



**KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH GmbH**

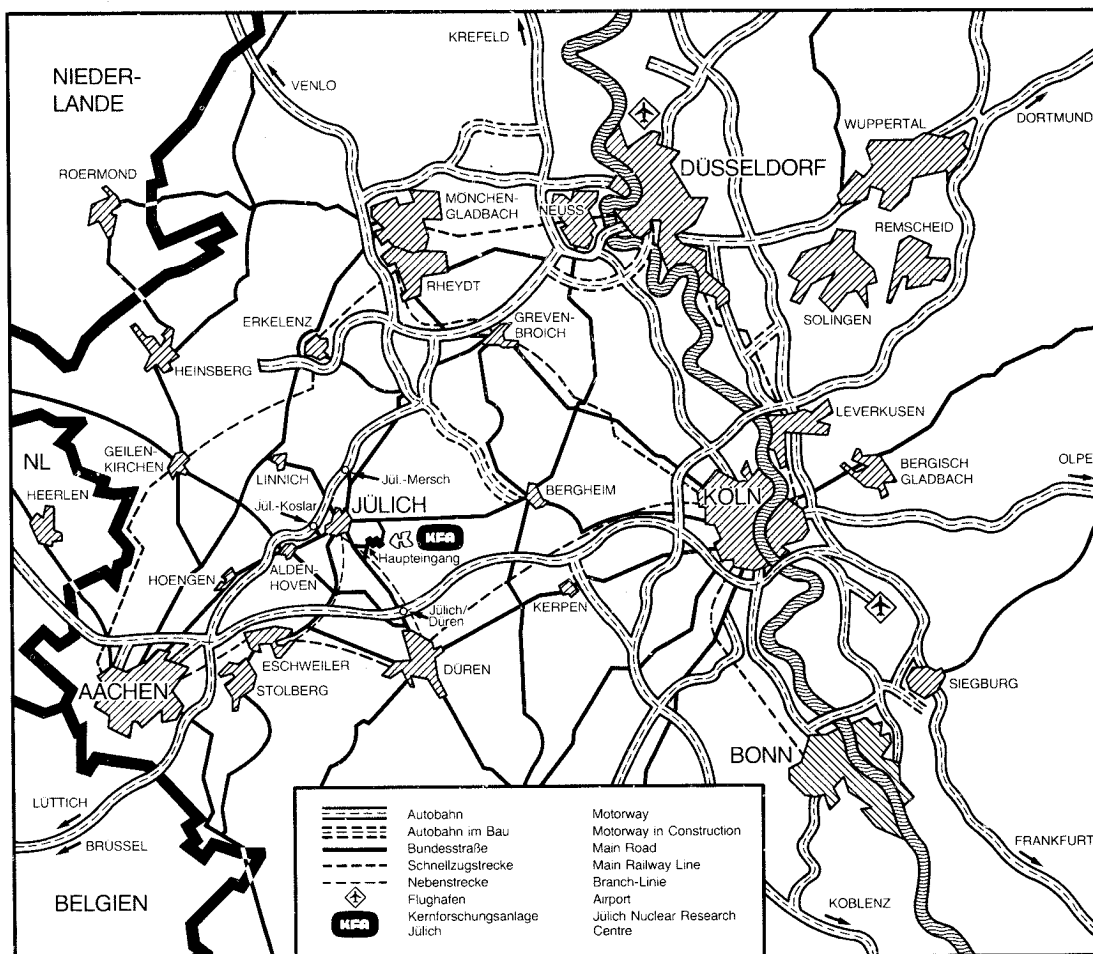
Institut für Festkörperforschung

**Entwicklung eines integrierenden  
ortsauflösenden Röntgendetektors**

von

Wolfgang Hoheisel

**Jül-2171**  
**Dezember 1987**  
ISSN 0366-0885



Als Manuskript gedruckt

## Berichte der Kernforschungsanlage Jülich — Nr. 2171

Institut für Festkörperforschung Jül-2171

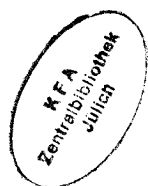
Zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich GmbH

# **Entwicklung eines integrierenden ortsauflösenden Röntgendetektors**

von

Wolfgang Hoheisel

D 82 (Diss. T.H. Aachen)



## Abstract

In scattering experiments with synchrotron radiation, photon counting detectors suffer both counting coincidence and extreme high data transfer rates to the digital store. With an integrating detector, however, these problems can be overcome by buffering the high incoming photon flux in an analogue store. After conversion to a number of electrons in a first step for a given time interval, the number of incoming photons is integrated into a fast analogue store as an increasing electrical charge. In the second step, the contents of this analogue store is read out, digitized and finally processed by a digital data acquisition to get the number of detected photons for each resolution element.

The X-ray detector was built with a commercially manufactured SEC vidicon. The output window of the vidicon was coupled via demagnifying fiber optic cone to the output window of a commercially manufactured Varian image intensifier tube. This was then coupled to a  $\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S}$  fluorescence screen.

To show the function of the integrating X-ray detector typical small angle scattering experiments were made. Also a new readout technique for measurements of high-contrast, high-flux X-ray patterns has been developed and was used in measurements with a silica aerogel.



## Inhaltsverzeichnis

|        |                                                                                              |    |
|--------|----------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| 1)     | Einleitung                                                                                   | 2  |
| 2)     | Arbeitsweise integrierender Röntgendetektoren                                                | 4  |
| 3)     | Integrierender Röntgendetektor mit<br>SEC-Speichertarget                                     | 6  |
| 3.1)   | Aufbau und Funktionsweise                                                                    | 6  |
| 3.2)   | Funktionstests des Röntgendetektors                                                          | 10 |
| 3.2.1) | Genauigkeit von Speicherung und Auslesung                                                    | 10 |
| 3.2.2) | Analogspeicherkapazität                                                                      | 17 |
| 3.2.3) | Nachweiswahrscheinlichkeit                                                                   | 18 |
| 3.2.4) | Ortsauflösung                                                                                | 25 |
| 4)     | Einsatz des Röntgendetektors in<br>Kleinwinkelstreuexperimenten                              | 32 |
| 4.1)   | Röntgenkleinwinkelstreuung                                                                   | 32 |
| 4.1.1) | Guinier-Näherung                                                                             | 35 |
| 4.1.2) | Porod-Näherung                                                                               | 36 |
| 4.1.3) | Integrierte Intensität                                                                       | 36 |
| 4.2)   | Aufbau eines Kleinwinkelstreuexperimentes                                                    | 37 |
| 4.3)   | Meßverfahren                                                                                 | 40 |
| 4.4)   | Kleinwinkelstreuung an He-Blasen in $\alpha$ -implan-<br>tiertem Nickel                      | 45 |
| 5)     | Auslesetechnik zur Messung kontrastreicher<br>Röntgenintensitäten und Anwendung auf Aerogele | 51 |
| 6)     | Zusammenfassung                                                                              | 63 |
| 7)     | Literaturverzeichnis                                                                         | 64 |
| 8)     | Akronymliste                                                                                 | 66 |

## 1) Einleitung

Die Zielsetzung dieser Arbeit war die Entwicklung eines integrierenden, zweidimensional ortsauflösenden Röntgendetektors. Für solche Nachweissysteme, mit denen auch sehr starke Röntgenintensitäten an Synchrotronstrahlungsquellen oder Hochleistungsdehnanodenröntgenröhren zweidimensional orts aufgelöst gemessen werden können, gibt es in der Physik viele Anwendungsgebiete, beispielsweise Kleinwinkelstreuung und diffuse Weitwinkelstreuung oder Röntgenstrukturanalyse (Messung von Reflexintensitäten). Bei allen Anwendungsgebieten wird neben der Ortsauflösung größtmögliche Genauigkeit der Intensitätsmessung gefordert.

Bei der Zählung der auf den Detektor treffenden Röntgenquanten dürfen nur Fehler auftreten, die wesentlich kleiner als die unvermeidbaren statistischen Zählunsicherheiten sind (Quantenstatistik). Dies setzt voraus, daß der Detektor unabhängig von der auffallenden Röntgenintensität jedes Röntgenquant nachweisen muß (hoher Dynamikbereich des Detektors).

Der Nachweis der Röntgenquanten ist mit drei Detektortypen möglich, deren Funktionsweisen auf unterschiedlichen physikalischen Grundlagen beruhen: Gasproportional- und Geiger-Müller-Zähler (Bildung positiver und negativer Gasionen), Szintillationszähler (Umwandlung: Röntgen -> Licht -> Elektronen) und, in neuerer Zeit, Halbleiterdetektoren (Bildung von Elektronen-Lochpaaren). Der hier entwickelte Röntgendetektor gehört dem Detektortyp "Szintillationszähler" an.

Für Röntgenexperimente an modernen Synchrotronstrahlungsquellen, wie der zukünftigen ESRF (European Synchrotron-Source) werden sehr hohe Anforderungen an ortsauflösende Röntgendetektoren gestellt. In Streuexperimenten, beispielsweise, sind

dort Streuintensitäten von bis zu  $10^{10}$  Röntgenquanten pro Sekunde orts aufgelöst auf sehr großen Detektoren mit bis zu 200 mm Durchmesser zu messen, wobei der Intensitätskontrast in den Streubildern sehr groß sein kann und stark unterschiedliche Zählraten in den einzelnen Auflösungselementen ("Pixels") gemessen werden müssen. Beispielsweise ist für die Messung der diffusen Streuung von Legierungen eine Pixelgröße von  $0.5 \cdot 0.5 \text{ mm}^2$  erforderlich und eine Zählratendynamik von bis zu 5 Größenordnungen ist keine Seltenheit! Zählraten von bis zu  $10^{10}$  Röntgenquanten pro Sekunde können nicht mehr von den zur Zeit verwendeten, ortsauflösenden Gasproportionalzählern verarbeitet werden. Die Grenze der Zählrate liegt bei den zweidimensional ortsauflösenden Gasproportionalzählern bei etwa  $10^7 \text{ s}^{-1}$ . /1/ Bei höheren Zählraten treten Koinzidenzen auf, die jede Ortsinformation ausschmieren. Weiterhin ist die Datenübertragungsrate zum digitalen Speicher zu groß. Bei den ortsauflösenden Halbleiterdetektoren gibt es mehrere Ausführungsformen (Detektoren mit resistiver Ladungsteilung, Streifendetektoren, Driftkammern und CCD's = Charge-Coupled Devices /2/) (s. Akronymliste). Bis auf die CCD's, gelten für die ortsauflösenden Halbleiterdetektoren die gleichen Einschränkungen wie für die Gasproportionalzähler.

Die extremen Forderungen bezüglich Schnelligkeit, Dynamik und Ortsauflösung können durch die Verwendung von bildgebenden, integrierenden Detektoren erfüllt werden. In solchen Röntgendetektoren werden in einem ersten Schritt die Röntgenquanten in der Form von elektrischen Ladungen in einem Analogspeicher zwischengespeichert und zwar zeitlich parallel für alle Pixel des Detektors. Es treten daher keine Koinzidenzprobleme auf. Im zweiten Schritt wird der Analogwert dann ausgelesen, digitalisiert und in den digitalen Speicher des Computers übertragen, wo er dann für eine anschließende Auswertung zur Verfügung steht.

## 2) Arbeitsweise integrierender Röntgendetektoren

Die Integration der Röntgenquanten erfordert es, ein für hohe Röntgenintensitäten geeignetes Speichertarget (=Analogspeicher) und eine Auslesetechnik zu finden, die es erlauben, Zählraten für Intensitäten in einem Dynamikbereich von  $1:10^5$  mit - mindestens - der Genauigkeit der statistischen Fehler der Photonen-zählung zu messen. Folgende Anforderungen werden an einen perfekten Analogspeicher gestellt:

- 1) genügend große Analogspeicherkapazität
- 2) rauschfreie Speicherung des von den Röntgenquanten erzeugten Analogsignals (elektrische Ladung) zwischen zwei Auslesungen
- 3) rauschfreie Auslesung des integrierten Bildes

Einen Analogspeicher besitzen alle Fernsehaufnahmesysteme wie CCD's und Fernsehaufnahmeröhren( z.B. Vidikons). Die CCD's lassen bei Raumtemperatur keine rauschfreie Speicherung der von den Röntgenquanten erzeugten Ladung zu und erfordern für eine rauschfreie Auslesung kleiner Röntgenintensitäten Kühlung und lange Auslesezeiten./3/. Um diese Nachteile zu umgehen, wurde daher ein integrierender Röntgendetektor aus einer kommerziellen lichtempfindlichen Fernsehröhre (Vidikon) und einem Szintillator als Konverterelement aufgebaut. Der Szintillator wandelt die Röntgenquanten in Lichtquanten um, die anschließend in der Photokathode des Vidikons in Elektronen umgewandelt werden. Diese werden dann in einer elektrisch isolierenden Speicherschicht (Analogspeicher) aufsummiert. So wird das Röntgenbild parallel für alle Pixel als zweidimensionales orts-aufgelöstes Ladungsbild gespeichert. Der Inhalt des Analogspeichers wird - seriell für alle Pixels - ausgelesen, digitalisiert und in einem Datenaufnahmesystem weiterverarbeitet. Die

geforderte Auslesegeschwindigkeit wird durch die Speicherkapazität des Analogspeichers und die zu messende Röntgenintensität bestimmt.

Für den Analogspeicher in Fernsehvidikons gibt es verschiedene Ausführungsformen. Bisher sind in Röntgendetektoren nur SIT-Vidicons (Multidiodentargets) /4/5/6/7/8/9/10/11/12/ verwendet worden. Der Aufbau und die Funktionsweise von Detektoren mit SIT-Vidiconröhren wurde schon in zahlreichen Veröffentlichungen behandelt /13/14/ (s. Akronymliste). Der Nachteil des SIT-Vidikons ist, daß keine rauschfreie Speicherung des Analogsignals bei Raumtemperatur möglich ist.

Daher wurde in dieser Arbeit ein SEC-Vidikon (SEC=secondary electron conduction) verwendet, da es die einzige bekannte Fernsehaufnahmeröhre ist, die eine rauschfreie Speicherung des Analogsignals (ohne Kühlung!) über längere Zeiträume (Stunden) erlaubt. Völlig neuartige integrierende Röntgendetektoren, bei denen keine Konvertierung Röntgenstrahlung in Licht erforderlich ist, können mit SEC-Targets ebenfalls aufgebaut werden. Hier erfolgt eine direkte Umwandlung der Röntgenstrahlen in Elektronen im SEC-Target selbst /15/. Dieser Detektor ist noch nicht kommerziell erhältlich, doch sind die Ergebnisse des im folgenden beschriebenen kommerziellen SEC-Vidikons auf ihn übertragbar.

### 3) Integrierender Röntgendetektor mit SEC-Speichertarget

#### 3.1) Aufbau und Funktionsweise

Ein SEC-Vidikon ist aus drei wesentlichen Teilen aufgebaut: der Photokathode mit dem elektronenoptischen Abbildungsteil, dem Targetteil und der Elektronenkanone. Die Funktionsweise der einfachsten Konfiguration als Röntgendetektor, mit der auch viele Test (Kap 3.2.1) durchgeführt wurden, zeigt Abb 3.1 zusammen mit dem abgeschätzten Quantenfluß für ein 17 KeV Röntgenquant durch dieses System.

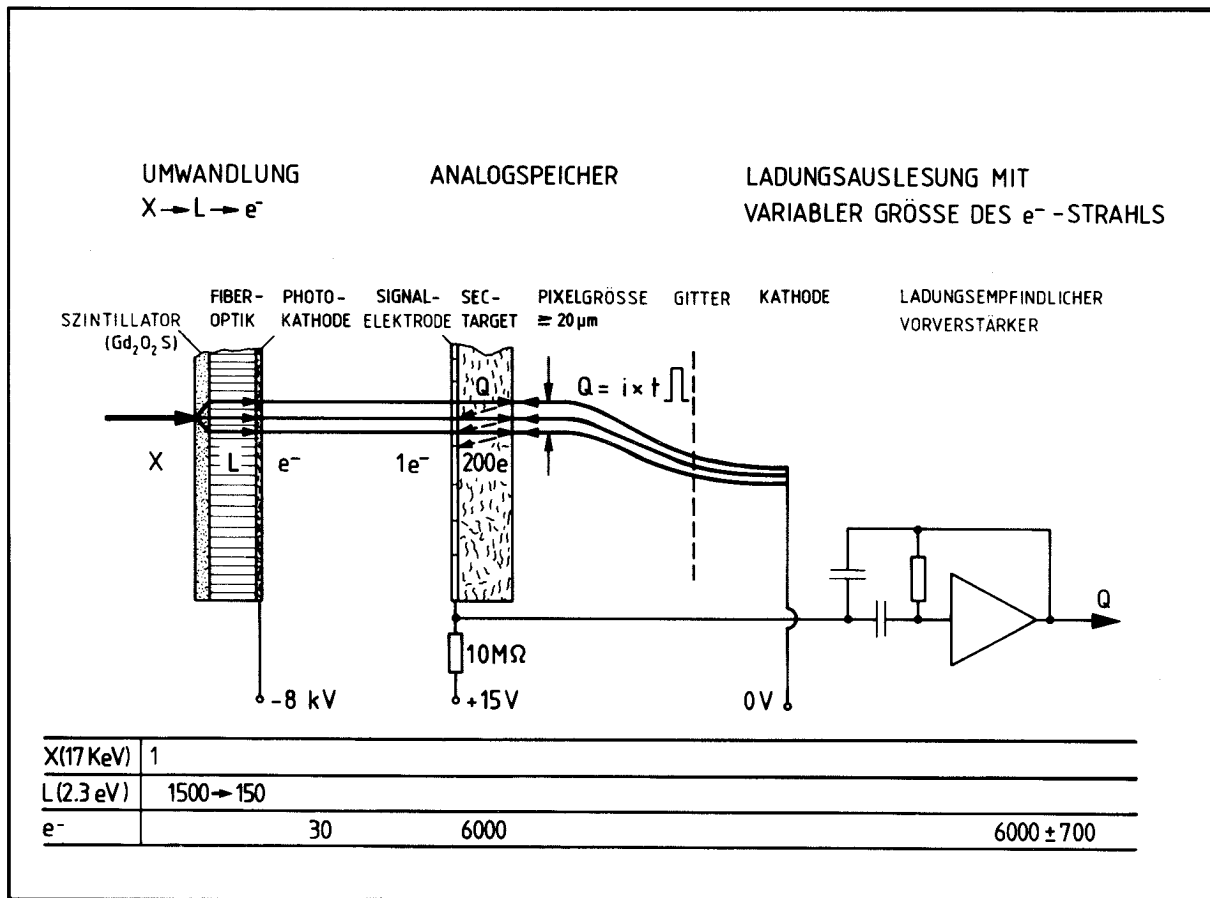


Abb. 3.1 Funktionsprinzip eines 2d-Röntgendetektors mit dem SEC-Vidikon. Die Tabelle gibt den zugehörigen Qunatenfluß durch diesen Detektor an.

