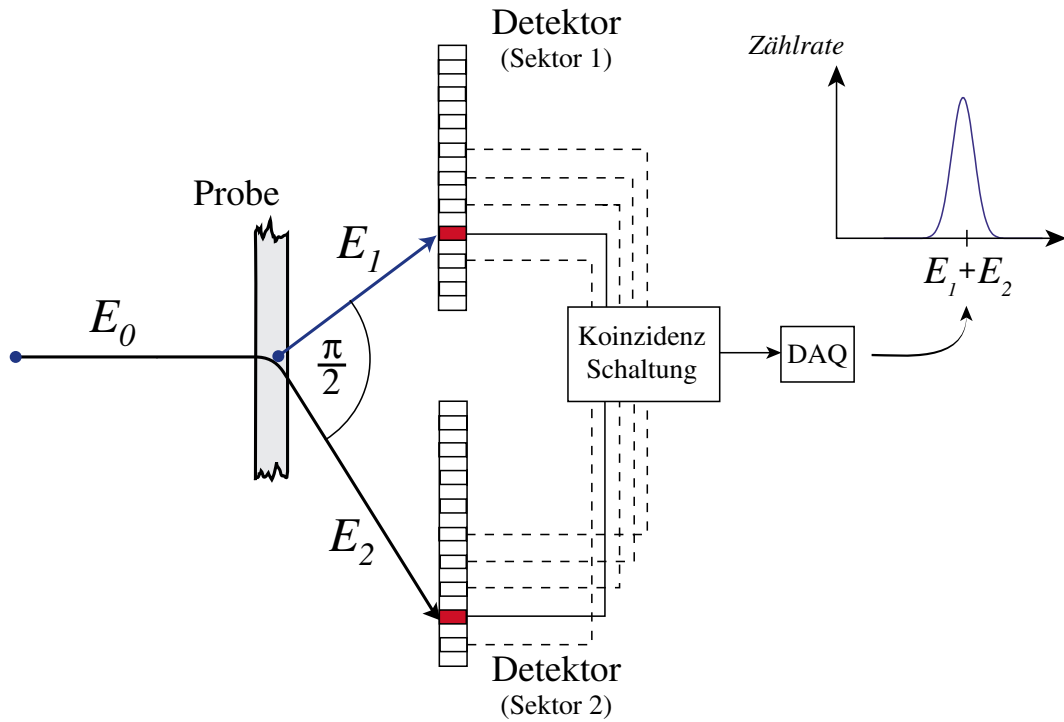


Abbildung 3.2: Meßanordnung für Proton-Proton-Streuung. Die gestreuten Protonen werden in einem Detektor nachgewiesen, dessen gegenüberliegende Sektoren mit einer Koinzidenzschaltung verbunden sind, so daß nur gleichzeitige Ereignisse zur Datenaufnahme (DAQ) weitergeleitet werden. Eine Verschärfung der Koinzidenzbedingung kann durch die Auswertung der Streuwinkel der beiden Protonen erfolgen (Unterteilung der Sektoren in radiale Bereiche). Nur Bereiche des Detektors, die zusammen einen Winkel von 90° ergeben, werden miteinander verschaltet.

60°) [25] und damit in der Größenordnung des Proton–Proton–Streuquerschnitts (100 mb/sr). Bei geringen Wasserstoffkonzentrationen sind Streuungen an den anderen Kernen des Probenmaterials damit weitaus häufiger. Inelastische Stöße mit Anregung der Kerne führen dazu, daß das Energiesignal eines Teilchens unter einem bestimmten Streuwinkel keine eindeutige Teilchenidentifizierung erlaubt. Der Großteil des Untergrundes bei der elastischen Proton–Proton–Streuung wird durch solche Kernanregungen erzeugt.

Sehr elegant und wirkungsvoll läßt sich dieser Untergrund unterdrücken, indem die Streuung an einem Wasserstoffkern durch den koinzidenten Nachweis beider Protonen identifiziert wird. Ein typischer Meßaufbau ist in Abbildung 3.2 skizziert.

In der einfachsten Anordnung besteht der Teilchendetektor aus zwei Hälften, die über eine Koinzidenzschaltung miteinander verbunden sind [23]. Diese registriert nur Teilchenpaare, die in einem bestimmten *Zeitfenster* die Detektoren erreicht haben. Die Rate der zufälligen Koinzidenzen läßt sich noch verringern, indem die Hälften in weitere Sektoren unterteilt werden und nur Koinzidenzen in *gegenüberliegenden Sektoren* zugelassen werden. Dies reduziert bei N Sektoren die Wahrscheinlichkeit einer zufälligen Koinzidenz um einen Faktor $1/N$.

Mit den aus Abschnitt 3.1 geforderten Nachweisraten von minimal 10 Hz ergibt sich bei geringen Wasserstoffkonzentrationen im ppm–Bereich bei vergleichbaren Streuquerschnitten eine Gesamtzählrate im Bereich einiger 100 kHz. Für die mit Halbleiterzählern, wie sie hier verwendet werden, prinzipiell erreichbaren Zeitauflösungen von etwa 10 ns liegt die Wahrscheinlichkeit für zufällige Koinzidenzen somit bei 0.1 % bzw. mit zwei Detektorhälften bei 0.05 %. Mit 16 Sektoren erreicht man somit Wahrscheinlichkeiten unter 10^{-4} . Schon mit diesen einfachen Mitteln läßt sich also eine fast untergrundfreie Messung durchführen.

Eine weitere Möglichkeit, die Koinzidenzbedingung zu verschärfen, ist die Berücksichtigung der *Streuwinkelbeziehung* (3.13) der beiden koinzidenten Protonen. Dazu ist, wie in Abbildung 3.2 angedeutet, ein ortsempfindlicher Detektor für die Streuwinkelbestimmung notwendig. Es können dann über eine Analyse der Daten die koinzidenten Proton–Proton–Ereignisse mit $\theta_1 + \theta_2 = 90^\circ$ identifiziert werden. Damit erreicht man in der Untergrundunterdrückung nochmals einen Faktor, der von der verwendeten Winkelauflösung abhängig ist. Bei einer Winkelauflösung von einem Grad, wie sie mit dem in dieser Arbeit verwendeten Detektor erreichbar ist, werden so Untergrundraten von unter 10^{-6} und damit Nachweisgrenzen von 1 ppm Wasserstoff erreicht.

3.4 Tiefeninformation über Energieverlustmessung

Zusätzlich kann die Energieinformation der Protonen genutzt werden, um Tiefenprofile von Wasserstoffkonzentrationen zu messen. Dabei gilt für elastische Streuung

$$E_{ges} = E_1 + E_2 = E_0 - \Delta E_{ges} \quad , \quad (3.14)$$

wobei E_0 die Projektilenergie und ΔE_{ges} der gesamte Energieverlust ist, den ein- und ausfallende Protonen auf dem Weg durch die Probe erleiden⁽⁹⁾. Entscheidend ist, daß die Summenenergie wegen Energieerhaltung in erster Ordnung nicht vom Streuwinkel abhängt. Diese Kompensation des sogenannten "kinematischen Effekts" (siehe Abschnitt 3.5.1) erlaubt es, über die Messung des Energieverlustes ΔE_{ges} eine Tiefenprofilmessung mit akzeptabler Auflösung zu erreichen. Dies wird im folgenden ausführlich diskutiert.

Bei der elastischen Proton-Proton-Streuung setzt sich der Energieverlust ΔE aus dem des einfallenden Protons ΔE_0 und der beiden ausfallenden Protonen $\Delta E_1 + \Delta E_2$ zusammen, wie in Abbildung 3.3 skizziert.

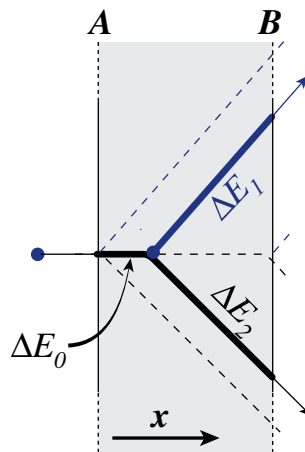


Abbildung 3.3: Energieverlust der Protonen in der Probe. Die dem einfallenden Strahl zugewandte Oberfläche der Probe wird als "Vorderseite" (A) bezeichnet, die andere Oberfläche entsprechend als "Rückseite" (B).

⁽⁹⁾Der relative Gesamtenergieverlust $\Delta E/E_0$ liegt bei der Streuung von 20 MeV Protonen an 50 μm Kohlenstoff zwischen 1 % (Streuung an der Rückseite) und 6 % (Streuung an der Vorderseite). [31]

Der Energieverlust wird bei den hier verwendeten Energien dominiert durch die Wechselwirkung der Protonen mit den Elektronen, so daß der Energieverlust bei den betrachteten Protonenenergien in guter Näherung nach der Formel von Bethe–Bloch [32] berechnet werden kann. Ohne relativistische Korrekturen ist damit das sogenannte *Bremsvermögen* $S(E)$, also der Energieverlust dE pro Wegstrecke dx , gegeben durch:

$$S(E) = -\frac{dE}{dx} \approx n \frac{Z_1^2 Z_2 e^4 m_1}{8\pi\epsilon_0^2 m_e} \cdot \frac{1}{E} \ln \frac{4m_e E}{m_1 I} . \quad (3.15)$$

n ist dabei die Dichte der Probenatome, $Z_1 = Z_p$ und Z_2 die Kernladungszahlen von Projektilproton und Probenmaterial (Elektronendichte $\rho_{el} = n \cdot Z_2$), $m_1 = m_p$ die Protonenmasse und m_e die Elektronenmasse. Für I ist das mittlere Ionisierungspotential des Probenmaterials einzusetzen, das als $I[\text{eV}] \approx 11.5 \cdot Z_2$ abgeschätzt werden kann [15].

Wird das einfallende Proton im Extremfall erst an der Rückseite (**B**) der Probe gestreut, so trägt nur der Energieverlust des hochenergetischen Projektils mit geringem Bremsvermögen zur Summe ΔE_{ges} des Energieverlustes bei. Im anderen Extremfall bei Streuung an der Vorderseite (**A**) erleiden beide gestreuten langsameren Protonen auf längeren Wegen wesentlich mehr Energieverlust und die Energieverlust–Summe ΔE_{ges} fällt höher aus (gestrichelte Linien in Abbildung 3.3). Zwischen diesen beiden Extremfällen ergibt sich ein Abfall der Energieverlust–Summe als Funktion der Tiefe x von (**A**) nach (**B**), denn die Abnahme von $\Delta E_1 + \Delta E_2$ ist stärker als die Zunahme von ΔE_0 . (siehe dazu auch Tabelle 3.1)

Streuwinkel θ	ΔE_{ges} (A)	ΔE_{ges} (B)	Energieunterschied $E_{(\mathbf{A})} - E_{(\mathbf{B})}$
45°	250 keV	1280 keV	1030 keV
40°, 50°	250 keV	1350 keV	1100 keV
35°, 55°	250 keV	1530 keV	1280 keV
30°, 60°	250 keV	2160 keV	1910 keV

Tabelle 3.1: Energieverlust–Summe bei Proton–Proton–Streuung für 20 MeV Protonen in 50 μm Kohlenstoff mit verschiedenen Streuwinkeln θ . (**A**): Streuung an Vorderseite, (**B**): Streuung an Rückseite (Berechnungen mit ENELOSS [31]; gerundete Werte)

Bei den hier verwendeten Energien und betrachteten Weglängen kann das Bremsvermögen in erster Näherung als konstant auf den einzelnen Wegen angesehen werden, wenn sich die Anfangsenergie E_i und Endenergie E_f nur wenig

unterscheiden:

$$S(E) \approx S(E_i) = n \frac{Z_2 e^4 m_p}{8\pi\epsilon_0^2 m_e} \cdot \frac{1}{E_i} \cdot \ln \frac{4 m_e E_i}{m_p I} \quad (3.16)$$

$$\left(\approx n Z_2 \cdot 4.78 \times 10^{-16} \text{ keV}^2 \text{ cm}^2 \cdot \frac{1}{E_i} \cdot \ln \frac{E_i}{10 \text{ keV}} \right) ,$$

wobei in der letzten Zeile die Werte für m_e , m_p , ϵ_0 eingesetzt und für $I \approx 20 \text{ eV}$ angenommen wurde. Es ergibt sich dann allgemein eine *lineare Abhängigkeit* des Energieverlustes von der zurückgelegten Wegstrecke Δx :

$$\Delta E = S(E_i) \cdot \Delta x \quad .$$

Für ΔE_0 ergibt sich der Beitrag zum Energieverlust bei einer Streuung in der Tiefe x somit zu:

$$\Delta E_0 = S(E_0) \cdot x \quad . \quad (3.17)$$

Bei den anderen Beiträgen ΔE_1 und ΔE_2 muß in der Anfangsenergie die Kinematik der Streuung von Gleichung (3.12) bei dem Streuwinkel θ eines Protons berücksichtigt werden ($E_i = (E_0 - \Delta E_0) \cdot \cos^2 \theta$ bzw. $\sin^2 \theta$):

$$\Delta E_1 = S [(E_0 - S(E_0)x) \cdot \cos^2 \theta] \cdot \frac{d-x}{\cos \theta} \quad (3.18)$$

$$\Delta E_2 = S [(E_0 - S(E_0)x) \cdot \sin^2 \theta] \cdot \frac{d-x}{\sin \theta} \quad . \quad (3.19)$$

Über die Summierung der Energieverluste erhält man so die Energiesumme der beiden Protonen nach Verlassen der Probe:

$$E(x, \theta) = E_1 + E_2 = E_0 - [\Delta E_0(x) + \Delta E_1(x, \theta) + \Delta E_2(x, \theta)] \quad . \quad (3.20)$$

Die Summenenergie $E(x, \theta)$ hängt somit explizit von der Tiefe x und dem Streuwinkel θ ab:

$$E(x, \theta) = E_0 - Ax - B \frac{d-x}{E_0 - Ax} \cdot \left[\frac{\ln(k[E_0 - Ax] \cos^2 \theta)}{\cos^3 \theta} + \frac{\ln(k[E_0 - Ax] \sin^2 \theta)}{\sin^3 \theta} \right] . \quad (3.21)$$

Dabei sind

$$k = \frac{4m_e}{Im_p} \approx (10 \text{ keV})^{-1} \quad ,$$

$$A = S(E_0) = B \cdot \ln(kE_0)/E_0 \quad \text{und}$$

$$B = n \frac{Z_2 e^4 m_p}{8\pi\epsilon_0^2 m_e} \approx n Z_2 \cdot 4.78 \times 10^{-16} \text{ keV}^2 \text{ cm}^2 \quad .$$

Wenn die Energieverluste des einfallenden Strahls $\Delta E_0 = Ax$ vernachlässigbar gegenüber der Projektilenergie sind, ergibt sich in erster Ordnung eine lineare Abhängigkeit der Gesamtenergie $E(x, \theta)$:

$$\boxed{E(x, \theta) \approx E(x = 0, \theta) - S_{\text{eff}}(\theta) \cdot x} \quad , \quad (3.22)$$

$$\text{mit } E(x = 0, \theta) = E_0 - \frac{B}{E_0} \cdot C(\theta) \cdot d \quad \text{und} \quad S_{\text{eff}}(\theta) = A - \frac{B}{E_0} \cdot C(\theta)$$

und der Winkelabhängigkeit

$$C(\theta) = \frac{\ln(kE_0 \cdot \cos^2 \theta)}{\cos^3 \theta} + \frac{\ln(kE_0 \cdot \sin^2 \theta)}{\sin^3 \theta} \quad . \quad (3.23)$$

Über die Bestimmung der Energiesumme $E_1 + E_2$ der beiden Protonen kann also mit obigen Zusammenhängen ein Tiefenprofil erstellt werden. Um eine hohe Tiefenaufösung zu erreichen, muß die Energieaufösung der Messung optimiert werden. Diese wird durch folgende Beiträge beeinflusst:

1. Intrinsische Auflösung des Protonendetektors
2. Energieverlust-Streuung der Ionen in der Probe
3. Geometrische Effekte
 - (a) Raumwinkel des Detektors
 - (b) Kleinwinkelstreuung der Ionen
 - (c) Strahldivergenz
 - (d) Strahlfleckdurchmesser
4. Energieunschärfe des Ionenstrahls

Diese Beiträge werden im folgenden Abschnitt unter dem Gesichtspunkt diskutiert, welche Anforderungen der Protonendetektor erfüllen muß, damit eine maximale Tiefenaufösung erreicht werden kann.

3.5 Optimierung der Detektorgeometrie

Wie die Diskussionen über die Nachweisrate und die Strahlenschädigung am Anfang des Kapitels (Abschnitte 3.1 und 3.2) gezeigt haben, ist ein größtmöglicher

Detektionsraumwinkel generell unerlässlich, um unter Verwendung eines Mikrostrahls eine Wasserstoffanalyse bei akzeptablen Meßzeiten und mit höchster Empfindlichkeit durchführen zu können. Für die Technik der Proton-Proton-Streuung impliziert dies ein Detektordesign mit einem großflächigen Detektor bei möglichst geringem Abstand hinter der Probe.

Auf der anderen Seite ist wie im vorangegangenen Abschnitt 3.4 erläutert für eine Tiefenbestimmung des Streuortes eine genaue Energiemessung der gestreuten Protonen notwendig. Wie dort schon angedeutet, trägt neben der Energieauflösung des Detektors selbst und der Energieverluststreuung der Protonen auf dem Weg durch die Probe, hauptsächlich auch eine ungenaue Streuwinkelbestimmung zur Verbreiterung des Energiesignals bei. Wie diese sogenannten "geometrischen Effekte" entstehen und welchen Einfluß sie auf die erreichbare Tiefenauflösung haben, soll im folgenden diskutiert werden. Als Ergebnis der Diskussion und einem Vergleich mit den anderen genannten Beiträgen zur Energieauflösung ergeben sich eine Abschätzung für die maximal mögliche Tiefenauflösung und die dafür notwendige Winkelauflösung des Detektors.

3.5.1 Geometrische Effekte

Unter den "geometrischen Effekten" versteht man generell die Auswirkung einer ungenauen Streuwinkelbestimmung auf die Auflösung der Energiemessung der gestreuten Teilchen. Üblicherweise wird die Streuwinkelmessung durch eine *endliche Detektoröffnung* in der Genauigkeit beschränkt. Eine Unschärfe im Streuwinkel wird aber auch durch die *Aufstreuung der Ionen* durch Kleinwinkelstreuung in der Probe hervorgerufen. Desweiteren führt die *Strahldivergenz* des einfallenden Strahls dazu, daß die Strahlachse nicht exakt festgelegt werden kann, oder die endliche Ausdehnung der bestrahlten Fläche — vorgegeben durch den *Strahldurchmesser* — verhindert, daß der Ort des Streuereignisses nicht genau bestimmt werden kann.

Man unterscheidet hier zwischen dem *kinematischen Effekt* und dem *Weglängeneffekt* (siehe Abbildung 3.4), je nachdem welche physikalische Ursache hinter dem Effekt steht.

