INAUGURAL-DISSERTATION

zur

Erlangung der Doktorwürde

der

Naturwissenschaftlich-Mathematischen Gesamtfakultät

> der Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg

> > vorgelegt von

M.Sc. Lisa Elena Gamer

aus Heidelberg

Tag der mündlichen Prüfung: 30.10.2019

Entwicklung und Charakterisierung des 4k-Pixel Detektorarrays MOCCA für die energie- und ortsaufgelöste Detektion neutraler Molekülfragmente

> Gutachter: Prof. Dr. Christian Enss Prof. Dr. Heinz Horner

Im Rahmen dieser Arbeit wurde das 4 k-Pixel-Detektorarray MOCCA zum orts- und massenaufgelösten Nachweis der neutralen Molekülfragmente, die in Dissoziationsreaktionen am kryogenen Speicherring CSR entstehen, entwickelt, hergestellt und charakterisiert. Eine Massenbestimmung wird dabei durch die Messung der kinetischen Energien der Fragmente von bis zu 300 keV unter Verwendung des Detektionsprinzips metallischer magnetischer Kalorimeter realisiert. Ein Energieeintrag in einem solchen Detektor führt zu einer Temperaturerhöhung, die eine Magnetisierungsänderung in einem paramagnetischen Sensor zur Folge hat, welche mit Hilfe von einem SQUID gemessen wird. Verschiedene Festkörpereffekte, die bei der Absorption der Molekülfragmente auftreten, können eine nur teilweise Umwandlung in thermische Energie zur Folge haben und damit zu einer geringeren gemessenen Energie führen. Die statistische Natur dieser Prozesse führt zu einer Degradierung der Energieauflösung. Diese Effekte wurden in Experimenten untersucht und mithilfe von Monte-Carlo-Simulationen modelliert. Auch wurde die prinzipielle Eignung magnetischer Kalorimeter zur Massenspektroskopie von neutralen Molekülfragmenten in Experimenten demonstriert. Um darüber hinaus eine ortsaufgelöste Detektion der Molekülfragmente zu gewährleisten, ist die $4,48 \text{ cm} \cdot 4,48 \text{ cm}$ große sensitive Fläche des Detektors MOCCA in 4.096Absorber unterteilt. Ein neu entwickeltes Verfahren ermöglicht eine Auslesung des gesamten Detektors mit nur 32 SQUID-Kanälen. In den Messungen konnte eine Energieauflösung von $\Delta E_{\rm FWHM} < 300 \, {\rm eV}$ demonstriert werden. Die entsprechende Massenauflösung bei einer Ionenenergie von 300 keV wäre für Ionenmassen von bis zu 1000 u jeweils besser als 1 u.

Development and characterization of the 4k-pixel detector array MOCCA for the energy and position sensitive detection of neutral molecular fragments

Within this thesis the 4 k-pixel detector array MOCCA for the position and mass sensitive detection of neutral molecular fragments produced in dissociation reactions at the cryogenic storage ring CSR was developed, fabricated and characterized. Mass determination is realized by a measurement of the kinetic energies of the fragments of up to 300 keV using the detection principle of metallic magnetic calorimeters. An energy deposition within such a detector leads to an increase in temperature, resulting in a change of magnetization within a paramagnetic sensor, which is measured using a SQUID. Various solid-state effects that occur during the absorption of the molecular fragments can result in an incomplete conversion to thermal energy, resulting in a smaller measured energy. The statistical nature of these processes leads to a degradation of energy resolution. These effects were investigated in experiments and modeled using Monte Carlo simulations. Also, the basic suitability of magnetic calorimeters for mass spectroscopy of neutral molecular fragments was demonstrated in experiments. To enable in addition position sensitive detection of the molecular fragments, the sensitive area of the MOCCA detector with a size of $4.48 \,\mathrm{cm} \times 4.48 \,\mathrm{cm}$ is divided into 4,096 absorbers. A newly developed method allows to read out the entire detector with only 32 SQUID channels. In the measurements an energy resolution of $\Delta E_{\rm FWHM} < 300 \, {\rm eV}$ could be demonstrated. The corresponding mass resolution at an ion energy of 300 keV would be better than 1 u for ion masses of up to 1000 u.

Inhaltsverzeichnis

1 H	Einle	itung	1
2 I	Der l	cryogene Speicherring CSR	3
2.1	Au	fbau des Speicherrings	3
2.2	Dis	ssoziative Rekombination am CSR	5
2.3	De	tektion der am CSR entstehenden Molekülfragmente $\ . \ . \ . \ .$	8
3 N	Meta	llische magnetische Kalorimeter	9
3.1	De	tektionsprinzip	9
3.2	Ser	nsormaterial	11
3.	.2.1	<u>Au</u> : Er und <u>Ag</u> : Er als Sensormaterialien \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots	12
3.	.2.2	Wärmekapazität und Magnetisierung	14
3.	.2.3	Magnetisches Moment	21
3.3	Me	essung der Magnetisierungsänderung	23
3.	.3.1	Mäanderförmige Detektionsspulen	23
3.	.3.2	Auslesung der Flussänderung in der Detektionsspule	26
3.4	Ra	uschen und Energieauflösung	30
3.	.4.1	Signalverlauf	31
3.	.4.2	Thermische Energiefluktuationen	35
3.	.4.3	Energieauflösung	36
3.	.4.4	Zusätzliche Rauschbeiträge	37
4 H	Expe	rimentelle Methoden	41
4.1	dc-	SQUIDs	41
4.	.1.1	Flussrückkopplungs-Schaltung	44
4.	.1.2	Zweistufige Flussrückkopplungs-Schaltung	45
4.	.1.3	Fluss-Rauschen eines dc-SQUIDs	48

4.2	Pr	äparation des felderzeugenden Dauerstroms	52
4.3	Ko	onzept des experimentellen Aufbaus	54
4.4	Kr	yostat	57
4.5	Da	tenaufnahme und -analyse	58
5 D	ete	ktion massiver Teilchen	61
5.1	Me	echanismen der Teilchenabsorption	63
5.1	1.1	Absorption von Röntgenphotonen	63
5.1	1.2	Absorption von massiven Teilchen	65
5.2	Sir	nulation	68
5.2	2.1	Detektion von 50 keV-Kohlenstoffionen in Absorbern aus Gold $~$	70
5.2	2.2	Einfluss der Energie und Masse der auftreffenden Ionen	74
5.2	2.3	Detektion molekularer Ionen	83
5.2	2.4	Einfluss des Absorbermaterials	86
5.3	Ex	perimenteller Aufbau	92
5.3	3.1	MaXs-200-Detektoren	92
5.3	3.2	Detektorplattform	94
5.3	3.3	Kryostat	96
5.3	3.4	Kalibrationsquelle	101
5.3	3.5	Ionenstrahl-Erzeugung	101
5.4	Ex	perimentelle Ergebnisse	104
5.4	4.1	Detektor-Eigenschaften	104
5.4	4.2	Detektion atomarer Ionen	108
5.4	4.3	Detektion molekularer Ionen	116
5.4	4.4	Massenspektroskopie	120
5.5	La	ngzeitauswirkungen auf die Absorbereigenschaften	131
5.5	5.1	Abtrag von Absorbermaterial	131
5.5	5.2	Wärmekapazität	132

135

ii _____

6.1	De	tektordesign		
6.1	.1	Auslesung von 1.024 Sensoren mit 32 SQUID-Kanälen		
6.1	2	Auslesung von vier Absorbern mit einem Sensor		
6.1	.3	Geometrie eines Einzeldetektors des Detektorarrays		
6.1	.4	Layout des gesamten Detektorarrays		
6.1	.5	MOCCAcino		
6.2 Numerische Berechnungen der Detektoreigenschaften				
6.2	2.1	Detektoroptimierung und erwartete Energieauflösung 146		
6.2	2.2	Modellieren der ortsaufgelösten Detektion		
6.3 Herstellung				
6.3	8.1	Übersicht: Herstellung der einzelnen Schichten des Detektors 157		
6.3	8.2	Herstellung der Detektorleitungen 161		
6.3	3.3	Herstellung der Thermalisierungsstrukturen		
6.3	8.4	Herstellung der Absorber		
6.4	Ex	perimenteller Aufbau		
6.4	.1	Detektorplattform		
6.4	.2	Kryostat		
6.4	.3	Radioaktive Quelle		
6.4	.4	Aufbau zur Charakterisierung des Detektorarrays MOCCAcino 178		
6.5	Ex	perimentelle Ergebnisse		
6.5	5.1	Bestimmung der Induktivitäten		
6.5	5.2	Demonstration des Auslesungsprinzips		
6.5	5.3	Übersprechen zwischen Zeilen und Spalten		
6.5	.4	Signalverlauf		
6.5	5.5	Linearität		
6.5	6.6	Energieauflösung		
6.6	Au	sblick: Nächste Detektorgeneration		
6.6	5.1	Neues Detektorlayout		
6.6	5.2	Neuer Herstellungsprozess der Detektorleitungen		

iv	Inhaltsverzeichnis	
7 Zusammenfassung		205
A Anhang		209
${ m Literaturverzeichnis}$		211

1. Einleitung

Obwohl interstellare Molekülwolken aufgrund der dort herrschenden geringen Temperaturen und Teilchendichten von typischerweise etwa 10 K und 200 Teilchen/cm³ [Tie05] auf den ersten Blick nicht die beste Umgebung zur Bildung von Molekülen bieten, haben spektroskopische Messungen gezeigt, dass sie eine große Anzahl an sogar sehr komplexen Molekülen enthalten. Bislang wurden mehr als 200 verschiedene [McG18], vorwiegend organische interstellare Moleküle und Molekülionen nachgewiesen, darunter auch die Fullerene C_{60} , C_{70} [Cam10] und C_{60}^+ [Ber13]. Darüber hinaus wurden breite Absorptionslinien im interstellaren Medium entdeckt [Mer34], die als diffuse interstellare Banden bezeichnet werden und vermutlich durch elektronische Ubergänge in relativ großen kohlenstoffhaltigen Molekülen wie polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen, langen Kohlenstoffketten oder Fullerenen verursacht werden [Her95, Sar06]. Die über 400 aktuell bekannten diffusen interstellaren Banden [Cam18], deren Ursprung bislang nur im Fall von fünf Banden konkret identifiziert und auf C_{60}^+ zurückgeführt werden konnte [Cam15, Wal15, Cam16], weisen zusätzlich auf die Existenz einer großen Vielfalt an interstellaren Molekülen hin. Ein Prozess, der eine wichtige Rolle bei der Entstehung dieser Moleküle spielen könnte, ist die dissoziative Rekombination [Kap31, Bat50], bei der ein positiv geladenes Molekülion mit einem freien Elektron rekombiniert und anschließend in neutrale Fragmente zerfällt. Sie ist dabei einerseits als ionisationsreduzierender Prozess von Relevanz, andererseits können hierbei reaktive Radikale entstehen, welche wiederum weiter zu größeren Molekülen kombinieren können. Da dieser Prozess exotherm verläuft, ist er auch bei den Umgebungsbedingungen in interstellaren Molekülwolken, bei denen viele Reaktionen nur langsam oder gar nicht ablaufen können, sehr effizient.

Zur Erstellung eines theoretischen Modells der in interstellaren Molekülwolken stattfindenden Ionenchemie werden experimentelle Daten benötigt. Der gekühlte elektrostatische Ionenspeicherring CSR [vH16] am Max-Planck-Institut für Kernphysik in Heidelberg, der im zweiten Kapitel dieser Arbeit diskutiert wird, ermöglicht es, Reaktionen wie die dissoziative Rekombination im Labor zu untersuchen. Mit Temperaturen von unter 10 K und Teilchendichten von unter 140 Teilchen/cm³ werden in diesem Speicherring die Umgebungsbedingungen in interstellaren Molekülwolken fast perfekt nachgestellt. Ferner ermöglichen diese Bedingungen lange Speicherzeiten von schweren Molekülionen im Rotations- und Vibrationsgrundzustand mit Ionenstrahlenergien von bis zu 300 keV/e. Eine Überlagerung des Molekülionenstrahls mit einem niederenergetischen Elektronenstrahl ermöglicht zudem einerseits eine Phasenraumkühlung von Molekülionen mit Massen bis zu 165 u/e und andererseits Elektron-IonReaktionen wie die dissoziative Rekombination.

Um die vollständigen kinematischen Abläufe dieser Reaktionen aufzulösen, ist eine energie-, zeit- und ortsauflösende Detektion der entstehenden neutralen Molekülfragmente nötig. Anhand der gemessenen kinetischen Energien können dabei die Fragmentmassen ermittelt werden, während sich aus den Auftrefforten und -zeitpunkten Rückschlüsse auf die bei der Dissoziation freigewordene kinetische Energie ziehen lassen. Ein Detektor sollte darüber hinaus eine ausreichend große sensitive Fläche besitzen und kompatibel zu der kryogenen Umgebung des Speicherrings sein. Aufgrund der geringen kinetischen Energie der am CSR entstehenden Fragmente und der daraus resultierenden geringen Reichweite in Festkörpern kommen zudem keine Detektoren infrage, die wie Halbleiterdetektoren eine nicht-sensitive Oberflächenschicht besitzen. Die bei tiefen Temperaturen betriebenen Mikrokalorimeter weisen keine solche Totschicht auf und bieten eine hohe Energiebandbreite sowie eine gute Energieauflösung. Bei diesen Detektoren führt ein Energieeintrag durch ein Photon oder ein massives Teilchen in einem Absorber zu einer Temperaturerhöhung, die mit einem sehr empfindlichen Thermometer ausgelesen wird. Im Speziellen sollen am CSR metallische magnetische Kalorimeter eingesetzt werden, deren Funktionsweise in Kapitel 3 beschrieben wird. Bei dieser Art von Mikrokalorimetern wird als Thermometer ein paramagnetischer Sensor in einem Magnetfeld verwendet, dessen temperaturabhängige Magnetisierung von einem dc-SQUID ausgelesen wird. Die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten experimentellen Methoden zum Betrieb und zur Auslesung dieser Detektoren werden in Kapitel 4 beschrieben.

Während mit metallischen magnetischen Kalorimetern bei der Detektion von Photonen eine verlustfreie Energiemessung sowie Energieauflösungen in der Größenordnung von etwa 1 eV erreichbar sind [Fle09a, Por14, Kem18], treten bei der Detektion massiver Teilchen hingegen zusätzliche Festkörpereffekte auf, die zu einer zu geringen gemessenen Teilchenenergie und einer potentiellen Degradierung der Energieauflösung führen. Der Einfluss dieser Festkörpereffekte auf die gemessene Linienform wurde im Rahmen dieser Arbeit anhand von Simulationen sowie experimentellen Studien untersucht und wird in Kapitel 5 ausführlich diskutiert. Die durchgeführten Simulationen und Messungen bestätigen die Eignung metallischer magnetischer Kalorimeter für die am CSR geplante Massenspektroskopie neutraler Molekülfragmente.

Während Mikrokalorimeter typischerweise sehr klein sind, wird für die hier angestrebten Messungen eine vergleichsweise große sensitive Fläche in Kombination mit einer guten Ortsauflösung benötigt. Zu diesem Zweck wurde im Rahmen dieser Arbeit ein auf metallischen magnetischen Kalorimetern basierender hochsegmentierter Detektor entwickelt, hergestellt und charakterisiert. Dieser Detektor wird in Kapitel 6 diskutiert. Er umfasst 4.096 Pixel, die zusammen eine quadratische, 4,48 cm \cdot 4,48 cm große Detektionsfläche bilden und wird von nur 32 SQUID-Kanälen ausgelesen.

2. Der kryogene Speicherring CSR

Der kryogene elektrostatische Ionenspeicherring CSR¹ am Max-Planck-Institut für Kernphysik² (MPIK) in Heidelberg ermöglicht ein Speichern von schweren Molekülionen mit einer Strahlenergie zwischen 20 keV und 300 keV pro Elementarladung bei Temperaturen unterhalb von 10K und Restgas-Teilchendichten von unter 140 Teilchen/cm³ [vH16]. Das elektrostatische Ablenken und Fokussieren der Ionen erlaubt es dabei, die bei magnetischen Speicherringen durch die geschwindigkeitsabhängige Ablenkkraft gegebene Limitierung der Ionenmasse zu überwinden. Durch den Betrieb des Speicherrings bei tiefen Temperaturen können aufgrund des dadurch erzielten geringen Restgasdrucks selbst für große und schwere Molekülionen lange Speicherzeiten erreicht werden, sodass diese Zeit haben, durch Emission von Infrarot-Photonen in den Vibrations- und Rotationsgrundzustand überzugehen. Ein Elektronenkühler ermöglicht darüber hinaus eine Phasenraumkühlung von Molekülionen mit Massen bis zu etwa 165 u pro Elementarladung sowie Elektron-Ion-Reaktionen wie die dissoziative Rekombination. Die wohldefinierten Quantenzustände der gespeicherten Molekülionen erlauben dabei eine direkte Vergleichbarkeit der experimentellen Daten mit theoretischen Modellen.

An dieser Stelle soll erwähnt werden, dass im DESIREE³ Projekt [Tho11, Sch13] in Stockholm, ebenso wie im RICE⁴ Projekt [Nak12, Nak17] in Japan ebenfalls gekühlte elektrostatische Ionenspeicherringe realisiert wurden. Mit einem Umfang von 8,8 m bzw. 2,9 m sind diese Speicherringe allerdings wesentlich kleiner als der CSR. Während die maximale Ionenstrahlenergie am RICE 30 keV beträgt, sind am DESIREE Ionenstrahlenergien von bis zu 100 keV erreichbar.

2.1 Aufbau des Speicherrings

Im Folgenden wird ein kurzer Überblick über den Aufbau des CSR gegeben. Eine detailliertere Beschreibung findet sich in [vH16]. Abbildung 2.1 zeigt eine schematische Aufsicht auf den CSR. Der Speicherring hat einen quadratischen Grundriss mit einem Umfang der Ionenbahn von etwa 35 m und setzt sich aus vier feldfreien geraden Abschnitten sowie vier Ablenk- und Fokussier-Abschnitten zusammen. Der gesamte Speicherring ist als Kryostat aufgebaut. Das Strahlrohr bildet dabei eine innere

 $^{^1\}mathrm{CSR}$ ist ein Akronym für den englischen Begriff Cryogenic Storage Ring

²Saupfercheckweg 1, 69117 Heidelberg

³DESIREE ist ein Akronym für den englischen Begriff Double ElectroStatic Ion Ring Exp Eriment ⁴RICE ist ein Akronym für den englischen Begriff RIken Cryogenic Electrostatic ring



Abb. 2.1: Schematische Zeichnung des von oben betrachteten kryogenen Speicherrings CSR und vergrößerter Ausschnitt aus dem Bereich des Elektronenkühlers und der für den Detektor MOCCA vorgesehenen Vakuumkammer. Adaptiert von [vH16].

Vakuumkammer mit einem Innendurchmesser zwischen 100 mm und 320 mm, welche durch ein Kühlsystem mit flüssigem Helium auf Temperaturen unter 10 K gekühlt werden kann [Orl08]. An insgesamt 28 Positionen innerhalb des Strahlrohrs befinden sich zudem große Kupferflächen, die mit suprafluidem Helium auf eine Temperatur von unter 2 K gekühlt werden. Diese als Kryokondensationspumpen dienenden Oberflächen erzeugen das extrem gute Vakuum mit geringen Teilchendichten von unter 140 Teilchen/cm³. Zur Abschirmung vor Wärmestrahlung ist das Strahlrohr von zwei Strahlungsschilden aus Aluminium mit Temperaturen von 40 K und 80 K sowie von 30 Lagen Superisolation umgeben. Der gesamte Aufbau befindet sich in einem Isolationsvakuum mit einem Druck von etwa 10^{-6} mbar. Die äußere Vakuumkammer befindet sich bei Raumtemperatur und setzt sich aus insgesamt 16 einzelnen Kammern mit einem rechteckigen Querschnitt von mindestens etwa $1 \text{ m} \cdot 1 \text{ m}$ zusammen.