Für ein 8 keV Röntgenquant reduzieren sich die Licht- und Elektronenquanten um einen Faktor zwei. Das SEC-Vidikon ist eine kommerziell gefertigte Standardröhre für den Fernsehgebrauch (Heimann-1004) /16/ und besitzt ein Faseroptikeingangsfenster mit 16 mm Durchmesser. Wie in Abb. 3.1 gezeigt, ist dieses direkt mit einem  $\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S}$  Szintillationsschirm gekoppelt (Dicke  $150\text{ }\mu\text{m}$  mit  $40\text{ mg/cm}^2$ , sedimentiert auf eine Faseroptikplatte). In dieser einfachen Kombination wird jedes 17 KeV Röntgenquant durch die Photokathode des SEC-Vidikons umgewandelt in 30 Photoelektronen. Diese Zahl beinhaltet den Verlust von Photonen durch die Faseroptikkopplung (etwa einen Faktor 10) und die Quantenausbeute der Photokathode (etwa 20%). In dem elektronenoptischen Abbildungsteil werden diese niederenergetischen Photoelektronen auf 8 KeV beschleunigt und treffen auf das SEC-Target. Das SEC-Target besteht aus einer 100 nm dicken Aluminiumschicht, die als Signalelektrode dient. Auf diese Schicht ist eine  $15\text{ }\mu\text{m}$  dicke KCl-Schicht aufgedampft (in einer Atmosphäre von einigen Torr Argon /17/), in Form von KCl-Fasern mit einer Größe von etwa  $100\text{ }\text{\AA}$  Durchmesser und einem mittleren Abstand von etwa  $400\text{ }\text{\AA}$ .

An der Al-Signalelektrode des SEC-Targets liegt gegenüber der Kathode der Elektronenkanone eine Spannung von 15 Volt. Durch einen magnetisch fokussierten und ablenkbaren, niederenergetischen Elektronenstrahl, der in dem dritten Abschnitt des SEC-Vidikons - der Elektronenkanone - erzeugt wird, wird die KCl-Schicht Zeile für Zeile abgetastet. Dadurch wird die abgetastete Oberfläche der KCl-Schicht auf das Kathodenpotential ( $=0\text{ V}$ ) der Elektronenkanone gebracht. Damit wird ein elektrisches Feld in der KCl-Schicht aufgebaut. Jede Ionisation, d.h. jedes 6 KeV Elektron (2 KeV gehen bei Durchtritt durch die Aluminiumschicht der Signalelektrode verloren), das auf eine der KCl-Fasern trifft, erzeugt etwa 200 Sekundärelektronen, die in das Vakuum zwischen den Fasern gelangen. Das angelegte elek-

trisches Feld sammelt die Sekundärelektronen an der Signalelektrode. Es bleibt eine positive Ladung in der KCl-Schicht zurück, die Ausdehnung der Ladungsverteilung beträgt etwa 7  $\mu\text{m}$ . /18/ Auf diese Weise wird ein zweidimensionales orts aufgelöstes Ladungsbild erzeugt und das Röntgenbild gespeichert. Nach einer vorgegebenen Speicherzeit (die Zeit zwischen zwei Auslesungen) wird das Ladungsbild durch den niederenergetischen Elektronenstrahl ausgelesen. Für die Bereiche der abgetasteten Oberfläche des SEC-Targets, die nicht durch eine einfallende Röntgenstrahlung positiv aufgeladen wurden, treffen keine Elektronen aus der Elektronenkanone auf das Target und es ergibt sich damit auch kein Stromimpuls an der Signalelektrode. Ein Strom aus der Kathode und damit ein Stromimpuls an der Signalelektrode ergibt sich für alle positiv aufgeladenen Gebiete des Targets. Die Größe des Stromimpulses ist ein Maß für die Zahl der Ladungen, die im Pixel gespeichert wurden, und damit auch für die Anzahl der Röntgenquanten. Die positiv aufgeladenen KCl-Bereiche werden durch die Ladungsauslesung wieder zurück auf Kathodenpotential gebracht, d.h. in den nicht geladenen Zustand.

Bei unserem Detektor wird das Target des SEC-Vidikons nicht, wie bei den üblichen Fernsehdatenerfassungssystemen, kontinuierlich ausgelesen, vielmehr wird im ersten Schritt der Ladungsauslesung der Strahl auf eins der  $90 \cdot 90$  Auflösungselemente positioniert. Während dieser Zeit wird der Elektronenstrahl durch eine negative Spannung an einem Gitter gesperrt. Im zweiten Schritt wird das Gitter für eine feste Zeit  $\Delta t$  (typisch 1  $\mu\text{s}$ ) geöffnet und die Ladung des Auflösungselementes

$$Q = \int_0^{\Delta t} I dt \text{ wird mittels eines ladungsempfindlichen Vorverstärkers}$$

ausgelesen, von einem 12 Bit-ADC digitalisiert und dann mittels DMA in einen Rechner vom Typ PDP 11-34 transferiert. Die Ablenkung des Elektronenstrahls, das Öffnen und Sperren des

Gitters sowie die Auslesung wird durch den Computer gesteuert. Dieser Vorgang dauert für jedes Pixel etwa 50  $\mu$ s. Mittels einer neuen Auslesetechnik, die in Kapitel 5 beschrieben wird, läßt sich die Dynamik des SEC-Vidikons erhöhen.

### 3.2) Funktionstest des Röntgendetektors

#### 3.2.1) Genauigkeit von Speicherung und Auslesung

Für jeden integrierenden Detektor ist es notwendig nachzuweisen, daß das Speichermedium ein perfekter Analogspeicher ist. Deshalb wurde die Integrationsfähigkeit des SEC-Targets untersucht. Für eine Anzahl von Messungen bei gleichen Belichtungszeiten von  $4.5 \cdot 10^{-2}$  Sekunden (die Belichtung erfolgte in diesem Falle mit Licht) wurde das Target unter verschiedenen Bedingungen ausgelesen. Die erste Bedingung beschreibt den Normalbetrieb des Detektors, d.h. die Auslesungen erfolgten zeitlich unmittelbar nach der Belichtung (siehe Abb. 3.2a).

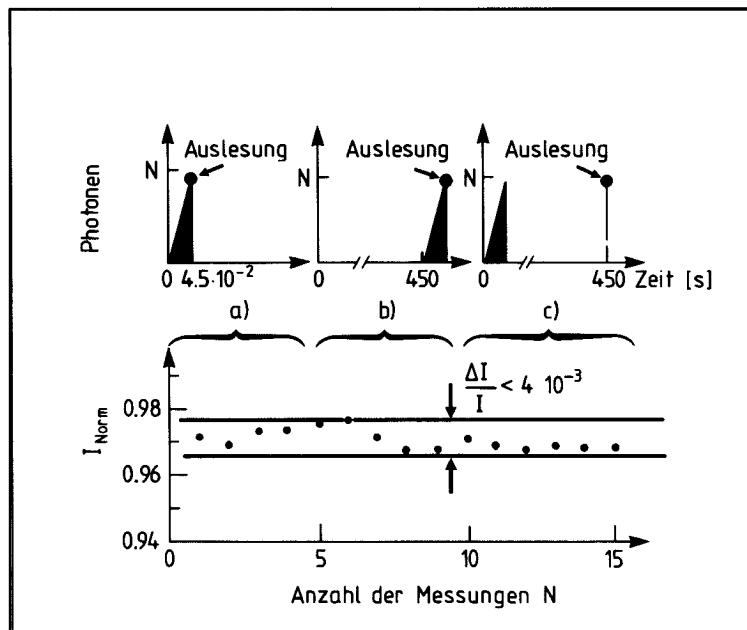


Abb. 3.2 Test der Integrationsfähigkeit des SEC-Targets

- a) normaler Auslesemodus
- b) 450 s gewartet, belichtet und ausgelesen
- c) belichtet, 450 s gewartet und ausgelesen

Im nächsten Schritt wurde überprüft, ob eventuell eine Rauschladung während der Integrationszeit aufsummiert wird. Dazu wurde nach einer Dunkelzeit von 450 Sekunden wiederum die gleiche Belichtung vorgenommen, wie bei Abb 3.2a und dann ausgelesen (Abb 3.2b).

Um einen etwaigen Ladungsverlust während der Integrationszeit festzustellen, wurde das Target wie vorher belichtet, aber die Ladung erst nach einer Dunkelzeit von 450 Sekunden ausgelesen. Die Mittelwerte der Messungen unter den drei Auslesebedingungen stimmen mit einer Genauigkeit von  $4 \cdot 10^{-3}$ , die vermutlich durch Schwankungen in den einzelnen Belichtungszeiten verursacht werden, überein. Daher ist das SEC-Target praktisch ein perfekter Analogspeicher ohne nennenswerte Rauschladung und Ladungsverluste.

Die Auslesegenauigkeit des Targets und der Elektronik wurde mit den folgenden Messungen überprüft. Für diese Messungen wurde das Target mit einer geregelten Leuchtdiode jeweils gleichlang belichtet, wobei sich ein Potential von ca. 9 Volt in der KCl-Schicht einstellt. In Abb. 3.3a sind die ausgelesenen Intensitäten in Einheiten des Mittelwertes für einige Messungen mit zwei unterschiedlichen Größen des Auflösungselementes von  $(8 \mu\text{m})^2$  und  $(192 \mu\text{m})^2$  aufgetragen.

Es wurde dann die Abweichung  $\Delta I$  der Intensität  $I$  für mehrere Intensitätsauslesungen  $I_N$  bestimmt. Hier wurde im Gegensatz zur

üblichen Definition  $\frac{\Delta I}{I} = \frac{I_N - \langle I \rangle}{\langle I \rangle}$  folgende Beziehung verwandt:

$$\frac{\Delta I}{I} = \frac{I_{N+1} - I_N}{I_{N+1}} \sqrt{2} \quad (\text{Gl. 3.1})$$

Es wurde hier immer auf die nächstfolgende Messung  $I_{N+1}$  als Referenz normiert, um Langzeitschwankungen des Detektors nicht berücksichtigen zu müssen.

Beide Messungen sind mit einem Fehler behaftet, daher wurde der Faktor  $\sqrt{2}$  in die Gleichung eingefügt.

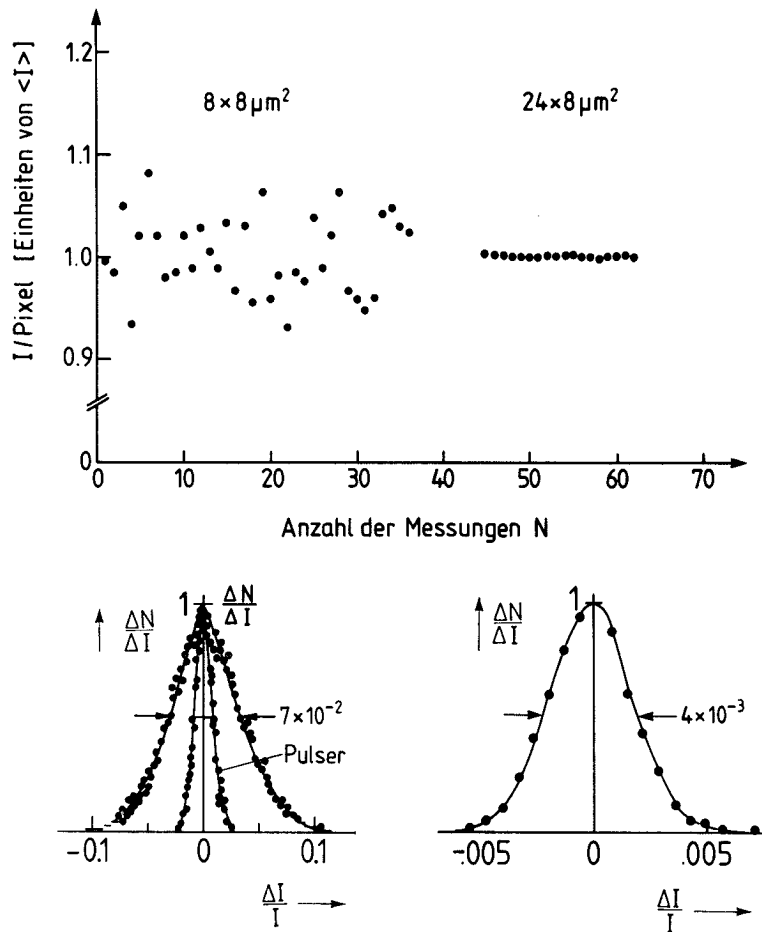


Abb. 3.3 Auslesestatistik des SEC-Targets:

Intensitätsschwankungen und Intensitätsabweichungen  
für zwei Pixelgrößen von  $(8 \mu\text{m})^2$  und  $(192 \mu\text{m})^2$

Um die Verteilung  $\frac{\Delta N}{\Delta I}$  zu bestimmen, wurden Intervalle mit einer bestimmten Intervallgröße  $\Delta I$  über die normierten Intensitäts-

werte gelegt. Danach wurden die Intensitätswerte  $\Delta N$  in den Intervallen ausgezählt. Abb. 3.3b zeigt für die beiden unterschiedlichen Pixelgrößen die Verteilung. Es wurde dann das elektronische Rauschen bestimmt, indem mittels eines Impuls-generators (Pulser) Signale auf den Testeingang des Vorver-stärkers gegeben wurden. Das elektronische Rauschen ist gegen-über dem Quantenrauschen um einen Faktor 4 kleiner. Die Aus-lesung wird daher im wesentlichen durch die Statistik der primär erzeugten Photoelektronen bestimmt.

Für die Erzeugung von 9 V Potentialexkursion sind mit den Daten aus Kapitel 3.2.2 drei Photoelektronen/ $\mu\text{m}^2$  erforderlich. Diese Zahl ergibt sich aus der dort gemessenen Zahl von  $600 e_{\text{sec}}/\mu\text{m}^2$  für 9 V Potentialexkursion durch Division mit dem SEC-Verstär-kungsfaktor von 200. Man erhält dann für die beiden Pixelgrößen von  $(8 \mu\text{m})^2$  bzw.  $(192 \mu\text{m})^2$  als Zahl der erzeugenden Photoelek-tronen  $200 e_{\text{ph}}$  und  $1.2 \cdot 10^5 e_{\text{ph}}$  mit den Fehlern  $\pm 14 e_{\text{ph}}$  bzw  $\pm 350 e_{\text{ph}}$ . Das Vorverstärkerrauschen (elektronische Rauschen) beträgt gemäß dem Datenblatt  $\pm 700 e_{\text{sec}}$  für eine Auslesung, dies entspricht  $\pm 3.5 e_{\text{ph}}$ . Vergleicht man dies mit dem statistischen Fehler bei der  $(8 \mu\text{m})^2$  Pixelgröße, ergibt sich, wie bei den Messungen, einen um Faktor 4 kleineres elektronisches Rauschen gegenüber dem Quantenrauschen.

Für die  $(192 \mu\text{m})^2$  großen Pixel war es nicht möglich den Durch-messer des auslesenden Elektronenstrahls auf diese Größe zu bringen. Daher wurden für diese Pixelgröße eine Aufsummierung von 36 Auflösungselementen der Größe  $(32 \mu\text{m})^2$  durchgeführt. Das Rauschen der 36 aufsummierten Signale wird durch das 36 malige elektronische Rauschen etwas verschlechtert. Dieser Effekt ist jedoch vernachlässigbar. Daher erlaubt das SEC-Target neben perfekter Integrationsfähigkeit auch die notwendige Auslesung der Ladungen mit der Genauigkeit der Quantenstatistik.

Um einen größeren Detektor für Kleinwinkelstreuexperimente zu bauen, wurde das 16 mm Eingangsfenster der SEC-Röhre über einen Faseroptikkegel /19/ an das 40 mm große Austrittsfenster eines kommerziell hergestellten Bildverstärkers (Varian VLI-116) /20/ gekoppelt.

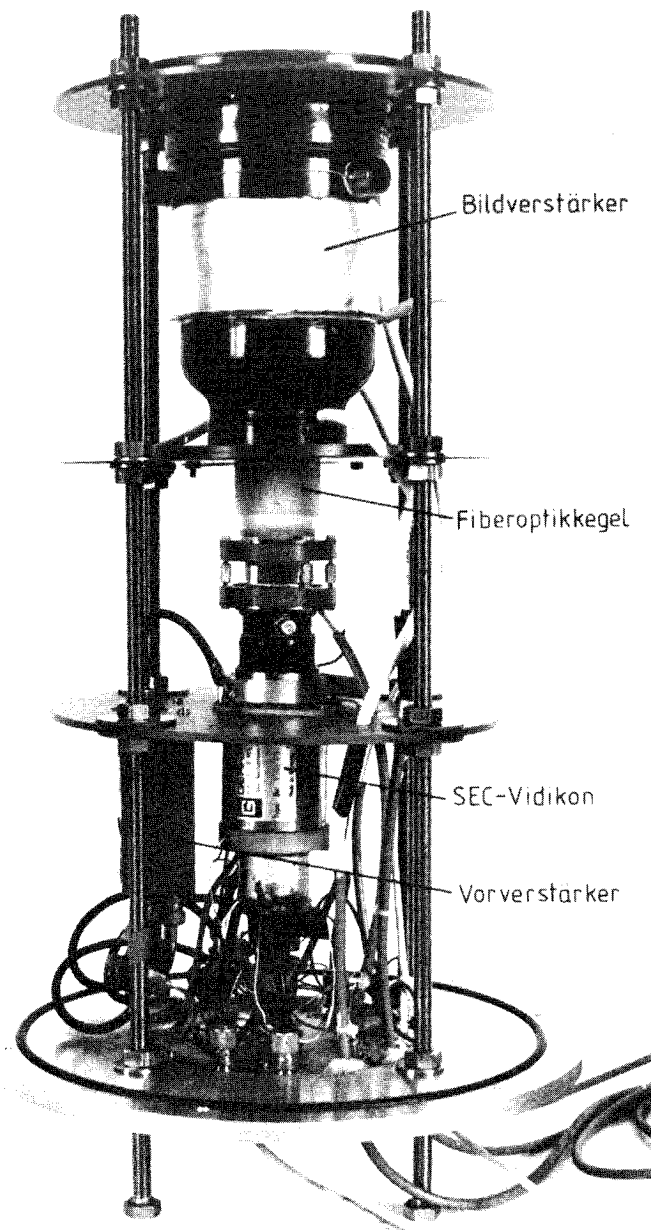


Abb. 3.4 Röntgendetektor mit Bildverstärker, Faseroptikkegel und SEC-Vidikon

Der Bildverstärker besitzt ein Eintrittsfenster mit 80 mm Durchmesser, auf den eine Faseroptikplatte mit einem aufsedimentierten  $\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S}$ -Fluoreszenzschirm gekoppelt ist. Der Fluoreszenzschirm wurde mit einer für die Röntgenstrahlung durchlässigen Aluminiumfolie abgedeckt, um das Licht, das im Fluoreszenzschirm in alle Raumrichtungen emittiert wird, in Richtung Photokathode zu reflektieren. Abb 3.4 zeigt die endgültige Detektorkombination bei geöffnetem Detektorgehäuse.