- Kinematischer Effekt

Unter dem kinematischen Effekt versteht man den Beitrag zur Energieverbreiterung, der durch die modifizierte Kinematik der Streuung bei einer Streuwinkelöffnung $\delta\theta = \theta' - \theta$ verursacht wird (Abbildung 3.4a). Er wird allerdings bei der Technik der elastischen Proton-Proton-Streuung

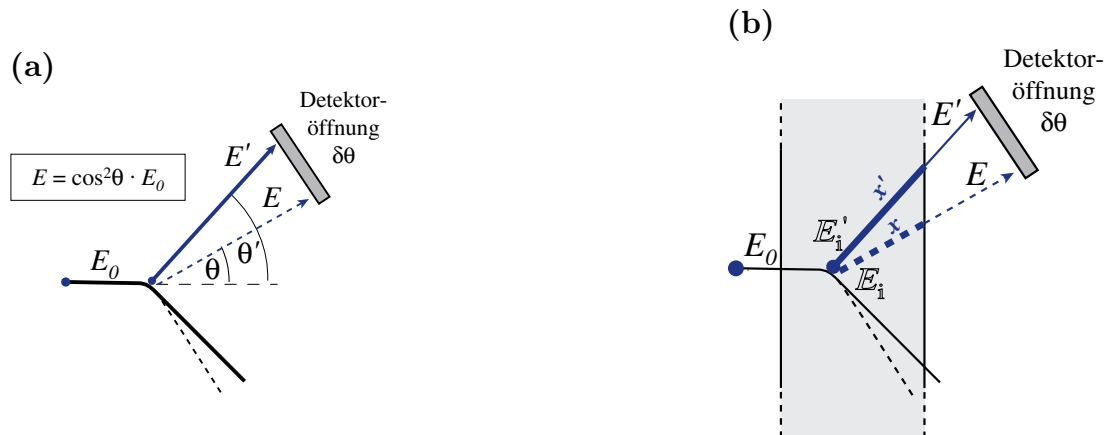


Abbildung 3.4: Illustration zu den geometrischen Effekten. (a) "Kinematischer Effekt": Eine Änderung des Streuwinkels beeinflusst die Kinematik der Streuung (b) "Weglängeneffekt": Der Streuwinkel beeinflusst das Bremsvermögen und die Weglängen der gestreuten Ionen in der Probe und damit den Energieverlust.

in der Messung der Energiesumme beider Protonen vollständig kompensiert (Energieerhaltung). D. h. die Energiesumme ist nicht vom Streuwinkel abhängig.

Die Proton-Proton-Streuung mit der koinzidenten Detektion beider Streuteilchen hat damit einen entscheidenden Vorteil gegenüber Tiefenprofilmessungen, wo nur die Energie eines Teilchens gemessen wird und die Energieauflösung in erster Ordnung durch diesen Effekt dominiert wird. Erst in zweiter Ordnung tritt der sogenannte Weglängeneffekt auf, der durch die modifizierten Weglängen und Bremsvermögen zu einem veränderten Energieverlust führt (Abbildung 3.4b):

- Weglängeneffekt

Ändert sich der Streuwinkel, so wird zum einen das Bremsvermögen $S(E) \approx S(E_i)$ jedes gestreuten Protons infolge der veränderten Anfangsenergie E_i modifiziert. In Abbildung 3.4(b) hat das unter dem kleinen Streuwinkel gestreute Proton (gestrichelte Linie) eine höhere Anfangsenergie E_A und damit ein niedrigeres Bremsvermögen als das steiler gestreute Proton (durchgezogene Linie) mit der Anfangsenergie E_i' . Damit verliert das unter kleinerem Winkel gestreute Proton weniger Energie pro Wegstrecke.

Zum anderen ergibt sich auch ein anderer Weg x der Protonen durch die Probe. Für unter größeren Winkeln gestreute Protonen wird der Weg länger und der Energieverlust höher. Die Energieverschiebung $E - E'$ der austre-

tenden Protonen, die durch diese beiden Änderungen des Energieverlustes hervorgerufen wird, soll hier als Weglängeneffekt bezeichnet werden.

Bei Analyse der Energiesumme beider gestreuter Protonen wird sich dieser Weglängeneffekt nicht wie der kinematische Effekt kompensieren. Unter 45° sind die Energieverluste der beiden Protonen gleich (durchgezogene Linien in Abbildung 3.5.1b). Das unter kleinerem Winkel gestreute Proton wird zwar weniger Energieverlust erleiden, dafür steigt jedoch der Energieverlust des koinzidenten Protons mehr. ⁽¹⁰⁾

3.5.2 Abschätzung des Weglängeneffekts

Zur Abschätzung des Weglängeneffekts bei der Proton-Proton-Streuung seien in der Probe zwei infinitesimal dünne Wasserstoffschichten betrachtet, die parallel im Abstand Δx senkrecht zur Strahlachse ausgerichtet sind, wie in Abbildung 3.5 angedeutet. Dabei sind nur die Energieverluste der Protonen zwischen den Schichten zu berücksichtigen. Die Energieverluste hinter der Schicht B sind für beide Streuungen (A und B) unabhängig vom Streuwinkel in erster Ordnung gleich und tragen somit nur in zweiter Ordnung zum Weglängeneffekt bei.

Mit Gleichung (3.22) berechnet man die Energiesummen für die Streuung an den beiden Schichten

$$\begin{aligned} E_A &= E(0, \theta) \\ E_B &= E(\Delta x, \theta) \end{aligned}$$

und bildet die Differenz aus diesen:

$$E_B - E_A = -S_{\text{eff}}(\theta) \cdot \Delta x \quad , \quad (3.24)$$

mit
$$S_{\text{eff}}(\theta) = A - \frac{B}{E_0} \cdot \left(\frac{\ln(kE_0 \cdot \cos^2 \theta)}{\cos^3 \theta} + \frac{\ln(kE_0 \cdot \sin^2 \theta)}{\sin^3 \theta} \right)$$

und den Konstanten A , B und k wie auf Seite 28.

Die Variation dieser Energiedifferenz $E_B - E_A$ in Abhängigkeit des Streuwinkels zeigt die Auswirkung des Weglängeneffekts. Zur anschaulicheren Illustration ist rechts in Abbildung 3.5 schematisch ein Energiespektrum dargestellt, mit den zu erwartenden Koinzidenzpeaks für Proton-Proton-Streuung bei einem Schichtabstand Δx , die in diesem Energieabstand erscheinen. Die Schicht B sei vorerst identisch mit der Rückseite der Probe angenommen.

⁽¹⁰⁾Diese Überlegung gilt in dem Streuwinkelbereich, in dem die Energieverluste so klein bleiben, daß keines der beiden Protonen in der Probe gestoppt wird.

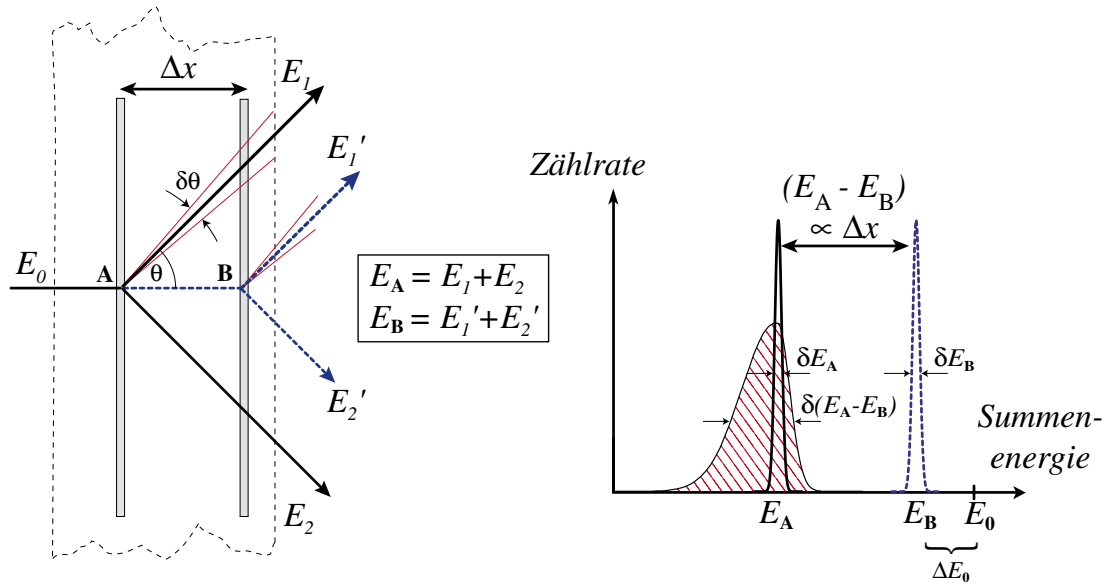


Abbildung 3.5: Skizze zur Abschätzung des Weglängeneffekts (zwei dünne H-Schichten im Abstand Δx , Energieverluste hinter der zweiten Schicht B sind für den Weglängeneffekt irrelevant). Eine Streuung an der Schicht B (gestrichelte Linien) macht einen geringen Energieverlust (ΔE_0 , nur einfallendes Proton), im Energiespektrum erhält man einen Peak bei der Energiesumme E_B . Die Streuung an A ergibt einen großen Energieverlust auf den diagonalen Wegen (durchgezogene Linien) und den Peak bei E_A . Die Differenz $(E_A - E_B)$ ist ein Maß für den Schichtabstand Δx . Für eine Unschärfe $\delta\theta$ im Winkel ergibt sich, abhängig vom Streuwinkel θ , eine gewisse (asymmetrische) Verbreiterung des Peaks bei E_A , dargestellt durch die schraffierte Kurve, und führt damit zu einer Verschlechterung der Tiefenauflösung.

Haben die Peaks bei einem exakten Streuwinkel von z. B. 45° die inhärenten Breiten δE_A und δE_B , so wird der linke Peak E_A bei einer zugelassenen Winkelöffnung $\delta\theta$ verbreitert. Dies ist in der Abbildung 3.5 mit dem schraffierten Bereich angedeutet. Um 45° ergibt sich für positive wie negative Winkeländerungen eine Verlagerung von E_A zu niederen Energien hin und damit nur eine Vergrößerung der Differenz $E_B - E_A$ (asymmetrische Verbreiterung). Dagegen führt für Winkel ungleich 45° eine Winkelöffnung zu einer Verbreiterung in beide Richtungen.

Im allgemeinen Fall, wenn die Schicht B im Inneren der Probe liegt, wird der Anteil des Weglängeneffekts hinter der Schicht B in der Differenzbildung annähernd kompensiert, es erfolgt also eine Verschiebung des gesamten Spektrums um diesen Anteil zu niederen Energiesummen. Damit ist also die "Energiedifferenz-Variation" entscheidend für den Beitrag des Weglängeneffektes δE_W

zur Gesamtenergieauflösung. Dieser berechnet sich somit aus dem Unterschied der Energiedifferenz $E_B - E_A$ zwischen dem maximalen und minimalen Wert in einem Streuwinkelintervall $[\theta \pm \delta\theta/2]$:

$$\delta E_W = \delta(E_B - E_A) = \max_{[\theta \pm \delta\theta/2]}(E_B - E_A) - \min_{[\theta \pm \delta\theta/2]}(E_B - E_A) \quad , \quad (3.25)$$

mit $E_B - E_A$ aus Gleichung (3.24).

Diese Breite ist vom Streuwinkel θ , der Winkelunschärfe $\delta\theta$ und dem Abstand der Schichten Δx abhängig:

$$\delta E_W = f(\theta, \delta\theta, \Delta x) \quad . \quad (3.26)$$

In der Näherung eines konstanten Energieverlustes (Gleichung (3.16)) ist δE_W ebenso wie $E_B - E_A$ direkt proportional zum Schichtabstand Δx .

Abbildung 3.6 zeigt die relative Energieverbreiterung durch den Weglängeneffekt

$$\frac{\delta E_W}{E_B - E_A} = f(\theta, \delta\theta) \quad ,$$

aufgetragen jeweils für unterschiedliche Streuwinkel in Abhängigkeit der Winkelunschärfe.

Für die Frage, ob zwei Schichten noch getrennt werden können, muß das Verhältnis der Peakbreiten (FWHM) δE_A und δE_B zur Energiedifferenz ($E_B - E_A$)

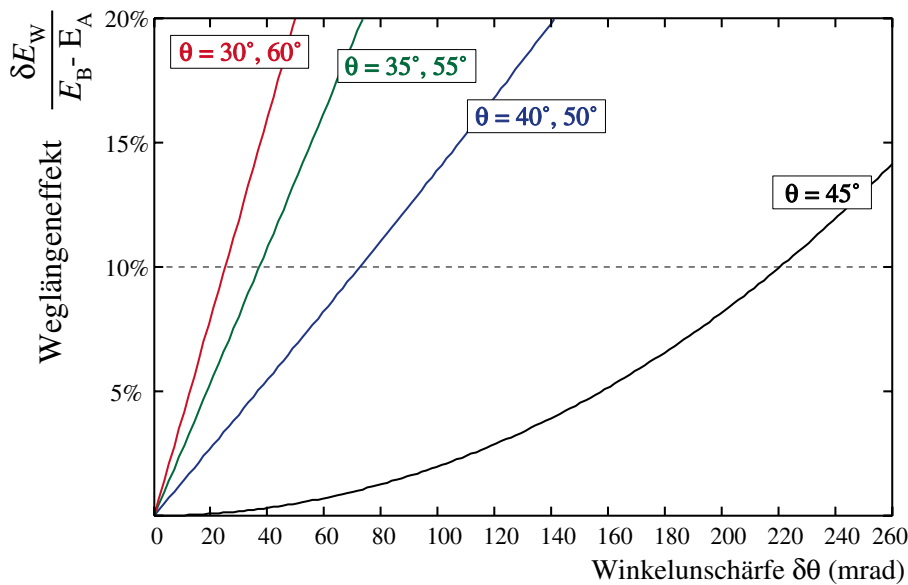


Abbildung 3.6: Relative Beiträge des Weglängeneffekts $\delta E_W / (E_B - E_A)$ in Abhängigkeit der Streuwinkelunschärfe $\delta\theta$ bei verschiedenen Streuwinkeln θ .

der beiden Schichten betrachtet werden. Werden die Breiten größer als die Differenz, also

$$F = \frac{\sqrt{\delta E_A^2 + \delta E_B^2}}{E_B - E_A} > 1 \quad , \quad (3.27)$$

so können die Schichten nicht mehr aufgelöst werden.⁽¹¹⁾

Bei Streuwinkeln um 45° ist eine Winkelabweichung generell unkritischer für die Energieverbreiterung durch den Weglängeneffekt, als bei den äußeren Winkeln bei 30° oder 60° , da die Energiedifferenz ($E_B - E_A$) bei einem Streuwinkel von 45° ein Minimum durchläuft.

Entscheidend für die Tiefenauflösung ist der Abstand Δx einer Schicht zur Probenoberfläche, also die Tiefe d , in der die Schicht liegt. Um für die in Kapitel 2 beschriebenen Analysen bei Probendicken von $d = 100 \mu\text{m}$ noch eine Auflösung unter $10 \mu\text{m}$ zu erreichen, ist eine relative Energieauflösung von unter 10 % nötig. Anhand von Abbildung 3.6 kann man erkennen, daß dazu bei 45° eine Winkelauflösung besser als 220 mrad (ca. 12°) und für größere Winkel sogar besser als 20 mrad werden muß.

3.5.3 Erreichbare Tiefenauflösung

Um eine obere Grenze für die erreichbare Tiefenauflösung anzugeben, müssen alle auf Seite 29 genannten Beiträge zur Energieauflösung berücksichtigt werden. Sofern diese als statistisch unabhängig angenommen werden, ergibt sich die Gesamtenergieauflösung und damit die Tiefenauflösung aus der quadratischen Addition der einzelnen Beiträge. In einem Vergleich dieser Beiträge wird zudem ersichtlich wie ungenau die Streuwinkelbestimmung werden darf, damit der Einfluß des Weglängeneffektes nicht dominierend wird.

Folgende Beiträge werden für eine obere Abschätzung herangezogen:

- **Detektorauflösung**

Wie in Kapitel 4 ausführlich diskutiert wird, sind für den Nachweis von Protonen mit den hier gestellten Anforderungen Silizium-Halbleiterdetektoren am besten geeignet und man muß für die nachzuweisenden Protonen bei Energien zwischen 5 und 15 MeV mit einer Energieauflösung von etwa 1 % pro Proton rechnen. Für den koinzidenten Nachweis beider Protonen ergibt

⁽¹¹⁾Die quadratische Addition der Breiten gilt genaugenommen nur exakt für gaußförmige Peaks statistisch unabhängiger Breiten; im Rahmen dieser Abschätzung ist sie aber auch noch für nicht-gaußförmige Peaks erlaubt.

das einen absoluten Beitrag δE_D von rund 150 keV (FWHM) zur Gesamtenergiebreite.

- **Energieverluststreuung**

Die Wechselwirkungsprozesse, die zu einem Energieübertrag und damit zu einem Energieverlust der Ionen auf ihrem Weg durch die Probe führen, sind von statistischer Natur. Der Energieverlust ist also nicht scharf definiert, sondern erhält eine Breite, die proportional mit der Wurzel der Weglänge $\Delta\xi$ zunimmt und nach Bohr nicht von der Energie der Ionen abhängt [33]:

$$\delta E_S = \sqrt{8 \ln 2 \cdot 4\pi e^4 Z_1^2 Z_2 n \Delta\xi} \quad . \quad (3.28)$$

Z_1 und Z_2 sind die Kernladungszahlen von Projektil und Targetmaterial, n die Targetdichte in Atome/cm³ und e die Elementarladung in natürlichen Einheiten ($e^2 = 1.44 \cdot \text{MeV} \cdot \text{fm}$).

Die Beiträge der Wegstrecken des einfallenden Protons $\delta E_{S(0)}$ und der zwei gestreuten Protonen $\delta E_{S(1,2)}$ sind statistisch unabhängig und können quadratisch addiert werden. Für die Streuung am Ort x in einer Probe der Dicke d ergibt sich damit

$$\delta E_S = C_S \cdot \sqrt{\left(x + \frac{d-x}{\cos\theta} + \frac{d-x}{\sin\theta}\right)} \quad , \quad (3.29)$$

mit $C_S = \sqrt{8 \ln 2 \cdot 4\pi e^4 \cdot Z_1^2 \cdot Z_2 \cdot n}$. Dieser wird maximal bei Streuung an der vorderen Schicht A. Damit ergibt sich eine obere Abschätzung der Energieverluststreuung bei einer Dicke d

$$\delta E_S \leq C_S \cdot \sqrt{\left(\frac{1}{\cos\theta} + \frac{1}{\sin\theta}\right) \cdot d} \quad . \quad (3.30)$$

Bei einer Dicke von 100 μm (Kohlenstoff) wird dieser Beitrag größer als die Detektoraufösung und limitiert somit die Methode prinzipiell in der erreichbaren Tiefenaufösung bei größeren Dicken.