Die vier Ablenk- und Fokussier-Abschnitte sind nahezu identisch aufgebaut. Mit Hilfe von zylindrischen Deflektorelektroden, die in Abbildung 2.1 in Grün eingezeichnet sind, wird dabei in jeder Ecke eine Ionenablenkung um 90° erzielt. Zur Fokussierung des Ionenstrahls befinden sich in jedem dieser Abschnitte zudem zwei in Blau dargestellte Paare von elektrostatischen Quadrupolen. Die vier feldfreien geraden Abschnitte sind jeweils 2,6 m lang und für Experimente vorgesehen. Neben der Überlagerung eines Elektronenstrahls im Elektronenkühler ist in diesen Abschnitten unter anderem eine Überlagerung sowie eine Kreuzung des Ionenstrahls mit Laserund Teilchenstrahlen möglich. Diese Geometrie ermöglicht somit die Untersuchung verschiedener Kollisions- und strahlungsinduzierter Fragmentierungsprozesse der gespeicherten Ionen.

Zur Messung der Strahlposition sind zudem insgesamt sechs kapazitive Strahllagesensoren jeweils an äquivalenten Positionen entlang des Strahlrohrs verteilt, die aus je zwei separaten zylindrischen diagonal geteilten Elektroden bestehen und in Abbildung 2.1 in Rosa eingezeichnet sind. Zwei weitere, unterschiedlich lange zylindrische Elektroden zur kapazitiven Strahldiagnose sind in Abbildung 2.1 ebenfalls in Rosa eingezeichnet. Während der kürzere Strom-Sensor zur Bestimmung der absoluten Anzahl an injizierten Ionen dient, misst der längere Schottky-Sensor die Umlauffrequenz und die Impulsverteilung anhand des Schottky-Rauschens der gespeicherten Ionen.

Der Elektronenkühler ist in Abbildung 2.1 in Orange eingezeichnet. Eine detaillierte Beschreibung dieses Bauteils findet sich in [Sho09]. Zur Phasenraumkühlung wird dem Ionenstrahl auf einer Strecke von etwa 1 m ein nahezu monoenergetischer, geschwindigkeitsangepasster Strahl von Elektronen aus einer kryogenen Photokathoden-Elektronenquelle kollinear überlagert. Mit Elektronenstrahlenergien $E_{\rm e}$ zwischen etwa 1000 eV und 1 eV kann auf diese Weise bei einer Ionenstrahlenergie von $E_{\rm i} = 300 \,\rm keV$ eine Phasenraumkühlung von Molekülionen mit Massen bis zu etwa $m_{\rm i,max} = m_{\rm e} E_{\rm i} / E_{\rm e,min} \approx 165 \,\rm u$ erreicht werden.

2.2 Dissoziative Rekombination am CSR

Darüber hinaus ermöglicht der Elektronenkühler Elektron-Ion-Reaktionen wie die exotherm verlaufende dissoziative Rekombination. Ein positiv geladenes Molekülion rekombiniert dabei mit einem Elektron aus dem Elektronenstrahl und dissoziiert daraufhin in zwei oder mehr neutrale Fragmente, die den Speicherring in gerader Richtung verlassen und somit außerhalb der Ionenstrahlumlaufbahn detektiert werden können. Hierbei können sowohl atomare als auch molekulare Molekülfragmente entstehenden. Rekombiniert beispielsweise ein dreiatomiges Molekülion ABC⁺ mit einem Elektron, so sind die vier unterschiedlichen Fragmentierungskanäle

$$ABC^{+} + e^{-} \rightarrow \begin{cases} A + B + C \\ A + BC \\ AB + C \\ AC + B \end{cases}$$
(2.1)

möglich. Um die auftretenden Fragmentierungskanäle und deren Verzweigungsverhältnisse zu ermitteln, ist daher eine Identifikation und somit eine massensensitive Detektion der entstehenden neutralen Molekülfragmente erforderlich. Eine klassische Massenspektrometrie, bei der das Masse-zu-Ladungs-Verhältnis mit Hilfe von elektromagnetischen Feldern bestimmt wird, ist hierbei ungeeignet, da die Molekülfragmente dafür zunächst ionisiert werden müssten, was einerseits eine weitere Fragmentierung und andererseits eine Mehrfachionisierung zur Folge haben könnte. Da die bei der dissoziativen Rekombination freiwerdende kinetische Energie von typischerweise $E_{\text{KER}} \leq 10 \text{ eV}$ allerdings viel kleiner ist als die ursprüngliche Ionenstrahlenergie $E_{\text{kin,i}}$, entsprechen die Geschwindigkeiten v_{fj} der Fragmente fj (j = 1, 2, ..., n) in guter Näherung der ursprünglichen Geschwindigkeit v_i des Molekülions. Die Massen m_{fj} der am CSR entstehenden Molekülfragmente können somit stattdessen anhand deren kinetischen Energien

$$E_{\mathrm{kin},\mathrm{f}j} \approx \frac{m_{\mathrm{f}j}}{m_{\mathrm{i}}} E_{\mathrm{kin},\mathrm{i}}$$
 (2.2)

und der Masse m_i des ursprünglichen Molekülions bestimmt werden.

Neben den Verzweigungsverhältnissen der bei der dissoziativen Rekombination auftretenden Fragmentierungskanäle ist zudem die freigesetzte kinetische Energie E_{KER} von Interesse, aus der sich, bei Kenntnis der Ionisierungsenergie und der insgesamt freiwerdenden Bindungsenergie, die innere Anregung der entstehenden Fragmente ermitteln lässt. Diese zusätzliche kinetische Energie führt, wie in Abbildung 2.2 beispielhaft für zwei Fragmente f1 und f2 skizziert, zu geringfügigen transversalen und longitudinalen Geschwindigkeitsänderungen $v_{\text{KER,f}j}$ und somit zu einer räumlichen und zeitlichen Separation der Fragmente beim Auftreffen auf die sensitive Fläche des Detektors. Bei der Entstehung von *n* Fragmenten ist der Anteil der Energie E_{KER} , der in eine transversale Geschwindigkeitsänderung umgesetzt wird, dabei durch

$$E_{\text{KER},\perp} \approx \frac{E_{\text{kin},\text{i}}}{m_{\text{i}}s_{\parallel}^{2}} \sum_{j} \left(m_{\text{f}j} \Delta s_{\text{f}j,\perp}^{2} \right)$$
(2.3)

gegeben, während für den Anteil, der in eine longitudinale Geschwindigkeitsänderung umgesetzt wird,

$$E_{\text{KER},\parallel} \approx \frac{2E_{\text{kin},i}^2}{m_i^2 s_{\parallel}^2} \sum_j \left(m_{\text{f}j} \Delta t_{\text{f}j}^2 \right)$$
(2.4)



Abb. 2.2: Schematische zweidimensionale Darstellung der kinematischen Abläufe infolge einer dissoziativen Rekombination, bei der die beiden Molekülfragmente f1 und f2 entstehen. In Rot sind die aus der freiwerdenden kinetischen Energie E_{KER} resultierenden Trajektorien der Fragmente im Schwerpunktsystem gezeigt. Die Trajektorie, die die Fragmente ohne diese zusätzliche Energie im Laborsystem zurückgelegt hätten, ist gestrichelt in Grün dargestellt. Aus der Summe dieser Bewegungsvektoren ergeben sich jeweils die in Grün gezeigten Trajektorien der Fragmente im Laborsystem.

gilt. Aus den Abweichungen $\Delta s_{fj,\perp}$ und $\Delta t_{fj} \approx \Delta s_{fj,\parallel} \sqrt{m_i/2E_{kin,i}}$ der Auftrefforte und -zeitpunkte auf einem Detektor im Abstand s_{\parallel} lässt sich somit bei bekannten Fragmentmassen m_{fj} die insgesamt bei der dissoziativen Rekombination freigewordene kinetische Energie $E_{\text{KER}} = E_{\text{KER},\perp} + E_{\text{KER},\parallel}$ bestimmen. In dem in Abbildung 2.2 dargestellten Fall, in dem nur zwei Fragmente entstehen, treffen diese in einem Abstand von

$$\Delta s_{\perp} = \Delta s_{\text{f}1,\perp} + \Delta s_{\text{f}2,\perp} \approx s_{\parallel} \sqrt{\frac{E_{\text{KER},\perp}}{E_{\text{kin},\text{i}}}} \frac{m_{\text{i}}^2}{m_{\text{f}1}m_{\text{f}2}}$$
(2.5)

zueinander und mit einer zeitlichen Differenz von

$$\Delta t = \Delta t_{\rm f1} + \Delta t_{\rm f2} \approx s_{\parallel} \sqrt{\frac{1}{2} \frac{E_{\rm KER,\parallel}}{E_{\rm kin,i}^2} \frac{m_{\rm i}^3}{m_{\rm f1} m_{\rm f2}}}$$
(2.6)

auf dem Detektor auf. Wird beispielsweise bei der dissoziativen Rekombination eines CH_3^+ -Ions ($m_i = 15 \text{ u}$) mit der kinetischen Energie $E_{\text{kin},i} = 300 \text{ keV}$ in die Fragmente CH_2 und H ($m_{\text{f1}} = 14 \text{ u}, m_{\text{f2}} = 1 \text{ u}$) die kinetische Energie $E_{\text{KER}} = 1 \text{ eV}$ freigesetzt, so resultiert daraus folglich ein Abstand der Auftrefforte auf einem Detektor im Abstand $s_{\parallel} = 5 \text{ m}$ von maximal $\Delta s_{\perp,\text{max}} \approx 3,7 \text{ cm}$ und ein Unterschied der Auftreffzeitpunkte von maximal $\Delta t_{\text{max}} \approx 19 \text{ ns}.$

2.3 Detektion der am CSR entstehenden Molekülfragmente

Zur energieaufgelösten Detektion von Molekülfragmenten, die in Dissoziationsreaktionen an Ionenspeicherringen entstehen, werden häufig Halbleiterdetektoren eingesetzt [Lar97], die eine typischerweise einige zehn bis einige hundert Mikrometer dicke nichtsensitive Oberflächenschicht aufweisen [Gur11]. Aufgrund der verhältnismäßig niedrigen kinetischen Energien der am CSR entstehenden Molekülfragmente sind deren Eindringtiefen in Festkörpern allerdings sehr gering. Wie in Unterkapitel 5.2 gezeigt wird, beträgt die mittlere Eindringtiefe der Fragmente typischerweise nur einige zehn bis einige hundert Nanometer, was nicht ausreicht, um in das sensitive Volumen von Halbleiterdetektoren vordringen zu können. Für die Messung der kinetischen Energie der am CSR entstehenden Molekülfragmente sollen daher stattdessen, wie bereits in Kapitel 1 erwähnt wurde, metallische magnetische Mikrokalorimeter verwendet werden. Das im Rahmen dieser Arbeit entwickelte 4k-Pixel-Mikrokalorimeterarray MOCCA⁵, das in Kapitel 6 vorgestellt wird, ermöglicht dabei nicht nur eine Messung der kinetischen Energien, sondern zudem eine Bestimmung der Auftrefforte der Fragmente auf einer $4,48 \,\mathrm{cm} \cdot 4,48 \,\mathrm{cm}$ großen sensitiven Fläche. Dieser Detektor wird in einer in Abbildung 2.1 in Rot eingezeichneten Vakuumkammer angebracht, welche mit dem Strahlrohr verbunden wird, sodass die zu detektierenden Molekülfragmente ungehindert auf die Detektionsfläche treffen können. Um dabei die benötigte geringe Betriebstemperatur des Detektors von etwa 20 mK zu erzielen, wird dieser auf einer Kupferplattform befestigt, die über eine Vakuumdurchführung mit der Mischkammerplattform eines trockenen ${}^{3}\text{He}/{}^{4}\text{He-Verdünnungskryostaten}^{6}$ (siehe Unterkapitel 4.4) verbunden wird. Der Kryostat wird hierzu an der äußeren Vakuumkammer des CSR montiert, sodass sich beide ein gemeinsames Isolationsvakuum teilen.

Da das Zeitauflösungsvermögen des Detektorarrays MOCCA in der Größenordnung weniger Mikrosekunden nicht ausreicht, um die typischen Auftreffzeitunterschiede der Molekülfragmente von $\Delta t \lesssim 100$ ns aufzulösen, soll in der für den Detektor MOCCA vorgesehenen Vakuumkammer zudem das in [Spa18] vorgestellte Elektronentransportsystem integriert werden. Dieses soll Sekundärelektronen, die durch auftreffende Fragmente aus dem Detektor herausgelöst werden, beschleunigen und auf eine "Microchannel Plate" (MCP) [Wiz79] ablenken, hinter der sich ein Leuchtschirm befindet. Diese Anordnung ermöglicht eine zeit- und ortsauflösende Sekundärelektronen-Detektion. Bei einer gleichen Flugzeit der Sekundärelektronen entsprechen deren relative Auftreffzeitunterschiede auf der Microchannel Plate dabei den Auftreffzeitunterschieden der Molekülfragmente auf MOCCA. Die jeweiligen Sekundärelektronen lassen sich hierbei anhand ihrer Auftrefforte auf der Microchannel Plate den zugehörigen, mit MOCCA detektierten Molekülfragmenten zuordnen.

⁵MOCCA ist ein Akronym für den englischen Begriff MOleCule Camera Array

⁶BF-LD250, BlueFors Cryogenics Oy, Arinatie 10, 00370 Helsinki, Finnland

3. Metallische magnetische Kalorimeter

In diesem Kapitel werden die physikalischen Grundlagen, die zum allgemeinen Verständnis metallischer magnetischer Kalorimeter erforderlich sind, kurz zusammengefasst. Eine ausführlichere Beschreibung findet sich beispielsweise in [Fle05].

3.1 Detektionsprinzip

Metallische magnetische Kalorimeter sind energiedispersive Teilchendetektoren zur Detektion von Röntgenphotonen sowie massiven Teilchen. Während im Fall von Röntgenphotonen eine verlustfreie Messung der Photonenenergie E_{γ} möglich ist, treten bei der Messung der kinetischen Energie $E_{\rm kin}$ massiver Teilchen Verlustmechanismen auf, die in Kapitel 5 diskutiert werden. Das Detektionsprinzip basiert hierbei auf dem ersten Hauptsatz der Thermodynamik und wird im Folgenden erläutert.



Abb. 3.1: Schematische Abbildung eines magnetischen Kalorimeters.

Abbildung 3.1 zeigt eine schematische Zeichnung eines magnetischen Kalorimeters. Ein solches Mikrokalorimeter besteht aus einem Teilchenabsorber, der an ein stabiles Wärmebad schwach thermisch gekoppelt ist und dessen Temperatur durch ein sehr empfindliches Thermometer gemessen wird. Realisiert wird dieses Thermometer durch einen paramagnetischen Temperatursensor, der in gutem thermischen Kontakt zum Absorber steht und sich in einem schwachen äußeren Magnetfeld befindet. Ein auf den Absorber auftreffendes Röntgenphotonen oder massives Teilchen deponiert seine Energie E_{γ} bzw. $E_{\rm kin}$ im Absorber. Dieser Energieeintrag ΔE führt zunächst zu einer lokalen Temperaturerhöhung innerhalb des Absorbers, die sich dann vorwiegend diffusiv durch den Absorber hin zum Sensor ausbreitet und so in einer globalen Temperaturerhöhung im Detektor von typischerweise einigen 0,01 bis 1 mK resultiert. Bei einer typischen Betriebstemperatur zwischen 10 mK und 100 mK ist somit die relative Änderung der Detektortemperatur während des Detektionsvorgangs so gering, dass die Gesamtwärmekapazität $C_{\rm ges} = C_{\rm a} + C_{\rm s}$ des Detektors, welche durch die Summe der Wärmekapazitäten $C_{\rm a}$ und $C_{\rm s}$ von Absorber und Sensor gegeben ist, als konstant angenommen werden kann. Die Temperaturerhöhung ist dann durch

$$\Delta T = \frac{\Delta E}{C_{\text{ges}}} \tag{3.1}$$

gegeben. Da sich die magnetischen Momente des paramagnetischen Sensormaterials entlang des äußeren Magnetfelds entsprechend ihrer Temperatur ausrichten, erhält der Sensor eine temperaturabhängige Magnetisierung M(T). Im Sensor angekommen führt die Temperaturerhöhung ΔT somit zu einer Verringerung der Sensormagnetisierung

$$\Delta M = \frac{\partial M}{\partial T} \Delta T = \frac{\partial M}{\partial T} \frac{\Delta E}{C_{\text{ges}}},\tag{3.2}$$

die sich invers proportional zur Gesamtwärmekapazität des Detektors verhält. Diese Magnetisierungsänderung kann dann von einem empfindlichen, rauscharmen dc-Stromsensor-SQUID¹ mit hoher Bandbreite über eine mit der Einkoppelspule des SQUIDs verbundene Detektionsspule ausgelesen werden. In der Detektionsspule resultiert die Magnetisierungsänderung ΔM in einer Flussänderung $\Delta \Phi$ die zu einer Flussänderung

$$\Delta\Phi_{\rm S} \propto \Delta\Phi \propto \Delta M \propto \Delta E \tag{3.3}$$

im SQUID führt. Die Fluss-zu-Fluss-Kopplung $\Delta \Phi_{\rm S}/\Delta \Phi$ hängt hierbei stark von den Geometrien von Detektions- und Einkoppelspule sowie zusätzlichen parasitären Induktivitäten ab und wird in Abschnitt 3.3.2 diskutiert. Als alternative Auslesungsgeometrie kann auch der Sensor direkt in der SQUID-Spule platziert werden, wodurch sich eine maximale Fluss-zu-Fluss-Kopplung $\Delta \Phi_{\rm S}/\Delta \Phi = 1$ erreichen lässt. Um zuletzt die durch die Absorption des Teilchens in den Sensor eingebrachte Wärme wieder abzuführen, ist dieser thermisch schwach an ein Wärmebad angekoppelt, sodass der Detektor nach jedem Energieeintrag wieder den ursprünglichen Ausgangszustand erreicht.

¹SQUID ist ein Akronym für den englischen Begriff Superconducting QUantum Interference Device. Die Funktionsweise eines dc-SQUIDs wird in Unterkapitel 4.1 erläutert. Der Ausdruck Stromsensor-SQUID bezeichnet die Kombination aus einem SQUID mit einer integrierten Einkoppelspule.