Um den Quantenfluß dieser Kombination zu bestimmen, wurde der Fluoreszenzschirm (a) direkt mit der SEC-Röhre, (b) mit dem Faseroptikkegel+SEC-Vidikon und (c) mit dem Bildverstärker+Faseroptik+SEC-Vidikon gekoppelt. Danach wurden die einzelnen Kombinationen durch eine Lochmaske aus Blei (Lochdurchmesser 3 mm) mit einem 17 keV Röntgenstrahl belichtet. In Abb. 3.5 ist die Intensitätsverteilung in einer Zeile durch das Zentrum des Fleckes dargestellt. Die Abnahme der Fläche für die Kombinationen b) und c) entsteht durch eine Verkleinerung des Bildes. Die Verkleinerung des Bildes am Eingangsfenster der SEC-Röhre wird durch das Vorschalten des Faseroptikkegel bzw. des Bildverstärker bewirkt. Die notwendigen Belichtungszeiten, um das SEC-Target auf gleiches Potential von 9 Volt aufzuladen, waren (a) 1800 Sekunden, (b) 600 Sekunden und (c) 30 Sekunden. Die Messung für die Kombination (a) (Fluoreszenzschirm+SEC-Röhre) ergibt 20 Photoelektronen ( $=4000 e_{\text{SEC}}$ ) für jedes 17 keV Röntgenquant. Dieser Wert ist kleiner als der in Abb 3.1 abgeschätzte Wert, da hier ein zusätzlicher Intensitätsverlust innerhalb der Faseroptikplatte des Fluoreszenzschirmes auftritt. Für den Quantenfluß ergibt sich bei Kombination (b) aus einem Vergleich der beleuchteten Fläche und der Belichtungszeit 8 Photoelektronen ( $=1600 e_{\text{SEC}}$ ) pro auftreffendes Röntgenquant. Die Verluste im Faseroptikkegel und der Kopplung betragen demnach 40 %. Für den komplett montierten

Röntgendetektor (c) erhält man einen Wert von 42 Photoelektronen ( $=8400 e_{\text{SEC}}$ ) pro eingestrahktes 17 keV Röntgenquant.

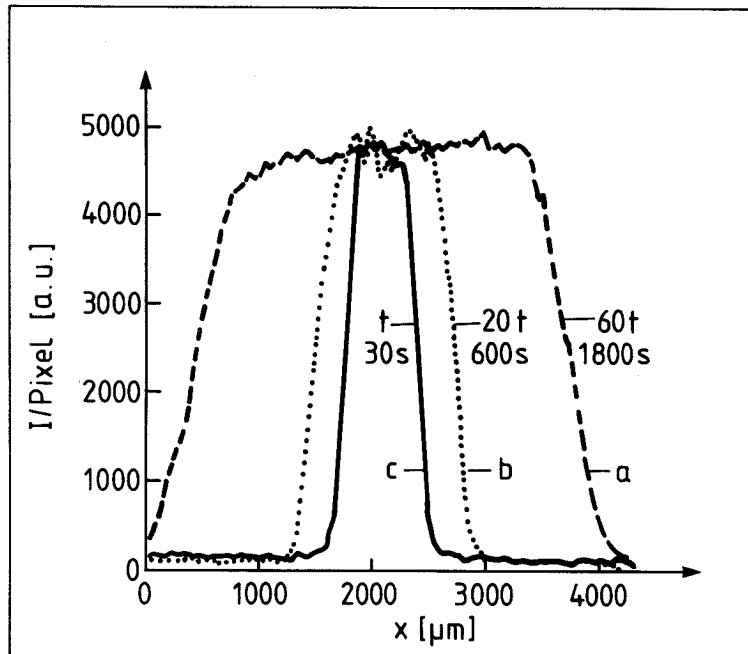


Abb. 3.5 Bild eines 3 mm großen Röntgenflecks auf dem Fluoreszenzschirm gemessen mit  
a) Vidikon  
b) Faseroptikkegel+Vidikon  
c) Bildverstärker+Faseroptikkegel+Vidikon

Dieser Quantenfluß erlaubt die perfekte Speicherung und Auslesung auch der von einem Röntgenquant erzeugten Ladungen.

### 3.2.2) Analogspeicherkapazität

Für die diffuse Röntgenstreuung an modernen Synchrotronstrahlungsquellen würde eine mittlere Analogspeicherkapazität von etwa  $10^3$  Röntgenquanten pro Pixel ausreichen, um die maximal zu erwartenden  $10^{10}$  Röntgenquanten/s Detektor auf eine Rate von  $10^7$  Ladungsauslesungen pro Sekunde zu reduzieren, die standardmäßig mit 10 MHz Fernsehdatenerfassungssystemen zu erreichen sind. Das verwendete SEC-Target liefert auf einer ausgeleuchteten Fläche von  $9.6 \cdot 12.8 \text{ mm}^2$  in der Sättigung einen maximalen Signalstrom  $i$  von 450 nA bei einer Potentialexkursion von 15 Volt, wenn es nach der europäischen Fernsehnorm mit einer Auslesezeit von 40 ms pro Bild betrieben wird. Für die maximal speicherbare Zahl an Elektronen pro  $\text{cm}^2$  ergibt sich daraus ein Wert von  $9.2 \cdot 10^{10}$  Elektronen/ $\text{cm}^2$ . Bei einer ausnutzbaren Potentialexkursion des SEC-Targets von 9 Volt kann man dann  $6 \cdot 10^{10} e_{\text{SEC}}/\text{cm}^2$  auf dem Target speichern.

Aus dem letzten Kapitel wissen wir, daß ein 17 keV Röntgenquant  $8400 e_{\text{SEC}}$  erzeugt. Wenn das  $2.01 \text{ cm}^2$  große Target gleichmäßig ausgeleuchtet wird und alle 40 ms ausgelesen wird, können somit  $1.4 \cdot 10^8$  Röntgenquanten/s (17 keV) erfaßt werden. Für 8 keV-Röntgenstrahlung ergibt sich entsprechend eine Analogspeicherkapazität von  $2.8 \cdot 10^8$  Röntgenquanten/s. Der hier verwendete Röntgendetektor mit seinem kleinen Speichertarget von nur  $2.01 \text{ cm}^2$ , der nicht für extrem hohe Röntgenflüsse gebaut wurde, ist somit bereits eine Größenordnung schneller als bisherige, zweidimensional ortsauflösende Gasproportionalzähler. Eine weitere Steigerung würde sich durch eine kleinere Auslesezeit erzielen lassen.

### 3.2.3) Nachweiswahrscheinlichkeit

Alle ortsauflösenden Röntgendetektoren müssen für jedes Auflösungselement (=Pixel) bezüglich ihrer Nachweiswahrscheinlichkeit geeicht werden. Die Nachweiswahrscheinlichkeiten  $w_i(\tilde{I})$  wird für jedes Pixel  $i$  bestimmt durch:

$$\tilde{I}_i = I \cdot w_i(\tilde{I}) \quad (\text{Gl. 3.2})$$

Hierbei ist  $\tilde{I}_i$  die im Pixel  $i$  nach der Belichtungszeit  $t$  gemessene integrierte Intensität (Digits) und  $I$  die in derselben Zeit auftreffende Zahl von Röntgenquanten. Die Nachweiswahrscheinlichkeiten  $w_i(\tilde{I})$  sind für jedes Pixel unterschiedlich. Der Grund ist eine nicht ganz homogene Dicke des Fluoreszenzschirmes und des SEC-Targets. Im Gegensatz zum linearen Response eines Quantenzählers (nach Totzeitkorrektur) ist bei dem hier verwendeten integrierenden Detektor die Nachweiswahrscheinlichkeit von der in der Zeit  $t$  aufsummierten Zahl von Röntgenquanten abhängig. Der Grund ist, daß die Verstärkung in der SEC-Schicht keine Konstante ist, sondern vom Ladungszustand der SEC-Schicht abhängt. Abb. 3.6 zeigt die Kennlinie des SEC-Vidikons für ein Pixel  $i$  und man sieht, daß die Nachweiswahrscheinlichkeit mit zunehmender integrierter Intensität abnimmt. Je mehr Ladungen in der SEC-Schicht gespeichert werden, desto geringer wird das elektrische Feld, das über der Schicht liegt. Damit wird die Ladungstrennung, durch das elektrische Feld immer unvollständiger und die Kennlinie des SEC-Vidikons zeigt eine Sättigung.

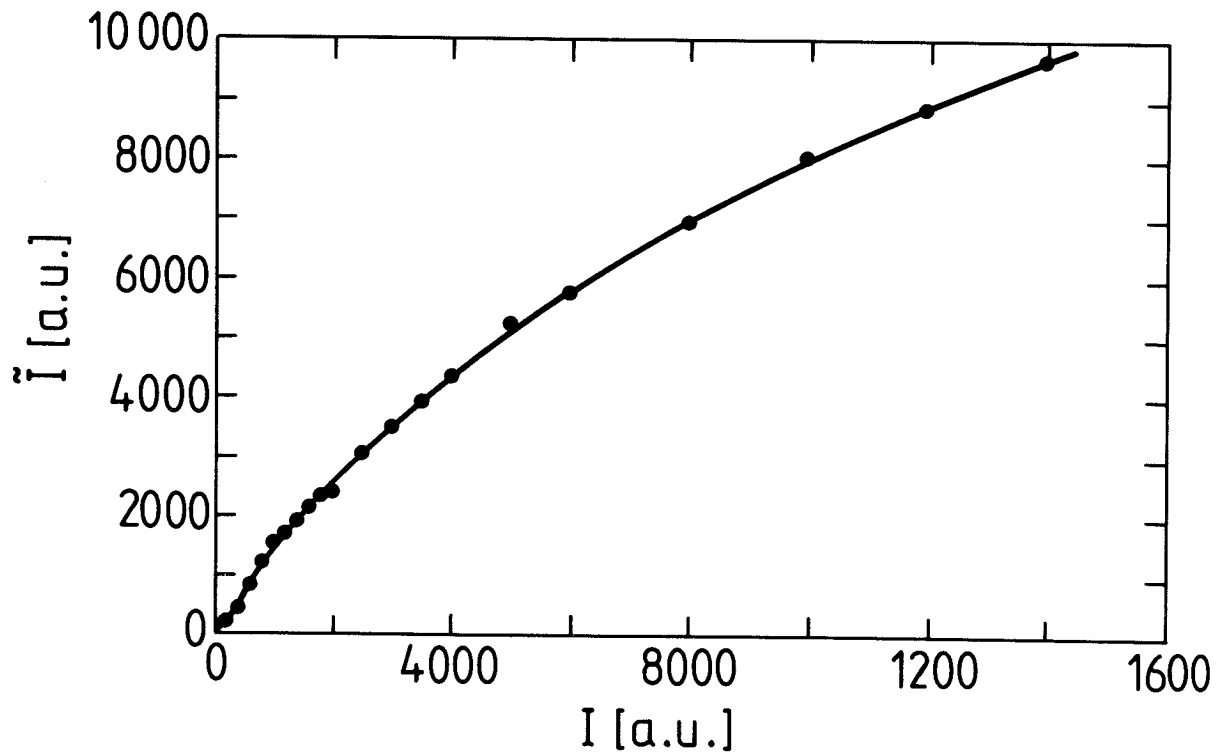


Abb 3.6 Kennlinie eines Pixels des SEC-Vidikons

Für ein SEC-Targets gilt näherungsweise folgender Zusammenhang:  
/21/

$$w_i(\tilde{I}) = \frac{a_i \cdot b_i \cdot \tilde{I}_i}{I \cdot (a_i \cdot \tilde{I}_i + b_i)} \quad (\text{Gl. 3.3})$$

$a_i$ : Anfangssteigung der Kennlinie für Pixel  $i$

$b_i$ : Sättigungswert des SEC-Targets für Pixel  $i$

Für die Eichung des integrierenden Detektors ist es nötig, daß die Kennlinien für alle Pixel des Röntgendetektors bestimmt werden. Dies kann beispielsweise durch räumlich gleichmäßige

Belichtung mit einer zeitlich konstanten Röntgenquelle geschehen, wodurch jedes Pixel die gleiche Röntgenintensität erhält und der Detektor auf gleichmäßige Nachweiswahrscheinlichkeit für alle Pixel geeicht werden kann. Als Funktion zunehmender Belichtungszeiten können dann die Kennlinien für alle Pixel direkt gemessen werden.

Bei dem hier verwendeten Röntgendetektor enthält die gemessene integrierte Intensität noch einen Dunkelstrombeitrag, der durch den verwendeten Bildverstärker hervorgerufen wird. Das SEC-Target selbst ist ein Isolator und daher dunkelstromfrei. Der Dunkelstrombeitrag ist für jedes Pixel verschieden. Daher ist es nicht möglich ohne einen Dunkelstromabzug den integrierenden Röntgendetektor auf gleiche Nachweiswahrscheinlichkeit zu eichen, da wegen Gl. 3.3 der Beitrag des Dunkelstroms zu  $\tilde{I}$  nicht proportional zur Belichtungszeit  $t$  ist. Trotzdem ist eine Korrektur möglich, falls das folgende Verfahren angewendet wird:

Man mißt zuerst die integrierte Intensität  $\tilde{I}$  als Funktion der Belichtungszeit bei Belichtung mit der Röntgenintensität  $c_x$  (=Zahl der Röntgenquanten und Sekunde pro Pixel). Daraus ergibt sich:

$$\tilde{I}_{x+D}(t) = w(\tilde{I}_{x+D}) \cdot (c_x + c_D) \cdot t_{x+D} \quad (\text{Gl. 3.4})$$

Die Größe  $\tilde{I}_{x+D}$  enthält dabei auch einen Beitrag  $c_D \cdot t_{x+D}$  des Dunkelstroms. In einer zweiten Messung mißt man dann den Verlauf von  $\tilde{I}$  ohne Röntgenintensität, d.h. nur den Effekt des Dunkelstromes. Es gilt dann:

$$\tilde{I}_D(t) = w(\tilde{I}_D) \cdot c_D \cdot t_D \quad (\text{Gl. 3.5})$$

Der Index x+D bzw. D charakterisiert dabei die Art der Erzeugung, der im Detektor nachgewiesenen Ladungen. Die funktionale Abhängigkeit von  $w(\tilde{I})$  hängt dabei nicht davon ab, auf welche Weise die Ladungen im Detektor erzeugt wurden. Vergleicht man nun bei gleichen Werten von  $\tilde{I}$  die Zeiten  $t_{x+D}$  und  $t_D$  für die Aufladung des Detektors mit und ohne Röntgenquanten (Abb. 3.7), so folgt:

$$\frac{t_{x+D}}{t_D} = \frac{c_D}{c_x + c_D} \quad (\text{Gl. 3.6})$$

und somit für  $w(\tilde{I})$ :

$$w(\tilde{I}) = \frac{\tilde{I} \cdot \left(1 - \frac{t_{x+D}}{t_D}\right)}{c_x \cdot t_{x+D}} \quad (\text{Gl. 3.7})$$

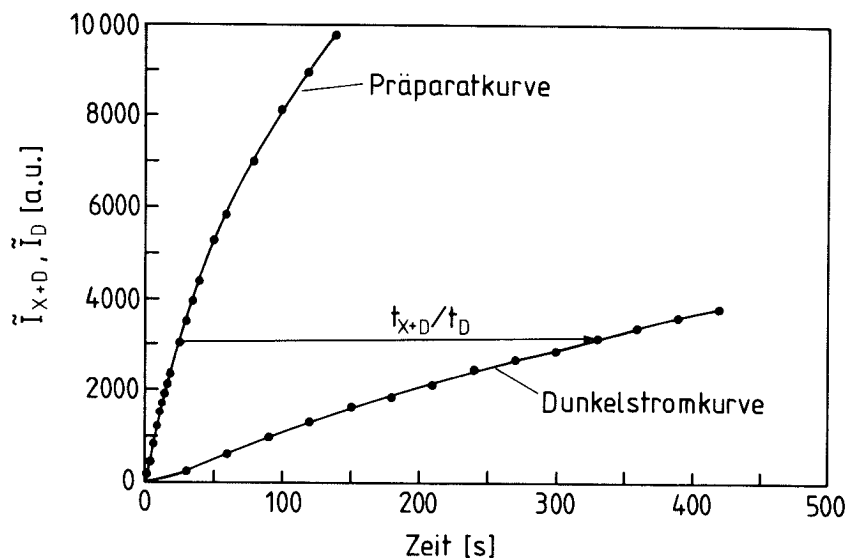


Abb. 3.7 Bestimmung des Verhältnisses  $t_{x+D}/t_D$

Für die Bestimmung von  $w(\tilde{I})$  wurde die gesamte Detektorfläche gleichmäßig mit 6.7 keV Röntgenquanten eines  $\text{Fe}^{57}$ -Präparats bestrahlt. Die 6.7 keV sind verwandt worden, da für diese Energie die Nachweiswahrscheinlichkeit des Fluoreszenzschirm sich nicht wesentlich von der für die 8 keV Röntgenstrahlung unterscheidet, mit denen die spätere Messung durchgeführt wurden. Die durch das Präparat verursachte Intensität  $\tilde{I}_{x+D}$  wird bis etwa 2/3 des Sättigungswert mit verschiedener Belichtungszeiten gemessen. Der Dunkelstrom wird bis etwa 1/3 des Sättigungswertes gemessen, da sonst die Meßzeiten für den Dunkelstrom zu lang sind. Die beiden Messungen erfolgen hintereinander. Die Präparatkurve wird dann auf die Dunkelstromkurve mittels einer Zeitachsentransformation abgebildet. Dazu wird sowohl die Fläche unter der Dunkelstromkurve als auch der Präparatkurve bis zum höchsten gemessenen Dunkelstromwert berechnet. Das Verhältnis der Flächen bestimmt dann den Schiebefaktor  $t_{x+D}/t_D$  für den gesamten Kurvenverlauf.

Der Verlauf der Nachweiswahrscheinlichkeit wird dann nach (Gl. 3.7) berechnet. Dieses Verfahren wird für alle Pixel des Röntgendetektors angewendet. In Abb. 3.8 ist die Größe  $c_x w(\tilde{I})$  für ein Pixel in Abhängigkeit von  $I$  aufgetragen. Die Auftreffrate der Röntgenquanten  $c_x$  bleibt bei der Präparatmessung in dieser Darstellung zunächst offen. Da diese jedoch ein konstanter Faktor für alle Pixels darstellt, kann er durch entsprechende Normierung eliminiert werden.

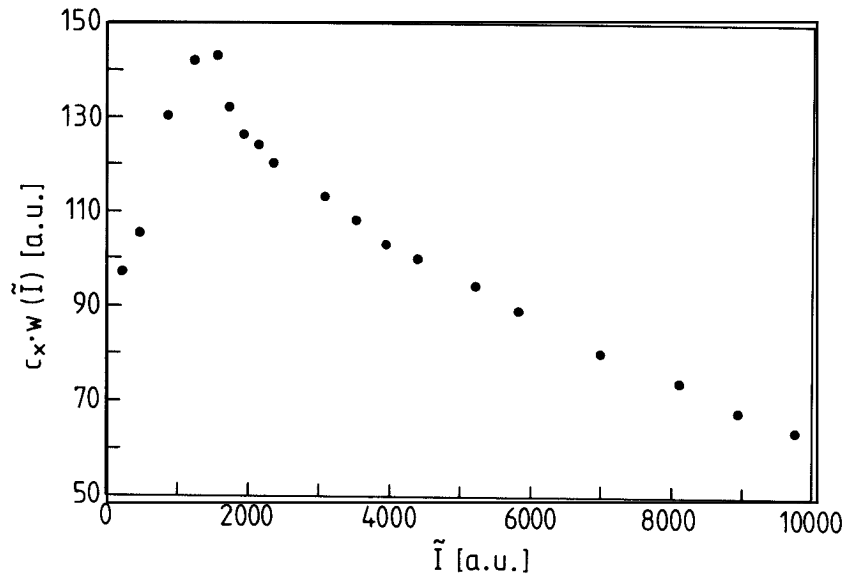


Abb. 3.8 Verlauf der Nachweiswahrscheinlichkeit

Die Nachweiswahrscheinlichkeitskorrektur für jedes Pixel einer Messung erfolgt so, daß für die nach der Belichtungszeit  $t$  gemessene Intensität  $\tilde{I}_{\text{gem}}$  aus der Stützpunktdatensatz die zwei nächstgelegenen Intensitäten  $\tilde{I}_1$  und  $\tilde{I}_2$  der Präpatkurve und die dazugehörigen Nachweiswahrscheinlichkeiten  $c_x w(\tilde{I}_1)$  und  $c_x w(\tilde{I}_2)$  gesucht werden. Man bestimmt nun für die gemessene Intensität  $\tilde{I}_{\text{gem}}$  mittels linearer Interpolation die zugehörige Nachweiswahrscheinlichkeit  $c_x w(\tilde{I}_{\text{gem}})$ .