- **Geometrische Effekte**

Der Einfluß der geometrischen Effekte wird, wie oben ausführlich diskutiert, bei der Proton-Proton-Streuung auf den Beitrag des Weglängeneffektes reduziert. Er berechnet sich nach Gleichung (3.25). Für eine Probe der Dicke d ergibt sich daraus eine obere Abschätzung für den Beitrag des

Weglängeneffektes, wenn für die Schichtdicke Δx in dieser Gleichung die gesamte Probendicke d eingesetzt wird. Dieser Wert ist damit in erster Näherung bei gegebenem Streuwinkel θ und Winkelöffnung $\delta\theta$ linear von der Probendicke abhängig.

- **Energieunschärfe des Strahls**

Die Energieunschärfe des einfallenden Protonenstrahls spielt nur eine untergeordnete Rolle. Am Münchener Tandembeschleuniger werden Energieunschärfen besser als 10^{-4} erreicht, so daß dieser Beitrag vernachlässigt werden kann.

In Abbildung 3.7 sind für eine Projektilenergie von $E_0 = 20$ MeV und Kohlenstoff als Probenmaterial die Beiträge δE in Abhängigkeit der analysierten Probendicke d dargestellt. Dabei wurde als Streuwinkel $\theta = 45^\circ$ gewählt und der Beitrag des Weglängeneffekts δE_P jeweils für verschiedene Winkelunschärfen $\delta\theta$ berechnet. Die den Energiebreiten δE entsprechenden Tiefenaufösungen δx sind an die rechte Achse skaliert.

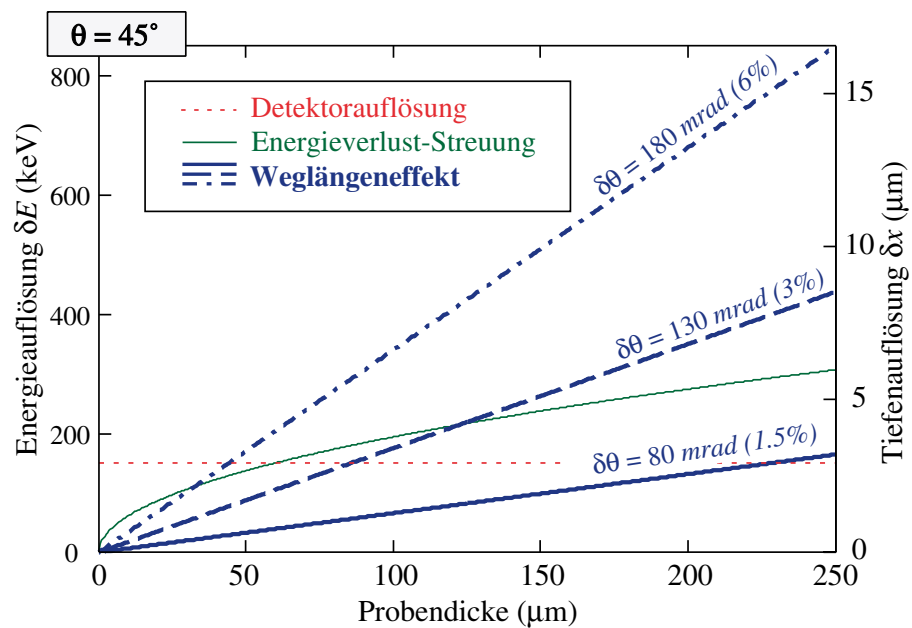


Abbildung 3.7: Vergleich der Hauptbeiträge zur Energie- bzw. Tiefenauflösung bei $\theta = 45^\circ$ in Abhängigkeit der Probendicke d . Die obere Grenze für den Weglängeneffekt wurde bei drei verschiedenen Winkelöffnungen $\delta\theta$ berechnet. (Die Prozentangaben beziehen sich jeweils auf die relativen Beiträge des Weglängeneffektes, wie in Abbildung 3.6 dargestellt.)

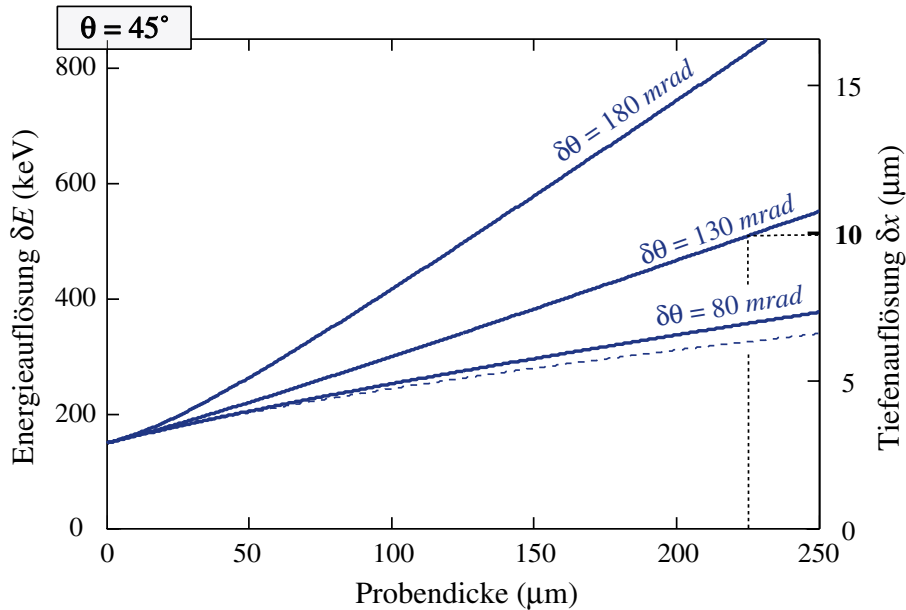


Abbildung 3.8: Gesamtenergieauflösung δE_{ges} bzw. Gesamttiefenauflösung δx_{ges} in Abhängigkeit der Probendicke d für den Streuwinkel $\theta = 45^\circ$ bei verschiedenen Winkelunschärfen $\delta\theta$. Die einzelnen Beiträge (Detektorauflösung δE_{D} , Energieverluststreuung δE_{S} und Weglängeneffekt δE_{W}) wurden quadratisch addiert. Die gestrichelte Linie zeigt die Gesamtenergieauflösung ohne Weglängeneffekt, also $\delta\theta = 0$. (Simulation für Protonen $E_0 = 20 \text{ MeV}$ auf Kohlenstoff.)

Über eine quadratische Addition der Einzelbeiträge kann die erreichbare Gesamtauflösung berechnet werden. Dies ist in Abbildung 3.8 dargestellt. Sie zeigt bei einem Streuwinkel von 45° für verschiedene Winkelunschärfen $\delta\theta$ die resultierende Gesamtenergie- bzw. Tiefenauflösung in absoluten Einheiten. Man erkennt, daß auch bei großen Probendicken bis $200 \mu\text{m}$ eine Tiefenauflösung besser als $10 \mu\text{m}$ erreichbar wird, wenn die Winkelauflösung besser als 130 mrad ist. Die gestrichelte Linie deutet die maximal erreichbare Tiefenauflösung an, wenn mit der angenommenen Detektorauflösung von 150 keV der Streuwinkel exakt bestimmt werden könnte (kein Weglängeneffekt).

Aus diesen Abschätzungen für Kohlenstoff erkennt man, daß ab einer Streuwinkelungenauigkeit von 130 mrad der Beitrag des Weglängeneffektes für höhere Probendicken dominiert. Bei diesem Wert kann noch eine Tiefenauflösung unter $10 \mu\text{m}$ bei Probendicken von $200 \mu\text{m}$ erreicht werden.

Nun zeigt aber der Weglängeneffekt für die äußeren Winkel⁽¹²⁾ eine deutlich

⁽¹²⁾Mit *äußere Winkel* sind hier die Streuwinkel größer oder kleiner 45° zu verstehen.

größere Abhängigkeit von der Streuwinkelunschärfe (siehe Abbildung 3.6). Bei diesen Winkel müssen also höhere Anforderungen an die Winkelauflösung gestellt werden, damit der Weglängeneffekt optimiert wird.

Für verschiedene Winkel wurden weitere Simulationen durchgeführt, um herauszufinden, welche Winkelauflösung dort notwendig wird und welche Tiefenauflösung prinzipiell erreichbar ist. Die Ergebnisse sind in Tabelle 3.2 zusammengefaßt und in Abbildung 3.9 grafisch dargestellt, welche obere Grenze der Energie- bzw. Tiefenauflösung sich für diese Werte ergibt. Dabei wurde jeweils bei den angegebenen Streuwinkeln und Winkelauflösungen die Gesamtauflösung durch quadratische Addition der Beiträge berechnet und die Maximalwerte ermittelt.

Streuwinkel θ	Notwendige Winkelauflösung $\delta\theta$
45°	130 mrad
40°, 50°	25 mrad
35°, 55°	15 mrad
30°, 60°	10 mrad

Tabelle 3.2: Ergebnis der Optimierung der Detektorgeometrie. Die Tabelle gibt abhängig vom Streuwinkel θ die Werte für die notwendige Winkelauflösung $\delta\theta$ an, um eine Tiefenauflösung unter $10\ \mu\text{m}$ bis zu einer Probendicke von $200\ \mu\text{m}$ zu erreichen. (Abschätzung für Kohlenstoff, 20 MeV Protonen)

Für die Unterdrückung des Weglängeneffekts ist also in den äußeren Streuwinkeln eine Winkelauflösung bis unter einem Grad notwendig. Da hauptsächlich die Detektorgeometrie die Winkelauflösung bestimmt, ist dies bei der Konstruktion des Protonendetektors zu berücksichtigen. Die Möglichkeiten dafür werden im folgenden Kapitel diskutiert.

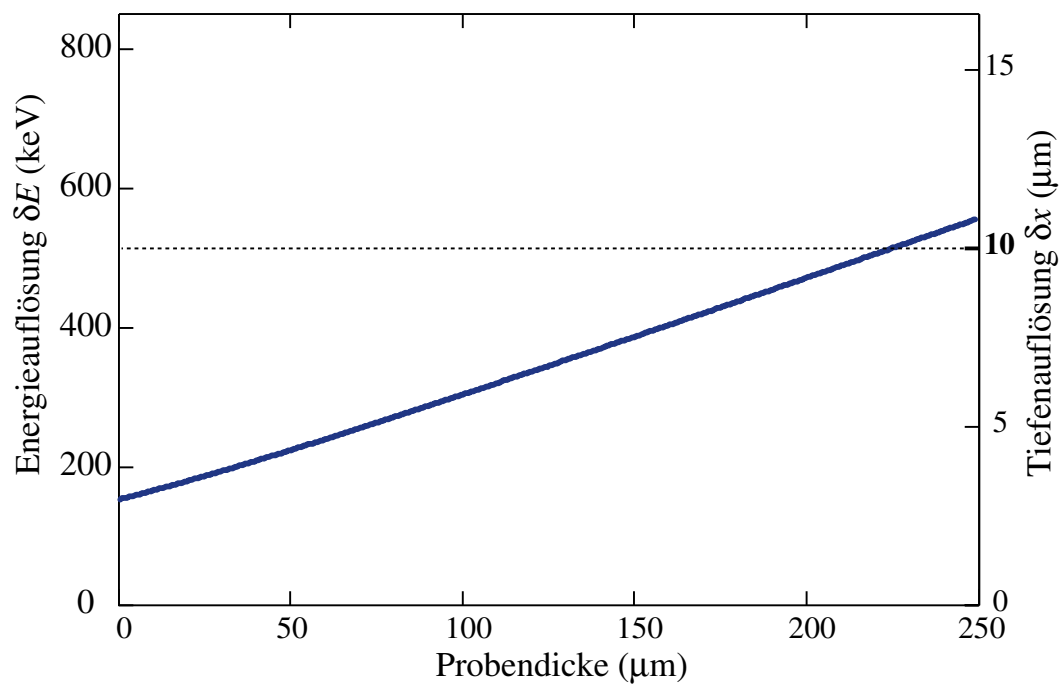


Abbildung 3.9: Erreichbare Tiefenauflösung bei optimierter Winkelauflösung (nach Tabelle 3.2) in Abhängigkeit der Probendicke, wie sie auch mit dem hier verwendeten Detektor (siehe Kapitel 4) erreicht wird. (20 MeV Protonen in Kohlenstoff)

Kapitel 4

Detektorsystem

4.1 Detektordesign

4.1.1 Experimentelle Anforderungen

Für den Einsatz der beschriebenen Methode für die Wasserstoffanalyse unter Verwendung des neuen Raster-Ionenmikroskops SNAKE am Münchener Tandembeschleuniger mit 15–25 MeV Protonen ergeben sich folgende Anforderungen an das Detektorsystem:

1. Detektorraumwinkel

Für die Reduzierung der Strahlenschädigung und die Optimierung der Effizienz ist, wie in Abschnitt 3.2 diskutiert, ein möglichst großer Detektorraumwinkel oberste Priorität. Für die Messung in Transmissionsrichtung steht prinzipiell der ganze Halbraum hinter der Probe bis auf den Bereich kleiner Winkel (transmittierter Primärstrahl) zur Verfügung.

2. Geometrie

Wie in Kapitel 3 erklärt, muß der Detektor für die Koinzidenzmessung in mindestens zwei Hälften oder Sektoren getrennt sein (siehe Abbildung 3.2). Mit mehreren gegenüberliegenden Sektoren kann die Rate der zufälligen Koinzidenzen verringert werden.

Für die erreichbare Tiefenauflösung ist die Winkelauflösung des Detektors entscheidend. In Abschnitt 3.5 wurde abgeschätzt, daß bei den geplanten Experimenten eine Auflösung unter einem Grad bei den äußeren Winkeln notwendig wird (siehe Tabelle 3.2).

3. Energieauflösung

Einen großen Beitrag zur Gesamtauflösung liefert auch die intrinsische Energieauflösung des Detektors. Für die hier betrachteten Anwendungen sollte die Auflösung für 10 MeV Protonen besser als 100 keV (FWHM) sein.

4. Maximalenergie der Protonen

Bei einer Strahlenergie von 20 MeV werden die Protonen unter einem Winkel von 30° mit einer Energie von 15 MeV gestreut. Da für die Tiefenanalyse die Energiesumme der Protonen entscheidend ist, muß also die komplette Energie im Detektor deponiert werden, also das 15 MeV Proton komplett gestoppt werden.

5. Zählrate

Wie die Abschätzungen aus Abschnitt 3.1 zeigen, werden bei einem sensitiven Wasserstoffnachweis Gesamtzählraten in der Größenordnung 100 kHz/sr erwartet. Dies bedeutet eine hohe Anforderung an das Detektorauslesesystem und macht eine effektive Koinzidenzschaltung notwendig.

Für den orts aufgelösten Nachweis bei großen Raumwinkeln werden üblicherweise Ionisationskammern verwendet, die auf der Ladungstrennung in einem leicht ionisierbaren Gas basieren. Sie haben jedoch einen großen Raumbedarf und es ist eine lange Gasstrecke von mehreren Metern mit einer hohen Gasdichte notwendig, um die hochenergetischen Protonen zu stoppen. Für die Instrumentierung in der Mikrostrahl-Experimentierkammer des Raster-Ionenmikroskops SNAKE ist diese Technik nicht geeignet, ebenso wie Flugzeit- oder Magnetspektrographen.

Als Alternative bieten Halbleiterzähler viele Vorteile. Da nur kurze Weglängen im Material notwendig sind, um Teilchen zu stoppen, ist eine kompakte Bauweise möglich. Mit der schnelleren Ladungstrennung, die im Bereich einiger ns liegt, sind höhere Zählraten als bei Ionisationskammern möglich und bei einer geringeren Ionisierungsenergie (≈ 3 eV) ist im Zusammenhang mit der Zählstatistik eine hohe Energieauflösung im Bereich von 10^{-3} für α -Teichen möglich. [34]

Neben der Empfindlichkeit auf Strahlenschäden und die damit verbundene kurze Lebensdauer ist es von Nachteil, daß bei großen aktiven Flächen über einigen cm^2 die erreichbare Energieauflösung durch kapazitatives Rauschen und Leckströme stark eingeschränkt wird. Um mit einer kleinen Fläche einen möglichst großen Raumwinkel abzudecken, muß der Detektor sehr kompakt und nahe hinter der Probe positioniert werden. Bei der nötigen Winkelauflösung muß damit auf eine sehr gute Ortsauflösung des Detektors geachtet werden.

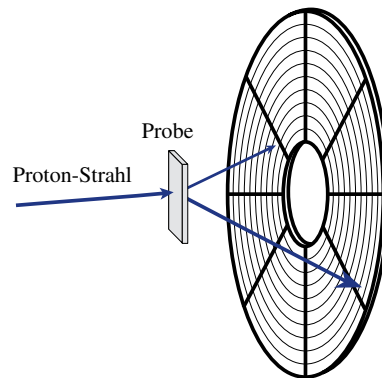


Abbildung 4.1: Koinzidente Detektion der beiden Protonen mit einem ringförmigen Silizium–Streifenzähler

Hervorragende Ortsauflösungen bei Halbleiterzählern werden heute durch sogenannte Mikrostreifenzähler auf der Basis von Silizium–Halbleitermaterialien erreicht. Dabei wird auf der einen Seite durch Ionenimplantation des intrinsischen Halbleitermaterials (leicht n–dotiert) eine stark p–leitende Schicht in Form von Streifen hergestellt, wobei die Rückseite stark n–dotiert wird und ebenfalls in Streifen unterteilt sein kann (PIN–Diodenstruktur⁽¹⁾). Die Ladungsimpulse, die durch einfallende Teilchen in der Verarmungszone entstehen, werden durch Aluminium–Kontakte⁽²⁾ abgegriffen. Man erreicht dabei Streifenabstände unter $25\ \mu\text{m}$. [35]

Somit stehen mit der Technik der Silizium–Halbleiterdetektoren geeignete Möglichkeiten für den Nachweis der Protonen für die Methode der Proton-Proton-Streuung zur Verfügung.

4.1.2 Ringförmiger Silizium–Streifenzähler

Um den Raumwinkel hinter der Probe optimal auszunützen, ist eine ringförmige Detektorgeometrie zweckmäßig, mit einer Raumwinkelabdeckung symmetrisch um den Streuwinkel 45° , damit beide Protonen erfasst werden ($\theta_1 + \theta_2 = 90^\circ$). Für die Koinzidenz ist eine Unterteilung in mindestens zwei Halbringe oder mehrere Sektoren notwendig und für die Winkelbestimmung muß der Detektor in einzelne, genügend schmale Ringstreifen unterteilt sein, wie in der Skizze von Abbildung 4.1 angedeutet.

Eine Spezialanfertigung eines Silizium–Streifenzählers mit der optimalen Form

⁽¹⁾Das grundlegende Funktionsprinzip von PIN–Halbleiterzählern ist z. B. in [34] dargestellt.

⁽²⁾kapazitativ gekoppelt oder direkt kontaktiert

und Streifenmaske ist nur für größere Stückzahlen rentabel. Für diesen Experimentaufbau wurde daher bei verschiedenen Herstellern, die auf Halbleiterdetektoren spezialisiert sind, nach vorhandenen Zähler-Konstruktionen gesucht, die die gestellten Anforderungen erfüllen. Die Firma Micron Semiconductor in England konnte einen ringförmigen Detektor mit der passenden Größe und Streifenmaske, komplett in einer Halterung und flexiblen, kaptonisolierten⁽³⁾ Zuleitungen in ihrem Lieferprogramm anbieten. Die technischen Daten sind in Tabelle 4.1 aufgelistet.