Anhand von Gleichung 3.2 ergeben sich bereits zwei Anforderungen, die erfüllt sein müssen, um eine möglichst große Magnetisierungsänderung und somit maximale Signalhöhe zu erzielen. Zum einen sollte die Gesamtwärmekapazität des Detektors möglichst gering sein, andererseits sollte das Sensormaterial eine starke Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung zeigen. Eine geringe Wärmekapazität von Absorber und Sensor lässt sich dabei durch ein kleines Volumen der beiden Komponenten sowie eine geringe spezifische Wärme der verwendeten Materialien erzielen. Durch den Betrieb des Detektors bei geringen Temperaturen $T < 100 \,\mathrm{mK}$ lässt sich die spezifische Wärme reduzieren, da sowohl der elektronische Beitrag $c_{\rm e} \propto T$ als auch der phononische Beitrag $c_{\rm p} \propto T^3$ mit sinkender Temperatur abnehmen. Ein weiterer Vorteil einer geringen Betriebstemperatur ist zudem die Reduktion von thermischem Rauschen, was ebenfalls eine Verbesserung der in Abschnitt 3.4.3 behandelten Energieauflösung zur Folge hat. Ein kleines Absorbervolumen lässt sich in erster Linie durch die Wahl einer möglichst geringen Absorberhöhe erreichen, wobei diese noch ausreichend groß sein muss, um die zu detektierenden Teilchen zu stoppen, was in Kapitel 5 diskutiert wird. Auf diese Weise ist es möglich dennoch eine relativ große sensitive Fläche zu erzielen. Entsprechend haben die Absorber der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Detektoren relativ große Grundflächen im Quadratmillimeterbereich und sehr geringe Höhen von nur wenigen Mikrometern.

Um zudem eine schnelle Detektorsignal-Anstiegszeit und somit eine hohe Zählrate gewährleisten zu können, sind schnelle Thermalisierungszeiten und dementsprechend eine gute Wärmeleitfähigkeit der verwendeten Materialien von Vorteil. Als Absorbermaterial sind daher normalleitende Metalle wie beispielsweise Gold besonders geeignet. Entsprechend lassen sich im Sensormaterial die schnellen Thermalisierungszeiten, wie in Unterkapitel 3.2 erläutert, durch das Einbetten paramagnetischer Ionen in ein metallisches Wirtsmaterial erzielen. Während die wichtigsten Eigenschaften verschiedener Absorbermaterialien insbesondere im Hinblick auf die Detektion massiver Teilchen in Kapitel 5 diskutiert werden, werden die physikalischen Eigenschaften der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Sensormaterialien im folgenden Unterkapitel zusammengefasst.

3.2 Sensormaterial

Wie bereits angemerkt, ist die Thermalisierungszeit eines magnetischen Kalorimeters ein entscheidender Parameter bei der Wahl eines geeigneten Sensormaterials. Da die Kopplung der magnetischen Momente im Sensor an Phononen bei den geringen Betriebstemperaturen magnetischer Kalorimeter sehr gering ist, resultiert die Verwendung von dielektrischen Sensormaterialien in sehr langsamen Signalen. Bei Temperaturen im Millikelvin-Bereich sind die Spin-Phonon-Relaxationszeiten typischer-

weise in der Größenordung von Sekunden und mehr [Büh93]. Um dennoch schnelle Thermalisierungszeiten zu erzielen, bietet es sich an, die paramagnetischen Ionen in ein metallisches Wirtsmaterial einzubetten [Ban93]. In diesem können die magnetischen Momente mit den Leitungselektronen wechselwirken, wodurch aufgrund der starken Spin-Elektron-Kopplung Relaxationszeiten von unter 100 ns möglich sind [Fle09a]. Die Leitungselektronen des metallischen Wirtsmaterials bringen allerdings den Nachteil einer Verstärkung der Wechselwirkungen zwischen den magnetischen Momenten durch die sogenannte RKKY-Wechselwirkung mit sich. Letztere wird in Abschnitt 3.2.2 diskutiert und hat wiederum typischerweise einen zusätzlichen Beitrag zur Wärmekapazität sowie eine Reduktion der Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung und somit eine Verringerung der Detektorsignalhöhe zur Folge. Als paramagnetische Ionen im Sensormaterial bieten daher vor allem die Ionen von Seltenerdmetallen, die vergleichsweise schwach mit den Leitungselektronen wechselwirken, einen geeigneten Kompromiss zwischen einer schnellen Thermalisierungszeit und einer großen Signalhöhe. Unter diesen wurde für die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Detektoren Erbium ausgewählt, welches den Vorteil hat, dass alle in der natürlichen Zusammensetzung vorkommenden Isotope mit Ausnahme des Isotops ¹⁶⁷Er keinen Kernspin besitzen. Ein solcher kann, wie in Abschnitt 3.2.2 diskutiert, zu einem unerwünschten Hyperfeinstruktur-Beitrag zur Wärmekapazität sowie zu einer Verringerung der Magnetisierung führen. Als metallisches Wirtsmaterial wurden im Rahmen dieser Arbeit sowohl Gold als auch Silber verwendet. Die resultierenden Legierungen werden im Folgenden mit <u>Au</u>:Er bzw. Ag:Er bezeichnet.

In diesem Unterkapitel werden zunächst die allgemeinen Eigenschaften dieser beiden Materialien kurz zusammengefasst. Anschließend werden die für die Sensitivität eines metallischen magnetischen Kalorimeters entscheidenden Größen Wärmekapazität und Magnetisierung, sowie deren Temperaturabhängigkeiten diskutiert. Zuletzt wird die Detektorsignalhöhe und ihre Magnetfeldabhängigkeit anhand der Änderung des magnetischen Moments des Sensors betrachtet.

3.2.1 <u>Au</u>:Er und Ag:Er als Sensormaterialien

Als Sensormaterialien für die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Detektoren wurden die Legierungen <u>Au</u>:Er sowie <u>Ag</u>:Er gewählt, die aus den Edelmetallen Gold bzw. Silber bestehen, welche mit einigen hundert ppm Erbium dotiert wurden. Während sowohl reines Gold als auch reines Silber eine kubisch-flächenzentrierte Gitterstruktur mit einer Gitterkonstanten von etwa 4,08 Å haben und ein schwaches diamagnetisches Verhalten aufweisen, führt das Zufügen von Erbiumionen zu einem paramagnetischen Verhalten bei tiefen Temperaturen. Das eingebrachte Erbium substituiert dabei die Atome des Wirtsmaterials auf regulären Gitterplätzen und gibt drei Elektronen an das Leitungsband ab. Abbildung 3.2 zeigt einen schematischen Ausschnitt aus der



Abb. 3.2: Schematische Abbildung eines Atomgitter-Ausschnitts einer <u>Au</u>:Er- bzw. <u>Ag</u>:Er-Legierung. Zu sehen sind die Atome des Wirtsmaterials sowie die 4f-, 5s- und 5p-Orbitale eines eingebrachten Er³⁺-Ions, welches ein Atom des Wirtsmaterials auf einem regulären Gitterplatz substituiert.

Gitterstruktur der so entstehenden Legierung. Die Er^{3+} -Ionen in diesem Gitter haben einen Radius von etwa 1 Å und die Elektronenkonfiguration [Kr] $4d^{10}4f^{11}5s^{2}5p^{6}$. Das paramagnetische Verhalten der Legierung resultiert dabei aus den Elektronen in der nur teilweise gefüllten 4f-Schale, die permanente magnetische Momente tragen.

Da der Radius der 4*f*-Schale nur 0,3 Å beträgt [Fra76], liegt diese tief innerhalb der äußeren 5*s*- und 5*p*-Schalen und wird daher bei Temperaturen über etwa 100 K [Wil69] gut vom Einfluss des Kristallfelds abgeschirmt. In diesem Fall lassen sich anhand der Hundschen Regeln der Gesamtspin S = 3/2, der Gesamtbahndrehimpuls L = 6 und der Gesamtdrehimpuls J = L + S = 15/2 der Erbiumionen berechnen. Aus diesen ergeben sich der Landé-Faktor

$$g_{\rm J} = 1 + \frac{S(S+1) + J(J+1) - L(L+1)}{2J(J+1)} = \frac{6}{5}$$
(3.4)

und das magnetische Moment

$$\mu = \mu_{\rm B} g_{\rm J} J \tag{3.5}$$

der Erbiumionen [Abr70], wobei $\mu_{\rm B} = 9.27 \cdot 10^{-24} \, \text{J/T}$ das Bohrsche Magneton ist.

Bei Temperaturen unterhalb von etwa 100 K allerdings können die Kristallfeldeffekte nicht mehr vernachlässigt werden. Das Kristallfeld führt dann zu einer Aufspaltung des 16-fach entarteten Er^{3+} -Grundzustands in eine Serie von Multipletts. Die Energieaufspaltung zwischen dem Grundzustands-Dublett und dem ersten angeregten Multiplett wurde in [Hah92] anhand von Neutronen-Streu-Experimenten zu etwa 17 Kk_B im Fall von <u>Au</u>:Er und etwa 25 Kk_B im Fall von <u>Ag</u>:Er bestimmt. Bei den geringen Betriebstemperaturen metallischer magnetischer Kalorimeter von unter 100 mK können somit alle höher gelegenen Multipletts vernachlässigt werden. Bei ausreichend tiefen Temperaturen und kleinen Magnetfeldern kann das Verhalten von Erbium in Gold bzw. Silber folglich als Zwei-Niveau-System mit effektivem Spin $\tilde{S} = 1/2$ und isotropem Landé-Faktor $\tilde{g}_{\underline{Au}:Er} = 6,80$ [Abr70] bzw. $\tilde{g}_{\underline{Ag}:Er} = 6,84$ [Tao71] beschrieben werden.

3.2.2 Wärmekapazität und Magnetisierung

In Unterkapitel 3.1 wurde bereits gezeigt, dass sich die Signalhöhe eines metallischen magnetischen Kalorimeters proportional zur Temperaturabhängigkeit der Sensormagnetisierung und invers proportional zur Gesamtwärmekapazität des Detektors verhält. Wärmekapazität und Magnetisierung des Sensors sind daher entscheidende Parameter, wenn eine möglichst hohe Sensitivität erreicht werden soll. In diesem Abschnitt werden daher die Temperaturverläufe der beiden Größen zunächst anhand eines vereinfachten Modells diskutiert, welches die Wechselwirkungen zwischen den magnetischen Momenten des Sensormaterials vernachlässigt. Anschließend wird der Einfluss dieser Wechselwirkungen auf die Wärmekapazität und die Magnetisierung besprochen, ebenso wie die Auswirkungen der Anwesenheit kernspinbehafteter Isotope wie ¹⁶⁷Er und ¹⁹⁷Au im Sensormaterial.

Modell nicht-wechselwirkender magnetischer Momente

Vernachlässigt man die Wechselwirkungen zwischen den magnetischen Momenten sowie das Vorhandensein von Kernspins im Sensormaterial, so ergibt sich für ein System von N magnetischen Momenten mit effektivem Spin $\tilde{S} = 1/2$ die Wärmekapazität

$$C_{\rm z} = Nk_{\rm B} \left(\frac{\delta E}{k_{\rm B}T}\right)^2 \frac{\mathrm{e}^{\delta E/k_{\rm B}T}}{(\mathrm{e}^{\delta E/k_{\rm B}T}+1)^2}.$$
(3.6)

Hierbei sind $\delta E = \tilde{g}\mu_{\rm B}B$ die Energieaufspaltung in einem äußeren Magnetfeld² B und $k_{\rm B} = 1,38 \cdot 10^{-23} \,{\rm J/K}$ die Boltzmann-Konstante. Dieser Ausdruck für die Wärmekapazität beschreibt den Verlauf einer Schottky-Anomalie mit einem Maximum von $C_{\rm z} = 0,44 \, Nk_{\rm B}$, das bei einer Temperatur von $T = 0,42 \, \delta E/k_{\rm B}$ erreicht wird. Der entsprechende Ausdruck

$$M = \widetilde{S} \frac{N}{V_{\rm s}} \widetilde{g} \mu_{\rm B} \mathcal{B}_{\widetilde{S}} \left(\frac{\widetilde{S} \delta E}{k_{\rm B} T} \right) = \frac{N}{2V_{\rm s}} \widetilde{g} \mu_{\rm B} \tanh\left(\frac{\delta E}{2k_{\rm B} T}\right)$$
(3.7)

für die Magnetisierung in einem Sensor mit Volumen $V_{\rm s}$ beschreibt eine Brillouin-Funktion $\mathcal{B}_{\widetilde{S}}(x)$, für die $\mathcal{B}_{1/2}(x) = \tanh(x)$ bei effektivem Spin $\widetilde{S} = 1/2$ gilt. Für hohe

²Im Folgenden wird an vielen Stellen nicht zwischen magnetischer Flussdichte B und magnetischer Feldstärke H unterschieden. Eine Unterscheidung zwischen den beiden Größen wird nur an Stellen, an denen eine solche relevant ist, gemacht.

Temperaturen $T \gg \delta E/k_{\rm B}$ vereinfachen sich die Gleichungen 3.6 und 3.7 zu

$$C_{\rm z} \approx \frac{1}{4} N k_{\rm B} \left(\frac{\delta E}{k_{\rm B} T}\right)^2 \propto \left(\frac{B}{T}\right)^2$$
 (3.8)

und

$$M \approx \frac{N}{2V_{\rm s}} \tilde{g}\mu_{\rm B} \frac{\delta E}{2k_{\rm B}T} \propto \frac{B}{T}.$$
(3.9)

Während sich die Wärmekapazität bei hohen Temperaturen also proportional zum Quadrat der inversen Temperatur verhält, folgt die Magnetisierung einem Curie-Gesetz und steigt proportional zur inversen Temperatur an. Im Limes niedriger Temperaturen $T \ll \delta E/k_{\rm B}$ hingegen ergibt sich für die Wärmekapazität

$$C_{\rm z} \approx N k_{\rm B} \left(\frac{\delta E}{k_{\rm B}T}\right)^2 {\rm e}^{-\delta E/k_{\rm B}T} \propto \left(\frac{B}{T}\right)^2 {\rm e}^{-\tilde{g}\mu_{\rm B}B/k_{\rm B}T}$$
 (3.10)

ein exponentieller Anstieg mit steigender Temperatur, während die Magnetisierung sich einem Sättigungswert von

$$M \approx \frac{N}{2V_{\rm s}} \tilde{g}\mu_{\rm B} \tag{3.11}$$

annähert. Eine Sättigung der Magnetisierung entspricht dabei dem Fall, dass sämtliche magnetischen Momente im Sensor parallel zum äußeren Magnetfeld ausgerichtet sind und somit keine weitere Erhöhung der Magnetisierung möglich ist.

Abbildung 3.3 zeigt die nach den Gleichungen 3.6 und 3.7 berechneten Temperaturverläufe der spezifischen Wärme sowie der Magnetisierung einer Au:Er-Probe mit einer Erbium-Konzentration von 300 ppm in zwei verschiedenen externen Magnetfeldern $B = 2.6 \,\mathrm{mT}$ und $B = 10.6 \,\mathrm{mT}$. Der Beitrag der Spins zur spezifischen Wärme zeigt jeweils den erwarteten Verlauf einer Schottky-Anomalie, wobei eine Erhöhung des Magnetfelds eine Verschiebung des Maximums hin zu höheren Temperaturen sowie eine Verbreiterung des Maximums zur Folge hat. Zusätzlich zum Beitrag der Spins ist hier auch der Beitrag der Leitungselektronen zur spezifischen Wärme aufgetragen, der linear mit der Temperatur ansteigt. Die Magnetisierung ist in Abbildung 3.3 gegen die inverse Temperatur aufgetragen. Bei hohen Temperaturen folgt sie dem in Gleichung 3.9 beschriebenen Curie-Gesetz, welches als gestrichelte Linie dargestellt ist. Bei tiefer werdenden Temperaturen weicht die Magnetisierung zunehmend von diesem Verlauf ab und nähert sich dem Sättigungswert aus Gleichung 3.11 an. Eine Erhöhung des Magnetfelds führt hierbei zu einer Zunahme der Steigung der eingezeichneten Curie-Geraden, was zur Folge hat, dass der Sättigungswert bereits bei höheren Temperaturen erreicht wird.

Im hier betrachteten wechselwirkungsfreien Fall ergeben sich für eine Probe aus Ag:Er in erster Näherung die gleichen Temperaturverläufe von spezifischer Wärme



Abb. 3.3: Berechnete Temperaturverläufe der spezifischen Wärme (links) und Magnetisierung (rechts) einer <u>Au</u>:Er-Probe mit einer Erbium-Konzentration von 300 ppm. Bei der Berechnung wurden hierbei die Wechselwirkungen zwischen den magnetischen Momenten vernachlässigt. Für eine Probe aus <u>Ag</u>:Er würden sich daher nahezu identische Temperaturverläufe ergeben.

und Magnetisierung wie für <u>Au</u>:Er, da die entsprechenden isotropen Landé-Faktoren sich um nur etwa 0,6% unterscheiden. Signifikante Unterschiede zwischen den beiden Legierungen ergeben sich erst bei Berücksichtigung der im nächsten Unterabschnitt diskutierten Wechselwirkungen zwischen den magnetischen Momenten.

Modell wechselwirkender magnetischer Momente

Die Temperaturverläufe der Wärmekapazität und Magnetisierung eines Sensors aus <u>Au</u>:Er bzw. <u>Ag</u>:Er wurden im vorigen Unterabschnitt anhand eines vereinfachten Modells beschrieben, welches von nicht-wechselwirkenden magnetischen Momenten im Sensormaterial ausgeht. In der Realität treten in diesen Materialien allerdings die magnetische Dipol-Dipol-Wechselwirkung sowie eine indirekte Austausch-Wechselwirkung namens RKKY-Wechselwirkung zwischen den magnetischen Momenten auf, die berücksichtigt werden müssen, um eine präzisere Beschreibung von Wärmekapazität und Magnetisierung zu ermöglichen.

Dipol-Dipol-Wechselwirkung: Die magnetische Dipol-Dipol-Wechselwirkung zwischen zwei paramagnetischen Ionen *i* und *j* mit effektiven Spins $\tilde{\mathbf{S}}_i$ und $\tilde{\mathbf{S}}_j$ an den Orten \mathbf{r}_i und \mathbf{r}_j lässt sich durch den Hamiltonoperator

$$H_{ij}^{\text{Dipol}} = \Gamma^{\text{Dipol}} \frac{\tilde{\mathbf{S}}_i \cdot \tilde{\mathbf{S}}_j}{(2k_{\text{F}}r_{ij})^3} \left(1 - 3 \frac{(\tilde{\mathbf{S}}_i \cdot \hat{\mathbf{r}}_{ij})(\tilde{\mathbf{S}}_j \cdot \hat{\mathbf{r}}_{ij})}{(\tilde{\mathbf{S}}_i \cdot \tilde{\mathbf{S}}_j)} \right)$$
(3.12)

mit dem Vorfaktor³

$$\Gamma^{\rm Dipol} = \frac{\mu_0}{4\pi} (\tilde{g}\mu_{\rm B})^2 (2k_{\rm F})^3 \tag{3.13}$$

beschreiben. Hierbei ist $\mu_0 = 4 \pi \cdot 10^{-7} \text{ Vs/Am}$ die magnetische Feldkonstante und $\hat{\mathbf{r}}_{ij}$ der Einheitsvektor von Ion *i* in Richtung Ion *j*. Der Abstand zwischen den beiden Ionen ist durch den Betrag r_{ij} des Einheitsvektors gegeben. Die Dipol-Dipol-Wechselwirkung ist demnach anisotrop und ihre Stärke nimmt mit zunehmendem Abstand proportional zu $(1/r_{ij})^3$ ab. Sowohl in Gold als auch in Silber hat der Fermi-Wellenvektor der Leitungselektronen einen Betrag von $k_{\rm F} = 1, 2 \cdot 10^{10} / \text{m}$ [Kit05], womit sich in den beiden Legierungen <u>Au</u>:Er und <u>Ag</u>:Er ein Vorfaktor von $\Gamma_{\rm Au:Er}^{\rm Dipol} = 0,0343 \text{ eV}$ bzw. $\Gamma_{\rm Ag:Er}^{\rm Dipol} = 0,0347 \text{ eV}$ ergibt.