Der Faktor  $c_x$  wird durch einen Vergleich zweier Streumessungen bestimmt, in denen die Streuintensitäten einer Eichsubstanz mit dem integrierenden Röntgendetektor und mit einem NaJ-Szintillationszähler mit bekannter Nachweiswahrscheinlichkeit gemessen und verglichen wird.

Abb 3.9 zeigt das Ergebnis. Die beiden Messungen mit dem integrierenden Detektor und dem Szintillationszähler können durch

richtige Wahl der Konstanten  $c_x = 38$  im gesamten  $Q$ -Bereich  
richtig übereinandergelegt werden.

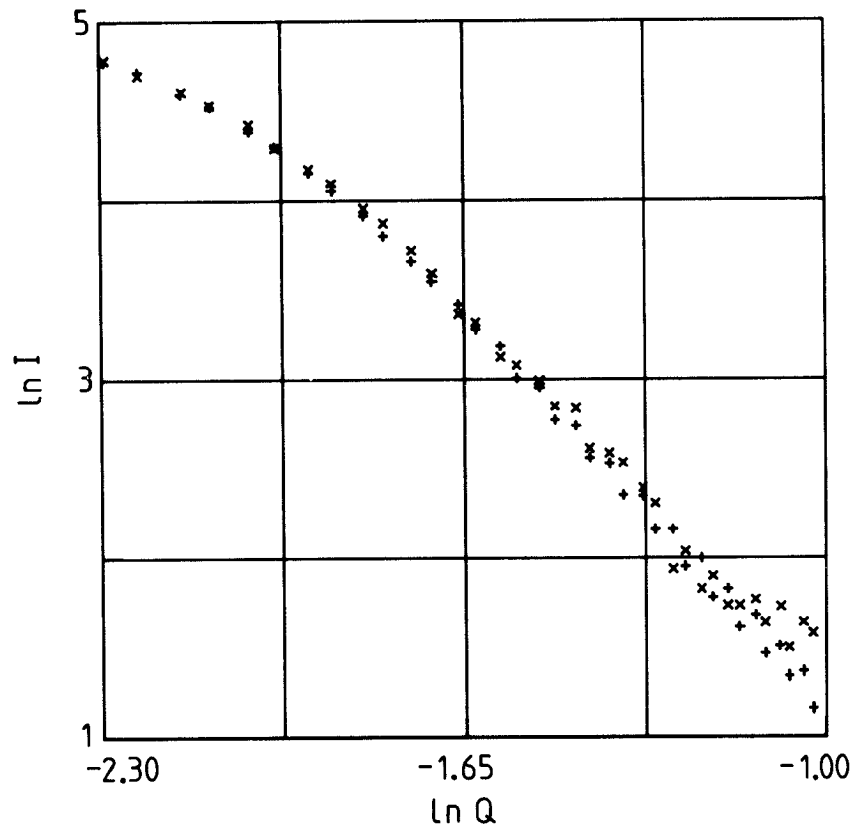


Abb. 3.9 Messung eines Eichstreuers mit integrierendem  
Detektor (x) und Szintillationszähler (+). Die  
Messung des integrierenden Detektors wurde zur  
Bestimmung des Eichfaktors  $c_x$  auf die Szintillations-  
zählermessung normiert.

### 3.2.4) Ortsauflösung

Für ortsauflösende Röntgendetektoren sind sowohl die Lage als auch die Größe des Auflösungselementes zwei wichtige Größen. Die Lage des Auflösungselementes auf dem Röntgendetektor bestimmt bei Streuexperimenten den Streuvektor (Kap. 4.1). Die Größe des Auflösungselementes legt den Intensitätskontrast fest, der noch vom Detektor aufgelöst werden kann.

Zur Bestimmung der Lage des Auflösungselementes wurde vor dem integrierenden Röntgendetektor eine Schlitzmaske angebracht, wobei die Breite des Schlitzes 4 mm betrug. Der Schlitz wurde durch Röntgenstrahlung auf den Detektor abgebildet. Danach wurde der Röntgendetektor in x-Richtung in 7 mm Schritten verfahren und eine Messung für jeden Schritt vorgenommen. Die gleiche Meßmethode wurde auch in y-Richtung angewandt, wobei die Schlitzmaske um 90 Grad gedreht wurde. In beiden Fällen wurden dann in einer Isointensitätsliniendarstellung des Schlitzbildes die Lage des Intensitätsmaximums (Kanal) in x- bzw. y-Richtung bestimmt. In Abb 3.10 sind die Ergebnisse dieser Messungen sowohl für die x- als auch die y-Richtung gegenüber der Verschiebung des Detektors aufgetragen.

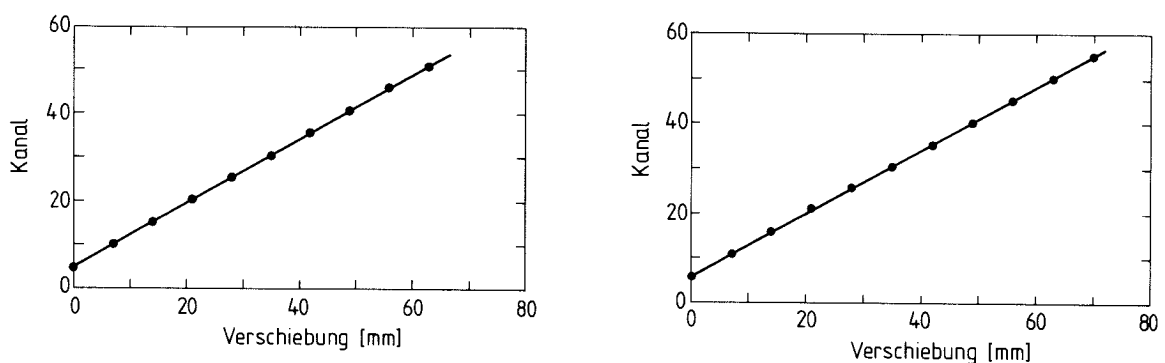


Abb 3.10 a,b Position eines Intensitätsmaximums bei der Verschiebung des Detektors in (a) x-Richtung bzw. (b) y-Richtung

Die Meßpunkte liegen sowohl für die x- als auch die y-Richtung auf Geraden. Aus den Steigungen der Geraden, die mittels eines Leastsquarefits bestimmt wurden, erhält man die Größe des einem Kanal entsprechenden Auflösungselementes. In x-Richtung ergibt sich  $1.424 \pm 0.036$  mm/Kanal und in y-Richtung  $1.371 \pm 0.026$  mm/Kanal. Die Form des Auflösungselementes ist nicht exakt quadratisch und der Detektor ist daher nicht völlig verzeichnungsfrei. Diese Verzeichnung wird im Auswerteprogramm (Kap 4.3) bei der Berechnung des Streuvektors berücksichtigt. Um weitere Verzeichnungen, wie z.B. tonnen- oder kissenförmige für die gesamte Zählfläche des Röntgendetektors zu erfassen, wurde mit Hilfe der Streustrahlung eines Eichstreuers eine Lochmaske (Durchmesser des Loches 2mm, Lochabstand 4mm) abgebildet. Abb. 3.11 zeigt eine Isointensitätslinie für  $I_{\max}/2$  dieser Messung.

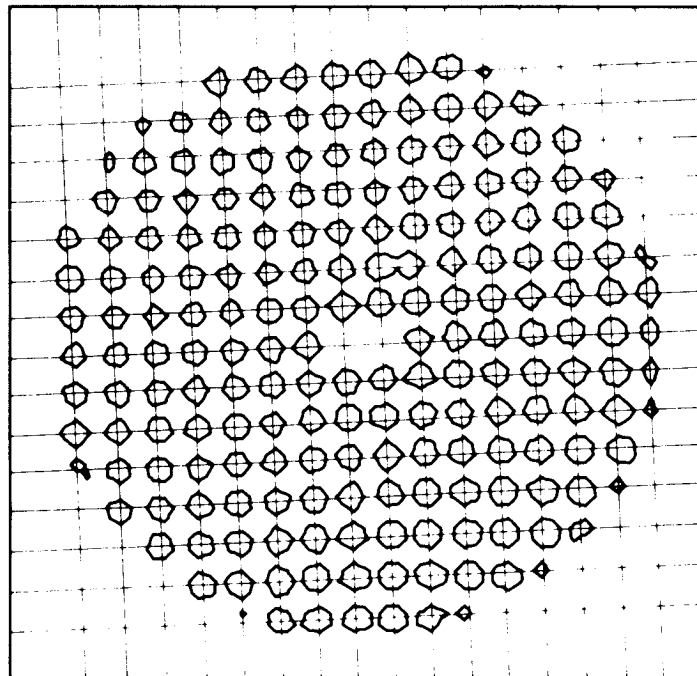


Abb. 3.11 Isointensitätsliniendarstellung  $I_{\max}/2$  einer über einen Eichstreuer belichteten Lochmaske

In diesem Bild wurde die unterschiedlichen Abmessungen der Auflösungselemente in x- bzw. y-Richtung berücksichtigt. Die Größe der Löcher nimmt nach außen hin ab, da diese Messung mit einem Eichstreuer gemacht wurde, bei dem die Streuintensität nach außen kleiner wurde. Die Lage der Zentren des Intensitätsmaximums zeigt, daß der Detektor keine weiteren Verzeichnungen besitzt.

Die Auflösung des Röntgendetektors, d.h. die Größe des Auflösungselementes, wird nicht nur durch die Größe des ausgelesenen Bereiches bestimmt, sondern zusätzliche Effekte, wie z.B. der Aufbau des Szintillationsschirm, Lichtstreuung in den Faseroptiken oder der Übergang Faseroptikplatte - Bildverstärker können die Auflösung verschlechtern. Dieser Einfluß wurde versucht experimentell zu bestimmen. Dazu wurde der Detektor mit einer Punktquelle beleuchtet (Lochmaske mit 1.5 mm Lochdurchmesser). Die Abbildung 3.12 a zeigt das Ergebnis der Messung nach einer Belichtung von einer Sekunde. In dieser Abbildung wird eine Zeile durch das Zentrum des Loches dargestellt. Es wird eine Intensität in 5 Pixeln gemessen. Für alle anderen Pixel wurde keine Intensität nachgewiesen. Man könnte nun meinen, daß man mit der normalen Auslesemethode einen Intensitätskontrast von unendlich erreichen kann. Dies ist eine falsche Schlußfolgerung, da die Auslesung bei sehr geringen Intensitätswerten nicht möglich ist. Um diese Schwierigkeit zu umgehen, wurde eine Aufnahme mit Hilfe der speziellen Auslesetechnik (Kapitel 5) vorgenommen. Die Lochmaske wurde 100 Sekunden belichtet. Hier zeigt sich nun, daß zusätzlich zur Verschmierung auf die benachbarten Kanäle auf dem gesamten Detektor ein schwacher Untergrund nachzuweisen ist (Abb 3.12b). Am Rande der Zählfläche ist die Intensität auf 1/5000 des Maximalwertes abgefallen. Vermutlich ist dieser Untergrund auf Lichtstreuung in den Faseroptiken zurückzu-

führen.

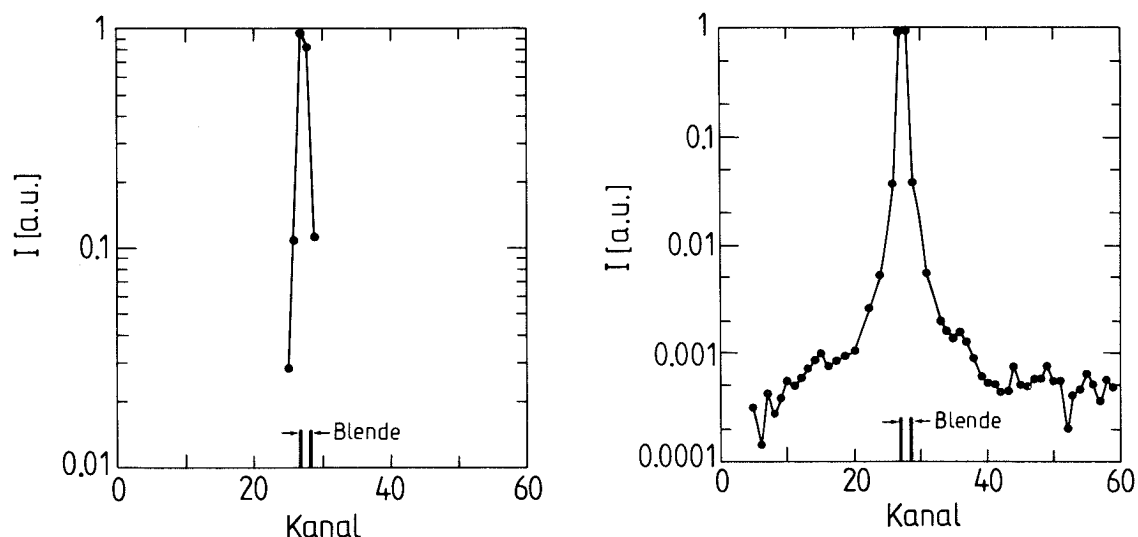


Abb. 3.12 Auflösungsfunktion bei (a) einer Sekunde und (b) 100 Sekunden Belichtung

Um ein Gefühl für den Einfluß der Verschmierung und des Untergrundes auf typische Kleinwinkelstreuexperimente zu bekommen, wurde eine theoretische Intensitätsverteilung mit der in Abb. 3.12 b gefaltet. Kleinwinkelstreuexperimente werden nach Potenzgesetzen ausgewertet, d.h. der Exponent ist die gesuchte Meßgröße. Hier wurde ein Exponent von  $-4$  ( $I \sim Q^{-4}$  Porodnäherung siehe Kap. 4.1.2) verwandt, da dieser den steilsten vorkommenden Intensitätsabfall bei Kleinwinkelstreuexperimenten darstellt. Abb. 3.13a zeigt die Faltung der theoretischen Intensitätsverteilung mit der Auflösungsfunktion. Es wurden in verschiedenen Bereichen der verschmierten Kurve Steigungen mittels eines Leastsqarefits bestimmt. Es ergibt sich über den gesamten Bereich der verschmierten Kurve eine Steigung von  $m = -3.935 \pm 0.044$ . Für zwei Teilbereiche von  $0.020 \text{ \AA}^{-1}$  bis  $0.082 \text{ \AA}^{-1}$  bzw.  $0.082 \text{ \AA}^{-1}$  bis  $0.162 \text{ \AA}^{-1}$  ergeben sich folgende Steigungen:  $m = -3.931 \pm 0.003$  bzw.  $m = -4.146 \pm 0.019$ .

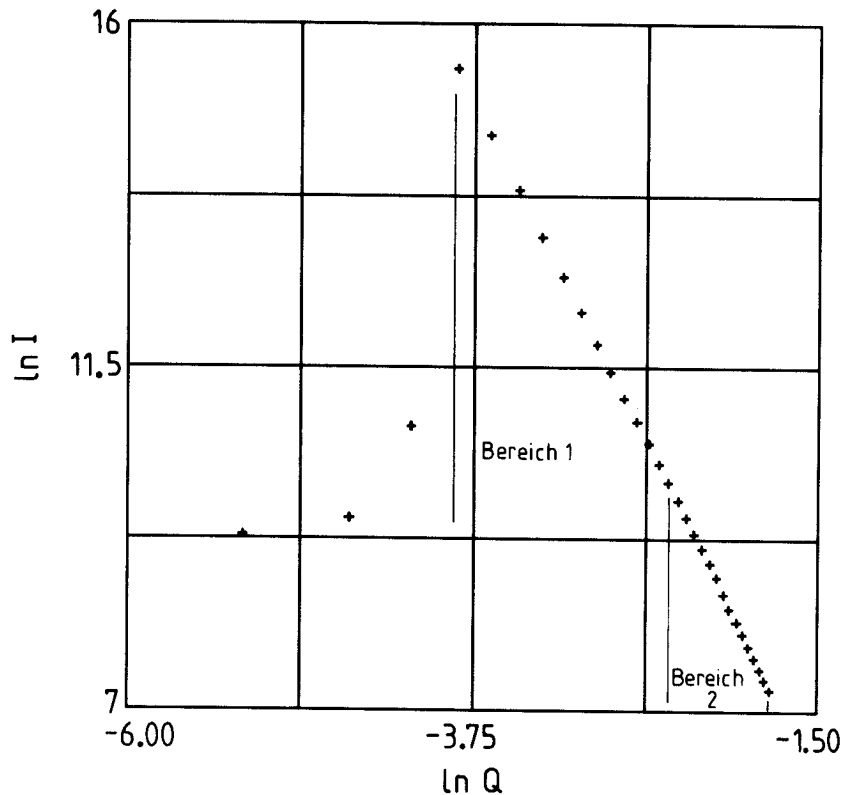


Abb. 3.13a theoretische Kurve gefaltet mit der  
Auflöpfungsfunktion nach Abb. 3.12b

Es treten somit kleine Abweichungen in der Steigung gegenüber der theoretischen Kurve auf. Diese sind jedoch bei Kleinwinkelstreuexperimenten tolerierbar. In Abb 3.13b wurde das Verhältnis der theoretischen Intensitätsverteilung mit der verschmierten Intensitätsverteilung berechnet.

Man erkennt eine Zunahme der Intensität für die verschmierte Kurve von  $0.17 \text{ \AA}^{-1}$  bis  $0.12 \text{ \AA}^{-1}$ , weil immer mehr benachbarte Auflösungselemente einen Intensitätsbeitrag liefern. Ab einem Streuvektor von  $0.09 \text{ \AA}^{-1}$  erhält man eine Abnahme der Intensität, da hier die Intensitätsbeiträge der Auflösungselemente unterhalb des Beamstops fehlen.