Micron Design S2	
Außendurchmesser	70 mm
Lochdurchmesser	20 mm
Sektoren (Rückseite)	16
Ringstreifen (Vorderseite)	48
Streifenbreite	0.5 mm
Streifenzwischenraum	$\approx 20 \mu\text{m}$
Dicke (Verarmungszone)	$1000 \mu\text{m} \pm 100 \mu\text{m}$
Energieauflösung (5 MeV α , Sektorseite)	$< 125 \text{ keV}$

Tabelle 4.1: Technische Daten des ringförmigen Silizium-Streifenzählers der Firma Micron (Design S2)

Der komplette Detektor ist in Abbildung 4.2 dargestellt. Der Außendurchmesser der ringförmigen Struktur beträgt 70 mm, der Lochradius 20 mm. Er hat auf der Vorderseite eine Ringstruktur mit 48 Ringen aus p-leitendem Material und ist auf der Rückseite in 16 Sektoren (n-leitend) unterteilt. Zusammen mit den intrinsischen Halbleitermaterial (Si) dazwischen, entsteht so eine übliche PIN-Struktur für jeden Streifen oder Sektor, bei der mit einer angelegten Spannung in Sperrrichtung der PIN-Diode die Ladungstrennung erfolgen kann. Von der Ringseite erhält man so ein Signal positiver Polarität und von der Sektorseite ein Signal negativer Polarität.

Mit dieser Geometrie ist es möglich, symmetrisch um 45° einen sehr großen Raumwinkel von 2.3 sr zwischen den Streuwinkeln 30° und 60° abzudecken. Der Detektor muß dann 19 mm hinter der Probe positioniert werden, wie in Abbil-

⁽³⁾Kapton ist ein hitzebeständiges Isolationsmaterial, das zur Herstellung von flexiblen Leiterplatten (PCB, "Printed Circuit Board") benutzt wird und vor allem in UHV-Kammern eingesetzt wird

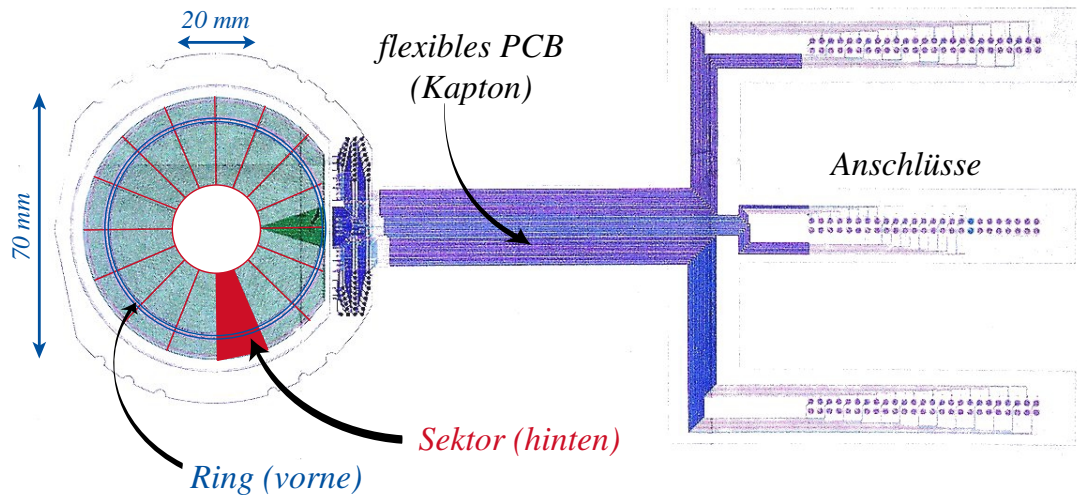


Abbildung 4.2: Ringförmiger Silizium–Streifenzähler in der Halterung mit Zuleitungen (Micron, Design S2 – Pavia)

dung 4.3 skizziert. Die Winkelauflösung beträgt bei der gegebenen Streifenbreite von 0.5 mm im optimalen Fall bei einem Streuwinkel von 60° etwa 6 mrad (0.4°), bei 30° noch 20 mrad (1.2°).

Die Ringe selbst sind nicht unterteilt. Es können aber die Sektoren der Rückseite ausgelesen werden, um die geplante Koinzidenzmessung zu realisieren.

Detektordicke

Silizium–Detektoren können nicht in beliebiger Dicke hergestellt werden. Bei großen Dicken führt die notwendige hohe Sperrspannung zu einem hohen Leckstrom und damit zur Verschlechterung der Energieauflösung. Für dicke Detektoren ist daher ein reines, intrinsisches Halbleitermaterial notwendig, damit die Spannung nicht zu hohen Leckströmen führt. Besonders bei großen aktiven Flächen ($< \text{etwa } 10 \text{ cm}^2$) haben die Detektorhersteller Probleme, reines Halbleitermaterial mit einer Dicke über 1 mm zu produzieren, so daß die Energieauflösung in einem akzeptablen Bereich ($< 2\%$) bleibt.

Die maximale Dicke der Verarmungszone bei angelegter Detektorvorspannung, die von der Firma Micron für den Detektor zugesichert werden kann, beträgt $1000 \mu\text{m} \pm 100 \mu\text{m}$. Dies ergibt allerdings ein Problem bei dem Nachweis von hochenergetischen Protonen, da nur maximal 13 MeV Protonen bei 30° Einfallswinkel (1.2 mm effektive Dicke) gestoppt werden [27]. Unter diesem Winkel werden jedoch Protonen mit 15 MeV gestreut, wenn man eine Protonenenergie

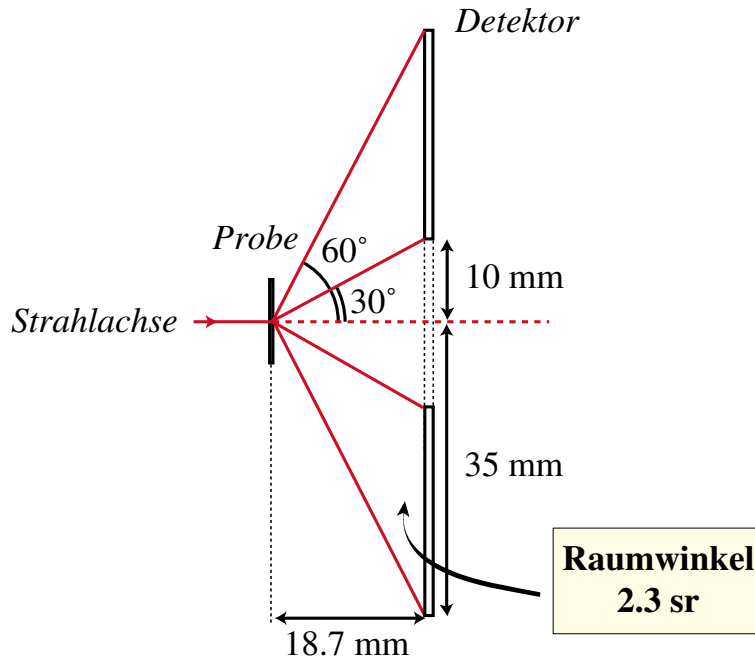


Abbildung 4.3: Positionierung des Detektors (Seitenansicht, maßstabsgetreu)

von $E_0 = 20\text{ MeV}$ verwendet.

Zur Lösung des Problems bei Einsatz dieser Detektorversion muß entweder die Energie der einfallenden Protonen auf unter 18 MeV reduziert werden oder der Raumwinkel hinter dem Detektor mit einem zusätzlichen Restenergiezähler abgedeckt werden. Letzteres wurde in dieser Arbeit mit einem Detektor-Prototyp realisiert.

4.2 Elektronische Signalverarbeitung

Ziel der Wasserstoff-Mikroskopie bei Konzentrationen im 100 ppm -Bereich ist es, die wenigen Hz an Proton-Proton-Streureate aus den übrigen 100 kHz mittels einer Koinzidenzanalyse herauszufiltern. Im folgenden wird ein Konzept für die elektronische Signalverarbeitung beschrieben, das diesen Anforderungen unter Verwendung des geplanten Detektors gerecht wird.

4.2.1 Prinzip der Signalauslese

Energieanalyse

Der Detektor hat mit den 48 Ringen auf der Vorderseite und den 16 Sektoren auf der Rückseite insgesamt 64 Kanäle, deren Signalhöhe zur deponierten Ladung und damit zur Gesamtenergie des detektierten Teilchens etwa proportional ist. Pro Teilchen erhält man so ein Energiesignal sowohl von einem Ring als auch von dem dahinterliegenden Sektor.

Für die Energieanalyse ist es günstiger, die Signale der Ringseite zu verwenden, da die aktive Fläche der einzelnen Ringe kleiner ist und daher aufgrund des niedrigeren kapazitiven Rauschens und geringeren Leckstroms eine bessere Energieauflösung zu erwarten ist. Die hier verwendete Ausleseelektronik (siehe Abschnitt 4.2.2) liefert jedoch ohnehin ein Energiesignal von jedem Kanal, so daß dieser Punkt erst in der Datenanalyse berücksichtigt wird.

Koinzidenzanalyse

Wie in Abschnitt 3.3 erklärt, gibt es mehrere Bedingungen, die für den Proton-Proton-Streuprozeß verifiziert werden können:

1. zeitliche Koinzidenz
2. gegenüberliegende Sektoren
3. Streuwinkel beider Protonen = 90°
4. Summenenergie beider Protonen $E_0 - \Delta E$

Im ersten Einsatz des Detektorsystems wurden die Signale aller Kanäle ausgewertet und die Koinzidenzbedingungen in einer sogenannten Online-Datenanalyse per Software-Programmierung verifiziert (siehe Abbildung 4.4). Nur so ist es nachträglich anhand der gespeicherten Daten möglich, Signalkorrelationen zu analysieren, die Funktion des Elektroniksystems und der Datenaufnahme zu prüfen und herauszufinden, in welchem Maß der Untergrund bei unterschiedlich scharfen Koinzidenzbedingungen reduziert wird.

Startsignal

Das Startsignal für die Datenaufnahme (Trigger) konnte mit der verwendeten Elektronik wahlweise von der Ring- oder der Sektorseite gewonnen werden. Im vorliegenden Fall wurden die Trigger von der Ringseite ausgewertet, wie in Abbildung 4.4 angedeutet

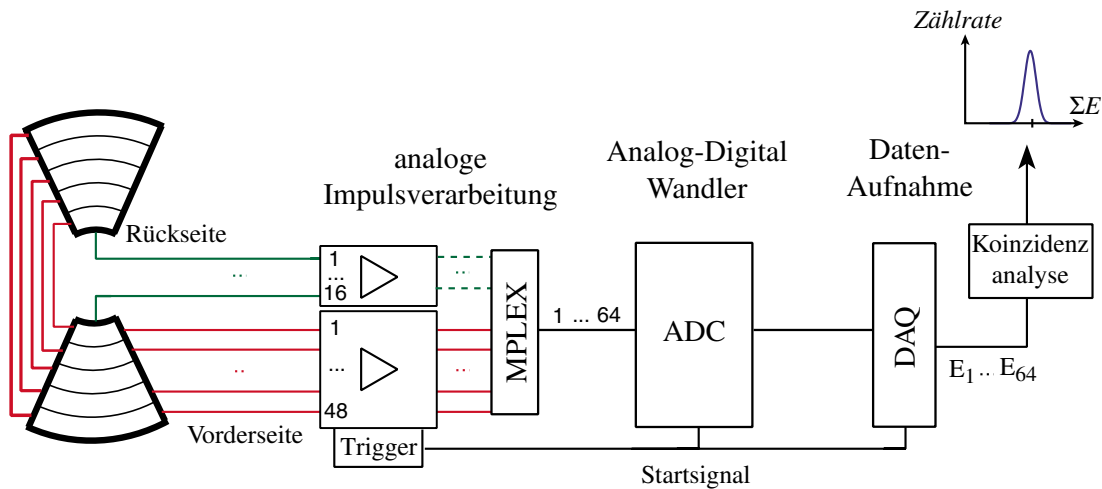


Abbildung 4.4: Prinzip der Signalauslese. Die 16 Signale von der Rückseite (Sektoren) und die 48 Signale von der Vorderseite (Ringe) werden mit einer sogenannten "Multiplex-Ausleseelektronik" sequentiell verarbeitet. Die Koinzidenzanalyse der Proton-Proton-Streuereignisse erfolgt mit den digitalen Daten per Software.

Realisierung

Für die ersten Testexperimente mit dem neuen Detektor wurden für jedes Ereignis alle 64 Signale von den Ringen und Sektoren ausgelesen, gewandelt und von dem Datenaufnahmesystem auf Datenträger gespeichert, um später systematisch per Softwareanalyse die Daten auf Koinzidenzen zu untersuchen. Dazu wurde eine sogenannte Multiplex-Signalauslese verwendet, die im folgenden detailliert beschrieben wird.

4.2.2 Multiplex-Auslesesystem

Der Aufwand für die parallele Auslese von 64 Kanälen ist relativ hoch. Es ist daher sinnvoll, nach einer Lösung zu suchen, die die Anzahl der elektronischen Komponenten reduziert und die möglichen Fehlerquellen einschränkt. Dies ist mit einem sogenannten Analog-Multiplexer zu realisieren, der die parallelen Analog-Signale mit Hilfe von digitalen Bausteinen in eine serielle Signalkette wandelt, so daß sich die Anzahl der benötigten AD-Wandlerbausteine auf einen einzigen reduziert. (siehe Abbildung 4.4)

An diesem Lehrstuhl wurde für einen Implantationszähler zur Untersuchung exotischer Kerne [36] ein kompaktes Ausleseelektronik-System entwickelt, das mit nur geringen Modifikationen für die Auslese der 64 Kanäle des Protonen-

Detektors verwendet werden kann. Damit war es im Rahmen dieser Diplomarbeit möglich, die Signalauslese und Datenaufnahme unter Verwendung eines Detektor-Prototyps zu realisieren, zu erproben und außerdem erste Test-Experimente für die Wasserstoffanalyse durchzuführen.

Aufbau und prinzipielle Funktionsweise

Der prinzipielle Aufbau dieses Systems ist in Abbildung 4.5 mit einem Blockschaltbild der zentralen Komponenten dargestellt. Wie bereits im vorangegangenen Abschnitt angedeutet, handelt es sich dabei um ein sogenanntes Multiplex-System, bei dem die parallelen Signale mittels Digitalelektronik in eine serielle Signalkette gewandelt werden.

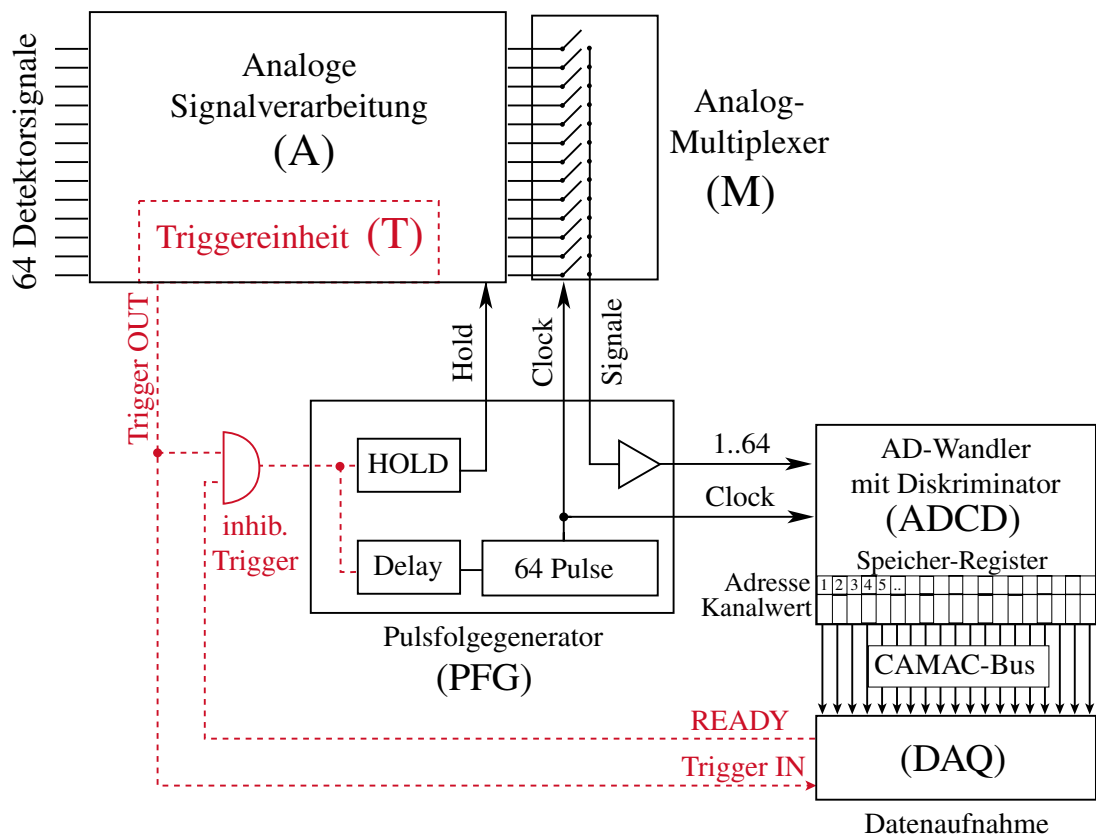


Abbildung 4.5: Blockschaltbild des Multiplex-Ausleseelektronik-Systems (Erläuterungen siehe Text)

Dabei werden die Ladungsimpulse des Detektors von einer *analogen Signalverarbeitungs-Einheit* (A) vorverstärkt und gefiltert. Eine *Triggerstufe* (T) erzeugt bei jedem angesprochenen Kanal oberhalb einer gewissen Schwelle ein Startsignal

für die Datenaufnahme.

Hinter der analogen Signalverarbeitung befindet sich der Analog-Multiplexer (M). Dieser schaltet, gesteuert von einem *Pulsfolgegenerator* (PFG, auch "Sequenzener" genannt), die Maximalwerte des vorverstärkten Signals nacheinander auf den Ausgang.

Ein spezieller *Analog-Digital-Wandler* (ADCD) erhält schließlich vom Pulsfolgegenerator die endverstärkte Signalkette und legt jedes gewandelte Signal zusammen mit einer Adressnummer, die dem jeweiligen Kanal entspricht, als Datum in ein Speicherregister ab (siehe weiter unten).

Diese Daten werden dann von einem *Datenaufnahmerechner* (DAQ) über den CAMAC-Bus⁽⁴⁾ des DAQ-Systems weiterverarbeitet.

Analoge Signalverarbeitung

Die analoge Signalverarbeitung ist modular aufgebaut. In einem Modul sind 8 Kanäle jeweils mit ladungsempfindlichem Verstärker (CSA), Filterverstärkern (FV) und einer sogenannten TRACK & HOLD-Stufe (T/H) integriert (siehe Abbildung 4.6). In einem System können bis zu 10 Module untergebracht werden. Somit können maximal 80 Kanäle parallel ausgelesen werden, wobei für den Protonen-Detektor nur 4 Module für negative Signale der Ringe und 2 Module für die positiven Signale der Sektoren benötigt werden.