RKKY⁴-Wechselwirkung: Die indirekte RKKY-Wechselwirkung [Rud54, Kas56, Yos57] zwischen zwei Erbiumionen im Sensormaterial wird durch die Austausch-Wechselwirkung zwischen den 4f-Elektronen der Erbiumionen und den Leitungselektronen des Wirtsmaterials hervorgerufen. Der entsprechende Hamiltonoperator ist

$$H_{ij}^{\text{RKKY}} = \Gamma^{\text{RKKY}} \frac{\tilde{\mathbf{S}}_i \cdot \tilde{\mathbf{S}}_j}{(2k_{\text{F}}r_{ij})^3} \left(\cos(2k_{\text{F}}r_{ij}) - \frac{\sin(2k_{\text{F}}r_{ij})}{2k_{\text{F}}r_{ij}} \right)$$
(3.14)

mit dem Vorfaktor

$$\Gamma^{\rm RKKY} = \mathcal{J}^2 \left(\frac{\tilde{g}(g_{\rm J}-1)}{g_{\rm J}}\right)^2 \frac{4V_{\rm p}^2 m_{\rm e}^* k_{\rm F}^4}{\hbar^2 (2\pi)^3},\tag{3.15}$$

dem Volumen $V_{\rm p}$ der primitiven Elementarzelle, der effektiven Masse $m_{\rm e}^*$ der freien Elektronen des Wirtsmaterials und dem reduzierten Planckschen Wirkungsquantum $\hbar = 1,05 \cdot 10^{-34}$ Js. Die Austauschenergie \mathcal{J} stellt hierbei ein Maß für die Stärke der Austauschwechselwirkung zwischen Leitungsband und lokalisierten Elektronen dar. Anhand von ESR-Messungen wurde für die Austauschenergie in <u>Au</u>:Er ein Wert von $\mathcal{J}_{\underline{Au}:Er} = (0,10 \pm 0,02)$ eV und in <u>Ag</u>:Er ein Wert von $\mathcal{J}_{\underline{Ag}:Er} = (0,16 \pm 0,03)$ eV ermittelt [Tao71]. Im Gegensatz zur Dipol-Dipol-Wechselwirkung weist die RKKY-Wechselwirkung ein isotropes, räumlich oszillierendes Verhalten auf. Die Stärke der RKKY-Wechselwirkung zwischen zwei Erbiumionen nimmt allerdings zusätzlich, ebenso wie die der Dipol-Dipol-Wechselwirkung, mit größer werdendem Abstand zwischen

³Der Fermi-Wellenvektor $k_{\rm F}$ wurde hier eingeführt, um eine analoge Darstellung zu der im Folgenden diskutierten RKKY-Wechselwirkung zu ermöglichen.

 $^{^4\}text{Benannt}$ nach ihren theoretischen Beschreibern M. A. Ruderman, C. Kittel, T. Kasuya und K. Yosida

den Ionen gemäß $(1/r_{ij})^3$ ab. Da beide Wechselwirkungen die gleiche Abstandsabhängigkeit aufweisen, lassen sich ihre Stärken mithilfe des Wechselwirkungsparameters

$$\alpha := \frac{\Gamma^{\text{RKKY}}}{\Gamma^{\text{Dipol}}} \tag{3.16}$$

vergleichen. Anhand der gemessenen Austauschenergien in <u>Au</u>:Er und <u>Ag</u>:Er ergeben sich für diese beiden Legierungen Wechselwirkungsparameter von $\alpha_{\underline{Au}:Er} \approx 3,8$ und $\alpha_{\underline{Ag}:Er} \approx 9,7$. Die Verwendung von <u>Ag</u>:Er als Sensormaterial bringt folglich den Nachteil einer etwa doppelt bis dreimal so starken RKKY-Wechselwirkung im Vergleich zu <u>Au</u>:Er mit sich.



Abb. 3.4: Gemessene Temperaturverläufe der spezifischen Wärme (links) und Magnetisierung (rechts) einer <u>Au</u>:Er-Probe mit einer Erbium-Konzentration von 300 ppm in verschiedenen externen Magnetfeldern. Verwendet wurde hierbei mit ¹⁶⁶Er angereichertes Erbium. Die durchgezogenen Linien stellen die berechneten Temperaturverläufe dar, bei denen ein Wechselwirkungsparameter von $\alpha = 5$ angenommen wurde. [Fle03]

Abbildung 3.4 zeigt für unterschiedliche externe Magnetfeldstärken die gemessenen Temperaturverläufe der spezifischen Wärme sowie der Magnetisierung einer <u>Au</u>:Er-Probe, die 300 ppm Erbium enthält, welches zu 97,8 % mit ¹⁶⁶Er angereichert wurde [Fle03]. Vergleicht man die hier gezeigten Temperaturverläufe von spezifischer Wärme und Magnetisierung mit dem in Abbildung 3.3 gezeigten wechselwirkungsfreien Fall, so stellt man fest, dass die spezifische Wärme auch hier den Verlauf einer Schottky-Anomalie beschreibt, deren Maximum sich mit steigendem Magnetfeld zu höheren Temperaturen hin verschiebt. Die absolute Höhe dieses Maximums wird zwar durch die Wechselwirkungen zwischen den magnetischen Momenten verringert, da sich aber gleichzeitig die Breite des Maximums etwa verdoppelt, wird die spezifische Wärme bei den typischen Betriebstemperaturen metallischer magnetischer Kalorimeter zwischen etwa 20 mK und 50 mK dennoch erhöht. Auch die Magnetisierung zeigt für hohe Temperaturen das erwartete Curie-Verhalten, das bei niedrigen Temperaturen in Sättigung geht. Im Vergleich zum wechselwirkungsfreien Fall ist allerdings der Absolutwert und damit auch die Steigung des Temperaturverlaufs der Magnetisierung erniedrigt. Sowohl diese Verringerung der Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung als auch der zusätzliche Beitrag zur spezifischen Wärme haben eine Verringerung der Signalhöhe des Detektors zur Folge. Beide Effekte sind insbesondere bei geringen externen Magnetfeldstärken sehr ausgeprägt.

Den in Abbildung 3.4 gezeigten Messwerten sind die unter der Annahme eines Wechselwirkungsparameters von $\alpha = 5$ mit Hilfe der numerischen Diagonalisierung des Hamiltonoperators berechneten Temperaturverläufe in Form von durchgezogenen Linien überlagert. Die experimentellen Daten von spezifischer Wärme und Magnetisierung werden jeweils sehr gut von den numerisch berechneten Temperaturverläufen beschrieben. Hinsichtlich des ermittelten Wechselwirkungsparameters muss allerdings berücksichtigt werden, dass die untersuchte <u>Au</u>:Er-Probe einen Restanteil von etwa 2,8 % ¹⁶⁷Er enthielt. Aufgrund seines Hyperfeinstruktur-Beitrags verursacht dieses Isotop, wie im folgenden Unterabschnitt diskutiert wird, sowohl eine zusätzliche Verbreiterung des Maximums in der spezifischen Wärme als auch eine Verringerung der Magnetisierung. Des Weiteren variierte das angelegte Magnetfeld über die gesamte Probe um etwa 10 – 15 %, was ähnliche Auswirkungen zur Folge hat. Der ermittelte Wert von $\alpha = 5$ gibt daher nur eine Obergrenze für den Wechselwirkungsparameter in <u>Au</u>:Er an.

Sind, wie in diesem Fall, die thermodynamischen Eigenschaften einer verdünnten magnetischen Legierung mit einem bestimmten Wechselwirkungsparameter α bekannt, so lassen sich die entsprechenden Größen im Fall eines anderen Wechselwirkungsparameters α' durch Skalierung abschätzen [Dan05, Hen17]. Anhand der hier diskutierten numerischen Berechnungen für <u>Au</u>:Er können somit bei bekanntem Wechselwirkungsparameter die entsprechenden Werte für die spezifische Wärme

$$c_{\mathbf{z}}(B, T, x_{\mathrm{Er}}, \alpha') = \frac{\alpha}{\alpha'} c_{\mathbf{z}} \left(B, T, \frac{\alpha'}{\alpha} x_{\mathrm{Er}}, \alpha \right)$$
(3.17)

und die Magnetisierung

$$M(B, T, x_{\rm Er}, \alpha') = \frac{\alpha}{\alpha'} M\left(B, T, \frac{\alpha'}{\alpha} x_{\rm Er}, \alpha\right)$$
(3.18)

von <u>Ag</u>:Er bei einer Temperatur T, einer Erbium-Konzentration $x_{\rm Er}$ und einem externen Magnetfeld B abgeschätzt werden. Die besprochenen Auswirkungen der Wechselwirkungen zwischen den magnetischen Momenten werden dabei umso stärker je größer der Wechselwirkungsparameter des Sensormaterials ist.

Einfluss kernspinbehafteter Isotope im Sensormaterial

Neben den im vorigen Unterabschnitt diskutierten Wechselwirkungen zwischen den magnetischen Momenten hat auch die Anwesenheit kernspinbehafteter Isotope wie ¹⁶⁷Er oder ¹⁹⁷Au im Sensormaterial einen Einfluss auf die in diesem Abschnitt behandelten Temperaturverläufe von Wärmekapazität und Magnetisierung.

Kernspin von ¹⁶⁷Er: Das Seltenerdmetall Erbium enthält in seiner natürlichen Zusammensetzung etwa 22,9 % des Isotops ¹⁶⁷Er, welches als einziges stabiles Erbium-Isotop einen Kernspin besitzt, und zwar I = 7/2. In Au:Er bzw. Ag:Er führt dieser Kernspin zu einer Hyperfeinaufspaltung des Grundzustands-Dubletts, sodass in kleinen Magnetfeldern zwei Gruppen von Energieniveaus auftreten. Im Sensor deponierte Energie, die von einem ¹⁶⁷Er-Ion aufgenommen wird, führt dann zu einer Anregung, welche nicht nur innerhalb einer der beiden Gruppen sondern auch zwischen den beiden Gruppen stattfinden kann. Während Anregungen innerhalb eines Multipletts eine Magnetisierungsänderung zur Folge haben und somit zum Detektorsignal beitragen, ist dies für Anregungen zwischen den beiden Multipletts nicht unbedingt der Fall. Durch die Anwesenheit des kernspinbehafteten ¹⁶⁷Er im Sensormaterial wird somit die Magnetisierung reduziert. Des Weiteren erzeugen Anregungen zwischen den beiden Multipletts einen zusätzlichen Beitrag zur Wärmekapazität [Fle00]. Beide Effekte haben eine Verringerung der Detektorsignalhöhe zur Folge. Bei der Verwendung der Legierungen Au: Er und Ag: Er als Sensormaterialien ist es daher von Vorteil, den Anteil an ¹⁶⁷Er möglichst stark zu reduzieren, was sich beispielsweise durch Isotopenanreicherung von ¹⁶⁶Er oder ¹⁶⁸Er erreichen lässt. Im Rahmen dieser Arbeit wurde daher zur Herstellung der Temperatursensoren Au:Er bzw. Ag:Er verwendet, bei dem das Erbium in angereicherter Form vorlag. Der hierbei erzielte Restgehalt an ¹⁶⁷Er betrug jeweils nur etwa 1,2%, weshalb der beschriebene Einfluss von ¹⁶⁷Er für diese Sensoren vernachlässigt werden kann.

Kernquadrupolmoment von Gold: Die Kerne des einzigen stabilen Gold-Isotops ¹⁹⁷Au haben einen Spin I = 3/2, ein hier vernachlässigbares magnetisches Moment, aber ein großes elektrisches Quadrupolmoment von 0,55 barn [Pow74]. In reinem Gold sind die Energieniveaus der Hyperfeinstruktur bei den hier diskutierten kleinen Magnetfeldern aufgrund der kubischen Symmetrie des fcc-Gitters entartet, weshalb kein zusätzlicher Beitrag zur spezifischen Wärme durch den Kernspin entsteht. In <u>Au</u>:Er allerdings wird die Symmetrie des fcc-Gitters in der Umgebung der eingebrachten Er³⁺-Ionen gestört, da diese einerseits einen kleineren Radius und andererseits eine größere effektive Ladung als die Au⁺-Ionen haben. Die resultierende nicht-kubische Symmetrie des elektrischen Feldgradienten führt zu einer Aufspaltung der Energieniveaus, durch die die Entartung aufgehoben wird, was wiederum einen zusätzlichen Beitrag zur Wärmekapazität zur Folge hat [Her00]. Dieser Wärmekapazitätsbeitrag stellt ein zusätzliches thermodynamisches System dar, in das die Energie aus dem Spinsystem fließen kann, was sich wie in [Ens00] gezeigt auf das in Abschnitt 3.4.1 diskutierte Thermalisierungsverhalten des Detektors auswirkt. Zu dem gezeigten exponentiellen Signalabfall kommt bei Temperaturen unterhalb von etwa 50 mK ein zusätzlicher schneller Abfall hinzu, dessen Relaxationszeit temperaturunabhängig, aber abhängig vom externen Magnetfeld ist und in der Größenordnung von einigen hundert Mikrosekunden liegt. Dieser zusätzliche Relaxationsprozess lässt sich durch Wahl eines Wirtsmaterials mit kleinerem Kernspin $I \leq 1/2$, wie beispielsweise Silber, vermeiden. Die beiden stabilen Silber-Isotope ¹⁰⁷Ag und ¹⁰⁹Ag haben jeweils einen Kernspin I = 1/2 und daher kein Kernquadrupolmoment. Die Legierung <u>Ag</u>:Er ist somit trotz des im vorigen Unterabschnitt diskutierten größeren Wechselwirkungsparameters α und der damit verbundenen stärkeren RKKY-Wechselwirkung gut als alternatives Sensormaterial zu <u>Au</u>:Er geeignet.

3.2.3 Magnetisches Moment

Wie bereits in Unterkapitel 3.1 diskutiert, verhält sich die Signalhöhe eines metallischen magnetischen Kalorimeters proportional zur Änderung der Sensormagnetisierung. Zur Beschreibung der Detektorsignalhöhe ist allerdings nicht die Magnetisierungsänderung $\Delta M(\mathbf{r})$ in einem Volumenelement dV des Sensors an der Position \mathbf{r} entscheidend, sondern die Änderung $\Delta m = \int_{V_s} \Delta M(\mathbf{r}) dV$ des magnetischen Moments des gesamten Sensors. Berücksichtigt man nur den Beitrag C_z der Spins zur Wärmekapazität, so ergibt sich im Modell nicht-wechselwirkender magnetischer Momente infolge eines Energieeintrags ΔE in einen Sensor in einem äußeren Magnetfeld *B* die Änderung des magnetischen Moments

$$\Delta m = \frac{\Delta E}{B}.\tag{3.19}$$

Da allerdings auch die Elektronen mit der Wärmekapazität $C_{\rm e}$ zur Gesamtwärmekapazität beitragen, fließt nur der Anteil $C_{\rm z}/(C_{\rm z} + C_{\rm e})$ der deponierten Energie in das Spinsystem und kann so zum Detektorsignal beitragen. Die Änderung des magnetischen Moments aus Gleichung 3.19 verringert sich daher entsprechend zu

$$\Delta m = \frac{C_{\rm z}(B)}{C_{\rm z}(B) + C_{\rm e}} \frac{\Delta E}{B}.$$
(3.20)

Wie in Gleichung 3.6 ersichtlich, verhält sich der Beitrag der Spins zur Wärmekapazität bei kleinen externen Magnetfeldern $B \ll k_{\rm B}T/\tilde{g}\mu_{\rm B}$ proportional zum Quadrat des Magnetfelds. Im Limes sehr kleiner Magnetfelder gilt somit $C_z \ll C_e$, woraus sich bei steigendem Magnetfeld für die Änderung des magnetischen Moments

$$\Delta m \approx \frac{C_{\rm z}(B)}{C_{\rm e}} \frac{\Delta E}{B} \propto B \tag{3.21}$$

zunächst ein linearer Anstieg mit dem Magnetfeld ergibt. Nach dem Durchlaufen eines Maximums bei $C_z(B) = C_e$ sinkt diese dann wieder, bis bei höheren Magnetfeldern $C_z \gg C_e$ gilt. In diesem Fall fließt fast die gesamte eingebrachte Energie in das Spinsystem und die Änderung des magnetischen Moments lässt sich hinreichend gut durch Gleichung 3.19 beschreiben. Somit ergibt sich zunächst ein Abfall proportional zum inversen Magnetfeld

$$\Delta m \propto 1/B. \tag{3.22}$$

Bei noch höheren Magnetfeldern $B \gg k_{\rm B}T/\tilde{g}\mu_{\rm B}$ sinkt der Beitrag der Spins zur Wärmekapazität wieder gemäß Gleichung 3.6 exponentiell mit steigenden Magnetfeld. Im Limes sehr hoher Magnetfelder gilt somit wieder $C_z \ll C_{\rm e}$. Entsprechend ergibt sich dann auch für die Änderung des magnetischen Moments

$$\Delta m \approx \frac{C_{\rm z}(B)}{C_{\rm e}} \frac{\Delta E}{B} \propto B \,{\rm e}^{-\tilde{\rm g}\mu_{\rm B}B/k_{\rm B}T} \tag{3.23}$$

ein exponentieller Abfall mit steigendem Magnetfeld.

Abbildung 3.5 zeigt die berechnete Änderung des magnetischen Moments infolge eines Energieeintrags $\Delta E = 5,9 \text{ keV}$ in ein metallisches magnetisches Kalorimeter bestehend aus einem Absorber mit Wärmekapazität $C_{\rm a} = 1,1 \text{ pJ/K}$ und einem zylindrischen Sensor aus <u>Au</u>:Er mit Durchmesser $d_{\rm s} = 52 \,\mu\text{m}$, Höhe $h_{\rm s} = 6,5 \,\mu\text{m}$ und



Abb. 3.5: Magnetfeld-Abhängigkeit der Änderung des magnetischen Moments infolge eines Energieeintrags $\Delta E = 5,9 \text{ keV}$ in ein metallisches magnetisches Kalorimeter berechnet im Modell nicht-wechselwirkender magnetischer Momente (oben) sowie im Modell wechselwirkender magnetischer Momente (unten) unter Annahme eines Wechselwirkungsparameters von $\alpha = 5$. Für die Berechnungen wurden ein Sensor aus <u>Au</u>:Er mit einer Erbium-Konzentration von 900 ppm und einem Volumen von $1,4 \cdot 10^{-14} \text{ m}^3$, eine Absorberwärmekapazität von 1,1 pJ/K sowie eine Betriebstemperatur von 50 mK angenommen. [Fle05]

Erbium-Konzentration $x_{\rm Er} = 900$ ppm bei einer Betriebstemperatur von T = 50 mK in Abhängigkeit vom angelegten Magnetfeld *B* [Fle05]. Die obere Kurve wurde hierbei im Modell nicht-wechselwirkender magnetischer Momente berechnet und zeigt den erwarteten Verlauf mit linearem Anstieg bei kleinen Magnetfeldern, der nach dem Durchqueren eines Maximums in einen Abfall mit steigendem Magnetfeld übergeht. Zum Vergleich ist außerdem eine Kurve aufgetragen, für deren Berechnung zusätzlich die Dipol-Dipol-Wechselwirkung sowie die RKKY-Wechselwirkung unter der Annahme eines Wechselwirkungsparameters von $\alpha = 5$ berücksichtigt wurden. Die Wechselwirkungen zwischen den magnetischen Momenten im Sensormaterial führen nicht nur zu einer deutlichen Verringerung der absoluten Signalhöhe, die wie in Abschnitt 3.2.2 beschrieben wurde auf eine Vergrößerung der Wärmekapazität sowie eine Verringerung der Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung zurückzuführen ist, sondern zusätzlich zu einer Verschiebung des Maximums hin zu höheren Magnetfeldern.