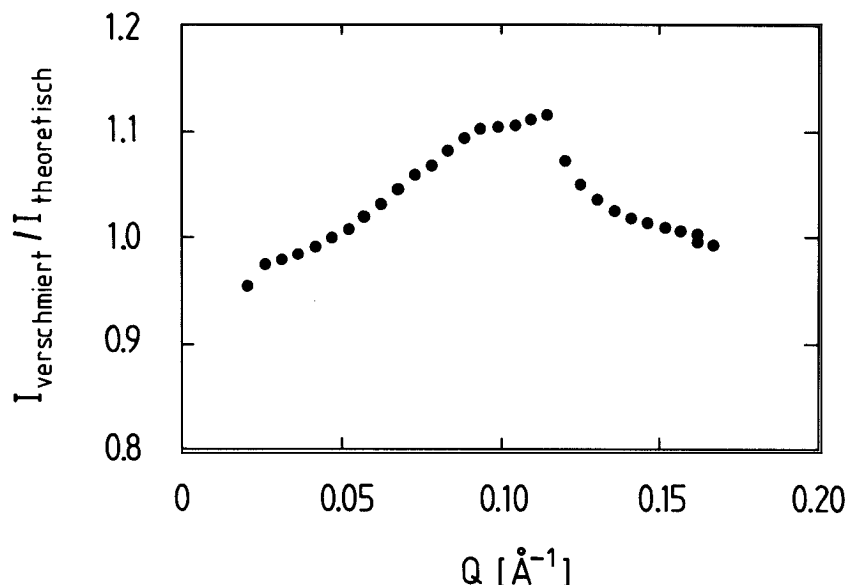


Abb. 3.13b Verhältnis von verschmierter zu theoretischer Kurve

Für die Kleinwinkelstreuung stellt die integrale Intensität  $Q_0 = \int I(Q) dQ$  (Kap 4.1.3) eines Streubildes eine fundamentale Größe dar, da sie ohne Zugrundelegung eines Strukturmodells den Unterschied in der Streulängendichte liefert. Deshalb wurde die

über alle Pixel aufsummierte Intensität  $\sum_{i=1}^{4096} I_i$  in Abhängigkeit

der beleuchteten Fläche des Röntgendetektors untersucht. Sie ist unabhängig von Auflösungseffekten. Es wurden dazu nacheinander Blenden mit unterschiedlicher Öffnung vor dem Eintrittsfenster des Röntgendetektors angebracht und mit Hilfe eines Präparates homogen und mit gleicher Belichtungszeit beleuchtet. Abb 3.14 zeigt die gemessenen Gesamtintensitäten in Abhängigkeit von der Blendenfläche als Maß für die auf den Detektor treffende integrale Intensität. Man erkennt einen linearen Zusammenhang zwischen gemessener und auftreffender Gesamtintensität, d.h. es geht innerhalb der Meßgenauigkeit

(Leastsqarefit) von 2% keine Intensität verloren.

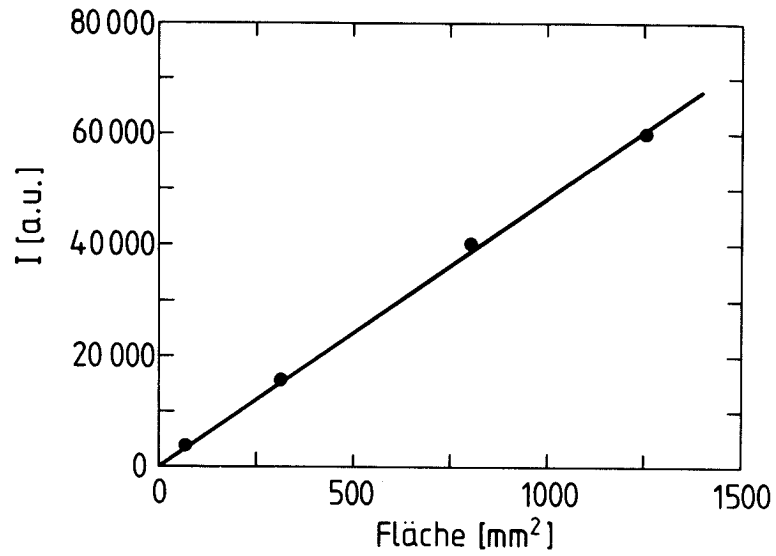


Abb. 3.14 integrierte Gesamtintensität in Abhängigkeit von verschiedenen Blendenöffnungen

#### 4) Einsatz des Röntgendetektors für Kleinwinkelstreuexperimente

##### 4.1) Röntgenkleinwinkelstreuung

Röntgenkleinwinkelstreuung ist eine der klassischen Methoden um die Änderung der Elektronendichte auf einer Längenskala von 1 - 100 nm zu untersuchen. Typische Untersuchungen in metallischen Systemen betreffen z.B. Konzentrationsfluktuationen in Legierungen in Nähe der Phasengrenzen oder Charakterisierung von Ausscheidungen. Sind  $\underline{K}_0$  und  $\underline{K}_1$  die Wellenvektoren der einfallenden und gestreuten Röntgenstrahlung mit der Wellenlänge  $\lambda$  ( $K_0=K_1=2\pi/\lambda$ ) ist der Streuvektor  $\underline{Q}$  definiert als /22/23/

$$\underline{Q} = \underline{K}_1 - \underline{K}_0 \quad (\text{Gl. 4.1})$$

$$Q = \frac{4\pi}{\lambda} \cdot \sin \theta/2 \quad (\text{Gl. 4.2})$$

wobei  $\theta$  der Streuwinkel ist.

Der differentielle Wirkungsquerschnitt in Elektroneneinheiten pro Atom einer Probe mit dem ausgeleuchteten Probenvolumen  $V_S$  ist gegeben durch:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{Z}{N_S} \left| \int_{V_S} \rho_e(\underline{r}) \cdot \exp(-i\underline{Q}\underline{r}) d^3\underline{r} \right|^2 \quad (\text{Gl. 4.3})$$

$Z$ : mittlere Kernladungszahl pro Atom in  $V_S$

$N_S$ : Zahl der Elektronen im Probenvolumen

$\rho_e(\underline{r})$ : lokale Elektronendichte

Für den einfachsten Fall von  $N_P$  Partikeln mit dem Volumen pro

Partikel  $V_P$  mit einer homogenen Streulängendichte  $\rho_{ep}$ , eingebettet in eine homogene Matrix der Streulängendichte  $\rho_{em}$ , vereinfacht sich der Wirkungsquerschnitt zu:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{N_P V_P^2}{N_S} (\rho_{ep} - \rho_{em})^2 S(\underline{Q}) \psi(\underline{Q}) \quad (\text{Gl. 4.4})$$

$$S(\underline{Q}) = \left| \frac{1}{V_P} \int_{V_P} \exp(-i\underline{Q}\underline{r}) d^3\underline{r} \right|^2 \quad (\text{Gl. 4.5})$$

$S(\underline{Q})$  ist die Einteilchen-Streufunktion und  $\psi(\underline{Q})$  beschreibt die Interferenz der Streuamplituden verschiedener Teilchen (Interpartikel-Interferenz). Informationen über die Gestalt, Größe und den Abstand der Partikel werden durch die  $\underline{Q}$ -abhängigen Faktoren  $S(\underline{Q}) \psi(\underline{Q})$  in Gleichung 4.4 gegeben. Der Vorfaktor

$$N_P V_P^2 (\rho_{ep} - \rho_{em})^2 \quad (\text{Gl. 4.6})$$

enthält das Gesamtvolumen  $N_P V_P$  der Partikel im ausgeleuchteten Probenvolumen  $V_S$  und den Unterschied der Streulängendichte von Matrix und Teilchen.

Für die Interpartikel-Interferenz  $\psi(\underline{Q})$  gilt folgende Beziehung.

$$\psi(\underline{Q}) = 1 + \int_{V_S} g(\underline{r}) \exp(-i\underline{Q}\underline{r}) d^3\underline{r} \quad (\text{Gl. 4.7})$$

$g(\underline{r})$  ist die Paar-Verteilungsfunktion, d. h. sie gibt die be-

dingte Wahrscheinlichkeit an, daß ein Partikel am Ort  $\underline{r}$  ist, wenn (gleichzeitig) ein anderes Partikel am Ursprung ist. Für regellos verteilte Teilchen ist  $\psi(\underline{Q}) = 1$ .

$S(\underline{Q})$  kann für jede Teilchengestalt berechnet werden und die freien Parameter können an die experimentellen Daten angefitet werden. Man kann  $S(\underline{Q})$  aber auch nach Potenzen von  $\underline{Q} \cdot \underline{R}$  entwickeln. Für kleine und große  $Q$ -Werte lassen sich dann Näherungsformeln angeben.

#### 4.1.1) Guinier-Näherung

In Systemen, in denen alle Teilchen die gleiche Größe und Form aufweisen und isotrop verteilt sind, gilt nach Guinier /24/ für die Einteilchenstreuungsfunktion bei kleinen Streuwinkeln folgender Zusammenhang:

$$S(Q) = \exp\left(-\frac{Q^2 R_G^2}{3}\right) \quad (\text{Gl. 4.8})$$

mit

$$R_G^2 = \frac{1}{V_P} \int_{V_P} r^2 d^3 \underline{r}$$

$R_G$  ist der Streumassen- bzw. Guinierradius.

Die Guinier-Näherung verliert ihre Gültigkeit für große Streuwinkel:  $Q \cdot R_G \leq 1.2$ .

Für kugelförmige Ausscheidungen des Radius  $R_K$  gilt der Zusammenhang:

$$R_G = \sqrt{\frac{3}{5}} R_K \quad (\text{Gl. 4.9})$$

Trägt man in einem Diagramm den Logarithmus der Streuintensität gegen das Quadrat des Streuvektors auf, so ergibt dies bei kleinen Streuwinkeln eine Gerade. Aus ihrem Anstieg läßt sich der Streumassenradius  $R_G$  der Teilchen bestimmen.

#### 4.1.2) Porod-Näherung

Für beliebig geformte, statistisch orientierte Teilchen mit einer scharfen Oberfläche nimmt bei größeren Q-Werten die Streuintensität umgekehrt proportional zur 4. Potenz des Streuwinkels ab /25/:

$$S(Q) = 2\pi (\rho_{ep} - \rho_{em})^2 \frac{A}{Q^4} \quad (\text{Gl. 4.10})$$

A: Teilchenoberfläche eines Teilchens

Diese Porodnäherung ist nur für große Streuvektoren ( $Q \cdot R \geq 5$ ) gültig. Man kann mit ihr die Oberfläche des Teilchen bestimmen.

#### 4.1.3) Integrierte Intensität

Für die Integralintensität  $Q_0$  gilt im Fall radialsymmetrischer Teilchen:

$$Q_0 = 4\pi \int_0^\infty Q^2 I(Q) dQ = (2\pi)^3 c_p (1 - c_p) (\rho_{ep} - \rho_{em})^2 \cdot \frac{V_S}{N_S} \quad (\text{Gl. 4.11})$$

Hierbei ist  $c_p = \frac{N_p \cdot V_p}{V_S}$  der Volumenbruchteil an streuenden

Teilchen.

Die normierte Integralintensität der Kleinwinkelstreuung ist unabhängig von der Gestalt, der Größenordnung und der Zwischen- teilcheninterferenz einer Ausscheidung.

#### 4.2) Aufbau des Kleinwinkelstreuexperimentes

Der schematische Aufbau der Kleinwinkelstreuanlage für die in Kapitel 4.4 und 5 beschriebenen Messungen zeigt Abb. 4.1. Die Kleinwinkelstreuanlage ist aus einer 100 KW-Drehanodenröntgenröhre, dem Monochromator, den Strahlrohren, der Probenkammer und dem zweidimensional ortsauflösenden Röntgendetektor aufgebaut.

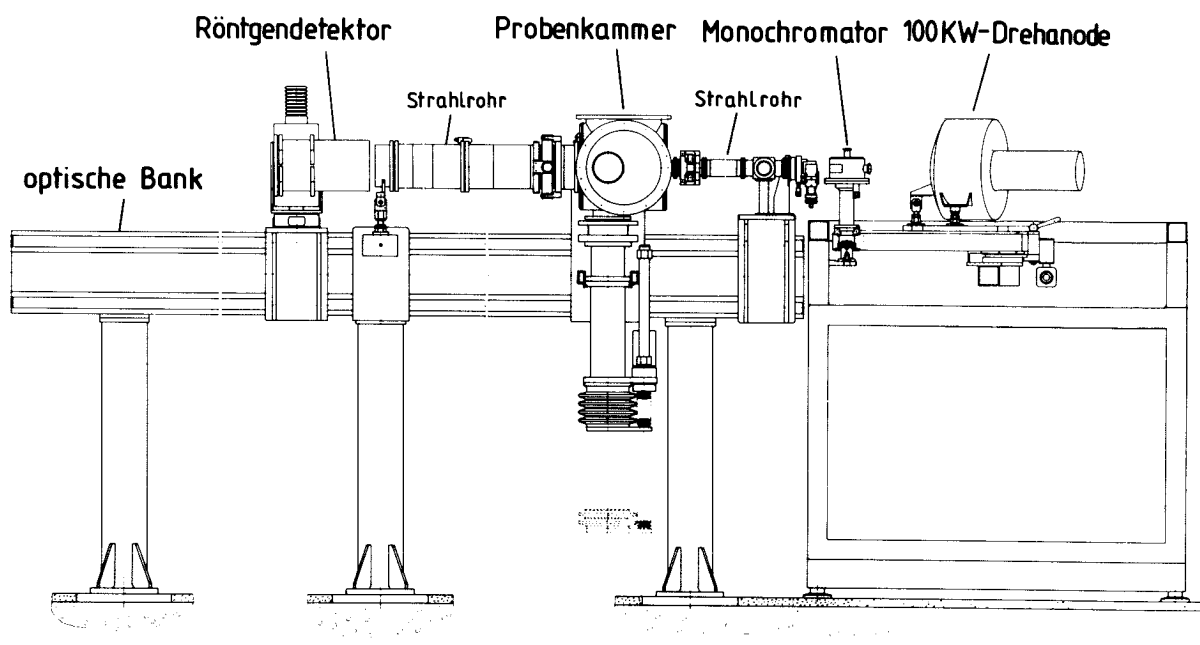


Abb. 4.1 schematischer Aufbau der Kleinwinkelstreuanlage

Die wassergekühlte Drehanodenröntgenröhre erzeugt auf einem Brennfleck von  $1.6 \cdot 1.6 \text{ mm}^2$  (unter  $6^\circ$  Abnahmewinkel) ein Röntgenspektrum mit Bremskontinuum und überlagerten charakteristischen Linien. Der Graphitmonochromator filtert durch Bragg-Reflexion die zur Messung benützte Kupfer- $K\alpha$ -Strahlung aus. Im Strahlrohr ist in einem Winkel von 45 Grad gegenüber dem Primärstrahl eine Mylarfolie untergebracht, durch die ein Teil

der Röntgenprimärstrahlung auf einen NaJ-Szintillationsdetektor gestreut wird. Er dient als Monitorzähler. An das Strahlrohr schließt sich die Probenkammer an, die mit einem Vielfachprobenhalter und einem Halter für Eichstandards (wie z.B. Glassy Carbon oder Eisen) ausgerüstet ist. Der Vielfachprobenhalter und die Eichstandards können rechnergesteuert in den Röntgenstrahl gefahren werden. Vor der Probe ist eine streuarmer Blende montiert, die eine Einstellung der ausgeleuchteten Probenfläche erlaubt. Bei den hier vorgenommenen Messungen leuchtete sie eine Probenfläche von  $1.6 \cdot 1.6 \text{ mm}^2$  aus. Mit dieser Wahl der Probenblende bekommt man optimale Intensität für vorgegebene Kollimation des Primärstrahls, durch die ihrerseits der Abstand Drehanode-Probe festgelegt wird. Hinter der Probe befindet sich wieder ein Strahlrohr, das die Entfernung Probe-Detektor definiert und das zur Intensitätsoptimierung bei vorgegebenen Auflösung des Streuexperiments gleiche Länge wie das Strahlrohr vor der Probe hat. Der Aufbau des Vielfachprobenhalters erlaubt Messungen in einem Temperaturbereich von 77 K bis 800 K. Es ist weiterhin möglich, eine Probe unter Stickstofftemperatur in die Probenkammer einzuschleusen.

Das Austrittsfenster für die gestreute Röntgenstrahlung vor dem Detektor besteht aus einem Berylliumfenster mit einem Durchmesser von 150 mm. Auf der Innenseite des Berylliumfenster befindet sich ein, in der Größe auswechselbarer, Beamstop, der den Primärstrahl absorbiert. Das Strahlrohr und die Probenkammer sind evakuierbar, um Luftstreuung und Absorption zu vermeiden. Der zweidimensional ortsauflösende Röntgendetektor ist auf einem rechnergesteuerten x- y-Schlitten montiert, und so quer zur Strahlrichtung verfahrbar. Um die Anlage leicht an die erforderlichen experimentellen Erfordernisse anzupassen (Entfernung Röntgenröhre - Probe oder Entfernung Probe - Detektor), sind Probenkammer und

Röntgendetektor auf einer optischen Bank montiert. Damit ist ein Verschieben der Probenkammer und des Röntgendetektors ohne eine Änderung der Proben- und Beamstopposition bezüglich der Strahllage des Primärstrahls gewährleistet.

Die Kleinwinkelstreuanlage erlaubt, bei der Größe des Röntgendetektors und den maximal (ca. 3m) bzw. minimal (0.19 m) möglichen Entfernungen Probe-Detektor, Untersuchungen in einem Q-Bereich von  $0.00047 \text{ \AA}^{-1}$  bis ca.  $1.35 \text{ \AA}^{-1}$ .

#### 4.3) Meßverfahren

Der durch Gl. 4.3 definierte Wirkungsquerschnitt in Elektronen pro Atom ergibt sich allgemein zu:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(Q) = \frac{Z_D \cdot \rho_A}{\left. \frac{d\sigma}{d\Omega} \right|_{Th} \cdot d\Omega_D \cdot I_O \cdot D_{eff}} \quad (\text{Gl. 4.12})$$

Dabei bedeutet:

$\rho_A$  : atomare Dichte

$\left. \frac{d\sigma}{d\Omega} \right|_{Th}$  : Thomson Wirkungsquerschnitt =  $7.9 \cdot 10^{-30} \text{ m}^2$

$d\Omega_D$  :  $\frac{x \cdot y}{r^2} \cos^3 \theta$ , wobei x und y die Größe des

Auflösungselementes im Detektor ist

$x = 1.424 \frac{\text{mm}}{\text{Kanal}}$        $y = 1.371 \frac{\text{mm}}{\text{Kanal}}$

r = Entfernung Probe-Detektor

$\theta$  = Streuwinkel

$I_O$  : Primärintensität (Zahl der auf die Probe treffenden Röntgenquanten)

$D_{eff}$  : Effektive Probendicke (Gl. 4.15)

Um die Detektorzählraten zu erhalten, müssen die über die Belichtungszeiten integrierten Intensitäten  $\tilde{I}$  am Detektor gemäß Gl. 3.2 durch die Nachweiswahrscheinlichkeit  $w(\tilde{I})$  dividiert werden. Ferner ist eine Dunkelstromkorrektur anzubringen. Des weiteren muß der Beitrag der Blendenstreuung berücksichtigt werden. Damit erhält man als Wirkungsquerschnitt für die zu

untersuchende Probe:

$$Z_D = \left( I_A - \frac{t_A}{t_D} \cdot I_D \right) - TRA_A \left( I_{EB} - \frac{t_{EB}}{t_D} I_D \right) \quad (Gl. 4.13)$$

$I_A$ : Streuintensität der Probe

$I_D$ : Detektor-Dunkelstrom (Nulleffekt)

$I_{EB}$ : parasitäre Blendenstreuung

$t_A, t_D, t_{EB}$ : Meßzeiten für Probe, Dunkelstrom und parasitäre Blendenstreuung

$TRA_A$ : Transmission ( $TRA=e^{-\mu D}$ ) der Probe

In dem hier beschriebenen Röntgendetektor ist keine Energieauflösung möglich. Daher ist zweckmäßig die inelastischen Untergrundstreuanteile (Comptonstreuung, thermische diffuse Streuung und Fluoreszenzstreuung) an einer Referenzprobe B gesondert zu messen und vor einer weiteren Auswertung abzuziehen.

$$Z_D = \left( I_B - \frac{t_B}{t_D} \cdot I_D \right) - TRA_B \left( I_{EB} - \frac{t_{EB}}{t_D} I_D \right) \quad (Gl. 4.14)$$

Dabei bedeutet:

$I_B$ : Streuintensität der Referenzprobe

$t_B$ : Meßzeit für Referenzprobe

$TRA_B$ : Transmission ( $TRB=e^{-\mu D}$ ) der Referenzprobe

Die Primärintensität  $I_0$  wird mit Hilfe eines Szintillationszählers und mit mehreren Paketen aus einer Anzahl  $n$  von Nickel-

folien gleicher Dicke  $d_o$  bestimmt. Hierbei wird für jedes Paket die Intensität gemessen und dann in einem  $\ln I$  vs  $n$ -Plot ( $I=I_o e^{-\mu d_o n}$ ) aufgetragen. Man erhält bei dieser Auftragung eine lineare Beziehung zwischen  $\ln I$  und  $n$ . Für  $n=0$  erhält man die Primärintensität  $I_o$ .