Die *CSA-Vorverstärker* haben standardmäßig eine Eingangskapazität von 1 pF und erlauben eine maximale Ladungsdeposition von etwa 10 MeV Si-Äquivalent⁽⁵⁾. Für die Proton-Proton-Streuung mit 20 MeV Protonen muß also die Eingangskapazität entsprechend erhöht werden. Die Spannungsimpulse werden von der anschließenden Verstärkerstufe gefiltert und eine gaußförmige Signalform mit einer Anstiegszeit⁽⁶⁾ von etwa 3–4 μ s generiert.

Die sogenannte *TRACK & HOLD-Stufe* dahinter hat die Aufgabe, den maximalen Spannungswert des gefilterten Signals zu speichern, bis der *Analog-Multiplexer* (MPLEX) diese Werte ausliest. Dazu wird ein Kondensator von dem einkommenden Signal geladen, bis das sogenannte HOLD-Signal des Pulsfolgegenerators die Schalter vor den Kondensatoren aller Kanäle öffnet und die Werte in diesen gespeichert werden. Diese werden schließlich mit der Pulsfolge durch

⁽⁴⁾CAMAC = Computer Applications to Measurement And Control; modulares System zum Aufbau komplexer digitaler Mess- und Steueranlagen mit Rechnerkopplung

⁽⁵⁾1 MeV Si-Äquivalent ist die von einem 1 MeV α -Teilchen in Silizium deponierte Ladung, also etwa 50 fC

⁽⁶⁾10 %–90 % der Maximalhöhe

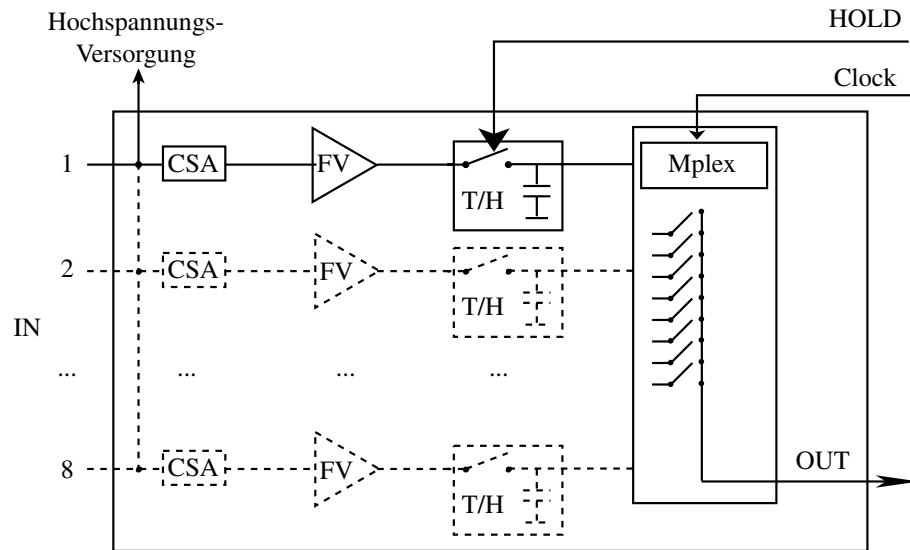


Abbildung 4.6: Blockschaltbild der analogen Signalverarbeitung (einzelnes Modul). In einem Modul sind 8 Kanäle integriert. CSA: ladungsempfindlicher Vorverstärker, FV: Filter–Verstärker, T/H: TRACK & HOLD–Stufe, MPLEX: Analog–Multiplexer.

den Analog–Multiplexer nacheinander an den Ausgang geschaltet.

Die Verzögerungszeit, bevor das HOLD–Signal des Pulsfolgenerators nach einem registrierten Triggersignal den HOLD–Zustand auslöst, muß so eingestellt werden, daß in dem Kondensator gerade der Maximalwert der Spannung des triggernden Kanals gespeichert ist. Dies entspricht der Zeit vom Eintreffen des Ladungsimpulses aus dem Detektor bis zum Maximum des gefilterten Signals (Peaking–Time) und beträgt etwa 3–4 μs (siehe Abbildung 4.7).

Pulsfolgenerator (Sequenz)

Der Pulsfolgenerator (PFG) hat die Aufgabe, bei einem eintreffenden Triggersignal den Analog–Multiplexer mit einer Pulsfolge (*Clock–Sequenz*) anzusteuern und die gefilterten analogen Spannungswerte nacheinander abzurufen. Sie werden dort endverstärkt und schließlich mit der eingestellten *Clock–Frequenz* an den Analog–Digital–Wandler (ADC) geschickt. Für die Clock–Sequenz können bis maximal 2048 Pulse pro Clock–Zyklus eingestellt werden. Hier werden nur 64 Pulse mit zusätzlich 3 Pulsen für die Ansteuerung des ADCs benötigt. Die maximale Clock–Frequenz des Pulsfolgenerators beträgt 2 MHz, wobei die Multiplex–Bausteine nur für etwa 1 MHz spezifiziert sind.

Am Pulsfolgenerator können zusätzlich noch die Endverstärkung und der Offset gemeinsam für alle Kanäle angepaßt werden.

Triggerstufe

Bei der analogen Signalverarbeitung werden nach der Vorverstärkerstufe in jedem Kanal, dessen Signal über die *Triggerschwelle* steigt, ein Triggersignal in Form eines NIM-Pulses (-0.8 V-Rechteckpuls) erzeugt. Pro Modul — also je 8 Kanäle — kann dabei eine variable Triggerschwelle eingestellt werden. Das Triggersignal wird jedoch an einen gemeinsamen Ausgang des Gesamtsystems (max. 10 Module) geschaltet. Eine Koinzidenzschaltung über die Triggersignale der einzelnen Sektoren, wie sie für die Proton-Proton-Streuung sinnvoll ist, bedarf also einer Modifikation der Elektronik an dieser Einheit (siehe auch Kapitel 6).

Der Trigger darf den Pulsfolgegenerator erst starten, wenn die Datenaufnahme bereit ist, neue Daten vom ADC zu empfangen. Beim Eintreffen eines Triggersignals während die Auslese noch nicht beendet ist, werden sonst die Register des ADCs mit neuen Werten überschrieben. Daher muß, wie mit den gestrichelten Linien in Abbildung 4.5 skizziert, das READY-Signal der Datenaufnahme benutzt werden, um den ursprünglichen Trigger der Ausselelektronik freizuschalten. Dieser sogenannte *inhibierte Trigger* wird, wie angedeutet, durch eine Logikschaltung aus den beiden Signalen (Trigger und READY) erzeugt, wie es in Abbildung 4.5 angedeutet ist.

Analog-Digital-Wandlung und Datenaufnahme

Für die Wandlung der analogen Signale wird ein speziell angepaßtes CAMAC-ADC-Modul mit Diskriminatorstufe (ADCD 9701) verwendet.⁽⁷⁾ Der besondere Vorteil ist die Möglichkeit zur Datenreduktion durch die eingebaute Diskriminatorstufe.

Dabei werden die Daten, die ein AD-Wandler aus der seriellen Signalkette generiert, mit einer programmierbaren Schwelle verglichen und nur die Daten in dem Ausleseregister abgelegt, die oberhalb dieser Schwelle liegen. Für die Zuordnung der Kanäle zu den gewandelten Werten werden die Kanalnummern als Adresse in einem zusätzlichen Register gespeichert. Ein Datum besteht somit aus Kanalnummer und Signalwert. Es ist sogar möglich, die Schwelle getrennt für jeden Kanal festzulegen.

Der ADC selbst wandelt mit 12 bit-Auflösung. Das Modul besitzt 2×2048 Register, so daß maximal 2048 Kanäle mit Adresse gespeichert und ausgelesen werden können.

⁽⁷⁾Das Modell ADCD 9701 wurde von der Elektronikabteilung der TU München speziell für die Anforderungen der Vielkanal-Signalauslese konstruiert und hergestellt.

4.2.3 Grenzen bei der Signalauslese

Zählrate

Bei der maximalen Clock-Frequenz von 1 MHz dauert ein Zyklus für die Verarbeitung von 64 Kanälen minimal $64 \mu\text{s}$, zuzüglich einigen μs zum Starten der Clock-Sequenz. Damit ist von Seiten der Ausleseelektronik bei etwa 10 kHz eine Grenze für die Zählrate gesetzt, wenn alle Kanäle ausgelesen werden. Eine Lösung wird im Ausblick (Kapitel 6) vorgeschlagen.

Übersprechen in der Signalkette

In einem ersten Systemtest mit einem Prototypdetektor konnte festgestellt werden, daß ein 10 prozentiges Übersprechen der Signale auf den jeweiligen nachfolgenden Kanal schon bei Clock-Frequenzen von 1 MHz beobachtbar sind.

Dieses Übersprechen wird durch einen zu langsamen Abfall der Signale während eines Clock-Pulses in der Signalkette verursacht. Das Problem kann jedoch prinzipiell durch Verwendung schnellerer digitaler Bausteine des Analog-Multiplexers korrigiert werden.

Ebenso ist eine Optimierung der Clock-Frequenz durch eine Modifikation dieser Digitalelektronik möglich. Die maximale Clock-Frequenz, die der ADCD verarbeiten kann, ist 10 MHz.

Rücksprechen der Multiplex-Bausteine

Ein weiteres Problem, das generell bei der Verwendung von Analog-Multiplexern auftritt, ist das Rücksprechen der Auslese auf den Detektor, verursacht durch die Schaltvorgänge in der TRACK & HOLD-Stufe. Dadurch werden während der Auslese unerwünschte Trigger erzeugt, die wie oben beschrieben unbedingt mittels einer Inhibierungstufe unterdrückt werden müssen und bei einer Beurteilung der tatsächlichen, physikalischen Triggerereignisse entsprechend subtrahiert werden müssen. In dem ersten Testexperiment, das im folgenden Kapitel beschrieben wird, wurde festgestellt, daß die Triggerrate bei Zählraten von einigen kHz etwa einen Faktor zwei über der realen Zählrate liegt.

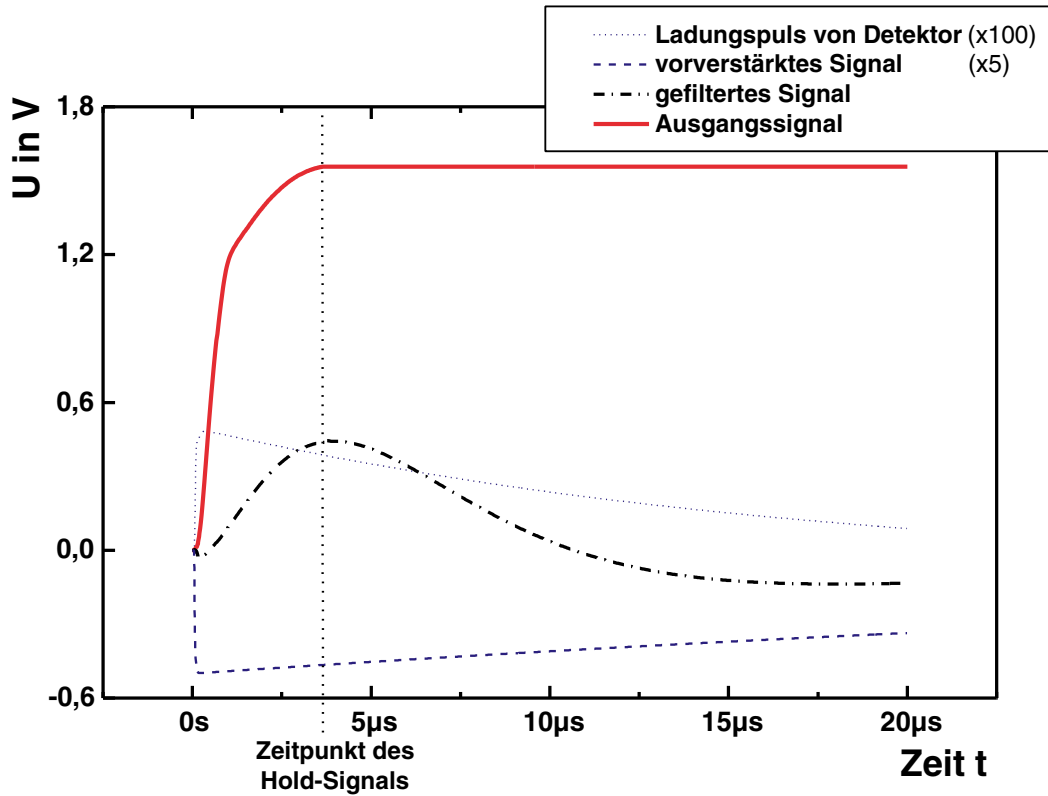


Abbildung 4.7: Zeitlicher Verlauf der analogen Signale. Dargestellt sind der Spannungsverlauf an der Eingangskapazität des Vorverstärkers (Detektorsignal, dünn gestrichelt), hinter dem Vorverstärker (vorverstärktes Signal, dick gestrichelt), des gefilterten Signals (Strichpunkt) und des Ausgangssignal (dicke Linie). Beim Eintreffen des HOLD-Signals werden die Schalter der T&H-Stufe geöffnet und der aktuelle Spannungswert gespeichert.

Kapitel 5

Erste Experimente zur Proton–Proton–Streuung mit einem Detektor–Prototyp

Für einen Test des neuen Detektorsystems wurden am Münchener Tandembeschleuniger erste Messungen durchgeführt, mit dem Ziel, die Signalverarbeitung und das Datenaufnahmesystem zu erproben und Proton–Proton–Streueignisse mittels Koinzidenzanalyse nachzuweisen. Im folgenden werden der Aufbau und die Testbedingungen am SNAKE–Experimentierplatz beschrieben und anschließend die erreichten Meßergebnisse diskutiert.

5.1 Aufbau des Testexperiments

5.1.1 Detektor–Prototyp

Der geplante, 1 mm dicke Silizium–Ringstreifendetektor konnte nicht zu dem vorgesehenen Datum hergestellt und geliefert werden. Es wurde jedoch ein baugleicher, 300 μm dicker Zähler aus dem Lagerbestand der Firma Micron Semiconductor für die ersten Tests angefordert und für den Einsatz vorbereitet. Für die Messung der Gesamtenergie der Protonen bei den geplanten Projektilenergien von 20 MeV ist diese Dicke jedoch nicht ausreichend, da nicht alle gestreuten Protonen im Winkelbereich des Detektors zwischen 30° und 60° vollständig gestoppt werden. Abgesehen von einem Energieverlust in der Probe werden in diesem Winkelbereich die gestreuten Protonen im Energiebereich zwischen 5 MeV und 15 MeV emittiert. Von der effektiven Dicke des 300 μm –Detektors werden nur die Protonen von $\theta = 60^\circ$ ($E_1 = 5$ MeV) bis etwa $\theta = 50^\circ$ ($E_1 = 8$ MeV) gestoppt.

15 MeV Protonen haben in Silizium etwa eine Reichweite von $1400 \mu\text{m}$ [27].

Zur Messung der Restenergie wurde daher der Raumwinkel hinter dem ringförmigen Zähler so großflächig wie möglich mit Silizium-Zählern ausreichender Dicke ausgefüllt. Hierzu wurden zwei 1 mm dicke, rechteckige Silizium-Streifen-zähler mit einer Breite von 35 mm und einer Höhe von 60 mm verwendet.⁽¹⁾ Diese wurden auf einer Justage-Plattform in Strahlrichtung hinter dem ringförmigen Detektor positioniert und als zusätzliche Kanäle an die in Kapitel 4 beschriebene Signalauslese angeschlossen. Abbildung 5.1 zeigt ein Foto des montierten Detektors auf der Justage-Plattform. Dahinter verdeckt stehen im schrägen Winkel die zwei 1 mm dicken Restenergie-Detektoren.

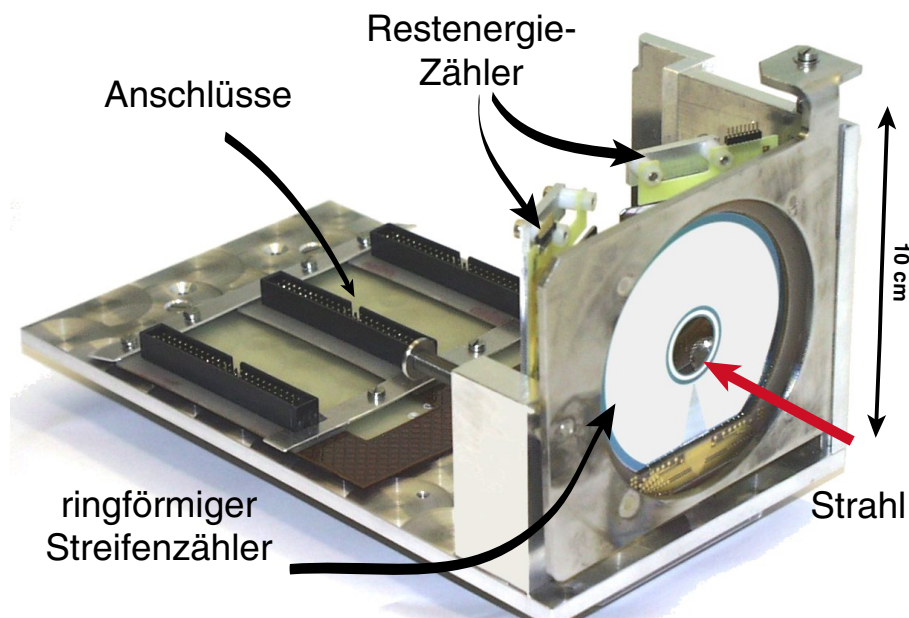


Abbildung 5.1: Foto des montierten Detektor-Prototyps. Der ringförmige $300 \mu\text{m}$ dicke Si-Streifenzähler steht mit der Ringstreifenseite zum Strahl gewandt (Ringe können nicht mehr aufgelöst werden) und wird zur Positionierung im Strahlengang in einer Halterung befestigt, die in alle drei Raumrichtungen justiert werden kann. Die Zuleitungen auf der flexiblen Platine sind auf der Montage-Plattform fixiert, um ein Brechen der kaptonisierten Kupferbänder an den Sollbruchstellen zu vermeiden. Hinter dem ringförmigen Zähler verdeckt stehen die zwei 60 mm auf 35 mm großen und 1 mm dicken Restenergiezähler (Si-Halbleiter mit PIN-Struktur).

⁽¹⁾Aus dem Bestand der Arbeitsgruppe zur Untersuchung exotischer Kerne [36] wurden diese freundlicherweise zur Verfügung gestellt.