3.3 Messung der Magnetisierungsänderung

Nachdem in den Unterkapiteln 3.1 und 3.2 diskutiert wurde, wie ein Energieeintrag in ein metallisches magnetisches Kalorimeter zu einer Änderung der Sensormagnetisierung führt, wird im Folgenden die Messung dieser Magnetisierungsänderung behandelt. Prinzipiell kann die Änderung der Sensormagnetisierung direkt von einem dc-SQUID ausgelesen werden, indem der Sensor in der SQUID-Spule platziert wird. Die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Detektoren nutzen hierzu allerdings, wie bereits in Unterkapitel 3.1 beschrieben, eine Kombination aus Detektionsspule und Stromsensor-SQUID, was, wie im Folgenden erläutert wird, viele Vorteile gegenüber einer direkten Auslesung bietet. In diesem Unterkapitel werden zunächst die Geometrie der verwendeten Detektionsspulen und anschließend die der gesamten Schaltung bestehend aus Detektionsspulen und Stromsensor-SQUID diskutiert. Anhand der gezeigten Geometrien werden zum einen die aus der Magnetisierungsänderung resultierende Flussänderung in der Detektionsspule und zum anderen die daraus resultierende Flussänderung im SQUID hergeleitet.

3.3.1 Mäanderförmige Detektionsspulen

Sämtliche im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Detektoren wurden im institutseigenen Reinraum durch Mikrostrukturierungsverfahren hergestellt. Sie bestehen aus mehreren planaren Schichten, die mittels Fotolithografie, wie in Unterkapitel 6.3 am Beispiel des Detektors MOCCA beschrieben, auf Substraten aus Silizium strukturiert wurden. Die Sensoren dieser Detektoren sind daher nicht, wie in Abbildung 3.1



Abb. 3.6: Schematische Abbildung der wichtigsten Bauteile eines metallischen magnetischen Kalorimeters mit planarer Geometrie.

gezeigt, zylindrisch und von der Detektionsspule umwickelt, sondern dünn und großflächig mit einer darunterliegenden planaren mäanderförmigen Detektionsspule aus langen hin- und zurücklaufenden parallelen Bahnen⁵. Eine derartige Geometrie ist in Abbildung 3.6 schematisch dargestellt. Sie hat den Vorteil, dass der Abstand der magnetischen Momente im Sensor zur Detektionsspule im Durchschnitt kleiner ist, als bei der Geometrie mit zylindrischem Sensor, was eine stärkere mittlere Kopplung zwischen magnetischen Momenten und Detektionsspule zur Folge hat. Insbesondere durch die Herstellung sehr dünner Sensoren mit sehr kleinem Abstand zur Detektionsspule lässt sich somit auch für großflächige Sensoren ein hohes Signal erzielen. Die Induktivität L_m einer solchen mäanderförmigen Detektionsspule, die eine Fläche A bedeckt, ist dabei unter Vernachlässigung von Randeffekten gegeben durch

$$L_{\rm m} = l\mu_0 \frac{A}{p},\tag{3.24}$$

wobei die Konstante l(w/p) vom Verhältnis der Bahnbreite w zum Mitte-zu-Mitte-Abstand p der Mäanderbahnen abhängt und zum Beispiel $l \approx 0.2$ für $w = 5 \,\mu\text{m}$ und $p = 9 \,\mu\text{m}$ beträgt.

Erzeugung des Magnetfelds

Die mäanderförmigen Detektionsspulen der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Detektoren sind aus Niob gefertigt, welches bei den niedrigen Betriebstemperaturen magnetischer Kalorimeter supraleitend ist. Bildet die Detektionsspule zusammen mit der Einkoppelspule des zur Auslesung der Flussänderung verwendeten Stromsensor-SQUIDs eine geschlossene supraleitende Schleife, so kann, wie in Unterkapitel 4.2 beschrieben, ein Dauerstrom in dieser Schleife eingeprägt werden. Das zur Ausrichtung der magnetischen Momente im Sensor benötigte Magnetfeld kann somit von

⁵Die parallelen Leiterbahnen der mäanderförmigen Detektionsspule werden im Folgenden als Mäanderbahnen bezeichnet.

dem Strom durch die Detektionsspule selbst erzeugt werden. Dies hat die Vorteile, dass keine externe Spule zur Erzeugung des Magnetfelds erforderlich ist und dass auch Sensormaterial außerhalb der Detektionsspule zum Signal beitragen kann, wodurch sich ein großer Füllfaktor erzielen lässt. Im Gegensatz zu dem Magnetfeld, das eine zylindrische Spule erzeugt ist das von der mäanderförmigen Detektionsspule erzeugte Magnetfeld innerhalb des Sensorvolumens stark inhomogen, was sowohl die absolute magnetische Feldstärke als auch die Richtung der magnetischen Feldlinien betrifft. Vor allem für Arrays von Detektoren ist diese Inhomogenität des Magnetfeldes von Vorteil, da sie das magnetische Übersprechen zwischen benachbarten Pixeln stark reduziert. Die durchschnittliche Magnetfeldstärke in einer Ebene parallel zur Spulenebene nimmt dabei exponentiell mit steigendem Abstand zur Detektionsspule ab [Fle05], weshalb der Abstand des Sensors zur Detektionsspule möglichst gering sein sollte. Durch Verwendung dünner Isolationsschichten zwischen Sensor und Detektionsspule lassen sich dabei sehr kleine Abstände in der Größenordnung der Mäanderbahnhöhe⁶ erzielen.

Flussänderung in der Detektionsspule

Wie in Unterkapitel 3.1 diskutiert, führt ein Energieeintrag in ein metallisches magnetisches Kalorimeter zu einer Änderung der Sensormagnetisierung, die wiederum in einer Flussänderung in der Detektionsspule resultiert. Für den hier betrachteten Fall einer mäanderförmigen Detektionsspule soll nun ein Ausdruck für diese Flussänderung gefunden werden. Betrachtet man zunächst nur ein infinitesimales Volumenelement dV des Sensors an der Position \mathbf{r} , so führt eine Magnetisierungsänderung $\Delta M(\mathbf{r})$ in diesem Volumenelement zu einer Flussänderung

$$d(\Delta \Phi) = \mu_0 \frac{G(\mathbf{r}/p)}{p} \Delta M(\mathbf{r}) dV$$
(3.25)

in der Detektionsspule. Hierbei sind $\mu_0 = 4 \pi \cdot 10^{-7} \text{ Vs/Am}$ die magnetische Feldkonstante und $G(\mathbf{r}/p)$ ein dimensionsloser, ortsabhängiger Geometriefaktor, der im Fall einer mäanderförmigen Detektionsspule nicht von den genauen Abmessungen der Spule abhängt, sondern nur vom Verhältnis w/p von Breite zu Abstand der Mäanderbahnen. Integriert man nun über das gesamte Sensorvolumen $V_{\rm s}$, so erhält man unter Verwendung von Gleichung 3.2 die durch einen Energieeintrag ΔE in der Detektionsspule hervorgerufe Flussänderung

$$\Delta \Phi = \frac{\Delta E}{C_{\rm a} + C_{\rm s}} \int_{V_{\rm s}} \mu_0 \frac{G(\mathbf{r}/p)}{p} \frac{\partial M(B(\mathbf{r},T))}{\partial T} \mathrm{d}V, \qquad (3.26)$$

 $^{{}^{6}}$ Für eine 250 nm hohe Detektionsspule beispielsweise ist eine insgesamt etwa 400 nm dicke Isolationsschicht aus Niob(V)-oxid (Nb₂O₅) und Siliziumoxid (SiO_x) ausreichend.

wobei $C_{\rm a}$ und $C_{\rm s}$ die Wärmekapazitäten von Absorber und Sensor sind. Das von einem durch die Detektionsspule fließenden Dauerstrom I_0 erzeugte Magnetfeld

$$B(\mathbf{r}) = \mu_0 \frac{G(\mathbf{r}/p)}{p} I_0 \tag{3.27}$$

an der Position \mathbf{r} verhält sich hierbei proportional zum Geometriefaktor [Bur04]. Da sich folglich in Gleichung 3.26 alle Abhängigkeiten von der Position \mathbf{r} im Sensor auch durch Abhängigkeiten von dem an diesem Ort herrschenden Magnetfeld beschreiben lassen, kann anstelle der Integration über das Sensorvolumen eine Integration über die Magnetfelder im Sensor vorgenommen werden. Mithilfe der Häufigkeitsverteilung P(B) der auftretenden Magnetfelder kann der gewichtete Mittelwert einer magnetfeldabhängigen Größe x(B) definiert werden als

$$\langle x \rangle = \int P(B)x(B)\mathrm{d}B.$$
 (3.28)

Für die Flussänderung in der mä
anderförmigen Detektionsspule infolge eines Energie
eintrags ΔE folgt somit

$$\Delta \Phi = \frac{V_{\rm s}}{C_{\rm a} + C_{\rm s}} \left\langle \mu_0 \frac{G}{p} \frac{\partial M}{\partial T} \right\rangle \Delta E.$$
(3.29)

3.3.2 Auslesung der Flussänderung in der Detektionsspule

Die im vorigen Abschnitt diskutierte Flussänderung in der mäanderförmigen Detektionsspule kann, wie in Unterkapitel 3.1 erwähnt, direkt von einem Stromsensor-SQUID ausgelesen werden, wobei die Einkoppelspule des SQUIDs und die Detektionsspule zusammen einen Flusstransformator bilden. Bei gradiometrischer Verschaltung von zwei Detektionsspulen ist eine gleichzeitige Auslesung zweier Sensoren mit nur einem SQUID möglich, wodurch sich zwar das intrinsische Rauschen beider Sensoren inkohärent in einem Kanal addiert, was aber, wie im Folgenden erläutert, eine sehr effektive Unterdrückung externer Störungen durch Temperaturund Magnetfeldschwankungen ermöglicht. Darüber hinaus lässt sich auf diese Weise die Anzahl der benötigten SQUIDs und somit auch die Anzahl der zur Auslesung benötigten Leitungen halbieren. Die beiden Detektionsspulen werden dabei wie in Abbildung 3.7 gezeigt mit der Einkoppelspule des Stromsensor-SQUIDs parallel geschaltet. Energieeinträge in den linken und den rechten Sensor resultieren dann im SQUID in Flussänderungen mit entgegengesetzten Vorzeichen, was eine Unterscheidung der beiden Sensoren ermöglicht. Eine Änderung der Substrat-Temperatur führt daher, genau wie eine globale Magnetfeldänderung, in beiden Detektionsspulen zu Flussänderungen, die sich gerade aufheben, was den Detektor unempfindlicher gegenüber solchen externen Störungen macht. Zur zusätzlichen Abschirmung vor externen


Abb. 3.7: Schematische Zeichnung einer Flusstransformator-Schaltung mit zwei gradiometrisch verschalteten mäanderförmigen Detektionsspulen zur gleichzeitigen Auslesung von zwei Sensoren mit einem SQUID.

Magnetfeldern können die Detektionsspulen darüber hinaus, wie in Abbildung 3.7 gezeigt, jeweils von einer supraleitenden Schleife umschlossen werden.

Die Verwendung einer Flusstransformator-Schaltung hat zudem den Vorteil, dass kein gemeinsames Substrat für Detektor und SQUID mehr erforderlich ist. Stattdessen kann, wie in Abbildung 3.7 gezeigt, eine räumliche und thermische Trennung zwischen Detektor und SQUID durch die Verwendung separater Substrate erzielt werden. Zur elektrischen Kontaktierung wird die Detektionsspule dann durch dünne supraleitende Drähte mit der Einkoppelspule des SQUIDs verbunden. Da die Leistungsdissipation eines SQUIDs in der Größenordnung 10 pW – 1 nW liegt [Fle05], ist es vor allem bei Arrays von Detektoren, für deren Auslesung viele SQUIDs benötigt werden, von Vorteil, die vom SQUID dissipierte Wärme durch die Verwendung separater Substrate vom Detektor fern zu halten.

Ein weiterer Vorteil der gezeigten Schaltung mit zwei parallelen Detektionsspulen ist, dass diese zusammen eine geschlossene supraleitende Schleife bilden, durch die der in Abschnitt 3.3.1 diskutierte magnetfelderzeugende Dauerstrom I_0 fließt. Somit muss dieser relativ große Strom im Bereich mehrerer dutzend mA nicht durch die Einkoppelspule des SQUIDs fließen, sondern nur die durch eine Energiedeposition ΔE verursachte kleine Stromänderung ΔI , die typischerweise in der Größenordnung weniger μ A liegt und die im folgenden Unterabschnitt diskutiert wird.

Flussänderung im SQUID

Wird die Sensormagnetisierung eines metallischen magnetischen Kalorimeters, wie im vorigen Unterabschnitt beschrieben, mit Hilfe einer Flusstransformator-Schaltung von einem Stromsensor-SQUID ausgelesen, so verursacht die aus einer Magnetisierungsänderung ΔM resultierende Flussänderung $\Delta \Phi$ in der Detektionsspule zunächst eine Stromänderung ΔI in der Einkoppelspule des SQUIDs. Diese Stromänderung hängt dabei stark von der Geometrie der Flusstransformator-Schaltung aus Einkoppelspule und Detektionsspule ab. Die Abbildungen 3.8a) bis c) zeigen verschiedene



Abb. 3.8: Schaltbilder verschiedener Flusstransformator-Schaltungen zur Auslesung der Magnetisierung des Temperatursensors (orange) von einem Stromsensor-SQUID mit SQUID-Induktivität $L_{\rm S}$ und Einkoppelspulen-Induktivität $L_{\rm i}$. Die SQUID-Einkoppelspule ist hierbei verbunden mit a) einer Detektionsspule mit Induktivität $L_{\rm m}$, b) zwei parallel geschalteten Detektionsspulen mit Induktivitäten $L_{\rm m1}$ und $L_{\rm m2}$ zur gleichzeitigen Auslesung von zwei Sensoren mit einem SQUID, c) zwei parallel geschalteten Detektionsspulen mit zusätzlichen parasitären Induktivitäten $L_{\rm p1}$, $L_{\rm p2}$ und $L_{\rm w}$.

mögliche Geometrien dieser Transformatorschaltung. Für den einfachsten, in Abbildung 3.8a) gezeigten Fall mit nur einer Detektionsspule mit Induktivität $L_{\rm m}$, die mit einer Einkoppelspule mit Induktivität $L_{\rm i}$ verbunden ist, ergibt sich aufgrund der Erhaltung des magnetischen Flusses in geschlossenen supraleitenden Schleifen eine Stromänderung

$$\Delta I = \frac{\Delta \Phi}{L_{\rm m} + L_{\rm i}} \tag{3.30}$$

in der Einkoppelspule.

Abbildung 3.8b) zeigt das Schaltbild der im vorigen Unterabschnitt diskutierten Geometrie aus Abbildung 3.7 mit zwei parallel geschalteten Detektionsspulen mit den Induktivitäten L_{m1} und L_{m2} . Ein Energieeintrag in den linken Sensor führt hier gemäß Gleichung 3.29 zu einer Flussänderung $\Delta \Phi_1$ in der linken Detektionsspule. Unter zusätzlicher Berücksichtigung der Kirchhoffschen Knotenregel ergibt sich für die daraus resultierende Stromänderung in der Einkoppelspule des SQUIDs

$$\Delta I_{1} = \frac{\Delta \Phi_{1}}{L_{m1} + L_{i} \left(1 + \frac{L_{m1}}{L_{m2}}\right)}.$$
(3.31)

Entsprechend verursacht eine Flussänderung $\Delta \Phi_2$ in der rechten Detektionsspule eine Stromänderung

$$\Delta I_2 = \frac{-\Delta \Phi_2}{L_{\rm m2} + L_{\rm i} \left(1 + \frac{L_{\rm m2}}{L_{\rm m1}}\right)} \tag{3.32}$$

mit entgegengesetztem Vorzeichen in der Einkoppelspule. In dem hier betrachteten Fall wurden nur die Induktivitäten von Einkoppelspule und Detektionsspulen berücksichtigt. Aufgrund der elektrischen Verbindungsleitungen zwischen diesen können allerdings nicht zu vernachlässigende parasitäre Induktivitäten auftreten. Des Weiteren kann die gezeigte Geometrie durch das Hinzufügen weiterer Induktivitäten modifiziert werden, zum Beispiel durch zusätzliche Detektionsspulen wie bei der in Abschnitt 6.1.1 beschriebenen Auslesungsgeometrie des Detektors MOCCA. Um eine allgemein gültige Formel für die Stromänderung in der SQUID-Einkoppelspule im Fall einer Flusstransformator-Schaltung mit zwei parallel geschalteten Detektionsspulen zu erhalten, müssen daher all diese Zusatzinduktivitäten ebenfalls berücksichtigt werden. Vereinfachend können dabei in jeder geschlossenen Schleife des in Abbildung 3.8b) gezeigten Schaltbilds sämtliche parasitären Induktivitäten zusammengefasst werden. Abbildung 3.8c) zeigt das resultierende Schaltbild mit den parasitären Induktivitäten L_{p1} , L_{p2} und L_{w} , die jeweils mit den Induktivitäten L_{m1} , L_{m2} und L_i der beiden Detektionsspulen und der Einkoppelspule in Serie geschaltet sind. Bei Berücksichtigung dieser parasitären Induktivitäten modifizieren sich Gleichungen 3.31 und 3.32 zu

$$\Delta I_1 = \frac{\Delta \Phi_1}{L_{m1} + L_{p1} + (L_i + L_w) \left(1 + \frac{L_{m1} + L_{p1}}{L_{m2} + L_{p2}}\right)}$$
(3.33)

und

$$\Delta I_2 = \frac{-\Delta \Phi_2}{L_{\rm m2} + L_{\rm p2} + (L_{\rm i} + L_{\rm w}) \left(1 + \frac{L_{\rm m2} + L_{\rm p2}}{L_{\rm m1} + L_{\rm p1}}\right)}.$$
(3.34)

Die gesamte Stromänderung $\Delta I = \Delta I_1 + \Delta I_2$ in der Einkoppelspule wiederum resultiert im SQUID in einer Flussänderung

$$\Delta \Phi_{\rm S} = M_{\rm iS} \Delta I, \qquad (3.35)$$

wobei die Gegeninduktivität

$$M_{\rm iS} = k \sqrt{L_{\rm i} L_{\rm S}} \tag{3.36}$$

zwischen Einkoppelspule und SQUID durch die dimensionslose Kopplungskonstante k sowie die Induktivitäten L_S des SQUIDs und L_i der Einkoppelspule gegeben ist. Somit ergibt sich für die Flussänderung im SQUID

$$\Delta \Phi_{\rm S} = k \sqrt{L_{\rm i} L_{\rm S}} \left(\frac{\Delta \Phi_{\rm 1}}{L_{\rm m1} + L_{\rm p1} + (L_{\rm i} + L_{\rm w}) \left(1 + \frac{L_{\rm m1} + L_{\rm p1}}{L_{\rm m2} + L_{\rm p2}}\right)} - \frac{\Delta \Phi_{\rm 2}}{L_{\rm m2} + L_{\rm p2} + (L_{\rm i} + L_{\rm w}) \left(1 + \frac{L_{\rm m2} + L_{\rm p2}}{L_{\rm m1} + L_{\rm p1}}\right)} \right).$$
(3.37)

Für den Idealfall einer gradiometrischen Schaltung, bei der beide Detektionsspulen die gleiche Induktivität $L_{m1} = L_{m2} =: L_m$ haben, und bei der auch die in Reihe zu diesen geschalteten parasitären Induktivitäten $L_{p1} = L_{p2} =: L_p$ gleich groß sind, vereinfacht sich dieser Ausdruck zu

$$\Delta \Phi_{\rm S} = \frac{k\sqrt{L_{\rm i}L_{\rm S}}}{L_{\rm m} + L_{\rm p} + 2(L_{\rm i} + L_{\rm w})} (\Delta \Phi_1 - \Delta \Phi_2).$$
(3.38)

Wie im vorigen Unterabschnitt erläutert, verursachen somit gleich große Flussänderungen $\Delta \Phi_1 = \Delta \Phi_2$, die in beiden Detektionsspulen zeitgleich auftreten und zum Beispiel durch externe Temperatur- und Magnetfeldschwankungen verursacht werden können, keine Flussänderung im SQUID und somit kein Detektorsignal. Um eine maximale Fluss-zu-Fluss-Kopplung $\Delta \Phi_S / \Delta \Phi$ zwischen dem SQUID und den Detektionsspulen zu erhalten, sollte in diesem Fall ein SQUID mit einer Einkoppelspulen-Induktivität von etwa $L_i \approx (L_m + L_p)/2 + L_w$ verwendet werden.