Für die effektiven Probendicke  $D_{eff}$  gilt /26/:

$$D_{eff} = \frac{e^{-\mu D}}{1 - \frac{1}{\cos \theta}} \left( 1 - e^{-\mu D \left( 1 - \frac{1}{\cos \theta} \right)} \right) \quad (Gl. 4.15)$$

$\mu$ : linearer Absorptionskoeffizient

$D$ : Dicke der Probe

$\theta$ : Streuwinkel

Bei einem idealen Röntgendetektor mit zeitlich stabilen Nachweiswahrscheinlichkeit hätte man nun den Wirkungsquerschnitt  $\frac{d\sigma}{d\Omega}(Q)$  bestimmt. Bei realen Detektorsystemen muß eine Änderung der Detektor-Nachweiswahrscheinlichkeit berücksichtigt werden. Somit muß jede Messung auf den Zeitpunkt der Eichung, bei der die Nachweiswahrscheinlichkeit bestimmt wurde, zurückgeführt werden. Es werden dazu Referenzmessungen mit einem Eichstreuer verwandt.

Man geht bei dieser Methode davon aus, daß die Messung der Probe und die Referenzmessung zur gleichen Zeit stattfindet. Davon kann aber in der Praxis durch lange Meßzeiten nicht ausgegangen werden. Deshalb findet im Meßablauf folgende Reihenfolge statt:

- 1) Referenzmessung
- 2) Probe plus dazugehörigen Messungen
- 3) Referenzmessung

Damit ist die Probenmessung eingeschachtelt zwischen zwei Referenzmessungen. Die benötigte integrierte Intensität zur Zeit der Probenmessung wird über eine lineare Interpolation  $\tilde{I}_E$  zwischen den beiden Referenzmessungen bestimmt und ergibt sich zu:

$$I_i = w_i^O (\tilde{I}_i)^{-1} \tilde{I}_i \frac{\tilde{I}_E^O}{\tilde{I}_E} \quad (\text{Gl. 4.16})$$

$\tilde{I}_E^O$ : die Referenzmessung zum Zeitpunkt der Eichung

$\tilde{I}_E$ : die Referenzmessung zum Zeitpunkt der Messung

(interpoliert)

$w_i^O$ : die aus der Eichmessung zum Zeitpunkt 0 bestimmte

Nachweiswahrscheinlichkeit

Wegen der Zuordnung der Streuintensitäten der Referenzmessungen zu einem bestimmten Pixel und damit zu einem bestimmten Q-Wert müssen im Prinzip Eichmessung und alle nachfolgenden Messungen beim gleichen Abstand Probe-Detektor durchgeführt werden. Wird also im Verlauf einer Messung der Abstand Probe-Detektor geändert, so müßte eigentlich eine neue Bestimmung der Nachweiswahrscheinlichkeit des Detektors erfolgen. Der Grund ist hierfür, daß mit der Änderung der Geometrie (Abstand Probe-Detektor) eine Veränderung der Streuintensitäten im Pixel verbunden ist. Man kann diesen Effekt korrigieren, wenn man die Gl. 4.16 um einen Faktor  $V_i$  erweitert. Es gilt:

$$V_i = \frac{\tilde{I}_E^2}{\tilde{I}_E^1} \quad (\text{Gl. 4.17})$$

Dabei bedeutet  $\tilde{I}_E^2$ , die auf den gleichen Zeitpunkt korrigierten Intensitäten des gleichen Pixels in der Geometrie 1 und 2.

#### 4.4) Kleinwinkelstreuung an He-Blasen in $\alpha$ -implantierten Nickel

Um die Verwendbarkeit des Röntgendetektors in einem Kleinwinkelstreuexperiment zu zeigen und damit auch die Eichung und das Meßverfahren zu überprüfen, wurden Messungen an einer ein-kristallinen Nickelfolie mit He-Blasen durchgeführt. Die He-Blasen wurden durch Implantation mit  $\alpha$ -Teilchen erzeugt. He ist in Metallen unlöslich und scheidet sich in Blasen aus. Durch Energievariation während des Implantierens konnte eine homogene Verteilung des Heliums über die Probendicke erreicht werden. Die implantierte Heliumkonzentration betrug 1.1 Atomprozent. Die Probe war 18  $\mu\text{m}$  dick und wies  $[110]$ -Orientierung der Folienebene auf.

Die Streuung dieser Probe kann als bekannte Referenz betrachtet werden, da sie schon früher mit einem Einzelquantenzähler an dem National Center for Small Angle Scattering Research des Oak Ridge National Laboratories (ORNL) vermessen wurde. /27/ Die Messungen erfolgten wie in Kapitel 4.3 beschrieben, d.h. es wurde Probe, Dunkelstrom, Blendenstreuung und die Referenz Nickel gemessen. Zur Nachweiswahrscheinlichkeitskorrektur wurde vor und nach den vier Messungen eine Eichstreuung durchgeführt.

Wertet man die gemessenen Daten (Kap. 4.3.) aus, so erhält man das in Abb. 4.2 gezeigte Höhenlinienbild. Hierin ist bei größeren Streuwinkeln ( $Q > 0,2 \text{ \AA}^{-1}$ ) ein nahezu isotropes Streugesetz zu beobachten. Bei kleineren  $Q$ -Werten ist eine Abweichung vom isotropen Streugesetz festzustellen. Man beobachtet hier vier lokale Maxima, die entlang einer  $\langle 111 \rangle$ -Richtung liegen. Dies ist darauf zurückzuführen, daß die Blasen nicht regellos verteilt vorliegen. Im vorliegenden Fall haben die Blasen die Tendenz, sich auf  $\{111\}$ -Ebenen mit einem Abstand von

etwa  $80 \text{ \AA}$  zu ordnen. Aus der Breite des "Bragg-Reflexes" kann man die Ausdehnung des geordneten Bereiches zu etwa  $200 \text{ \AA}$  abschätzen, d.h. eine Korrelation über drei benachbarte (111)-Ebenen des "He-Blasen Gitters".

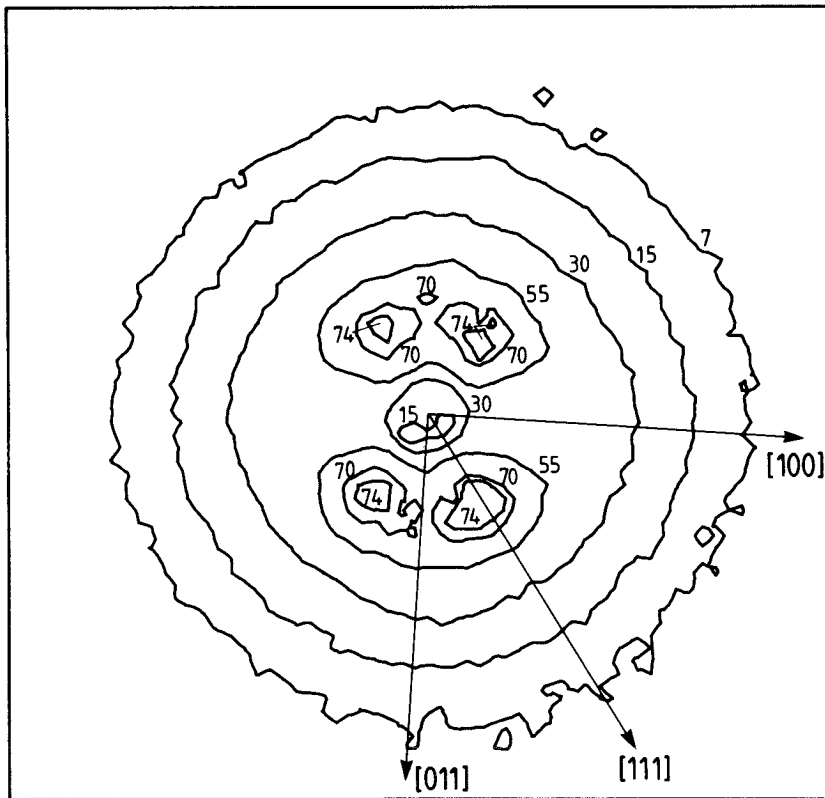


Abb. 4.2 Isointensitätsliniendarstellung der He-Ni-Probe  
Intensitäten in willkürlichen Einheiten

Abb 4.3 zeigt einen Guinierplot,  $\ln I$  vs  $Q^2$ , eines Streifens in [100]-Richtung aus dem Höhenlinienbild. Man erhält aus diesen Meßdaten mittels der Guiniernäherung einen Streumassenradius von  $8.00 \pm 0.10 \text{ \AA}$ .

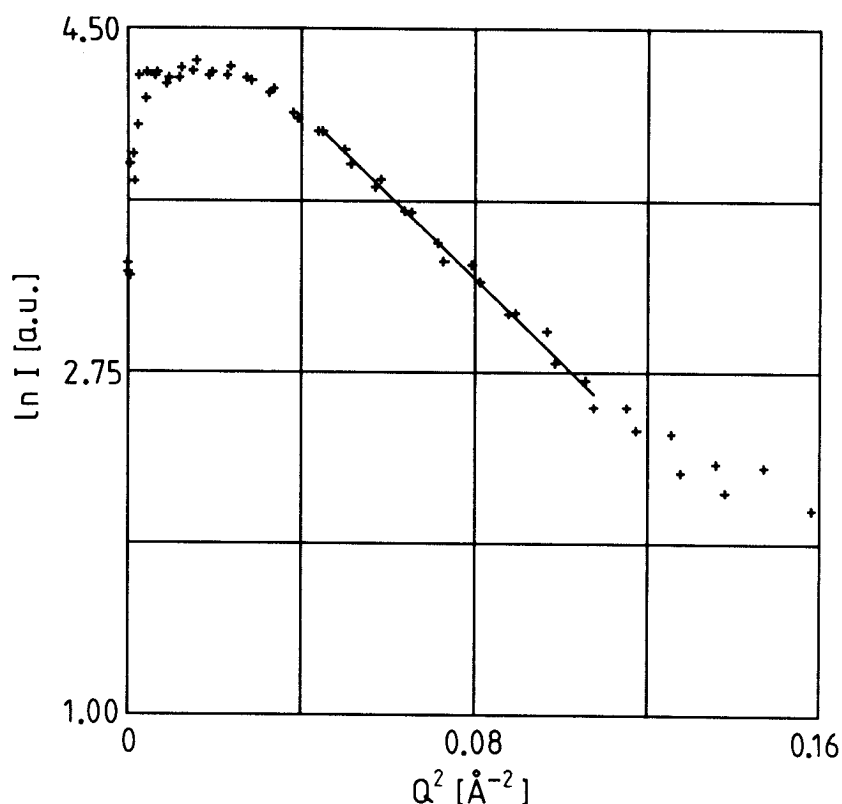


Abb. 4.3 Guinierplot der He-Ni-Probe in  $[100]$ -Richtung, gemessen mit dem zweidimensionalen ortsauflösenden Röntgendetektor

Zur Kontrolle wurde mit einem Szintillationszähler wiederum der Streifen in  $[100]$ -Richtung gemessen. Die Daten ergeben dort einen Streumassenradius von  $8.18 \pm 0.13 \text{ \AA}$ . (Abb 4.4). Die mit dem zweidimensionalen Röntgendetektor und dem Szintillationszähler gemessenen Werte für den Streumassenradius und die auf  $Q = 0 \text{ \AA}^{-1}$  extrapolierten Intensitäten von  $I_{02d} = 140 \pm 5.4$  und  $I_{0Sz} = 139.7 \pm 7.1$  stimmen innerhalb der Fehlergrenzen überein.

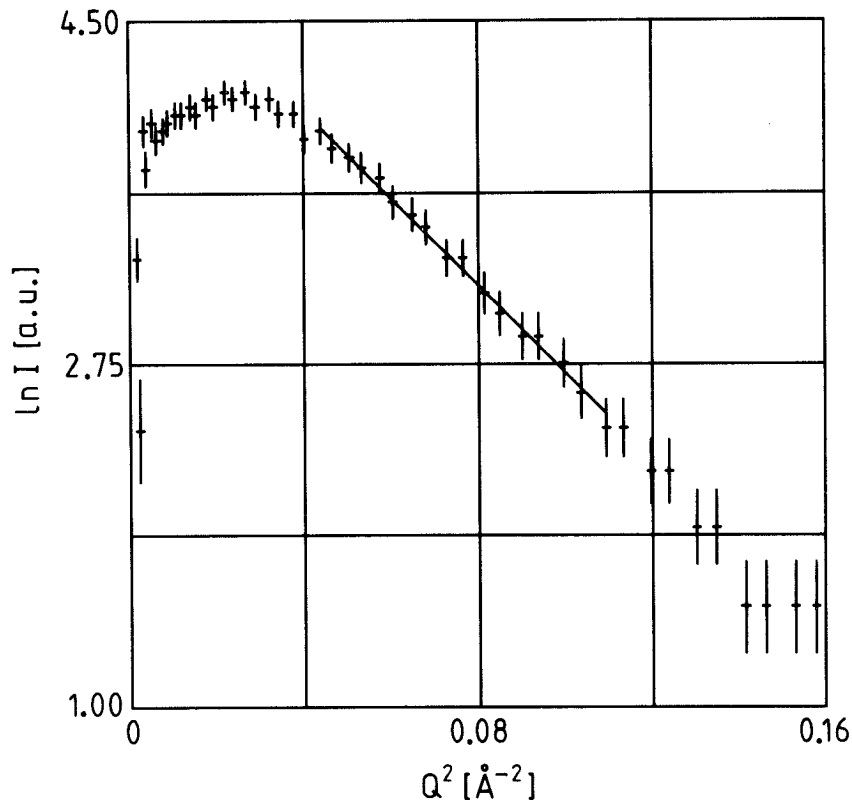


Abb. 4.4 Guinierplot der He-Ni-Probe in  $[100]$ -Richtung, gemessen mit dem Einzelquantenzähler

Um einen Vergleich mit dem Ergebnis, der am ORNL durchgeführten Messung, machen zu können, wurde eine radiale Mittelung, der mit dem zweidimensionalen Röntgendetektor gemessenen Streuintensitäten, vorgenommen. Aus der radialen Mittelung ergibt sich dann, mittels der Guiniernäherung, ein Streumassenradius von  $8.1 \pm 0.04$  Å. Dies ist mit einem Streumassenradius von  $9.0 \pm 0.04$  Å zu vergleichen und erhält einen Unterschied von 0.9 Å in den Streumassenradien. Dieser Unterschied liegt außerhalb der Fehler mit denen die Streugeometrien definiert sind. Aufgrund einer inzwischen aufgetretenen Verbiegung der Probe könnte man spekulieren, daß er auf einer Veränderung der Defektstruktur in der Probe im Verlauf der Lagerzeit von ca. 3 Jahren zwischen den beiden Messungen zurückzuführen ist.

Mit dem zweidimensionalen Röntgendetektor sollte es möglich sein, eventuell vorhandene sehr kleine Anisotropien in den Streubildern festzustellen. Dazu eignet sich die He-Ni-Probe sehr gut, da sie eine solche Anisotropie der Streuintensität in [111]-Richtung gegenüber [100]-Richtung aufweist.

Um zu zeigen, daß der zweidimensionale Röntgendetektor diese Anisotropie richtig mißt, werden im folgenden die Slices aus einem Höhenlinienbild des Röntgendetektors mit den Messungen mittels eines Szintillationszählers in den beiden Richtungen verglichen. Die Abb. 4.5 zeigt den Vergleich a) für die [100]-Richtung und b) für die [111]-Richtung. Innerhalb der Fehlergrenzen stimmen der Streumassenradius und die auf  $Q=0 \text{ \AA}^{-1}$  extrapolierte Intensität überein. Es wurde hier ein Intensitätsverhältnis  $I_0([100]) (I_0[111]) = 1.07$  gefunden. Dieses Verhältnis stimmt mit dem am ORNL, mittels eines Einzelquantenzählers bestimmten, überein.

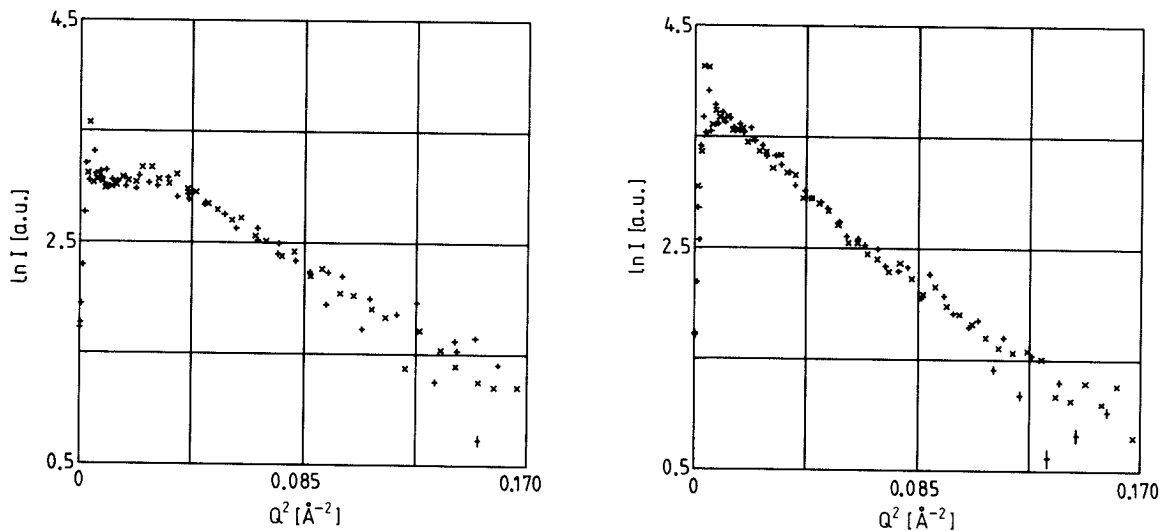


Abb. 4.5a,b gestreute Intensität in der (a) [100]-Richtung und (b) [111]-Richtung, gemessen mit dem Röntgendetektor (+) und mit dem Einzelquantenzähler (x)

Damit wurde für den vorliegenden integrierenden orts aufgelösten Röntgendetektor die Übereinstimmung mit den Messungen eines Einzelquantenzählers nachgewiesen.