5.1.2 Detektormontierung in der Experimentierkammer

Für die ersten Tests wurde — wie es auch für den endgültigen Protonendetektor zur Wasserstoffanalyse vorgesehen ist — der Mikrostrahl des Raster-Ionenmikroskops SNAKE mit einer Protonenenergie von 20 MeV verwendet. Dazu wurde der Detektor-Prototyp in der Hochvakuum-Experimentierkammer auf einer Plattform mit Justagemontierung hinter dem Fokuspunkt der supraleitenden Linse positioniert. Dies ist in Abbildung 5.2 skizziert. Um den Detektor vor Strahlenschäden während der Strahlausrichtung zu schützen ist die Justageplattform drehbar gelagert und kann aus dem Strahl gefahren werden, so daß die 5 mm dicken Seitenwände aus Aluminium den Detektor zum Fokuspunkt komplett verdecken (siehe Abbildung 5.2 unten).

5.1.3 Signalauslese

Die 64 Signale des ringförmigen Detektors und die zwei Restenergiesignale wurden über hochvakuumtaugliche SUB-D-Durchführungen⁽²⁾ nach außen geführt und mit den Vorverstärkereingängen der analogen Ausseelektronik (siehe Abschnitt 4.2.2) verbunden. Die endverstärkte Signalkette des analogen Vielkanal-Multiplexers wurden zur Weiterverarbeitung durch das Datenaufnahmesystem bipolar zur Meßbox geführt. Der in Abschnitt 4.2.2 beschriebene AD-Wandler (ADCD 9701) konnte dabei ohne Probleme in das Datenaufnahmesystem⁽³⁾ des Beschleunigerlabors integriert werden.

Für jedes Triggerereignis, das von den 48 Ringen der Vorderseite des Detektors ausgelöst wird, erhält der AD-Wandler 64 Signale von dem ringförmigen Zähler und zusätzlich die zwei Restenergiesignale. Die Schwelle des eingebauten Diskriminators wurde so eingestellt, daß sie für alle Kanäle oberhalb des Nullrauschens liegt. Damit erhält die Datenaufnahme nur die Daten⁽⁴⁾ der Kanäle, deren Signalhöhe über diese Schwelle reicht und so ein tatsächliches Ereignis im Sinne eines eingetroffenen Teilchens darstellen. Für die nicht angesprochenen Kanäle wird der Signalwert von der Datenaufnahme auf Null gesetzt.

⁽²⁾genormte Steckerverbindung zur Kontaktierung mehrpoliger Signale

⁽³⁾MBS and ROOT Based Online/Offline Utility "Marabou"

⁽⁴⁾Ein Datum besteht aus Kanalnummer und zugehörigem Kanalwert.

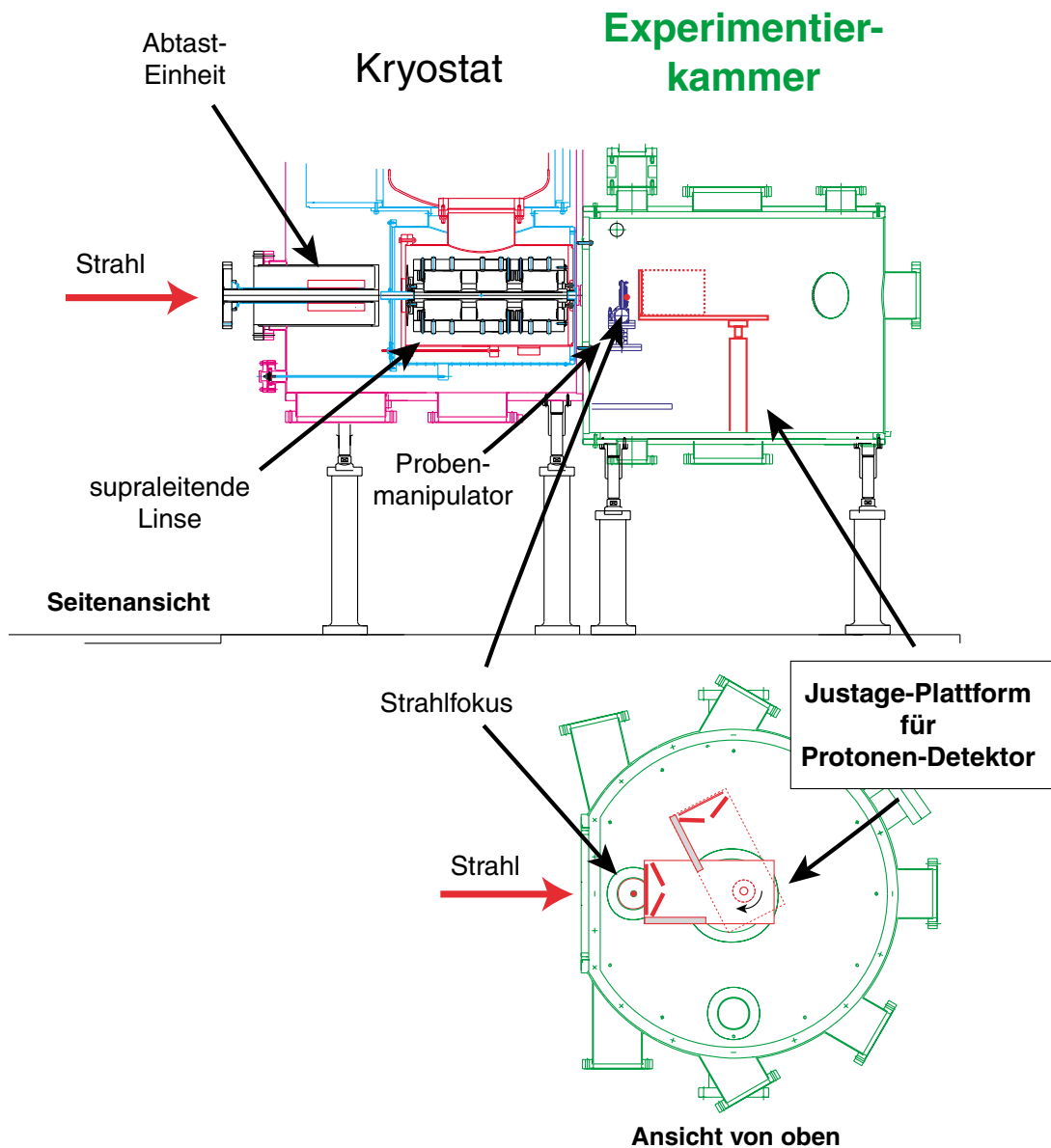


Abbildung 5.2: Aufbau des Detektor-Prototyps mit Restenergiezählern auf der Justage-Montierung. In der Seitenansicht oben ist links der Kryostat mit der supraleitenden Linse für die Strahlfokussierung zu sehen. Die Abtast-Einheit davor wird benutzt, um den Strahl über die Probe zu rastern. Rechts davon befindet sich die Experimentierkammer. Eingezeichnet sind Teile des Probenmanipulators zur Positionierung der Probe und die Montierung des Protonen-Detektors. Zum Schutz vor Strahlenschäden kann der Detektor bei Bedarf zur Seite gedreht werden, so daß eine 5 mm dicke Aluminiumwand den Detektor zum Fokuspunkt hin verdeckt, wie in der Draufsicht darunter zu erkennen ist.

5.1.4 Testbedingungen

Die Messungen wurden mit einem 20 MeV-Protonenstrahl bei einem Strahlstrom der Größenordnung 10 pA und einem Strahlfleckdurchmesser von etwa 100 μm durchgeführt. Der Mittelpunkt des ringförmigen Detektors konnte mit einem Fernrohr im Strahlengang auf etwa ± 1 mm genau auf den Mittelpunkt der optischen Achse justiert werden. Zusätzlich muß eine Abweichung der tatsächlichen Strahlachse von der optischen Achse um ± 1 mm angenommen werden, da im nachhinein eine Dejustierung des Fernrohres festgestellt wurde. Zusammen muß hier also eine Ungenauigkeit von $\sigma \approx 1.5$ mm angenommen werden. Die Positionierung in Strahlrichtung konnte mit einer Genauigkeit von ± 1 mm auf die Sollposition (18.7 mm hinter dem Fokuspunkt) erfolgen. Dies verursacht zusammen einen maximalen Fehler in der Streuwinkelbestimmung von 2° ($\theta = 60^\circ$) bis 4° ($\theta = 30^\circ$). Dazu muß berücksichtigt werden, daß die einzelnen Ringe bei der Sollposition mit der Ringbreite von 0.5 mm eine Winkelöffnung von 0.4° bei $\theta = 60^\circ$ bis 1.2° bei $\theta = 30^\circ$ haben.

Die Kalibrierung des Detektors und der Elektronik mit einer ^{241}Am -Quelle ergab eine Gesamtenergieauflösung⁽⁵⁾ von ca. 1 % für die Signale von den 48 Ringen und etwa 3 % jeweils für die 16 Sektorsignale. Für einen Restenergie-Detektor konnte eine Auflösung von 2 % erreicht werden. Bei dem anderen Restenergie-detektor mußte aufgrund eines hohen Leckstromes eine schlechte Auflösung von 5 % hingenommen werden.

5.2 Nachweis der Proton-Proton-Streuung

Für einen ersten Test wurde eine 375 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ Kapton-Folie als Target in den Fokuspunkt des Mikrostrahls gebracht. Kapton ($\text{C}_{22}\text{H}_{14}\text{O}_7\text{N}_2$) enthält 31 % (at) Wasserstoff. Mit einem Strahlstrom von etwa 10 pA können mit 20 MeV-Protonen und einem elastischen Streuquerschnitt von 100 mb/sr Zählraten der Proton-Proton-Streuereignisse in der Größenordnung von 10 Hz in dem Detektorraumwinkel von rund 2 sr erwartet werden. Die Gesamtzählrate im Ringstreifendetektor aller Streuereignisse lag bei 100 Hz. Dies ist in erster Näherung die Rate, die mit Streuquerschnitten von Protonen an Kohlenstoff, Sauerstoff und Stickstoff⁽⁶⁾ abgeschätzt werden kann. Somit sollte bei 10 % Koinzidenzrate eine Koinzidenzanalyse ohne Probleme möglich sein. Die hier diskutierten Spektren wurden mit

⁽⁵⁾FWHM, für 5.5 MeV α -Teilchen

⁽⁶⁾Diese liegen in den betrachteten Winkeln zwischen 20 mb/sr und 300 mb/sr [25]

ca. 1 h Meßzeit aufgenommen.

Ziel der Messung war es, die Funktionsfähigkeit des Detektorprinzips unter Beweis zu stellen und erste Koinzidenzereignisse nachzuweisen. Ferner sollte überprüft werden, wie stark sich eine Variation der Koinzidenzbedingungen auf die Reduzierung der Untergrundzählrate bzw. auf die Koinzidenzrate auswirkt. Mögliche Koinzidenzbedingungen sind dabei beispielsweise:

- gleichzeitiger Treffer in unterschiedlichen Ringen (Ring-Multiplizität = 2)
- gleichzeitiger Treffer in verschiedenen Sektoren (Sektor-Multiplizität = 2)
- Treffer in gegenüberliegenden Sektoren
- Winkelsumme beider Protonen $\approx 90^\circ$
- Energiesumme von zwei Protonen $\approx E_0$ ⁽⁷⁾

Mit "Treffer" ist dabei gemeint, daß ein Teilchen in einem bestimmten Kanal ein Signal hervorgerufen hat, das über einer festgelegten Schwelle liegen muß. Zusätzlich zur elektronischen Diskriminator-Schwelle der ADCD-Einheit kann diese Schwelle dabei nachträglich in der Datenanalyse verändert werden und für die Sektoren oder die Ringe getrennt festgelegt werden. Sie sollte auf jeden Fall über dem maximalen Nullrauschen der Kanäle liegen.⁽⁸⁾ Die Schwelle wurde hier für alle Ringe und Sektoren auf etwa 1.8 MeV gesetzt. (Für die Restenergie wurde keine Schwelle eingeführt.)

Ein "Ereignis" im Sinne der Datenanalyse ist definiert als die Gesamtheit aller Treffer im Detektor bei einem Triggersignal. Die Anzahl der Ring- bzw. Sektor-Treffer in einem Ereignis ergibt so die "Ring- bzw. Sektor-Multiplizität" m_R bzw. m_S .

5.2.1 Gesamtenergiespektrum

Den Wert für die Gesamtenergie eines Ereignisses erhält man aus der Summe der kalibrierten Energiewerte aller Ring-Treffer E_{Ring} und der Treffer in den Rest-

⁽⁷⁾Der Energieverlust kann hier noch vernachlässigt werden. Eine $375 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ Krypton-Folie verursacht bei den betrachteten Energien nur Energieverluste der Protonen von wenigen keV [31].

⁽⁸⁾Um zusätzlich das Übersprechen von benachbarten Kanälen zu unterdrücken, sollte diese Schwelle sogar über dem Übersprechsignal liegen. Für den Detektor-Prototyp war das Übersprechen auf nachfolgende Kanäle unterhalb von 10 %.

energiedetektoren E_{Rest1} bzw. E_{Rest2} :

$$E_{\text{tot}} = \sum (E_{\text{Ring}})_{1\dots 48} + E_{\text{Rest1}} + E_{\text{Rest2}} \quad . \quad (5.1)$$

In Abbildung 5.3 oben ist ein Gesamtenergiespektrum ohne Koinzidenzbedingung für die Messung mit der Kaptonfolie gezeigt. Darin sind folglich sowohl Ereignisse mit Einfach- und Zweifachtreffern als auch Ereignisse mit beliebigen höheren Multiplizitäten enthalten.

Die maximal deponierbare Energie von einzelnen Protonen, die den vorderen Detektor und den Restenergiezähler treffen, liegt bei etwa 16 MeV. Eine höhere Gesamtenergie ist also nur durch Multiplizitäten größer oder gleich 2 möglich. Der kleine Peak bei einer Gesamtenergie von etwa 20 MeV ist folglich ein erster Hinweis auf Zweifachkoinzidenzen der elastischen Proton-Proton-Streuung. Integriert über das gesamte Spektrum erhält man $2.4 \cdot 10^5$ Einträge. Das Energieintervall von 18 MeV bis etwa 22 MeV, in dem die Proton-Proton-Streuereignisse zu erwarten sind, enthält noch etwa $1 \cdot 10^4$ Ereignisse.

5.2.2 Multiplizitäten

Um die Ereignisse der Proton-Proton-Streuungen herauszufiltern, muß die Bedingung erfüllt werden, daß in einem, von der Ausleseelektronik festgelegten Zeitfenster von etwa $3 \mu\text{s}^{(9)}$ genau zwei Treffer stattgefunden haben. Koinzidenzen höherer Ordnung (4, 6 oder mehr gleichzeitige Treffer) können hier bei den zu erwartenden Proton-Proton-Streuraten von unter 100 Hz in erster Näherung vernachlässigt werden. Somit sind für den verwendeten Detektor zwei primäre Möglichkeiten zur Ereignisfilterung gegeben:

- Auswahl nach Ring-Multiplizität $m_R = 2$
- Auswahl nach Sektor-Multiplizität $m_S = 2$

Die erste Möglichkeit hat den Nachteil, daß zwei gleichzeitige Treffer desselben Streuwinkels nicht registriert werden, da die Ringe nicht unterteilt sind. Alle Proton-Proton-Streuungen in dem 45° -Ring würden somit verlorengehen. Für die Auswahl nach Sektor-Multiplizitäten ist dieses Problem unkritisch, weil die Streuteilchen generell in verschiedene Hälften des Detektors gestreut werden. Hier wird also im folgenden die Auswahl der Koinzidenzen nach Sektor-Multiplizitäten erreicht.

⁽⁹⁾Zeit vom Eintreffen eines Signals bis zum Auslösen des Hold-Signals

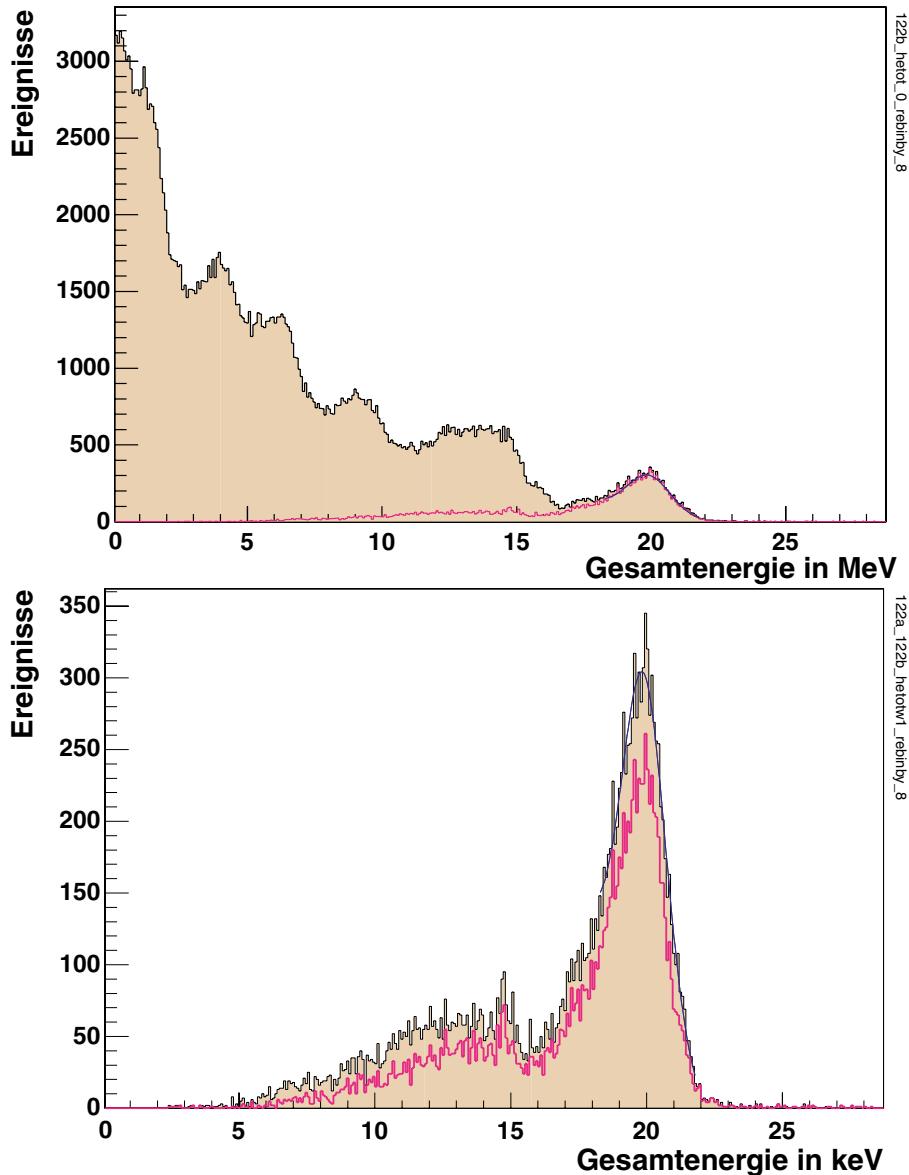


Abbildung 5.3: Gesamtenergiespektrum mit und ohne Koinzidenzbedingung bei Bestrahlung der Kaptonfolie eine Stunde lang mit etwa 10 pA. Aufgetragen sind jeweils die Anzahl der Ereignisse gegen die Gesamtenergie E_{tot} , gebildet aus der Energiesumme der Ringenergien E_{Ring} und der Restenergien E_{Rest} aller Treffer des Ereignisses.