3.4 Rauschen und Energieauflösung

In den Unterkapiteln 3.1, 3.2 und 3.3 wurde gezeigt, dass die Signalhöhe eines metallischen magnetischen Kalorimeters von verschiedenen Parametern abhängt. Zu diesen gehören die Ausmaße von Sensor und Absorber und die spezifischen Wärmen der verwendeten Materialien, die Konzentration der magnetischen Ionen im Sensormaterial und die Wechselwirkungen zwischen diesen, die Betriebstemperatur und das Magnetfeld, in dem sich der Sensor befindet sowie die Geometrie der Detektionsspulen. Neben der Signalhöhe ist auch das Rauschen des Detektors maßgeblich für die Energieauflösung. Das fundamentale Limit der Energieauflösung ist gegeben durch den zeitlichen Verlauf des Detektorsignals und die thermodynamischen Fluktuationen der Energie zwischen den verschiedenen Subsystemen des Detektors. In diesem Unterkapitel werden daher zunächst der Signalverlauf und dann die thermischen Energiefluktuationen diskutiert. Anhand dieser wird anschließend das fundamentale Limit der Energieauflösung bestimmt. Zuletzt werden die weiteren intrinsischen Rauschbeiträge zusammengefasst, die eine Verschlechterung der Energieauflösung eines metallischen magnetischen Kalorimeters zur Folge haben können. Zusätzlich zu diesen intrinsischen Rauschbeiträgen können auch externe Rauschquellen und Störsignale wie beispielsweise elektromagnetische Störungen, Temperatur- und Magnetfeldschwankungen sowie magnetisches oder thermisches Übersprechen zwischen benachbarten Pixeln eines Arrays von Detektoren eine Verschlechterung der Energieauflösung zur Folge haben. Da diese Beiträge zum Rauschen durch einen angemessenen experimentellen Aufbau, zum Beispiel durch die Verwendung geeigneter Abschirmungen, signifikant reduziert werden können, soll im Folgenden angenommen werden, dass ihr Einfluss auf die Energieauflösung vernachlässigbar gering ist.

3.4.1 Signalverlauf

Der zeitliche Verlauf des Detektorsignals, das einem Energieeintrag in ein magnetisches Kalorimeter folgt, ergibt sich anhand des Energieflusses zwischen den einzelnen Subsystemen des Detektors. Dem Signalanstieg liegen hierbei mehrere Thermalisierungsvorgänge zugrunde. Zunächst findet eine Thermalisierung innerhalb des Absorbervolumens statt, die in Unterkapitel 5.1 beschrieben wird und die typischerweise durch Wärmediffusion innerhalb des Absorbers begrenzt ist. Daraufhin fließt die Wärme aus dem Absorber in den Sensor. Auch die dafür benötigte Zeit ist begrenzt durch Wärmediffusion und hängt stark von der Geometrie der thermischen Verbindung zwischen Absorber und Sensor ab. Im Sensor erfolgt dann eine diffusive Ausbreitung der Wärme über das gesamte Sensorvolumen und die Energie wird mit den magnetischen Momenten des Sensormaterials geteilt. Der Signalabfall ergibt sich schließlich durch das diffusive Abfließen der Wärme aus dem Sensor durch die thermische Verbindung zum Wärmebad. Genau genommen laufen all diese Thermalisierungsvorgänge nicht streng aufeinanderfolgend ab. Der zeitliche Verlauf des Detektorsignals infolge eines Energieeintrags resultiert vielmehr aus einer Überlagerung der beschriebenen Thermalisierungsprozesse.

Da die Sensoren und Absorber metallischer magnetischer Kalorimeter typischerweise sehr klein sind, ist die Wärmediffusion innerhalb dieser Komponenten in der Regel nicht limitierend für die Signalanstiegszeit. Ausnahmen bilden hier Detektoren mit großflächigen Absorbern, wie der in [Kam10, Gam13] beschriebene Detektor, bei dem die Wärmediffusion innerhalb des Absorbers begrenzend für die Signalanstiegszeit ist, welche somit zur Bestimmung der Position eines Energieeintrags innerhalb des Absorbers genutzt werden kann.

Werden nicht nur die Geometrien von Absorber und Sensor sondern auch die Geometrie der thermischen Verbindung zwischen den beiden Komponenten so gewählt, dass die zur Wärmediffusion benötigte Zeit vernachlässigbar gering ist, so ist die Relaxationszeit, mit der die magnetischen Momente des Sensormaterials auf die Temperaturerhöhung der Leitungselektronen reagieren, begrenzend für den Signalanstieg eines metallischen magnetischen Kalorimeters. In diesem Fall ergibt sich ein exponentieller Anstieg des Detektorsignals, dessen Zeitkonstante

$$\tau_{\rm a,korr} \approx \frac{C_{\rm e}}{C_{\rm ges}} \tau_{\kappa}$$
(3.39)

durch die Elektron-Spin-Relaxationszeit τ_{κ} und den relativen Anteil des Beitrags $C_{\rm e}$ der Leitungselektronen zur Gesamtwärmekapazität $C_{\rm ges}$ gegeben ist. Die Elektron-Spin-Relaxationszeiten sind dabei durch die Korringa-Relation

$$\tau_{\kappa} = \frac{\kappa}{T_{\rm e}} \tag{3.40}$$

gegeben. Hierbei steht κ für die Korringa-Konstante des Sensormaterials und $T_{\rm e}$ für die Temperatur der Elektronen. Für <u>Au</u>:Er wurde die Korringa-Konstante in [Sjö75] bei Temperaturen unter 1 K anhand von ESR-Messungen zu $\kappa_{\underline{Au}:Er} = 7 \cdot 10^{-9}$ Ks bestimmt. Mit metallischen magnetischen Kalorimetern, bei denen der Wärmekapazitätsbeitrag der Elektronen etwa der Hälfte der Gesamtwärmekapazität entspricht, lassen sich somit bei den typischen Betriebstemperaturen zwischen 10 und 100 mK sehr schnelle Signalanstiegszeiten in der Größenordnung von 100 ns erzielen [Fle09a].

Bei einigen Anwendungen kann es allerdings von Vorteil sein, den Signalanstieg durch eine geeignete Wahl der Geometrie der thermischen Verbindung zwischen Sensor und Absorber künstlich auszubremsen. So wird beispielsweise bei dem in Kapitel 6 beschriebenen Detektor MOCCA das Ausbremsen der Anstiegszeiten genutzt um mehrere Absorber, die gemeinsam von einem Sensor ausgelesen werden, unterscheiden zu können. Das hierbei verwendete Hydra-Prinzip wird in Abschnitt 6.1.2 erläutert. Für solch einen ausgebremsten Signalanstieg ist nicht mehr die Elektron-Spin-Relaxationszeit begrenzend, sondern die Wärmeleitung durch die thermische Verbindung zwischen Sensor und Absorber. In diesem Fall lässt sich der Detektor unter Vernachlässigung der Wärmediffusion innerhalb von Absorber und Sensor mit einem vereinfachten Modell, wie in Abbildung 3.9 gezeigt, als kanonisches Ensemble mit zwei Subsystemen beschreiben. Die beiden Subsysteme Absorber und Sensor haben hierbei die Wärmekapazitäten $C_{\rm a}$ und $C_{\rm s}$ und sind miteinander über eine thermische Verbindung mit Wärmeleitwert G_{as} verbunden. Der Sensor wiederum ist über eine thermische Verbindung mit Wärmeleitwert $G_{\rm sb}$ mit einem Wärmebad der Temperatur $T_{\rm b}$ verbunden. Infolge eines deltaförmigen Energieeintrags $Q(t) = \Delta E \delta(t)$ in den Absorber lässt sich dessen Temperatur $T_{\rm a}(t)$, beziehungsweise dessen Energiegehalt $E_{\rm a}(t) = C_{\rm a}T_{\rm a}(t)$ mit der Differentialgleichung

$$E_{\rm a}(t) = C_{\rm a}T_{\rm a}(t) = -(T_{\rm a} - T_{\rm s})G_{\rm as} + Q(t)$$
(3.41)



Abb. 3.9: Modell eines metallischen magnetischen Kalorimeters als kanonisches Ensemble bestehend aus zwei Subsystemen zur Berechnung des zeitlichen Verlaufs des Detektorsignals.

beschreiben. Im Sensor gilt entsprechend

$$\dot{E}_{\rm s}(t) = C_{\rm s}\dot{T}_{\rm s}(t) = -(T_{\rm s} - T_{\rm a})G_{\rm as} - (T_{\rm s} - T_{\rm b})G_{\rm sb}.$$
(3.42)

Aus diesem Differentialgleichungssystem ergeben sich die Energie

$$E_{\rm s}(t) = \Delta E \, p(t) \tag{3.43}$$

im Sensor und deren Punktantwortfunktion

$$p(t) = \beta(-e^{-t/\tau_{a}} + e^{-t/\tau_{b}})$$
(3.44)

mit dem Vorfaktor

$$\beta = \frac{C_{\rm s}}{\sqrt{\left(C_{\rm s} + C_{\rm a}\left(1 + \frac{G_{\rm sb}}{G_{\rm as}}\right)\right)^2 - 4C_{\rm s}C_{\rm a}\frac{G_{\rm sb}}{G_{\rm as}}}} \tag{3.45}$$

und den Zeitkonstanten

$$\tau_{\rm b/a} = \frac{C_{\rm s} + C_{\rm a} \left(1 + \frac{G_{\rm sb}}{G_{\rm as}}\right)}{2G_{\rm sb}} \pm \frac{\sqrt{\left(C_{\rm s} + C_{\rm a} \left(1 + \frac{G_{\rm sb}}{G_{\rm as}}\right)\right)^2 - 4C_{\rm s}C_{\rm a}\frac{G_{\rm sb}}{G_{\rm as}}}{2G_{\rm sb}}.$$
 (3.46)

Der zeitliche Energieverlauf im Sensor beschreibt folglich, wie beispielhaft in Abbildung 3.10 anhand eines Muster-Signals gezeigt, einen schellen exponentiellen Anstieg mit Zeitkonstante $\tau_{\rm a}$, gefolgt von einem langsameren exponentiellen Abfall zurück zum Gleichgewichtswert mit Zeitkonstante $\tau_{\rm b}$.



Abb. 3.10: Erwarteter Signalverlauf eines metallischen magnetischen Kalorimeters infolge eines deltaförmigen Energieeintrags bestehend aus einem schnellen exponentiellen Anstieg mit Zeitkonstante $\tau_{\rm a}$ und einem langsameren exponentiellen Abfall mit Zeitkonstante $\tau_{\rm b}$.

Da die thermische Verbindung zwischen Sensor und Wärmebad auch bei Detektoren mit ausgebremstem Signalanstieg um ein Vielfaches schwächer ist, als die thermische Verbindung zwischen Sensor und Absorber, kann man für die entsprechenden Wärmeleitwerte $G_{\rm as} \gg G_{\rm sb}$ annehmen. Der Vorfaktor der Punktantwortfunktion aus Gleichung 3.45 lässt sich dann durch

$$\beta \approx \frac{C_{\rm s}}{C_{\rm ges}} \tag{3.47}$$

annähern und ist somit durch den relativen Anteil der Wärmekapazität des Sensors an der Gesamtwärmekapazität $C_{\text{ges}} = C_{\text{s}} + C_{\text{a}}$ gegeben. Entsprechend vereinfacht sich der in Gleichung 3.46 gegebene Ausdruck für die Zeitkonstanten zu

$$\tau_{\rm b/a} \approx \frac{C_{\rm s} + C_{\rm a}}{2G_{\rm sb}} \pm \left(\frac{C_{\rm s} + C_{\rm a}}{2G_{\rm sb}} - \frac{C_{\rm s}C_{\rm a}}{(C_{\rm s} + C_{\rm a})\,G_{\rm as}}\right).$$
(3.48)

Daraus ergibt sich direkt die Signalanstiegszeit

$$\tau_{\rm a} \approx \frac{C_{\rm s}C_{\rm a}}{C_{\rm ges}G_{\rm as}},\tag{3.49}$$

die in diesem Fall nur noch von dem Wärmeleitwert $G_{\rm as}$ der thermischen Verbindung zwischen Sensor und Absorber sowie den Wärmekapazitäten der beiden Komponenten abhängt. Bei erneuter Näherung $G_{\rm as} \gg G_{\rm sb}$ erhält man aus Gleichung 3.48 die Signalabklingzeit

$$\tau_b \approx \frac{C_{\rm ges}}{G_{\rm sb}},\tag{3.50}$$

die dann durch die Gesamtwärmekapazität $C_{\text{ges}} = C_{\text{s}} + C_{\text{a}}$ des Detektors und den Wärmeleitwert G_{sb} der thermischen Verbindung zum Wärmebad gegeben ist.

3.4.2 Thermische Energiefluktuationen

Zur Diskussion der thermischen Energiefluktuationen eines metallischen magnetischen Kalorimeters werden nun bei dem in Abschnitt 3.4.1 diskutierten Modell eines kanonischen Ensembles aus zwei Subsystemen noch zusätzlich willkürliche Fluktuationen des Wärmeflusses durch die thermischen Verbindungen berücksichtigt. Diese



Abb. 3.11: Modell eines metallischen magnetischen Kalorimeters als kanonisches Ensemble bestehend aus zwei Subsystemen mit zusätzlichen thermischen Rauschquellen zur Berechnung der thermischen Energiefluktuationen.

werden wie in Abbildung 3.11 gezeigt als Rauschquellen $P_{\rm as}$ und $P_{\rm sb}$ parallel zur jeweiligen thermischen Kopplung hinzugefügt, wobei die spektralen Rauschdichten $S_{P_{\rm as}}$ und $S_{P_{\rm sb}}$ der Rauschquellen durch

$$S_{P_{ij}} = 4k_{\rm B}T^2G_{ij} \tag{3.51}$$

mit dem Index ij := as; sb und der Boltzmann-Konstante $k_{\rm B} = 1,38 \cdot 10^{-23} \,\text{J/K}$ gegeben sind. In Abwesenheit eines Energieeintrags $\dot{Q}(t) = 0$ ergibt sich dann analog zu den Gleichungen 3.41 und 3.42 das Differentialgleichungssystem

$$\dot{E}_{a}(t) = C_{a}\dot{T}_{a}(t) = -(T_{a} - T_{s})G_{as} - P_{as}(t)$$
(3.52)

$$\dot{E}_{\rm s}(t) = C_{\rm s}\dot{T}_{\rm s}(t) = -(T_{\rm s} - T_{\rm a})G_{\rm as} - (T_{\rm s} - T_{\rm b})G_{\rm sb} + P_{\rm as}(t) + P_{\rm sb}(t)$$
(3.53)

für die zeitlichen Verläufe des Energiegehalts der beiden Subsysteme. Da beide Rauschquellen inkohärent zum Gesamtrauschen beitragen, ergibt sich durch Transformation der beiden Gleichungen in den Frequenzraum unter den Annahmen $\tau_a \ll \tau_b$ und $C_a \approx C_s$ das Leistungsspektrum der Energiefluktuationen im Sensor

$$S_{E_{\rm s}}(f) \approx 4k_{\rm B}T^2C_{\rm s}\left((1-\beta)\frac{\tau_{\rm a}}{1+(2\pi\tau_{\rm a}f)^2} + \beta\frac{\tau_{\rm b}}{1+(2\pi\tau_{\rm b}f)^2}\right).$$
 (3.54)

In der Detektionsspule verursachen diese Energiefluktuationen ein Flussrauschen mit der spektralen Leistungsdichte

$$S_{\Phi_{Es}}(f) = \frac{1}{\beta^2} \left(\frac{\Delta\Phi}{\Delta E}\right)^2 S_{E_s}(f) \tag{3.55}$$

die sich mit Hilfe der in Gleichung 3.29 gegebenen Flussänderung in der Detektionsspule pro deponierter Energie berechnen lässt.

3.4.3 Energieauflösung

Nimmt man an, dass das Gesamtrauschen des Detektorsignals stationär ist, so lässt sich die Energieauflösung des Detektors am besten im Frequenzraum herleiten. Durch Fouriertransformation der in Gleichung 3.44 gegebenen Punktantwortfunktion erhält man dabei

$$|\tilde{p}(f)| = \frac{2\beta(\tau_{\rm b} - \tau_{\rm a})}{\sqrt{\left[1 + (2\pi\tau_{\rm a}f)^2\right]\left[1 + (2\pi\tau_{\rm b}f)^2\right]}}.$$
(3.56)

Zusammen mit dem in Gleichung 3.54 gegebenen Leistungsspektrum der thermodynamischen Energiefluktuationen lässt sich damit unter der Annahme $\tau_a \ll \tau_b$ das Signal-zu-Rauschen-Verhältnis

$$SNR^{2}(f) = \frac{|\tilde{p}(f)|^{2}}{S_{E_{\rm s}}(f)} \approx \frac{1}{k_{\rm B}T^{2}C_{\rm s}} \left(\frac{\beta\tau_{\rm b}}{1 + \frac{1-\beta}{\beta}\tau_{\rm a}\tau_{\rm b}(2\pi f)^{2}}\right)$$
(3.57)

berechnen. Bei Verwendung der in [Fle03] untersuchten Methode des optimalen Filterns ergibt daraus dann die instrumentelle Linienbreite

$$\Delta E_{\rm FWHM} = 2\sqrt{2\ln 2} \left(\int_{0}^{\infty} SNR^{2}(f) df \right)^{-1/2}$$

$$\approx 2\sqrt{2\ln 2} \sqrt{4k_{\rm B}T^{2}C_{\rm a}} \left(\frac{1}{\beta(1-\beta)} \right)^{1/4} \left(\frac{\tau_{\rm a}}{\tau_{\rm b}} \right)^{1/4}$$
(3.58)

eines metallischen magnetischen Kalorimeters. Das dadurch gegebene fundamentale Limit für die Energieauflösung verhält sich proportional zur Temperatur und zur Wurzel der Absorberwärmekapazität und hat ein Minimum für $\beta = 0.5$. Die Energieauflösung lässt sich folglich durch die Wahl gleich großer Wärmekapazitäten $C_{\rm a}$

und $C_{\rm s}$ von Absorber und Sensor sowie einer geringen Gesamtwärmekapazität $C_{\rm ges}$ optimieren, ebenso wie durch Betrieb des Detektors bei tiefen Temperaturen. Des Weiteren lässt sich eine gute Energieauflösung durch Wahl einer deutlich größeren Signalabklingzeit $\tau_{\rm b} \gg \tau_{\rm a}$ verglichen mit der Signalanstiegszeit erzielen. Letztere ist, wie in Abschnitt 3.4.1 beschrieben, durch die Elektron-Spin-Relaxationszeit begrenzt. Durch die Wahl einer großen Abklingzeit wiederum wird die Zählrate des Detektors limitiert. Je nach Anwendung muss daher bei der Wahl der Abklingzeit ein Kompromiss zwischen erreichbarer Energieauflösung und gewünschter Zählrate gefunden werden.