5) Auslesetechnik zur Messung kontrastreicher  
Röntgenintensitäten und Anwendung auf Aerogele

Normalerweise wird das Target des SEC-Vidikons ausgelesen, indem Zeile für Zeile abgerastert wird. Dadurch besitzen aber alle Auflösungselemente eine gleiche Speicherzeit. Dies führt für hohe Kontraste in den Streubildern in den gering belichteten Bereichen des Targets zu Problemen, da für die Auslesung eine bestimmte Potentialexkursion an der Targetoberfläche (Ausleseschwelle) erforderlich ist. In Verbindung mit dem Vorverstärkerrauschen ergibt dies eine kleinste meßbare Ladung. Die ausnutzbare Dynamik des Röntgendetektors ist damit auf etwa 100 begrenzt. Dieses bei jedem integrierenden Detektor auftretende Problem kann durch eine neue Auslesetechnik überwunden werden. Die Grundidee ist folgende: Während der Auslesungen lädt sich jedes Pixel auf eine hohe "Arbeitsladung" auf. In unserem Fall auf eine Potentialexkursion von 10 Volt, bevor das Pixel ausgelesen wurde. Wie gezeigt wird, erlaubt diese Methode eine effiziente Auslesung mit einem Ausleserauschen, das kleiner als das Ladungsäquivalent eines Röntgenquant ist. Da das SEC-Target ein perfekter Analogspeicher ohne Ladungsverlust ist, kann das Erreichen der "Arbeitsladung" mit einer individuellen Speicherzeit für jedes Pixel gelöst werden. Diese Speicherzeit muß umgekehrt proportional zu den erwarteten Intensitäten sein. Zusätzlich kann bei der letzten Auslesung einer Messung das Targetpotential erhöht werden. Dann spielt die Ausleseschwelle des Targets auch für die Auflösungselemente, die während der gesamten Meßzeit nicht die Arbeitsladung erhalten haben, keine Rolle mehr.

Im Augenblick existiert nur eine softwaregesteuerte Version für diese Auslesemethode. Eine Hardwarelösung, die auch eine schnellere Auslesung bis zu 8 MHz gestattet, wird zur Zeit in

der Zentralabteilung für Elektronik der Kernforschungsanlage Jülich aufgebaut.

Im einzelnen erfolgt die rechnergesteuerte Auslesung auf folgende Weise: Zu Beginn der Messung wird die erwartete Intensität grob bestimmt durch eine erste Targetauslesung. Diese Daten erlauben dann den Aufbau einer Look-up Tabelle, die für die einzelnen Pixels die "Arbeitsladungsspeicherzeit" enthält, während der die Auslesung unterdrückt werden soll. Dies entspricht einer Anzahl von Auslesungen mit einem geschlossenen Gitter. Eine zweite Tabelle speichert die Anzahl der Auslesungen. Bei gleichem Zählerstand der beiden Tabellen wird eine Auslesung vorgenommen. Nun wird mit der aufsummierten Gesamtintensität eine neue "Arbeitsladungsspeicherzeit" berechnet und die Look-up Tabelle erneuert.

Abb 5.1 demonstriert das Prinzip der Methode. Es wurde hier der zentrale Teil des Detektors über eine Lochblende beleuchtet. Abb 5.1a gibt die Intensität für einen Röntgenfleck während der ersten Auslesung an. Wie erwartet, wird der gemessene Intensitätskontrast zwischen den starkbelichteten und den unbelichteten Gebieten auf zwei Größenordnungen begrenzt.

Die Schwelle wurde jetzt auf einen Wert kleiner  $I_{\max}/50$  gesetzt. Für die Auslesungen 2-51 wird somit das Auslesen für Pixels mit  $I < I_{\max}/50$  unterdrückt (Abb 5.1b). Abb 5.1c zeigt sodann die nächste Auslesung für alle Pixels. Hierbei hatten alle Pixels mit der Intensität  $I_{\max}/50$  eine um den Faktor 50 verlängerte Speicherzeit. Man beobachtet hier nicht nur den Hauptintensitätspeak, sondern auch die in der Meßzeit aufintegrierten Intensitäten außerhalb des Zentralfleckes, die vermutlich durch Streulicht in der Faseroptik verursacht werden und mit der herkömmlichen Auslesetechnik nicht meßbar wären.

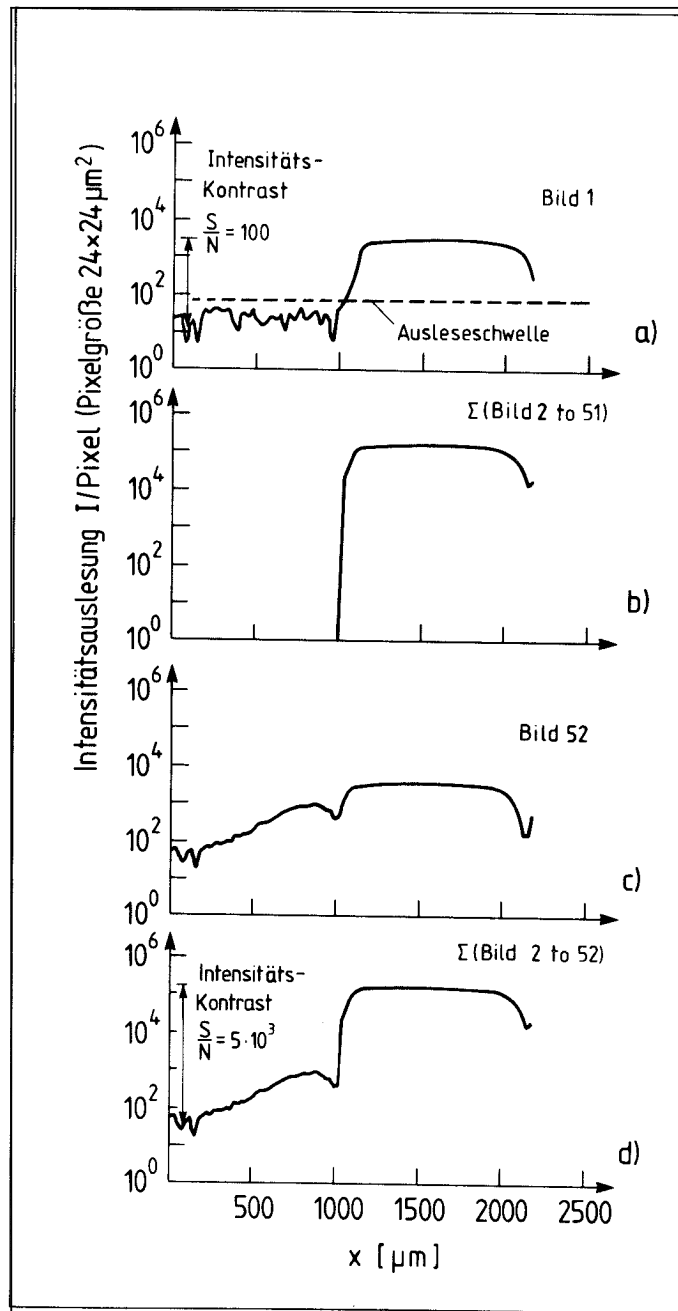


Abb. 5.1 Prinzip der neuen Auslesetechnik für kontrastreiche Röntgenbilder

Abb 5.1d zeigt die Summe der Auslesungen 2-52. Man erkennt, daß diese neue Auslesetechnik den Kontrast der gemessenen Streu-

intensität von  $10^2$  auf  $5 \cdot 10^3$  erhöht und so die Möglichkeit der Messung auch sehr kontrastreicher Röntgenstreubilder ermöglicht.

Die eben beschriebene Auslesetechnik wurde zum ersten Mal zur Untersuchung der Kleinwinkelstreuung an einem  $\text{SiO}_2$ -Aerogel angewendet. Aerogele sind hochporöse Materialien aus Silizium- oder Metalloxiden mit Dichten von 70 bis  $300 \text{ kg/m}^3$ , die Wärme hervorragend dämmen, eine erstaunlich geringe Schallgeschwindigkeit zwischen 100 bis  $300 \text{ m/s}$  sowie innere Oberflächen von bis zu  $10^6 \text{ m}^2/\text{kg}$  aufweisen /28/. Die Herstellung der Aerogele erfolgte, indem Tetramethoxysilan (TMOS) in Methanol mit einer genau dosierten Wassermenge versetzt werden. Bei der Hydrolyse bildet sich in vier Schritten unter Alkohol-Abspaltung Kieselsäure. Aus der Kieselsäure spaltet sich dann Wasser ab, was zur Bildung von  $\text{SiO}_2$ -Gruppen führt, die sich vernetzen. Das gebildete Alkogel wird dann überkritisch getrocknet, dabei wird erst der Druck über den kritischen Punkt erhöht, dann setzt man die Temperatur herauf, ohne dabei eine Phasengrenze zu durchlaufen. Schließlich wird der Alkohol aus der Gelstruktur ausgetrieben; nach der Abkühlung bleibt das hochporöse Aerogel zurück. /28/ Die Aerogele bestehen aus kleinen kugelförmigen Teilchen, die zusammenhaften und große verzweigende Strukturen bilden. Diese Strukturen sind in gewissen Bereichen ihrer Abmessungen skaleninvariant und besitzen eine fraktale oder Hausdorff Dimensionalität  $d_f$ . /29/  $d_f$  ist der Exponent, der die Zunahme der Masse eines Aggregates mit größer werdendem Radius beschreibt:

$$M(r) \sim r^{d_f} \qquad d_f < d \qquad (\text{Gl. 5.1})$$

Im  $d$ -dimensionalen Raum ergibt sich für die Dichte-Dichte Kor-

relationsfunktion:

$$g(r) \sim r^{d_f-d} \quad (\text{Gl. 5.2})$$

und für die Fouriertransformierte gilt dann das entsprechende Potenzgesetz:

$$I(Q) \sim Q^{-d_f} \quad (\text{G. 5.3})$$

Das hier ausgemessene  $\text{SiO}_2$ -Aerogel besitzt eine Dichte von  $90 \text{ kg/m}^3$  und wurde von Herrn Prof. J. Fricke (Physikalisches Institut der Universität Würzburg) zur Verfügung gestellt. Das Aerogel wurde ausgemessen, da es durch seinen Aufbau eine große Streuintensität und einen großen Streukontrast besitzt. Die fraktale Dimensionalität läßt sich aus der Steigung in einem  $\ln(I)$  vs  $\ln(Q)$ -Plot bestimmen.

Um die Leistungsfähigkeit des Röntgendetektors zu demonstrieren, wurde zunächst in einem  $Q$ -Bereich von  $0.03 \text{ \AA}^{-1}$  bis  $0.27 \text{ \AA}^{-1}$  gemessen, in dem die  $\text{SiO}_2$ -Probe ihren stärksten Streukontrast besitzt. Dazu wurde der Detektor exzentrisch zur Primärstrahl Lage gesetzt. Daher konnte keine radiale Mittelung der gemessenen Streuintensitäten vorgenommen werden, sondern alle gezeigten Ergebnisse sind Slices aus den gemessenen zweidimensionalen Streuintensitäten. Die Abb 5.2 zeigt eine Messung bei der eine Auslesung nach einer Speicherzeit von einer Sekunde vorgenommen wurde. Man sieht, daß hier nur ein Intensitätsbereich von einer Zehnerpotenz überdeckt wird.

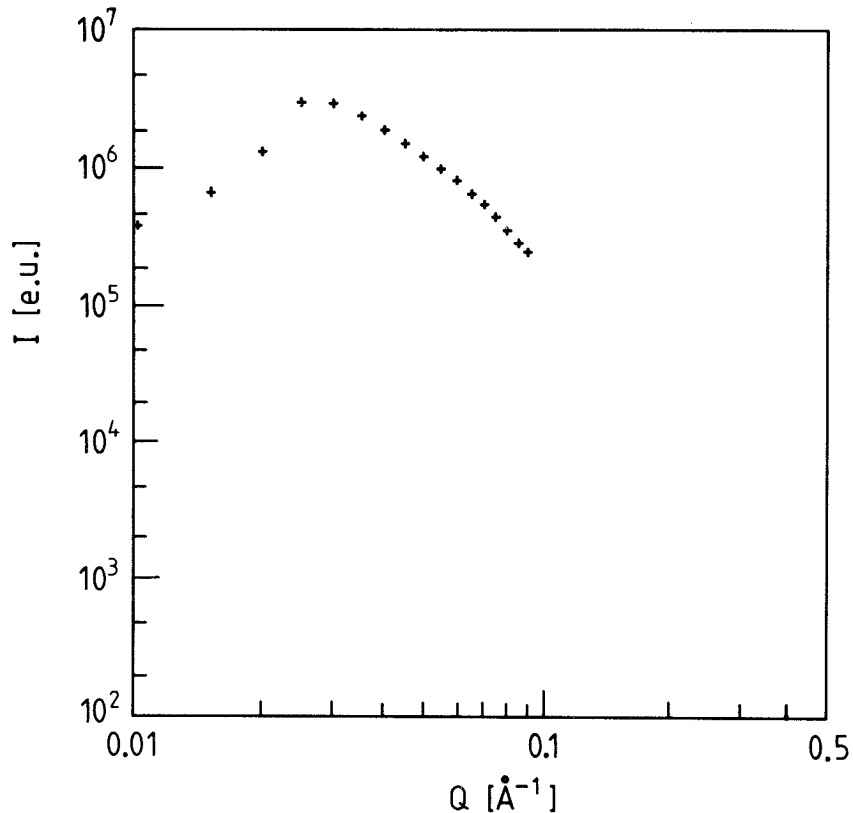


Abb. 5.2 gestreute Intensität eines  $\text{SiO}_2$ -Aerogels, gemessen mit der normalen Auslesemethode

Mit Hilfe der Kontrasterhöhung wurde die Probe wiederum gemessen. Die Gesamtspeicherzeit betrug 50 Sekunden, jede Einzelmessung dauerte eine Sekunde, d.h. nach jeder Sekunde wurden die Bereiche des Bildes ausgelesen, bei denen die "Arbeitsladung" erreicht wurde, alle anderen Teile blieben unberücksichtigt. Sie wurden erst nach der Gesamtspeicherzeit ausgelesen. Diese Messung zeigt Abbildung 5.3 und man erkennt, daß sich der Intensitätsbereich von einer Zehnerpotenz im herkömmlichen Verfahren auf drei Zehnerpotenzen mit der neuen Auslesetechnik vergrößert hat.

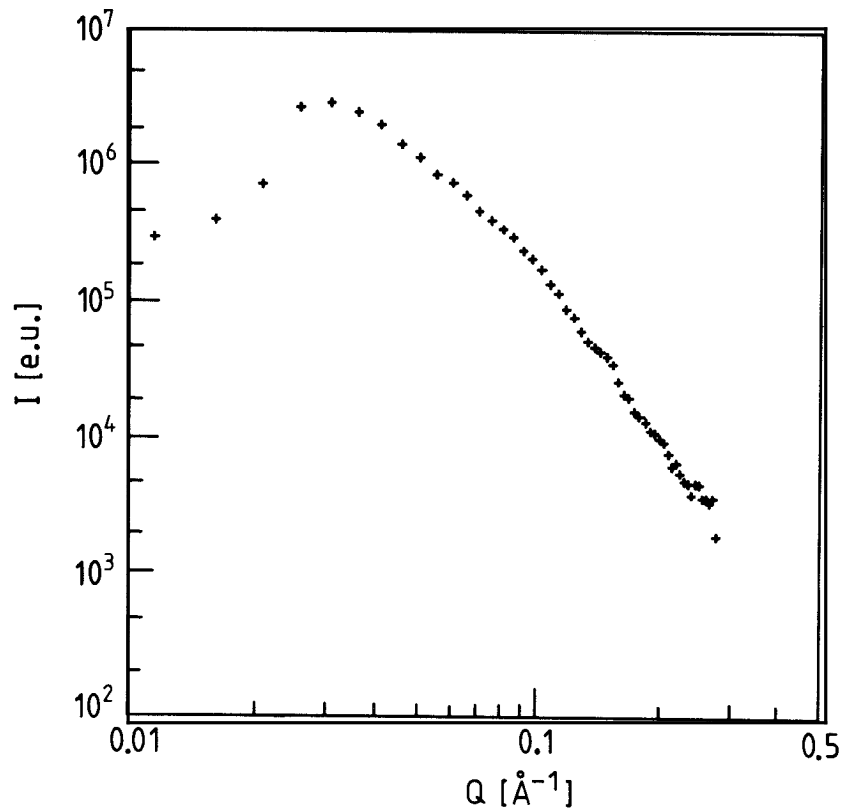


Abb. 5.3 gestreute Intensität eines  $\text{SiO}_2$ -Aerogels, gemessen mit der neuen Auslesetechnik

Die Abweichung der Streuintensität im  $Q$ -Bereich von  $0.11 \text{ \AA}^{-1}$  bis  $0.14 \text{ \AA}^{-1}$  vom monoton Verlauf kommt daher, daß in diesem Bereich des Detektors keine Nachweiswahrscheinlichkeitskorrektur durchgeführt werden konnte. Denn es befindet sich dort bei "normaler" Stellung des Detektors (symmetrisch zur Lage des Primärstrahls) der Beamstop, und in diesem Bereich liegen keine Daten vor.

Zur Kontrolle dieser Messung wurde wiederum ein Vergleich mit der Messung durch einen Einzelquantenzähler vorgenommen (siehe Abb 5.4).

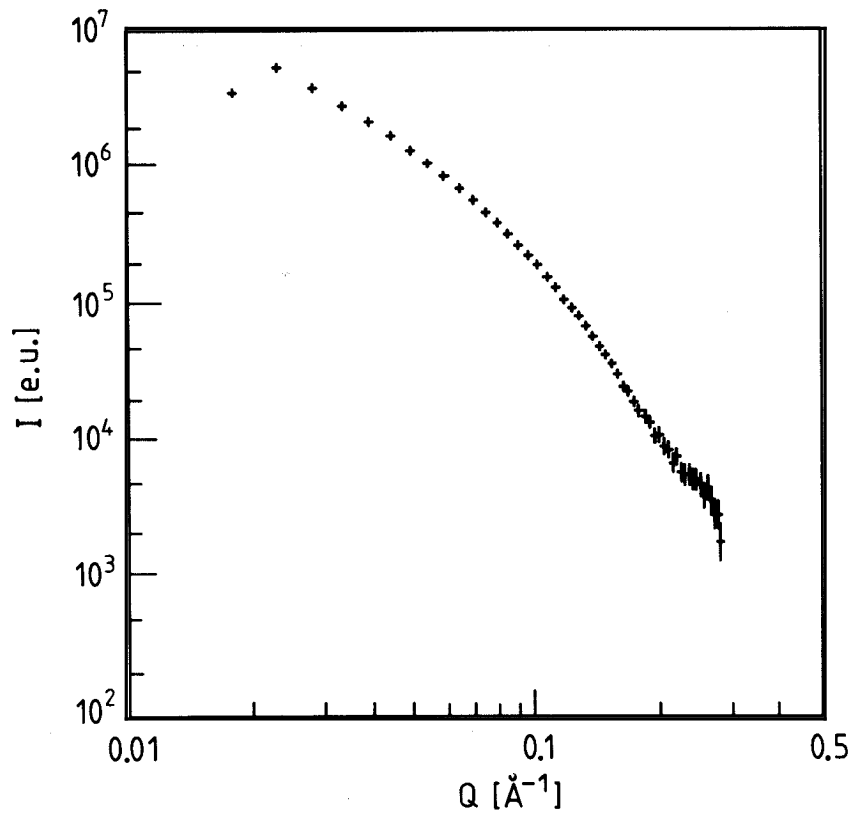


Abb. 5.4 gestreute Intensität eines  $\text{SiO}_2$ -Aerogels, gemessen mit dem Einzelquantenzähler

In Abb 5.5 ist das Verhältnis der beiden Messungen über den Streuvektor aufgetragen. Innerhalb einer Genauigkeit von 7% stimmen die Meßwerte überein.