Oberes Bild: Spektrum der ungefilterten Ereignisse (grau hinterlegt). Überlagert dazu die Ereignisse mit genau zwei Sektortreffern $m_S = 2$ (untere Linie).

Unteres Bild: Spektrum der Ereignisse mit genau zwei Sektor-Treffern $m_S = 2$ vergrößert (grau hinterlegt). Zusätzlich überlagert die Ereignisse in gegenüberliegenden Sektoren (untere Linie).

In dem unteren Gesamtenergiespektrum von Abbildung 5.3 sind nur die Ereignisse mit Zweifach-Sektortreffern eingetragen, also die Ereignisse, bei denen $m_S = 2$ ist. Die Gesamtausbeute reduziert sich auf etwa 6 % ($1.6 \cdot 10^4$ Treffer). Bei einer Wasserstoffkonzentration des Kaptons von 31 % und unter der Annahme, daß die Streuquerschnitte für alle Streuprozesse annähernd gleich sind, ergibt sich daraus eine Effizienz der Messung von mindestens 20 %.

Im Spektrum bleibt im wesentlichen der 20 MeV-Peak vom oberen Spektrum übrig. Der lange Ausläufer zu niederen Energien wird durch Ereignisse verursacht, die zwar die Koinzidenzbedingung $m_S = 2$ erfüllen, aber eines oder beide Protonen an den Restenergiezählern vorbeifliegen. Dies wurde bestätigt, indem die Ereignisse auf diejenigen beschränkt wurden, die beide Restenergiezähler treffen ($m_{Rest} = 2$).

Das Maximum liegt bei 19.8 MeV mit einer Breite von 1.9 MeV (FWHM). Für die Summenenergie der Ereignisse aus Proton-Proton-Streuprozessen erwartet man einen deutlich schärferen Peak bei 20 MeV. Die schlechte Detektorauflösung von über 500 keV pro Protonpaar reicht noch nicht aus, um diese Breite zu erklären. Mit weiteren Hinweisen aus den anderen Detektorsystemen wird vermutet, daß Probleme durch eine verrutschte Aluminiumfolie im Strahlengang zu einer sehr schlechten Strahlqualität mit einer Energiebreite von 10 % geführt haben. Dies würde auch die deutliche Asymmetrie des Peaks zu niederen Energien hin erklären.

5.2.3 Sektorkoinzidenz

Zufällige Koinzidenzen verursachen einen Untergrund im Koinzidenz-Spektrum. Dieser hängt zum einen von dem Zeitfenster ab, in dem zwei Teilchen gleichzeitig ein Energiesignal in der Ausleseelektronik hervorrufen (hier $3 \mu\text{s}$). Zum anderen bestimmt die Zählrate in der Fläche, die für zufällige Koinzidenzen zur Verfügung steht, die Wahrscheinlichkeit für koinzidente Treffer. Mit der Zählrate von maximal 100 Hz auf der gesamten Detektorfläche erhält man so eine geringe Untergrundrate von 0.03 %.

Dies spielt bei höheren Gesamtzählraten von über 10 kHz eine Rolle, wenn die Rate der zufälligen Koinzidenzen im betrachteten Fall bei 3 % der gesamten Rate liegt. Hier wird es notwendig, die Fläche zu verringern, auf der Koinzidenzen eintreffen dürfen. Dazu besteht mit dem verwendeten Detektor die Möglichkeit, die Unterteilung in 16 Sektoren zu nutzen und die Koinzidenzbedingung der "gleichzeitigen" Sektortreffer auf Treffer in direkt gegenüberliegende Sektoren einzuschränken.

Dadurch wird die Fläche und damit die Rate für zufällige Koinzidenzen um den Faktor $1/16$ reduziert und zugleich gewährleistet, daß im wesentlichen nur Koinzidenzereignisse mit einer gemeinsamen Streuebene⁽¹⁰⁾ registriert werden. (Mit 16 Sektoren wird somit noch eine Abweichung von der Streuebene um maximal 22.5° zugelassen, falls der Mittelpunkt des Detektors exakt auf die Strahlachse positioniert ist.)

Diese Einschränkung verringert im Gesamtenergiespektrum von Abbildung 5.3 die Gesamtausbeute auf 5 % der Gesamtzählrate ($1.2 \cdot 10^4$) (überlagerte Linie im Spektrum $m_S = 2$ des unteren Bildes von Abbildung 5.3). Diese Verschärfung der Koinzidenzbedingung reduziert also die Ausbeute von ursprünglich $1.6 \cdot 10^4$ Koinzidenzereignissen um etwa 25 %. Ob es sich dabei tatsächlich um eine Unterdrückung des Untergrundes handelt, der durch zufällige Koinzidenzen entstanden ist, muß im folgenden geklärt werden.

Durch eine falsche Positionierung des Detektors dezentral zur Strahlachse können mit der Einschränkung auf direkt gegenüberliegende Sektoren auch Proton-Proton-Streuereignisse "verlorengehen", wenn die Streuebene nicht diese beiden Sektoren schneidet. Dies kann mit einer Abschwächung der Koinzidenzbedingung getestet werden, indem benachbarte Sektoren in Dreiergruppen zusammengefaßt werden, die dem jeweiligen Sektor gegenüberliegt. Dabei erhöht sich die Anzahl der Koinzidenzereignisse jedoch von 75 % auf 95 % der Ausbeute von $1.6 \cdot 10^4$ Ereignissen ohne Sektorkoinzidenz, obwohl die für zufällige Koinzidenzen zur Verfügung stehende Fläche von $1/16$ auf $3/16$ der ringförmigen Detektorfläche erhöht wird. Damit werden also bei Berücksichtigung der direkt gegenüberliegenden Sektoren nicht nur zufällige Koinzidenzen, sondern auch ein Großteil der dezentralen Proton-Proton-Streuereignisse unterdrückt. Es ist daher sinnvoll, die Koinzidenzbedingung der gegenüberliegenden Sektortreffer durch Zusammenfassen jeweils dreier Sektoren abzuschwächen.

5.2.4 Winkelkoinzidenz

Eine weitere Möglichkeit, den Untergrund durch zufällige Koinzidenzen zu untersuchen, ist die Analyse der Winkelsumme bei Ereignissen mit genau zwei Sektortreffern ($m_S = 2$). Dabei werden in der Datenanalyse die Ringnummern über den Sollabstand von 18.7 mm des Detektors vom Fokuspunkt in die entsprechenden Streuwinkel umgerechnet. Diese werden jeweils für jeden über der Schwelle an-

⁽¹⁰⁾Die Streuebene ist die Ebene, die durch die Impulsvektoren des gestreuten Projektilteilchens und des rückgestreuten Teilchens aufgespannt wird.

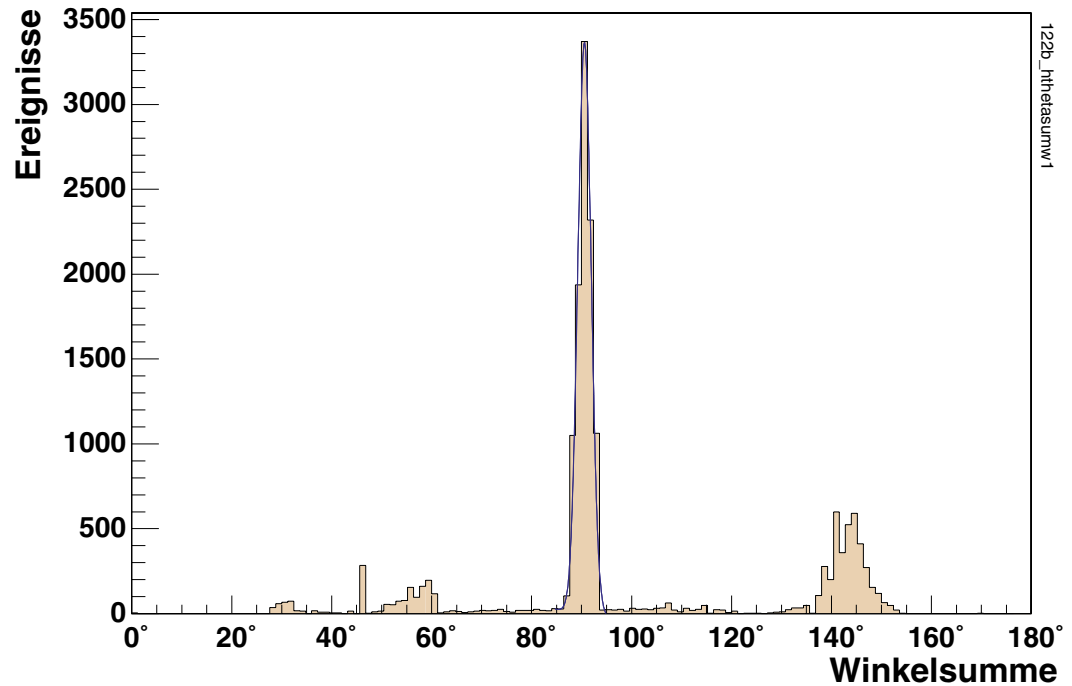


Abbildung 5.4: Winkelsummenspektrum bei Zweifach-Treffern. Aufgetragen ist die Anzahl der Ereignisse, die die Bedingung "Sektor-Multiplizität $m_S = 2$ " erfüllen, gegen die Winkelsumme $\theta_1 + \theta_2$ der beiden Treffer in einem Ereignis.

gesprochenen Ring addiert. Jedes Ereignis erhält so einen Eintrag im Spektrum bei der berechneten Winkelsumme. Ein solches Winkelsummenspektrum ist in Abbildung 5.4 gezeigt.

Bei $\theta_1 + \theta_2 = 90^\circ$ ist ein deutlicher Peak mit einer Breite von 4° (FWHM) zu erkennen. In dem Bereich von 85° bis 95° , in dem die Proton-Proton-Streueignisse zu erwarten sind, liegen etwa 60 % des Gesamteintrags.

Allerdings kommt es durch zwei unterschiedliche Effekte auch zu Einträgen der Proton-Proton-Streuung außerhalb dieses Bereichs. Zum einen ist bei größeren Streuwinkeln durch den schrägen Einfallswinkel eines Protons in den Detektor die Wahrscheinlichkeit größer, daß zwei benachbarte Ringe gleichzeitig ansprechen und zu einem zusätzlichen Winkelterm führen. Dies führt zu dem leichten Anstieg bei Winkelsummen zu 150° hin. Alle Ereignisse in diesem Bereich von 120° bis 150° haben tatsächlich eine Ring-Multiplizität $m_R = 3$ und erfüllen die Bedingung gegenüberliegender Sektoren. Zum anderen kommt es aufgrund einiger defekter Ringe⁽¹¹⁾ zu Einträgen koinzidenter Treffer im Winkelbereich von 30°

⁽¹¹⁾Aufgrund eines zu hohen Leckstromes konnten die Ringe Nummer 6 ($\approx 35^\circ$), 18 ($\approx 45^\circ$) und 47 mit 48 ($\approx 60^\circ$) nicht angeschlossen werden.

bis 60° , bei denen nur ein Winkel beider Protonen zur Summe beitragen konnte. Die Treffer dieser Ereignisse liegen ebenfalls in gegenüberliegenden Sektoren, wobei die Ring-Multiplizität $m_R = 1$ ist.

Die Winkelbedingung verringert die Fläche, die zu zufälligen Koinzidenzen führen kann, nochmal um einen Faktor, je nachdem, welches Winkelintervall in der Summe akzeptiert wird. In diesem Fall werden bei 10° etwa 5–10 Ringe zusammengefaßt, damit erreicht man also mit den 48 Ringen eine Unterdrückung des Untergrundes um einen zusätzlichen Faktor 1/10 bis 1/5.

Bei den Zählraten um 100 Hz und dem Zeitfenster von $3 \mu\text{s}$ erhält man in dieser Abschätzung mit der Koinzidenzbedingung $m_S = 2$ und gegenüberliegenden Sektoren einen Untergrund von unter 10 Ereignissen in der gemessenen Zeit, mit der Winkelbedingung alleine werden auch nicht mehr als 10 Untergrundereignisse erwartet. Werden beide Koinzidenzbedingungen zugleich angewendet, so erhält man eine völlig untergrundfreie Messung mit einer Wahrscheinlichkeit für zufällige Koinzidenzen von unter 10^{-5} .

5.2.5 Nachweisgrenze

Zum Test der Nachweisgrenze wurde ein Germanium-Halbleiterwafer mit $100 \mu\text{m}$ Dicke 15 min lang bestrahlt. Die Zählrate lag bei etwa 2 kHz ($2 \cdot 10^6$ Ereignisse). Mit dem Zeitfenster von $3 \mu\text{s}$ ergibt sich bei der maximalen Koinzidenzbedingung mit gegenüberliegenden Sektoren (Dreiergruppen) und dem Winkelintervall von $85^\circ - 95^\circ$ ein Untergrund von unter 500 zufälligen Ereignissen⁽¹²⁾.

Die Analyse der Proton-Proton-Streuung mit den genannten Koinzidenzbedingungen liefert 680 Ereignisse. Dies liegt signifikant über der abgeschätzten Untergrundrate. Unter der Annahme, daß die Streuquerschnitte für die Einzel-Proton-Streuungen und die Proton-Proton-Streuungen ungefähr gleich sind, kann so eine relative Konzentration von unter 100 ppm abgeschätzt werden. Mit der in Abschnitt 5.2.2 aus der Messung mit der Kaptonfolie errechneten minimalen Effizienz von 20 % ergibt sich so eine Nachweisgrenze von unter 500 ppm.

Dieser Wert zeigt schon die Perspektiven für einen empfindlichen Wasserstoffnachweis im ppm-Bereich. Für die Steigerung der Effizienz und Reduzierung der Untergrundrate sind jedoch noch einige Verbesserungen an der Ausleseelektronik notwendig, so daß zum einen das Zeitfenster für die Koinzidenzen verkleinert und zum anderen die mögliche Zählrate deutlich gesteigert werden kann.

⁽¹²⁾Für die Abschätzung der oberen Grenze wurde der Unterdrückungsfaktor 1/5 für die Winkelkoinzidenz und der Faktor 3/16 für die Sektorbedingung verwendet.

5.3 Test der Tiefenprofilmessung

Für einen abschließenden Test des Prinzips der Tiefenprofilanalyse, wie sie in Abschnitt 3.4 beschrieben ist, wurden die Vorder- und Rückseite eines $250\ \mu\text{m}$ dicken Siliziumhalbleiterwafers mit einem handelsüblichen Klarsicht-Klebestreifen auf Polymer-Basis (TESA) mit einer Dicke von etwa $50\ \mu\text{m}$ abgedeckt. Daraus ergibt sich eine Schichtstruktur aus wasserstoffreichem Material auf Vorder- und Rückseite und einem wasserstoffarmen Material im sub-ppm-Bereich dazwischen, wie in Abbildung 5.5 skizziert. Die strahlzugewandte Seite wird im folgenden als die Vorderseite der Probe bezeichnet. Diese Struktur wurde mit 20 MeV Protonen bei einem Strahlstrom von der Größenordnung 10 pA etwa 30 Minuten bestrahlt.

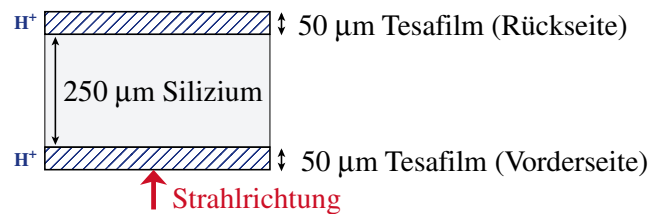


Abbildung 5.5: Silizium-Polymer-Schichtstruktur. Zum Test der Tiefenprofilanalyse wurden auf die Vorder- und Rückseite eines $250\ \mu\text{m}$ -Siliziumhalbleiterwafers mit Tesafilmstreifen (ca. $50\ \mu\text{m}$ dick) geklebt, so daß sich eine Schichtstruktur aus zwei wasserstoffreichen Schichten mit einer wasserstoffarmen Schicht dazwischen ergibt.

Im Gesamtenergiespektrum von Abbildung 5.6 sind diejenigen koinzidenten Ereignisse zu sehen, die zugleich die Bedingungen

1. genau zwei Treffer in den Ringen (Ring-Multiplizität = 2)
2. genau zwei Treffer in den Sektoren (Sektor-Multiplizität = 2)
3. Treffer in gegenüberliegenden Sektorgruppen⁽¹³⁾
4. Winkelsumme zwischen 85° und 95°

erfüllen. Damit ist gewährleistet, daß mit den geringen Zählraten ($< 100\ \text{Hz}$) untergrundfrei nur Proton-Proton-Streuereignisse analysiert werden (siehe Abschnitt 5.2.4). Das Spektrum enthält insgesamt etwa $1 \cdot 10^5$ Ereignisse.

Man erhält zwei deutliche Peaks bei 17.8 MeV mit einer Breite von 2.3 MeV (FWHM) und bei 12.3 MeV mit 4.0 MeV Halbwertsbreite, die durch Streuung

⁽¹³⁾jeweils 3 benachbarte Sektoren zusammengefaßt

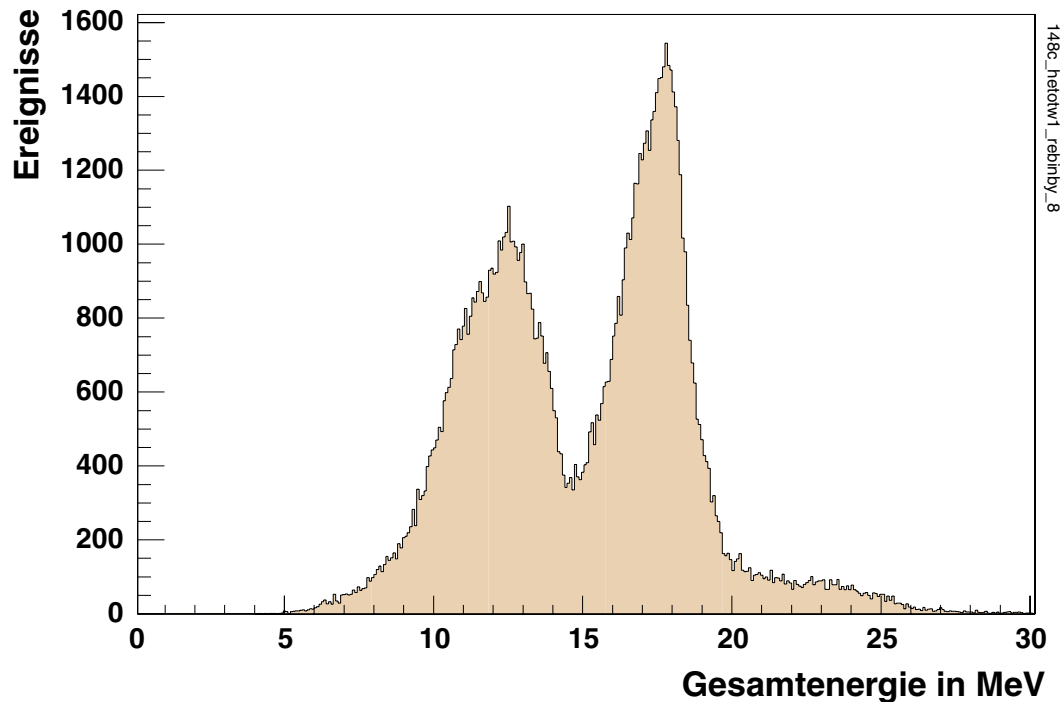


Abbildung 5.6: Gesamtenergiespektrum der koinzidenten Ereignisse für Silizium-Tesa-Schichtstruktur. Die beiden Peaks bei 17.8 MeV und 12.3 MeV werden durch Streuung an Wasserstoffkernen in den Tesa-Streifen hervorgerufen. Für die Tiefenaufösung kann aus den Breiten der Peaks ein Wert von etwa $180 \mu\text{m}$ abgeschätzt werden.

an Wasserstoffkernen in den zwei Klebestreifen hervorgerufen werden. Der Peak bei der niedrigen Energie erklärt sich durch den im Mittel 5.5 MeV höheren effektiven Gesamtenergieverlust, den die an Wasserstoffkernen des vorderseitigen Klebestreifens im Vergleich zu den im rückseitigen Streifen gestreuten Protonen erhalten. Für die rückseitig gestreuten Protonen ergibt sich durchschnittlich eine Energieverlustsumme von 2.2 MeV. (Berechnungen mit dem Simulationsprogramm ENELOSS [31] sind im Rahmen der Genauigkeit konsistent mit diesen Ergebnissen.)