3.4.4 Zusätzliche Rauschbeiträge

Neben den in Abschnitt 3.4.2 diskutierten thermischen Energiefluktuationen finden sich in metallischen magnetischen Kalorimetern noch zwei weitere intrinsische Rauschbeiträge, das magnetische Johnson-Rauschen und das 1/f-Rauschen der Erbiumionen, die ein Flussrauschen mit der spektralen Leistungsdichte $S_{\Phi_{\rm j}}(f)$ bzw. $S_{\Phi_{\rm er}}(f)$ in der Detektionsspule verursachen und in diesem Abschnitt diskutiert werden sollen. Alle drei Beiträge lassen sich mit der in Gleichung 3.37 gegebenen Flusszu-Fluss-Kopplung $\Delta \Phi_{\rm S}/\Delta \Phi$ in das resultierende Flussrauschen im SQUID umrechnen. Zusätzlich zu diesen intrinsischen Rauschbeiträgen des Detektors liefert auch das SQUID selbst einen Beitrag $S_{\Phi_{\rm S}}(f)$ zum Gesamtrauschen, der in Abschnitt 4.1.3 diskutiert wird. Da alle genannten Rauschbeiträge statistisch unabhängig voneinander sind, kann die spektrale Leistungsdichte

$$S_{\Phi_{\rm ges}}(f) = \left(\frac{\Delta\Phi_{\rm S}}{\Delta\Phi}\right)^2 \left[S_{\Phi_{Es}}(f) + S_{\Phi_{\rm j}}(f) + S_{\Phi_{\rm er}}(f)\right] + S_{\Phi_{\rm S}}(f) \tag{3.59}$$

des Gesamtrauschens im SQUID durch inkohärente Addition aller Beiträge berechnet werden.

Magnetisches Johnson-Rauschen

In sämtlichen normalleitenden Bauteilen in einem metallischen magnetischen Kalorimeter oder in dessen Umgebung kommt es aufgrund der endlichen Betriebstemperaturen zu zufälligen thermischen Bewegungen der Ladungsträger, die zeitlich fluktuierende Magnetfelder zur Folge haben. In nahegelegenen Spulen können diese Magnetfeldschwankungen ein Flussrauschen verursachen, das als magnetisches Johnson-Rauschen bezeichnet wird. Hauptverursacher dieses Rauschbeitrags, der sowohl in die Detektionsspule, als auch direkt in die SQUID-Spule einkoppeln kann, sind insbesondere der Temperatursensor, aber auch der Absorber sowie die Detektorhalterung, die in der Regel aus Kupfer oder Messing gefertigt ist. In einer mäanderförmigen Detektionsspule verursacht ein Normalleiter mit Leitfähigkeit σ und Höhe h, dessen Grundfläche im Abstand d parallel zur Spulenfläche liegt und mit dieser einen Überlapp der Fläche A hat, ein Flussrauschen mit der spektralen Leistungsdichte [Pie08, Pie12b]

$$S_{\Phi_{j}} = \frac{2,376}{4\pi} \mu_{0}^{2} k_{B} T \sigma A p (e^{-2\pi d/p} - e^{-2\pi (d+h)/p}) \propto \sigma T.$$
(3.60)

Dabei sind $\mu_0 = 4 \pi \cdot 10^{-7}$ Vs/Am die magnetische Feldkonstante und p der Mitte-zu-Mitte-Abstand der Mäanderbahnen. Dieser Rauschbeitrag steigt mit zunehmender Bertiebstemperatur T des Detektors an und kann im für metallische magnetische Kalorimeter interessanten Frequenzbereich als frequenzunabhängig angenommen werden. Eine Möglichkeit zur Reduktion des magnetischen Johnson-Rauschens ist eine Verringerung der Leitfähigkeit normalleitender Komponenten, zum Beispiel durch Dotieren mit nicht-magnetischen Fremdatomen. Im Fall von Detektoren mit planaren Sensoren aus <u>Au</u>:Er bzw. <u>Ag</u>:Er und mäanderförmigen Detektionsspulen ist dieser Beitrag allerdings typischerweise vernachlässigbar gering.

1/f-Rauschen der Erbiumionen

In metallischen magnetischen Kalorimetern mit Sensoren aus <u>Au</u>:Er wurde zudem ein weiterer Beitrag zum Flussrauschen beobachtet [Fle04], der sich ungefähr proportional zur inversen Frequenz verhält. Da dieser niederfrequente Rauschbeitrag außerdem eine Proportionalität zur Anzahl $N_{\rm er}$ der Er³⁺-Ionen im Sensormaterial aufweist, wird vermutet, dass er von dem Ensemble schwach wechselwirkender Erbiumionen in dem paramagnetischen Sensor verursacht wird. Empirische Untersuchungen in [Fle09a] haben gezeigt, dass dieser Rauschbeitrag sich durch thermische Fluktuationen der magnetischen Momente im Sensor beschreiben lässt, indem jedem Erbiumion ein Rauschen des magnetischen Moments mit der spektralen Leistungsdichte

$$S_{\rm m}(f) \approx 0.1 \frac{\mu_{\rm B}^2}{f^{\eta}} \tag{3.61}$$

zugeschrieben wird, wobei $\mu_{\rm B} = 9,27 \cdot 10^{-24} \,\text{J/T}$ das Bohrsche Magneton ist. Das daraus insgesamt resultierende magnetische Flussrauschen in einer mäanderförmigen Detektionsspule mit Mitte-zu-Mitte-Abstand p der Leiterbahnen lässt sich empirisch durch Aufsummieren der Rauschbeiträge der einzelnen Erbiumionen berechnen. Mit Hilfe des in Gleichung 3.28 definierten, mit P(B) gewichteten Mittelwerts $\langle G^2 \rangle$ der quadrierten Geometriefaktoren ergibt sich dabei eine spektrale Leistungsdichte von

$$S_{\Phi_{\rm er}}(f) = \frac{\mu_0^2 \langle G^2 \rangle}{p^2} S_{\rm m}(f) N_{\rm er} \propto \frac{N_{\rm er}}{f^{\eta}}.$$
(3.62)

Der Exponent η der inversen Frequenz hängt hierbei von der Geometrie und unter Umständen von den Herstellungsprozessen des Sensors ab und nimmt typischerweise

Werte zwischen 0,8 und 1,0 an. Im untersuchten Temperaturbereich zwischen 4,2 K und 30 mK hat dieser Rauschbeitrag keine Temperaturabhängigkeit gezeigt. Die Vermutung, dass Fluktuationen des magnetischen Moments im Sensormaterial diesen 1/f-Rauschbeitrag verursachen, wie es ähnlich bereits in Spin-Gläsern beobachtet wurde [Kog81], wird durch die in [Hof12, Wiß13] durchgeführten Suszeptibilitätsmessungen an Sensoren aus Au:Er unterstützt. Bei Temperaturen weit oberhalb der Spinglastemperatur haben die dort untersuchten Sensoren ein Verhalten gezeigt, das qualitativ dem beobachteten Verhalten in paramagnetischen Legierungen nahe der Spinglastemperatur entspricht. Das aufgrund des gemessenen Imaginärteils der Suszeptibilität erwartete Flussrauschen der Erbiumionen stimmte dabei in Verlauf und Größe sehr gut mit der empirisch ermittelten Formel aus Gleichung 3.62 überein und zeigte ebenfalls im untersuchten Temperaturbereich keine Temperaturabhängigkeit.

4. Experimentelle Methoden

Nachdem in Kapitel 3 die wichtigsten physikalischen Grundlagen metallischer magnetischer Kalorimeter zusammengefasst wurden, wird in diesem Kapitel der Betrieb und die Auslesung solcher Detektoren behandelt. Da im Rahmen dieser Arbeit Messungen mit unterschiedlichen Detektoren in verschiedenen Kryostaten und unter unterschiedlichen Bedingungen durchgeführt wurden, wird hier zunächst ein genereller Überblick über die dabei verwendeten experimentellen Methoden gegeben. Die Details und Besonderheiten der unterschiedlichen Umsetzungen der hier erläuterten Methoden werden dann in den Unterkapiteln 5.3 und 6.4 des jeweiligen Experiments erläutert.

In diesem Kapitel werden zunächst das Funktionsprinzip eines dc-SQUIDs sowie zwei Varianten einer SQUID-basierten Flussrückkopplungs-Schaltung zur Auslesung der Detektoren diskutiert, ebenso wie der durch diese Komponenten zusätzlich zum Detektorrauschen entstehende Rauschbeitrag. Nach der Erläuterung der Präparation des zum Betrieb der Detektoren benötigten felderzeugenden Dauerstroms in den Detektionsspulen werden dann das Konzept des experimentellen Aufbaus zum Betrieb der Detektoren vorgestellt und die wichtigsten Gemeinsamkeiten der zum Erreichen der Detektor-Betriebstemperaturen verwendeten Kryostaten zusammengefasst. Zuletzt wird ein kurzer Überblick über die Aufnahme und Auswertung der so gemessenen Daten gegeben.

4.1 dc-SQUIDs

Wie bereits in Kapitel 3 diskutiert, resultiert ein Energieeintrag in ein metallisches magnetisches Kalorimeter in einer Änderung der Sensormagnetisierung, für deren Messung ein sehr empfindliches Messgerät benötigt wird. Die aktuell empfindlichsten Messgeräte für magnetische Flussänderungen, die zugleich eine große nutzbare Bandbreite bieten, sind SQUIDs¹. Bei den im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Detektoren wird die Magnetisierungsänderung daher, wie in Unterkapitel 3.3 erläutert, mit Hilfe einer Detektionsspule und einem dc-SQUID mit integrierter Einkoppelspule gemessen. Dabei resultiert die mit der Magnetisierungsänderung verknüpfte Änderung des magnetischen Flusses durch die Detektionsspule in einer Stromänderung ΔI in der Einkoppelspule, die wiederum gemäß Gleichung 3.35 in einer Änderung des magnetischen Flusses im SQUID $\Delta \Phi_{\rm S}$ resultiert. Diese Flussänderung wird dann

¹SQUID ist ein Akronym für den englischen Begriff Superconducting QUantum Interference Device.

von dem dc-SQUID in eine messbare Spannungsänderung umgewandelt.

Das Funktionsprinzip eines dc-SQUIDs beruht auf der Quantisierung des magnetischen Flusses in geschlossenen supraleitenden Schleifen [Lon50] sowie den Josephson-Effekten [Jos62, Jos65] und soll im Folgenden kurz erläutert werden. Eine detailliertere Beschreibung findet sich beispielsweise in [Cla04].



Abb. 4.1: dc-SQUID mit Shunt-Widerständen: a) Ersatzschaltbild, b) Strom-Spannungs-Kennlinien für die Extremwerte $\Phi_{\rm S} = (n+1/2)\Phi_0$ und $\Phi_{\rm S} = n\Phi_0$ des magnetischen Flusses im SQUID, wobei $n \in \mathbb{Z}$ eine ganze Zahl ist, c) Fluss-Spannungs-Kennlinie für einen konstanten Betriebsstrom.

Abbildung 4.1a) zeigt das Ersatzschaltbild eines dc-SQUIDs. Ein dc-SQUID besteht aus einer supraleitenden Schleife, die an zwei Stellen durch einen Josephson-Kontakt unterbrochen ist. Hierbei handelt es sich um eine dünne isolierende oder normalleitende Barriere, die von Cooper-Paaren bis zu einem kritischen Strom I_c ohne Verlust ihrer Kohärenz durchtunnelt werden kann. An den durch Kreuze symbolisierten Josephson-Kontakten kann magnetischer Fluss in die SQUID-Schleife einund aus dieser austreten. Bei den im Rahmen dieser Arbeit verwendeten SQUIDs ist zudem, wie in Abbildung 4.1a) gezeigt, zu jedem Josephson-Kontakt ein sogenannter Shunt-Widerstand parallelgeschaltet, um hysteretisches Verhalten zu unterdrücken [Ste68].

Treibt man einen Betriebsstrom $I_{\rm b}$ durch das SQUID, so wird dieser Strom verlustfrei durch Cooper-Paare getragen, solange er den kritischen Strom I_0 des SQUIDs nicht überschreitet. In diesem Fall fällt keine Spannung über dem SQUID ab. Wird der kritische Strom I_0 allerdings überschritten, so muss zusätzlich ein Quasiteilchenstrom durch das SQUID fließen und es kommt zu einem endlichen Spannungsabfall $U_{\rm S}$ über dem SQUID. Der kritische Strom I_0 hängt dabei nicht nur vom kritischen Strom $I_{\rm c}$ der beiden Josephson-Kontakte ab, sondern auch in periodischer Weise von dem magnetischen Fluss $\Phi_{\rm S}$ im SQUID, wobei die Periodizität durch das magnetische Flussquant $\Phi_0 = h/2e = 2,07 \cdot 10^{-15}$ Vs gegeben ist. Entspricht der magnetische Fluss im SQUID einem ganzzahligen Vielfachen des Flussquants, so ist der kritische Strom des SQUIDs maximal, während er bei einem halbzahligen Vielfachen minimal ist. Abbildung 4.1b) zeigt beispielhafte Strom-Spannungs-Kennlinien eines dc-SQUIDs mit Shunt-Widerständen für diese beiden Extremfälle. Bei einer Erhöhung des Betriebsstroms ergibt sich nach dem Überschreiten des kritischen Stroms zunächst jeweils ein steiler Anstieg der Spannung. Die hier erkennbare Verrundung des abrupten Anstieges bei Erreichen des kritischen Stroms wird durch thermische Strom-Fluktuationen hervorgerufen [Cla04]. Bei weiter steigendem Betriebsstrom fließt ein immer größer werdender Bruchteil des Stroms über die Shunt-Widerstände und die gezeigten Kennlinien nähern sich asymptotisch einem ohmschen Verhalten an, dessen Steigung

$$\left(\frac{\partial U_{\rm S}}{\partial I_{\rm b}}\right)_{\rm ohm} = \frac{R}{2} \tag{4.1}$$

durch den elektrischen Widerstand R der Shunt-Widerstände gegeben ist.

Wird ein konstanter Betriebsstrom $I_{\rm b} > 2I_{\rm c}$ gewählt, der noch unterhalb dieses ohmschen Bereichs liegt, so hängt die über dem SQUID abfallende Spannung $U_{\rm S}$ folglich periodisch vom magnetischen Fluss im SQUID ab. Abbildung 4.1c) zeigt die dabei resultierende Fluss-Spannungs-Kennlinie für den in Abbildung 4.1b) mit einer gestrichelten Linie markierten Betriebsstrom. Der größtmögliche Spannungshub dieser Kennlinie ergibt sich, wenn der gewählte Betriebsstrom geringfügig größer als der maximale kritische Strom des SQUIDs ist. Wählt man nun den Arbeitspunkt (AP) des SQUIDs so, dass er, wie in Abbildung 4.1c) gezeigt, auf einer steilen Stelle der Fluss-Spannungs-Kennlinie liegt, so kann das SQUID als sehr empfindlicher Fluss-zu-Spannungs-Wandler genutzt werden. Eine kleine Änderung $\Delta \Phi_{\rm S} \ll \Phi_0$ des magnetischen Flusses im SQUID verursacht dann eine zu dieser Flussänderung proportionale Änderung

$$\Delta U_{\rm S} = V_{\Phi} \Delta \Phi_{\rm S} \tag{4.2}$$

der über dem SQUID abfallenden Spannung. Der Fluss-zu-Spannungs-Transferkoeffizient

$$V_{\Phi} = \left(\frac{\partial U_{\rm S}}{\partial \Phi_{\rm S}}\right)_{I_{\rm b}\,=\,\rm konst}\tag{4.3}$$

ist dabei durch die Steigung der Fluss-Spannungs-Kennlinie am Arbeitspunkt gegeben und nimmt bei einem Fluss $\Phi_{\rm S} = (n+1/4)\Phi_0, n \in \mathbb{Z}$ im SQUID einen maximalen Wert an.

In der Praxis werden dc-SQUIDs typischerweise entweder, wie hier beschrieben, im Strombetrieb bei einem konstanten Betriebsstrom $I_{\rm b}$ oder alternativ im Spannungsbetrieb bei einer konstanten Spannung $U_{\rm S}$ betrieben. Im Spannungsbetrieb dienen sie als sehr empfindliche Fluss-zu-Strom-Wandler, wobei der Fluss-zu-StromTransferkoeffizient

$$I_{\Phi} = \left(\frac{\partial I_{\rm b}}{\partial \Phi_{\rm S}}\right)_{U_{\rm S}\,=\,\rm konst}\tag{4.4}$$

durch die Steigung der ebenfalls periodischen Fluss-Strom-Kennlinie am Arbeitspunkt gegeben ist. Aus den beiden Transferkoeffizienten lässt sich der dynamische Widerstand

$$R_{\rm d} = \frac{V_{\Phi}}{I_{\Phi}} = \frac{\partial U_{\rm S}}{\partial I_{\rm b}} \tag{4.5}$$

des SQUIDs am Arbeitspunkt berechnen, welcher der Steigung der Strom-Spannungs-Kennlinie am Arbeitspunkt entspricht.

Da die Ausgangsspannung $U_{\rm S}$ eines dc-SQUIDs im Strombetrieb periodisch von dem magnetischen Fluss $\Phi_{\rm S}$ im SQUID abhängt, beschränkt sich der nutzbare Arbeitsbereich ohne zusätzliche äußere Beschaltung auf den monotonen Bereich der in Abbildung 4.1c) gezeigten Fluss-Spannungs-Kennlinie und somit auf sehr kleine Flussänderungen $\Delta \Phi_{\rm S} < \Phi_0/4$, sofern eine eindeutige und nahezu lineare Zuordnung zwischen dem Ein- und dem Ausgangssignal gewünscht ist. Um diesen Arbeitsbereich zu vergrößern, kann das Ausgangssignal eines SQUIDs mit Hilfe der im folgenden Abschnitt gezeigten Flussrückkopplungs-Schaltung linearisiert werden.

4.1.1 Flussrückkopplungs-Schaltung

Zur Linearisierung der in Abbildung 4.1c) gezeigten Fluss-Spannungs-Kennlinie eines dc-SQUIDs im Strombetrieb kann eine Flussrückkopplungs-Schaltung, wie sie in Abbildung 4.2 schematisch dargestellt ist, verwendet werden. Ziel dieser Schaltung ist es, das SQUID an einem festen Arbeitspunkt auf einer möglichst steilen Stelle der Fluss-Spannungs-Kennlinie zu stabilisieren. Die Spannungsänderung $\Delta U_{\rm S}$, die infolge eines Detektorsignals gemäß Gleichung 4.2 aus einer Flussänderung $\Delta \Phi_{\rm S}$ im SQUID resultiert, wird dafür zunächst bei Raumtemperatur verstärkt. Dazu wird die über dem SQUID abfallende Spannung $U_{\rm S}$ als Eingangssignal auf einen rauscharmen Differenzverstärker gegeben, wobei die am gewählten Arbeitspunkt über dem SQUID abfallende Spannung $U_{\rm b}$ als Referenzspannung dient. Das Ausgangssignal des Verstärkers wird dann mit Hilfe eines Spannungsintegrators integriert, dessen Ausgang über einen Rückkoppelwiderstand $R_{\rm fb}$ mit einer Rückkoppelspule² verbunden ist. Die Ausgangsspannung U des Integrators resultiert somit in einem Strom $I_{\rm fb} = U/R_{\rm fb}$ durch die Rückkoppelspule. Im SQUID wiederum verursacht dieser Strom über die Gegeninduktivität $M_{\rm fb}$ zwischen SQUID und Rückkoppelspule einen magnetischen Fluss $\Phi_{\rm fb} = I_{\rm fb} M_{\rm fb} = -\Delta \Phi_{\rm S}$, der im Fall einer unendlichen Verstärkung des Differenzverstärkers die zu messende Flussänderung $\Delta \Phi_{\rm S}$ im SQUID gerade kompensiert

²Bei sämtlichen im Rahmen dieser Arbeit verwendeten SQUIDs ist diese Rückkoppelspule, genau wie die Einkoppelspule, auf dem gleichen Substrat wie das eigentliche SQUID strukturiert.