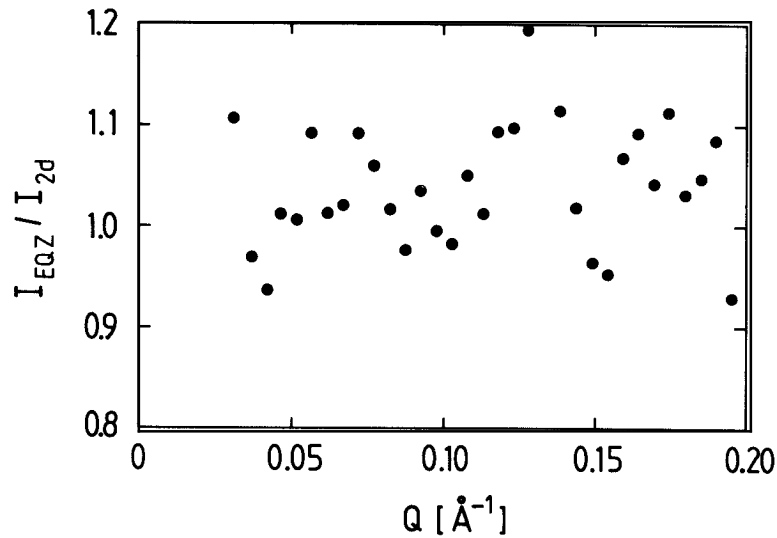


Abb. 5.5 Verhältnis der Messungen aus Abb. 5.3 und Abb. 5.4

Der Q-Bereich, in dem der Wirkungsquerschnitt gemessen werden kann, läßt sich vergrößern, wenn man zusätzlich die Geometrie ändert, d.h. den Abstand Probe-Detektor variiert. Gleichzeitig muß der Abstand Röntgenröhre-Probe angepaßt werden, damit die Raumwinkel von einfallendem und ausfallendem Röntgenstrahl etwa gleich groß bleiben. Dieses Vorgehen ermöglicht dann in einem Q-Bereich von  $0.01 \text{ Å}^{-1}$  bis  $1.3 \text{ Å}^{-1}$  zu messen. Abb 5.6a zeigt die mit einem Einzelquantenzähler und Abb 5.6b mit dem zweidimensional, integrierenden ortsauflösenden Röntgendetektor gemessene Intensität. In drei Bereichen der beiden Kurven wurden die Steigung mittels eines Leastsquarefits bestimmt. Es ergeben sich für den ersten Bereich von  $0.027 \text{ Å}^{-1}$  bis  $0.067 \text{ Å}^{-1}$  Steigungen von  $m_{\text{EQZ}} = -2.05 \pm 0.04$  bzw.  $m_{2\text{D}} = -2.18 \pm 0.06$ . Für den zweiten Bereich von  $0.067 \text{ Å}^{-1}$  bis  $0.246 \text{ Å}^{-1}$  ergeben sich Steigungen von  $m_{\text{EQZ}} = -4.09 \pm 0.06$  bzw.  $m_{2\text{D}} = -4.09 \pm 0.06$ . Für den letzten Bereich von  $0.246 \text{ Å}^{-1}$  bis  $0.606 \text{ Å}^{-1}$  ergeben sich Steigungen von  $m_{\text{EQZ}} = -2.8 \pm 0.1$  bzw.  $m_{2\text{D}} = -2.8 \pm 0.1$ . Für den Bereich 2 und 3 sind die Steigungen und die absolute Intensität

identisch. Im Bereich 1 liegt die mit dem Einzelquantenzähler gemessene Steigung um 6% tiefer. Dies kann durch eine Verfälschung der Meßwerte durch den Beamstop hervorgerufen werden.

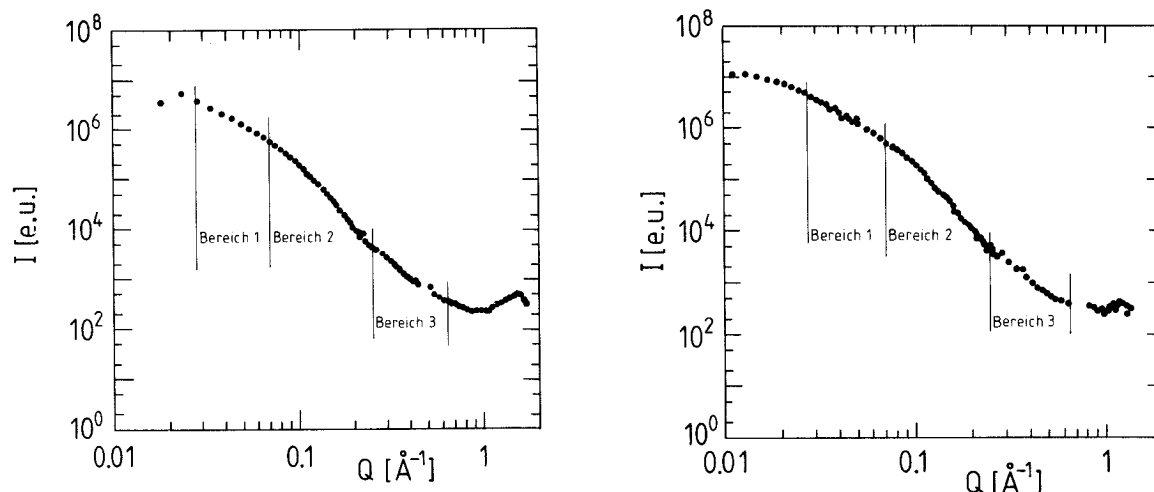


Abb. 5.6a,b gestreute Intensität eines SiO<sub>2</sub>-Aerogels, gemessen  
a) mit dem Einzelquantenzähler und b) mit dem  
Röntgendetektor

Um den Peak bei  $1.5 \text{ Å}^{-1}$  zu verstehen, muß man etwas detaillierter auf den Aufbau der Aerogele eingehen. Die Aerogele sind durch Agglomeration von massiven Teilchen mit einem Durchmesser bis zu 1 nm und einer Dichte bis zu  $2000 \text{ kg/m}^3$  aufgebaut. Diese Teilchen formen zweite Teilchen mit einem Durchmesser von 5 bis 6 nm und einer Dichte von  $800 \text{ kg/m}^3$ . Diese zweiten Teilchen zeigen ein fraktales Verhalten. /30/ Eine Modellvorstellung für den Aufbau des ersten Teilchens geht davon aus, daß sich diese aus 5 SiO<sub>4</sub> Tetraedern zusammensetzen. Der Peak ist daher der erste Bragg-Reflex dieser Anordnung. /31/

Für die integrierte Intensität, die die Streulängendichte ohne

Zugrundelegung eines Strukturmodells liefert, wurde das Integral:

$$Q_0 = 4\pi \int_{q_{\min}}^{q_{\max}} \frac{d\sigma}{d\Omega}(Q) Q^2 dQ \quad (\text{Gl } 5.4)$$

mit Hilfe der Streuvektoren und der Intensitätswerte aus Abb 5.7 berechnet. Die Wahl von  $q_{\min}$  ist unkritisch, da dort die Kurve eine geringe Steigung besitzt. Es wurde der erste Meßpunkt bei  $Q = 0.011 \text{ \AA}^{-1}$  genommen. Für  $q_{\max}$  wurde  $0.57 \text{ \AA}^{-1}$  gewählt, da für diese Integration der diffuse Anteil der Streuung nicht mitzunehmen ist. Man erhält für die integrierte Intensität einen Wert von  $4.13 \cdot 10^{26} \text{ 1/cm}^3$ . Im Falle, daß sich eine geringe Zahl von Teilchen im Vakuum befindet, vereinfacht sich die Gl. 4.11 zu:

$$Q_0 \approx (2\pi)^3 \frac{N_P \cdot V_P}{V_S} \frac{V_S}{N_S} \rho_P^2 f_P^2 \quad (\text{G. } 5.5)$$

$$\rho_{e_P} = \rho_P \cdot f_P$$

$\rho_P$  : atomare Dichte der Teilchen

$f_P$  : Atomformfaktor

Es ergibt sich wegen  $\frac{\rho_m}{\rho_P} = \frac{N_P V_P}{V_S}$  und  $N_S = \rho_m \cdot V_S$ :

$$Q_0 = (2\pi)^3 \rho_P f_P^2 \quad (\text{Gl. } 5.6)$$

$\rho_m$  : mittlere Dichte der Probe

Mittels der Gl. 5.6 ergibt sich dann die Dichte des  $\text{SiO}_2$ -Moleküls zu  $2.32 \text{ g/cm}^3$ . Dieser Wert weicht um 3% vom Wert der Dichte eines  $\text{SiO}_2$ -Moleküls ab.

Durch diese Messung wurde nachgewiesen, daß ein Intensitätsbereich von  $4.6 \cdot 10^2 \text{ e.u.}$  bis zu  $1.1 \cdot 10^7 \text{ e.u.}$  mit Hilfe des neuen Röntgendetektors ausgemessen werden kann.

## 6) Zusammenfassung

In dieser Arbeit wird die Entwicklung eines integrierenden, zweidimensional ortsauflösenden Röntgendetektor beschrieben. Der Röntgendetektor ist aufgebaut aus einem kommerziellen SEC-Vidikon, einem Bildverstärker und einem Szintillator. Die Anforderungen an einen integrierenden Röntgendetektor - große Analogspeicherkapazität, rauschfreie Speicherung des von den Röntgenquanten erzeugten Analogsignals und eine rauschfreie Auslesung des integrierten Bildes - werden von ihm erfüllt. Messungen von Kleinwinkelstreubildern mit dem integrierenden Röntgendetektor liefern die gleichen Ergebnisse, wie ein Einzelquantenzähler.

Durch eine neuartige Auslesetechnik, die die perfekte Integrationsfähigkeit des SEC-Targets nützt, bietet der integrierende Röntgendetektor die Möglichkeit kontrastreichere Röntgenbilder zu messen, als dies mit Standardauslesemethoden möglich ist. Dies wurde durch die Messung an einem  $\text{SiO}_2$ -Aerogel demonstriert. Es konnte durch die neue Auslesetechnik der Streukontrast in einem Q-Bereich von  $0.03 \text{ \AA}^{-1}$  bis  $0.27 \text{ \AA}^{-1}$  um zwei Zehnerpotenzen gegenüber der Standardauslesemethode erhöht werden. Zusätzlich konnte durch Änderung der Geometrie (Abstand Probe-Detektor bzw. Röntgenröhre-Probe) ein Intensitätsbereich von fast 5 Zehnerpotenzen gemessen werden.

Mit Hilfe dieser neuen Auslesetechnik und einer in der Entwicklung befindlichen schnellen Ausleseelektronik wird es in Zukunft möglich sein, die hohen Streuintensitäten und hohen Intensitätskontraste in den Streubildern zu verarbeiten, die an modernen Synchrotronstrahlungsquellen gemessen werden.

## 7) Literaturverzeichnis

- /1/ J. Hendrix, Position-sensitive X-ray Detectors in:  
Uses of Synchrotron Radiation in Biology (H.  
Stuhrmann, ed.) Academic Press 1982
- /2/ J. Kemmer, Positionsempfindliche Silizium-  
Kernstrahlungsdetektoren Phys. Bl. 41, 117 (1985)
- /3/ M.M. Blouke, D.L. Heidtmann, B. Corrie, M.I. Lust,  
Proc. SPIE, San Diego (1985)
- /4/ S. Abrahamsson, (1972) Acta Cryst. A28, S. 248
- /5/ U.W. Arndt und D.J. Gilmore, (1975), Adv. Electronics  
and Electron Phys. 40B, 913-921
- /6/ H. Hashizume, K. Kohra und Y. Oguro, (1975), J. Appl.  
Cryst. 8, 249-254
- /7/ G.T. Reynolds, J.R. Milch und S.M. Gruner, (1977),  
IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-24, 501-510
- /8/ K. Kalata, (1981) IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-28 852
- /9/ J.R. Milch (1979) IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-26 338
- /10/ W. Hartmann, Bundesministerium für Forschung und  
Technologie, Forschungsbericht März 1979 Nr. NT0668
- /11/ W.D. Prieske, Dissertation (1985), Hamburg
- /12/ Enraf-Nonius, 2600 AL Delft, Holland
- /13/ U.W. Arndt, D.J. Gilmore und S.H. Boutle, (1972) Adv.  
Electronics and Electron Phys. 33B, 1069
- /14/ H.P. Rust Dissertation, (1982) Entwicklung eines  
elektronischen Bildregistriersystem für die  
Elektronenmikroskopie und dessen Untersuchung und  
Erprobung
- /15/ H.G. Haubold, W. Hoheisel und P. Hiller, (1986) Nucl.  
Instr. and Meth. A246, 552
- /16/ Heimann GmbH, D-6200 Wiesbaden, W. Germany, Datenblatt  
SEC-1004 Vidikon
- /17/ G.W. Goetze, A.H. Boerio und M. Green, (1964) Journal

- of Applied Phys. 35 No. 3, 482
- /18/ G.W. Goetze, A.H. Boerio, Proc. IEEE 52 (1964), 1007
  - /19/ Galileo Electro-Optics Corp. Sturbridge, Massachusetts  
Datenblatt Fiberoptikplatte und Fiberoptikkegel
  - /20/ Varian Palo Alto Kalifornien Datenblatt Bildverstärker  
VLI-116
  - /21/ K. Frank, (1970) Fernseh- und Kino-Technik Nr. 9, 323
  - /22/ A. Guinier, "X-Ray Diffraction", Freeman, San  
Francisco, 1963
  - /23/ R. Hosemann, S.N. Bagchi, "Direct Analysis of  
Diffraction by Matter", North Holland Publishing Co.,  
Amsterdam, 1962
  - /24/ A. Guinier, G. Fournet, "Small Angle Scattering of X-  
Rays", John Wiley, New York 1955
  - /25/ G. Porod, Kolloidzeitschrift 124 (1951) 83
  - /26/ D. Martinsen, Dissertation (1978), Aachen
  - /27/ H.G. Haubold und J.S. Lin J. Nucl. Mat. 111 112  
(1982), 709-714
  - /28/ J. Fricke, Physik in unserer Zeit, 1986, Nr. 4, 101
  - /29/ Hausdorff, Mathem. Annalen 79, 157-179, 1919
  - /30/ J. Fricke und G. Reichenauer MRS Symposium "Better  
Ceramics Through Chemistry", Palo Alto/Cal. Apr. 1986
  - /31/ U. Buchenau, M. Prager, Phys. Rev. B 34, 5665 (1986)

## 8) Akronymliste

ADC: Analogdigitalwandler

Schaltung, die analoge Werte in Digitalcode ausdrückt

CCD: Charge-Coupled Device

CCDs sind Halbleiterelemente, die sich aus einer Anordnung sehr eng beieinander liegender MOS-Dioden aufbauen. Diese besitzen die Fähigkeit, Ladung zu speichern und diese von einem MOS-Element zum nächsten zu verschieben, wenn die Potentiale an den MOS-Dioden in geeigneter Weise verändert werden. Ist jedoch die Spannung an den CCD-Elementen hoch genug, so daß eine genügend dicke Raumladungszone entsteht, so wird die einzelne Zelle selbst empfindlich für ionisierende Strahlung. Die durch die Ionisation gebildeten Ladungsträger werden durch die Sperrspannung getrennt. Die Elektronen werden abgesaugt und die Löcher wandern zu einem MOS-Element und werden dort gespeichert, bis sie dann ausgelesen werden.

DMA: Direct Memory Access

direkter Speicherzugriff; es können dabei Daten in den oder aus dem Speicher gelangen, ohne daß der Prozessor beteiligt ist

SEC: secondary electron conduction (s. Kap. 3.1)

SIT: Silicon-intensifier Target

Das SIT-Vidikon besteht genauso wie das SEC-Vidikon aus drei Teilen: der Photokathode mit dem elektronenoptischen Abbildungsteil, dem Targetteil und der Elektronenkanone. Das Target ist hier eine dünne Substratscheibe aus n-leitendem Silizium, das auf der Photoelektronenseite mit einer  $n^+$ -leitenden Schicht bedampft wurde. Auf der

Abtastelektronenseite sind etwa  $7.5 \text{ cm} \cdot 7.5 \text{ cm}$  große, p-leitende Inseln mosaikförmig angeordnet. Die Inseln bilden mit dem Substrat eine kleine Diode. Mit Hilfe der Targetspannung wird zwischen Substrat und der Kathode der Elektronenkanone eine Potentialdifferenz erzeugt. Die Ausgangssituation ist vor der Belichtung folgende: Durch Diffusion und Rekombination beweglicher Ladungsträger hat sich eine Sperrschicht gebildet, deren unterschiedlich geladene Raumladungszonen ein elektrisches Feld erzeugen, das einer weiteren Diffusion von Elektronen und Löchern entgegenwirkt. Treffen Photolektronen auf das Target, so werden Elektronen und Löcher erzeugt. Die Löcher rekombinieren mit den in der p-Zone vorhandenen Elektronen und verringern dadurch die Dicke der Sperrschicht. Beim Auslesen mit dem Elektronenstrahl rekombinieren die in das p-Gebiet eingeschossenen Elektronen mit den Löchern. Dabei fließt ein Ladestrom, der der auftreffenden Lichtintensität auf der Photokathode proportional ist. Nach beendetem Auslesevorgang ist die p-Zone auf Kathodenpotential aufgeladen und die Photoelektronen können die Diode, die wie ein Kondensator wirkt, erneut entladen.

Die vorliegende Arbeit wurde im Institut Gitterfehlordnung des Instituts für Festkörperforschung der Kernforschungsanlage Jülich GmbH durchgeführt.

Herrn Prof. Dr. W. Schilling danke ich für die Anregung zu dieser Arbeit und für die klärenden Diskussionen.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Dr. H.-G. Haubold für dessen aktive Hilfe bei vielen auftretenden Problemen sowie seinem stets großen Interesse an dieser Arbeit.

Den Herrn H. Haselier, P. Hiller und G. Kolbe danke ich für die Unterstützung bei den Versuchen.

Ferner bedanke ich mich bei allen Mitarbeitern des IFF, die mir in verschiedenster Weise bei der Durchführung dieser Arbeit geholfen haben.