Der flache Ausläufer zu hohen Energien deutet auf Untergrundprobleme mit sogenanntem *elektronischen Pile-Up* hin. Dieser entsteht üblicherweise bei hohen Zählraten, wenn zwei (oder mehrere) Teilchen in einem engen Zeitfenster detektiert werden, so daß ihre Einzelsignale nicht mehr aufgelöst werden können. Damit wird aus zwei realen Einzelsignalen ein Untergrundsignal mit einer falschen Signalhöhe erzeugt. Die Anzahl der erzeugten Pile-Up-Signale hängt von der Zählrate und der Zeitaufösung des Detektorsystems ab.

Wie schon erwähnt, hat das verwendete System eine Zeitaufösung von etwa $3 \mu\text{s}$. Dennoch sollte bei den geringen Zählraten von maximal einigen 100 Hz in dem vorderen Detektor der Untergrund durch Pile-Up-Signale nicht in diesem Maße auftreten. Nicht berücksichtigt wurde jedoch die Zählrate in den Restenergiezählern, die aus Raumwinkelgründen sehr nahe (weniger als 4 mm) neben der Strahlachse positioniert werden mußten. Hier ist daher ein deutlicher Anstieg der Zählrate durch kleinwinkelgestreute Teilchen⁽¹⁴⁾ aus dem Primärstrahl zu beobachten und führt zu einem wesentlichen Beitrag an Untergrundereignissen in den Spektren.

Auf die Diskussion der Breiten der Peaks wird hier verzichtet, da wie schon angedeutet, vermutlich eine verrutschte Aluminiumfolie im Strahlengang zu dieser schlechten Energieaufösung von 10 % geführt hat. Ebenso können mit diesen experimentellen Bedingungen die Auswirkungen bzw. die Reduzierung des Weglängeneffektes durch die Winkelaufösung des Detektors noch nicht demonstriert werden. Für die erreichte Tiefenaufösung kann zwar eine grobe Abschätzung von etwa $100\text{--}150 \mu\text{m}$ angegeben werden, diese ist jedoch aus den genannten Gründen nicht aussagekräftig.

Die Messung zeigt die prinzipielle Einsetzbarkeit des Detektors für die tiefenaufgelöste Wasserstoffanalyse bei dicken Proben über $200 \mu\text{m}$ Silizium. Somit sind die zwei wesentlichen Grundfunktionen des Detektorprinzips erfolgreich getestet:

- Mit Hilfe verschiedener Auswahlkriterien für die Multiplizität, Sektorgeometrie, Summenenergie oder Winkelsumme können die koinzidenten Ereignisse aus Proton-Proton-Streuung von den übrigen Ereignissen getrennt werden.
- Über das Summenenergiespektrum der Proton-Proton-Streuereignisse können Wasserstofftiefenprofile gemessen werden.

Die bisherige Analyse der Daten führt die vielseitigen Möglichkeiten der Koinzidenzanalyse mit dem entwickelten Detektorsystem vor. Es ist gezeigt worden, daß damit eine fast untergrundfreie und empfindliche Wasserstoffanalyse mittels Proton-Proton-Streuung möglich ist. Um das Detektorsystem mit allen Details zu verstehen, ist als nächster Schritt der Einsatz und Test des geplanten 1 mm-dicken Streifenzählers in weiterführenden Experimenten notwendig.

⁽¹⁴⁾Bei Probendicken von über $250 \mu\text{m}$ Silizium ergibt sich eine Aufstreuung des Primärstrahls durch Kleinwinkelstreuung um mehr als 2° (FWHM) [31].

Kapitel 6

Ausblick

Wie im vorigen Kapitel ausführlich geschildert, konnte in einem ersten Experiment erfolgreich die Funktion des entwickelten Detektorprinzips demonstriert werden. Neben der prinzipiellen Möglichkeit, den Detektor für die Wasserstoffanalyse mittels elastischer Proton-Proton-Streuung einzusetzen, konnte die hohe Sensitivität und die differenzierten Möglichkeiten zur Koinzidenzanalyse gezeigt werden. Außerdem wurden erste Wasserstofftiefenprofile bei dicken Proben über $200\ \mu\text{m}$ vermessen.

Für einen ausführlichen Test der Tiefenauflösung konnte jedoch die erforderliche Energieauflösung noch nicht erreicht werden. Zum einen lag dies an dem defekten Restenergiedetektor und an mehreren defekten Ringen des Streifenzählers, der nicht die Spezifikation der Firma Micron erfüllt hatte. Zum anderen muß eine Folie im Strahlengang zu einer gravierenden Verschlechterung der Strahlqualität geführt haben. Somit sind nächste Tests mit dem geplanten 1 mm dicken Detektor notwendig, um eine realistische Energieauflösung und damit Tiefenaufösungen in der abgeschätzten Größenordnung von $10\ \mu\text{m}$ zu erreichen.

Der neue Detektor kann ohne große Modifikation des vorhandenen Aufbaus zum Einsatz gebracht werden, sobald dieser geliefert und die Funktionstüchtigkeit der einzelnen Ringe und Sektoren getestet ist. Lediglich die Energie des Protonenstrahls müßte auf 18 MeV reduziert werden, damit die Protonen bei allen Streuwinkeln im Detektor gestoppt werden.

Um die geforderten Rahmenbedingungen für eine Wasserstoff-Mikroskopie bei geringsten Konzentrationen zu erfüllen, müssen jedoch Zählraten von über 100 kHz verarbeitet werden. Mit der vorhandenen Signalauslese können maximal 10 kHz ausgelesen werden, da die Multiplex-Elektronik pro Kanal etwa $1\ \mu\text{s}$ Zyklusdauer benötigt und damit eine inaktive Zeit von minimal $64\ \mu\text{s}$ aufweist. Maximal kann hier noch ein Faktor 2 gewonnen werden, wenn die Taktfrequenz

auf 2 MHz erhöht wird.

Wesentlich effektiver kann die inaktive Zeit verringert werden, indem die Triggerlogik durch eine Koinzidenzschaltung so modifiziert wird, daß nur die Koinzidenzereignisse in gegenüberliegenden Sektoren zur Weiterverarbeitung ausgelesen werden müssen. Dies ergibt bei einem Zeitfenster von derzeit $3\ \mu\text{s}$ für die Zählrate maximal noch 500 Hz pro Sektor, die jetzt nur noch durch die zufälligen Koinzidenzen in gegenüberliegenden Sektoren und die Proton–Proton–Ereignisse entsteht. Diese Zählrate läßt sich ohne Probleme weiterverarbeiten, wenn die Multiplex–Schaltung an die Koinzidenzschaltung angepaßt wird.

Auf diese Weise kann die erforderliche Zählrate verarbeitet und eine höchste Sensitivität für den Wasserstoffnachweis erreicht werden. Mit dem Rasterionen–Mikroskop SNAKE steht somit in Zukunft eine einmalige Experimentiereinrichtung für die hochauflösende Wasserstoff–Mikroskopie zur Verfügung. Für die ersten Anwendungen ist die Untersuchung von künstlich hergestellten Diamant–Schichtstrukturen mit Fragestellungen aus der Halbleiterphysik geplant. Weiter ist eine Kooperation mit Geologen zur Untersuchung wasserhaltiger Minerale aus dem oberen Erdmantel in Aussicht und mittelfristig sieht man Perspektiven in der Untersuchung von biologischen Materialien, wie z. B. Zellkernen oder Zellmembranen.

Abbildungsverzeichnis

1.1	Prinzip der Proton-Proton-Streuung	2
2.1	Raster-Elektronenmikroskopie-Aufnahme eines CVD-Diamanten	6
2.2	Prinzipieller Aufbau eines Raster-Ionenmikroskops	11
3.1	Illustration zur Strahlenschädigung	20
3.2	Meßanordnung für Proton-Proton-Streuung	24
3.3	Energieverlust der Protonen in der Probe	26
3.4	Illustration zu den geometrischen Effekten	31
3.5	Skizze zur Abschätzung des Weglängeneffekts	33
3.6	Relative Beiträge des Weglängeneffekts	34
3.7	Vergleich der Hauptbeiträge zur Energie- bzw. Tiefenauflösung . .	37
3.8	Gesamtauflösung δE_{ges} bzw. δx_{ges} in Abhängigkeit der Probendicke	38
3.9	Abschätzung der erreichbaren Tiefenauflösung	40
4.1	Koinzidente Detektion mit einem ringförmigen Streifenzähler . . .	43
4.2	Ringförmiger Si-Streifenzähler (Micron, Design S2 – Pavia Package)	45
4.3	Positionierung des Detektors	46
4.4	Prinzip der Signalauslese	48
4.5	Blockschaltbild des Multiplex-Ausleseelektronik-Systems	49
4.6	Blockschaltbild der analogen Signalverarbeitung	51
4.7	Zeitlicher Verlauf der analogen Signale	54
5.1	Foto des montierten Detektor-Prototyps	56
5.2	Aufbau des Detektor-Prototyps in der Experimentierkammer . . .	58
5.3	Gesamtenergiespektrum mit und ohne Koinzidenzbedingung . . .	62
5.4	Winkelsummenspektrum bei Zweifach-Treffern	65
5.5	Silizium- <i>TESA</i> -Schichtstruktur zum Test der Tiefenprofilanalyse	67
5.6	Gesamtenergie-Koinzidenzspektrum für Si- <i>TESA</i> -Schichtstruktur	68

Literaturverzeichnis

- [1] B. L. Cohen, C. L. Fink, and J. H. Degnan, *J. Appl Phys.* **43** (1972) 19.
- [2] A. Bergmaier, *Quantitative Elementanalytik an Diamantschichten mittels elastischer Vorwärtsstreuung (ERD) hochenergetischer schwerer Ionen*, Doktorarbeit, TU München, 1999.
- [3] I. Buckley-Golder and A. Collins, *Diamond Relat. Mater.* **1** (1992) 1083.
- [4] B. Spitzyn, L. Bouilov, and B. Derjaguin, *J. Crystal Growth* **52** (1981) 219.
- [5] P. Gluche, A. Aleksov, A. Vescan, W. Ebert, and E. Kohn, *IEEE Electron Device Lett.* **18** (1997) 547.
- [6] J. Mort, M. Machonkin, and K. Okumura, *Appl. Phys. Lett.* **59** (1991) 3148.
- [7] P. K. Bachmann, D. Leers, and D. U. Wiechert, *Diamond and Related Materials* **2** (1993) 683–693.
- [8] A. Bergmaier, G. Dollinger, T. Faestermann, C. M. Frey, M. Ferguson, and H. Güttler, *Diamond Relat. Mater.* **5** (1996) 995.
- [9] A. Bergmaier, G. Dollinger, P. Gluche, and E. Kohn, *Hydrogen Profiles on CVD Diamond Surfaces*, submitted to *Appl. Phys. Lett.*
- [10] D. Bell, P. Ihinger, and G. Rossman, *Science* **255** (1992) 1391–1397.
- [11] J. Maldener, *Wasserstoff als Spurenelement in Mineralen – Eichung IR-spektroskopischer Messungen mit der ^{15}N -Methode*, Doktorarbeit, Johann Wolfgang Goethe – Universität, Frankfurt a. M., 1999, <http://www.dissertation.de>.
- [12] J. Arndt, *Physik in unserer Zeit* **18(3)** (1987) 77–85.
- [13] H. Kuzmany, *Festkörperspektroskopie*, Springer, Berlin, 1989.

- [14] H. Günzler and H. Heise, *IR – Spektroskopie*, VCH Verlagsgesellschaft, Weinheim, 1996.
- [15] G. Schatz and A. Weidinger, *Nukleare Festkörperphysik*, Teubner, Stuttgart, 1997.
- [16] E. M. Haacke, R. W. Brown, M. R. Thompson, and R. Venkatesan, *Magnetic Resonance Imaging*, Wiley–InterScience, 1999, ISBN 0-471-35128-8.
- [17] I. Michiels, *persönliche Mitteilung*, Bioimaging Lab, Universität Antwerpen, 1999.
- [18] G. Datzmann, G. Dollinger, G. Hinderer, and H.-J. Körner, Nucl. Instr. and Meth. B **158/1-4** (1999) 74.
- [19] K. Hayashi, S. Yamanaka, H. Watanabe, T. Sekiguchi, H. Okushi, and K. Kajimura, J. Appl. Phys. **81** (1997) 744.
- [20] W. Lanford, Nucl. Instr. and Meth. B **66** (1992) 65–82.
- [21] F. Xiong, F. Rauch, C. Shi, Z. Zhou, R. Livi, and T. Tombrello, Nucl. Instr. and Meth. B **27** (1987) 432–441.
- [22] D. Endisch, H. Sturm, and F. Rauch, Nucl. Instr. and Meth. B **84** (1994) 380–392.
- [23] K. A. Sjöland, P. Kristiansson, M. Elfman, K. G. Malmqvist, J. Pallon, R. J. Utni, and C. Yang, Nucl. Instr. and Meth. B **124** (1997) 639.
- [24] J. Bystricky et al., Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology, in K.-H. Hellwege and H. Schopper, editors, *Elastic and Charge Exchange Scattering of Elementary Particles*, volume 9a of *Landolt–Börnstein (New Series – Group I)*, p. 110 ff, Springer, Berlin, 1980.
- [25] N. Jarmie, J. H. Jett, and R. J. Semper, Phys. Rev. C **10(5)** (1974) 1748.
- [26] I. E. Dayton and G. Schrank, Phys. Rev. **101(4)** (1956) 1358.
- [27] J. Ziegler, J. Biersack, and U. Littmark, *The Stopping and Range of Ions in Matter*, Pergamon Press, New York, 1985.
- [28] H. Ermer, O. Pfaff, W. Straub, M. Geoghegan, and R. Brenn, Nucl. Instr. and Meth. B **134** (1998) 237.

-
- [29] G. Dollinger, *Kohlenstoffolien als Stripper für schwere Ionen*, Doktorarbeit, TU München, 1990.
- [30] L. D. Landau and E. M. Lifschitz, *Lehrbuch der theoretischen Physik III, Quantenmechanik*, Akademie Verlag, Berlin, 1988.
- [31] H. Ernst, *ENELOSS (Routine to calculate the differential energyloss of ionising radiation in matter)*, 1981, modifiziert von K. Lesko, 1984.
- [32] H. A. Bethe, *Ann. Physik* **5** (1930) 325.
- [33] N. Bohr, *Mat. Fys. Medd. an. Vid. Selstr.* **8** (1948) 18.
- [34] H. U. Schmidt, *Meßelektronik in der Kernphysik*, Teubner, Stuttgart, 1986.
- [35] C. D. Wilburn, *persönliche Auskunft*, Micron Semiconductor, 1999.
- [36] R. Schneider et al., *Nucl. Phys. A* **588** (1995) (191c–196c).

Danksagung

Bedanken möchte ich mich an erster Stelle bei Herrn Prof. Dr. Hans-Joachim Körner für die freundliche Aufnahme am Lehrstuhl E12 als kleiner PC-Bubi-Werkstudent und ganz besonders für den *"Guten Geist"*, der durch ihn hinter diesem Lehrstuhl steht.

Besonderer Dank gilt auch Herrn Dr. Günther Dollinger für die äußerst kompetente Betreuung und die viele Physik, die ich im Laufe des letzten Jahres von ihm lernen konnte.

Vielen Dank ebenso an die restlichen Mitglieder der SNAKE- und ERD-Gruppe für die gute Zusammenarbeit und die langen Konferenz- und Strahlzeit-*"Abende"*. Insbesondere vielen Dank an

- Gerd Datzmann, alias Nano, für die vielen *"rein dienstlichen"* Diskussionen rund um Rasterionen und Proton-Proton-Streuung in diversen Münchner Kneipen,
- Andi Bergmaier, unseren Bergdoktor, nicht nur für die Rettung aus der Leitergefangenschaft, sondern hauptsächlich für die Programmierung und Diskussionen rund um die Datenanalyse und
- Christian Goeden, den Vakuum-Papst, für die vielen Tips rund um die UHV- und Kfz-Technik.

Außerdem möchte ich mich für die sehr hilfreiche Zusammenarbeit mit den Detektorspezialisten von E12 bedanken. Besonders weitergeholfen haben mir

- Dr. Robert Schneider mit der Ausleseelektronik und den vielen wertvollen Ratschlägen und geduldigen Erklärungen dazu,
- Dr. Roman Gernhäuser und Anton Kastenmüller mit der Einführung ins LKM-Labor und einem Schnellkurs in kernphysikalischer Meßtechnik,

- Andreas Stolz bei dem ersten Auslesetest des Detektors, einer beeindruckenden Analyse-Vorführung Freitag nachts und vielen Tips rund um die Datenaufnahme.

Vielen Dank natürlich auch an die restliche E12-Truppe für die nette Atmosphäre am Lehrstuhl.

Danke auch an Ralf Lang und Michael Klöckner für mein Elektronik-Kisterl und diverse Kleinteile (... und, daß ihr auch von allgemeinen Physikern "*technische*" Zeichnungen akzeptiert!)

Bedanken möchte ich mich natürlich auch beim Beschleunigerpersonal mit Operateuren und Rechnertruppe für das ungezwungene Arbeitsklima, und insbesondere bei Herrn Rudi Lutter für die prompte Implementierung der Vielkanalauslese in das Datenaufnahmesystem.

Einen ganz großen Dank vor allem an Angelika, ohne die ich wahrscheinlich im Schreiben dieser Arbeit verhungert wäre, und ohne deren Lötkünste der Detektor nur mit der Hälfte seiner Anschlüsse auskommen hätte müssen.

Besonderen Dank schulde ich schließlich auch meinen Eltern und Großeltern für die finanzielle Unterstützung und den Glauben an mich während meiner Schul- und Hochschulausbildung.