Abb. 4.2: Schaltplan einer einstufigen Flussrückkopplungs-Schaltung zur Linearisierung des Ausgangssignals eines dc-SQUIDs. Die Temperatur der einzelnen Komponenten ist durch die farbige Hinterlegung angedeutet.

[Dru04], sodass der Fluss Φ_S im SQUID auf einem konstanten Wert gehalten wird. Die Ausgangsspannung

$$U = -\frac{R_{\rm fb}}{M_{\rm fb}} \Delta \Phi_{\rm S} \tag{4.6}$$

des Integrators ist somit direkt proportional zur zu messenden Flussänderung $\Delta \Phi_{\rm S}$ und kann als Messsignal verwendet werden. Bei einem realen Differenzverstärker mit endlicher Verstärkung ist die Flussänderung im SQUID um den Verstärkungsfaktor reduziert, sodass das SQUID in einem sehr kleinen Bereich um den Arbeitspunkt herum betrieben wird. Die relative Abweichung des magnetischen Flusses im SQUID vom Fluss am Arbeitspunkt ist dabei in der Regel sehr gering und kann Werte bis hinab zu $(\Phi_{\rm fb} + \Delta \Phi_{\rm S})/\Delta \Phi_{\rm S} \approx 10^{-6}$ annehmen, womit sich eine sehr geringe Nichtlinearität des Ausgangssignals ergibt [Dru04]. Mit der gezeigten Flussrückkopplungs-Schaltung ist es auf diese Weise möglich, den nutzbaren Arbeitsbereich eines dc-SQUIDs von weniger als einem Φ_0 auf eine Vielzahl von Flussquanten zu erweitern.

4.1.2 Zweistufige Flussrückkopplungs-Schaltung

Die bei Raumtemperatur betriebene Auslesungselektronik der im vorigen Abschnitt diskutierten Flussrückkopplungs-Schaltung liefert einen zusätzlichen Beitrag zum Flussrauschen, der in der Regel das in Abschnitt 4.1.3 diskutierte SQUID-Rauschen dominiert und somit eine Verschlechterung des Signal-zu-Rauschen-Verhältnisses zur Folge hat. Der Anteil dieses Rauschbeitrags am Gesamtrauschen lässt sich allerdings reduzieren, indem das SQUID-Signal bereits bei tiefen Temperaturen verstärkt wird. Als rauscharmer Verstärker kann hierbei ein zweites SQUID, oder auch ein SQUID- Array [Wel91, Sta93, Dru04], also eine Serienschaltung von mehreren möglichst identischen SQUIDs, verwendet werden. Ein SQUID-Array verhält sich dabei genau wie ein einzelnes SQUID mit vergrößertem Spannungssignal, wenn alle SQUIDs des Arrays am gleichen Arbeitspunkt betrieben werden und in jedes SQUID die gleiche Flussänderung $\Delta \Phi_{\rm S}$ einkoppelt. Im Folgenden wird das zur Vorverstärkung des Signals verwendete SQUID bzw. SQUID-Array daher vereinfachend als Verstärker-SQUID bezeichnet, während das zur Auslesung des Detektors verwendete SQUID als Detektor-SQUID bezeichnet wird.



Abb. 4.3: Schaltplan einer zweistufigen Flussrückkopplungs-Schaltung zur Linearisierung des Ausgangssignals eines dc-SQUIDs und Reduzierung des Beitrags der Raumtemperatur-Elektronik zum scheinbaren Flussrauschen im Detektor-SQUID. Die Temperatur der einzelnen Komponenten ist durch die farbige Hinterlegung angedeutet.

Abbildung 4.3 zeigt eine schematische Zeichnung einer solchen Flussrückkopplungs-Schaltung mit zweiter SQUID-Stufe. Genau wie bei dem Detektor-SQUID handelt es sich auch bei dem Verstärker-SQUID um ein Stromsensor-SQUID³, dessen Einkoppelspule mit dem Detektor-SQUID in Serie geschaltet ist. Beide SQUIDs werden mit individuellen konstanten Betriebsströmen I_{b1} und I_{b2} betrieben. Parallel zu der Serienschaltung aus Einkoppelspule und dem Detektor-SQUID mit dem in Gleichung 4.5 definierten dynamischen Widerstand R_{d1} am Arbeitspunkt befindet sich zudem ein Widerstand R_g , sodass nur der Bruchteil $I_{S1} = I_{b1}R_g/(R_{d1} + R_g)$ des Betriebsstroms I_{b1} durch das Detektor-SQUID fließt. Der Arbeitspunkt dieses SQUIDs wird somit durch den Betriebsstroms I_{b1} und den Widerstand R_g festgelegt. Um den Strom I_{S1} sowie die Spannung U_{S1} und damit auch die Leistungsdissipation $P_{S1} = U_{S1}I_{S1}$ des Detektor-SQUIDs am Arbeitspunkt gering zu halten, wird der Widerstand R_g dabei in der Regel so klein gewählt, dass er sehr viel geringer ist, als

³Der Ausdruck Stromsensor-SQUID bezeichnet die Kombination aus einem SQUID mit einer integrierten Einkoppelspule.

der dynamische Widerstand R_{d1} des SQUIDs, also $R_g \ll R_{d1}$. Dadurch wird die am Detektor-SQUID anliegende Spannung auf einem nahezu konstanten Wert gehalten. Das SQUID, das sich folglich quasi im Spannungsbetrieb befindet, dient somit als empfindlicher Fluss-zu-Strom-Wandler.

Eine Flussänderung $\Delta \Phi_{S1}$ im Detektor-SQUID infolge eines Detektorsignals resultiert somit in einer Änderung

$$\Delta I_{\rm S1} = \frac{R_{\rm d1}}{R_{\rm d1} + R_{\rm g}} I_{\Phi 1} \Delta \Phi_{\rm S1} = \frac{V_{\Phi 1}}{R_{\rm d1} + R_{\rm g}} \Delta \Phi_{\rm S1} \tag{4.7}$$

des Stroms durch das Detektor-SQUID, der auch durch die Einkoppelspule des Verstärker-SQUIDs fließt und daher wiederum eine Flussänderung

$$\Delta \Phi_{\rm S2} = M_{\rm iS2} \Delta I_{\rm S1} \tag{4.8}$$

im Verstärker-SQUID zur Folge hat. Hierbei sind $I_{\Phi 1}$ und $V_{\Phi 1}$ die in den Gleichungen 4.4 und 4.3 definierten Transferkoeffizienten des Detektor-SQUIDs am Arbeitspunkt und M_{iS2} die Gegeninduktivität zwischen dem Verstärker-SQUID und dessen Einkoppelspule. Die Fluss-zu-Fluss-Verstärkung zwischen den beiden SQUIDs am Arbeitspunkt berechnet sich daraus zu

$$G_{\Phi} = \frac{\partial \Phi_{S2}}{\partial \Phi_{S1}} = \frac{M_{iS2}V_{\Phi 1}}{R_{d1} + R_{g}}$$

$$\tag{4.9}$$

und kann somit durch eine geeignete Wahl der Gegeninduktivität $M_{\rm iS2}$, des Widerstands $R_{\rm g}$ und des Betriebsstroms $I_{\rm b1}$ auf einen gewünschten Wert eingestellt werden. Der Einfluss des Flussrauschens von Verstärker-SQUID und Raumtemperatur-Elektronik wird, wie in Abschnitt 4.1.3 erläutert, durch diese Fluss-zu-Fluss-Verstärkung reduziert, die durch die Wahl eines möglichst kleinen Widerstands $R_{\rm g} \ll R_{\rm d1}$ maximiert werden kann. Da die Flussänderung $\Delta \Phi_{\rm S2}$ proportional zur Stromänderung $\Delta I_{\rm S1}$ im Detektor-SQUID ist, durchläuft der magnetische Fluss im Verstärker-SQUID allerdings dessen periodische Fluss-Strom-Kennlinie. Um einen eindeutigen Arbeitspunkt zu finden, sollte die Fluss-zu-Fluss-Verstärkung daher so eingestellt werden, dass der Hub $\Delta \Phi_{\rm S1}G_{\Phi}$ dieses Flusses ein magnetisches Flussquant nicht überschreitet. Unter der vereinfachenden Annahme eines sinusförmigen Verlaufs und eines Spitzezu-Spitze-Spannungshubs $U_{\rm S}^{\rm ss}$ der Fluss-Spannungs-Kennlinie lässt sich der lineare Flussbereich eines dc-SQUIDs mit $\Phi_{\rm lin} = U_{\rm S}^{\rm ss}/|V_{\Phi}| \lesssim \Phi_0/\pi$ abschätzen [Cla04]. Folglich sollte die Fluss-zu-Fluss-Verstärkung auf $G_{\Phi} \lesssim \pi$ begrenzt werden.

Die so vorverstärkte Flussänderung $\Delta \Phi_{S2}$ im Verstärker-SQUID resultiert gemäß Gleichung 4.2 in einer Änderung ΔU_{S2} der über dem Verstärker-SQUID abfallenden Spannung. Diese Spannungsänderung wird dann, wie im vorigen Abschnitt anhand der einstufigen Flussrückkopplungs-Schaltung erläutert, von der Rückkoppelelektronik bei Raumptemperatur verstärkt, integriert und in Form eines magnetischen Flusses in das Detektor-SQUID zurückgekoppelt, der dort die ursprüngliche Flussänderung kompensiert. Somit wird der magnetische Fluss im Detektor-SQUID wieder auf einem konstanten Wert gehalten, während die Ausgangsspannung

$$U = -\frac{R_{\rm fb}}{M_{\rm fb}} \Delta \Phi_{\rm S1} \tag{4.10}$$

des Integrators wieder proportional zur Flussänderung $\Delta \Phi_{\rm S1}$ im Detektor-SQUID ist und somit als Messsignal verwendet werden kann. Wird die gezeigte Flussrückkopplungs-Schaltung zur Auslesung eines magnetischen Kalorimeters mit gradiometrisch verschalteten mäanderförmigen Detektionsspulen verwendet, so ergibt sich infolge eines Energieeintrags ΔE anhand der Gleichungen 4.10, 3.38 und 3.29 für die Ausgangsspannung $U \propto \Delta E$ ein linearer Zusammenhang mit dem zu messenden Energieeintrag.

4.1.3 Fluss-Rauschen eines dc-SQUIDs

Wie bereits in Abschnitt 3.4.4 erwähnt, verursacht das zur Auslesung eines metallischen magnetischen Kalorimeters verwendete SQUID ein Flussrauschen, das zum Gesamtrauschen des Detektors beiträgt. Das Flussrauschen

$$S_{\Phi_{\rm S}}(f) = S_{\Phi_{\rm S,w}} + S_{\Phi_{\rm S,1/f}}(f) \tag{4.11}$$

eines dc-SQUIDs setzt sich dabei aus einem frequenzunabhängigen weißen Beitrag $S_{\Phi_{S,w}}$ sowie einem 1/f-artigen Beitrag $S_{\Phi_{S,1/f}}(f)$ zusammen.

Weißer Rauschbeitrag

Der frequenzunabhängige Beitrag $S_{\Phi_{S,w}}$ zum Flussrauschen eines dc-SQUIDs mit Shunt-Widerständen ist theoretisch gut verstanden. Ursache dieses Rauschbeitrags ist das Stromrauschen der Shunt-Widerstände. Während ein einzelner Shunt-Widerstand aufgrund seines elektrischen Widerstandes R ein thermisches Stromrauschen mit der spektralen Leistungsdichte

$$S_{I_{\rm shunt}} = \frac{4k_{\rm B}T}{R} \tag{4.12}$$

verursacht, setzt sich das Stromrauschen eines dc-SQUIDs mit zwei Shunt-Widerständen mit gleichem elektrischen Widerstand R aus einem In-Phase- und einem Außer-Phase-Beitrag zusammen. Für den In-Phase-Beitrag, bei dem die Rauschströme der beiden Shunt-Widerstände in den beiden Pfaden der SQUID-Schleife in die gleiche Richtung fließen, ist der relevante Gesamtwiderstand durch die Parallelschaltung der Shunt-Widerstände gegeben. Die spektrale Leistungsdichte dieses Beitrags zum Stromrauschen ist folglich

$$S_{I_{\text{parallel}}} = \frac{4k_{\text{B}}T}{\frac{1}{2}R}.$$
(4.13)

Für den Außer-Phase-Beitrag, bei dem die Rauschströme der Shunt-Widerstände in entgegengesetzte Richtungen fließen und damit in einem Kreisstrom resultieren, ist der relevante Gesamtwiderstand im Gegensatz hierzu durch die Serienschaltung der Shunt-Widerstände gegeben. Die spektrale Leistungsdichte dieses Beitrags kann somit durch

$$S_{I_{\text{serie}}} = \frac{4k_{\text{B}}T}{2R} \tag{4.14}$$

berechnet werden. Diese beiden Beiträge resultieren in einem Spannungsrauschen, dessen spektrale Leistungsdichte durch

$$S_{U_{\rm S,w}} = R_{\rm d}^2 S_{I_{\rm parallel}} + L_{\rm S}^2 V_{\Phi}^2 S_{I_{\rm serie}}$$

$$\tag{4.15}$$

gegeben ist. Hierbei ist L_S die Induktivität der SQUID-Leiterschleife und R_d und V_{Φ} sind der in den Gleichungen 4.5 und 4.1 definierte differenzielle Widerstand sowie der in Gleichung 4.3 definierte Fluss-zu-Spannungs-Transferkoeffizient des SQUIDs am Arbeitspunkt. Über den Fluss-zu-Spannungs-Transferkoeffizienten V_{Φ} kann das Spannungsrauschen dann in ein scheinbares intrinsisches Flussrauschen

$$S_{\Phi_{\rm S,w}} = \frac{S_{U_{\rm S,w}}}{V_{\Phi}^2}$$
(4.16)

umgerechnet werden.

In [Tes77] und [Bru82] wurden die optimalen SQUID-Parameter für ein dc-SQUID mit Shunt-Widerständen numerisch bestimmt. Die durchgeführten Simulationen haben hierbei ergeben, dass das Spannungsrauschen für den Fall, dass der Hystereseparameter $\beta_1 = 2L_S I_c/\Phi_0$ sowie der Stewart-McCumber Parameter $\beta_c = 2\pi R^2 I_c C/\Phi_0$ jeweils den Wert $\beta_1, \beta_c \approx 1$ annehmen, durch $S_{U_{S,w}} \approx 18k_BTR$ gegeben ist, wobei Cdie Kapazität eines Josephson-Kontakts bezeichnet. Ferner ergibt sich in diesem Fall für den Fluss-zu-Spannungs-Transferkoeffizienten der Ausdruck $V_{\Phi} = R/L_S$, sodass für die spektrale Leistungsdichte des scheinbaren intrinsischen Flussrauschen eines optimierten SQUIDs der Ausdruck

$$S_{\Phi_{\rm S,w}} \approx 18k_{\rm B}T \frac{L_{\rm S}^2}{R} \tag{4.17}$$

folgt. Aufgrund der schwachen Elektron-Phonon-Kopplung bei den geringen Betriebstemperaturen metallischer magnetischer Kalorimeter von unter 100 mK verursacht die Leistungsdissipation in den Shunt-Widerständen allerdings Selbsterwärmungseffekte, die deren Temperatur typischerweise auf einen Wert oberhalb von 100 mK begrenzen [Wel94]. Für typische Werte der SQUID-Induktivität und der Shunt-Widerstände von $L_{\rm S} \approx 100 \,\mathrm{pH}$ und $R \approx 5\,\Omega$ sowie einer Temperatur der Shunt-Widerstände von $T \approx 150 \,\mathrm{mK}$ ergibt sich somit ein weißes SQUID-Rauschen von etwa $\sqrt{S_{\Phi_{\rm S,w}}} \approx 0.1 \,\mu \Phi_0 / \sqrt{\text{Hz}}$. Auch wenn eine weitere Reduktion dieser Temperatur grundsätzlich physikalisch möglich ist, kann das weiße SQUID-Rauschen dennoch nicht beliebig reduziert werden, da es aufgrund der Heisenbergschen Unschärferelation auf ein fundamentales Limit von

$$\frac{S_{\Phi_{\rm S,w}}}{2L_{\rm S}} \ge \hbar \tag{4.18}$$

begrenzt ist, wobe
i \hbar das reduzierte Plancksche Wirkungsquantum bezeichnet.

Niederfrequentes SQUID-Rauschen

Zusätzlich zu dem im vorigen Unterabschnitt diskutierten weißen Rauschen der Shunt-Widerstände wurde in SQUIDs noch ein weiterer Beitrag

$$S_{\Phi_{\mathrm{S},1/f}} \propto \frac{1}{f^{\alpha}}$$
 (4.19)

zum Flussrauschen gefunden, der sich ungefähr proportional zur inversen Frequenz verhält und daher häufig als 1/f-Rauschen bezeichnet wird. Der Exponent α kann dabei allerdings auch von 1 abweichende Werte annehmen. Anders als bei dem weißen Rauschen ist die Ursache dieses Rauschbeitrags noch nicht vollständig verstanden. Mögliche Verursacher eines Flussrauschens mit einer derartigen Frequenzabhängigkeit können einerseits externen Ursprungs sein, wie beispielsweise Bewegungen von Flussschläuchen, die in den SQUID-Strukturen gefangen sind oder magnetische Verunreinigungen im SQUID selbst oder in der Nähe des SQUIDs. Diese externen Quellen sind stark vom Design und der Fabrikation des SQUIDs abhängig und vermeidbar. Des Weiteren können auch die Josephson-Kontakte selbst Ursprung eines 1/f-artigen Rauschbeitrags sein, zum Beispiel aufgrund von Defekten in der Tunnel-Barriere oder Fluktuationen der Tunnel-Leitfähigkeit, die durch zufälliges Einfangen und Freilassen von Elektronen in der Tunnel-Barriere entstehen können und Fluktuationen des kritischen Stromes zur Folge haben [Rog83, Wak86]. Auch diese Rauschquellen können durch eine Optimierung der Fabrikationsprozesse minimiert werden. Da zudem die Amplitude des durch die genannten Quellen verursachten 1/f-Rauschens mit sinkender Temperatur abnimmt, ist dieses bei den geringen Betriebstemperaturen metallischer magnetischer Kalorimeter zudem typischerweise vernachlässigbar [Wel04, Gra11].

Darüber hinaus findet sich bei SQUIDs allerdings noch ein weiterer 1/f-artiger

Rauschbeitrag [Koc83, Wel87] mit der spektralen Leistungsdichte

$$S_{\Phi_{S,1/f}}(f) = S_{\Phi_{S,1/f}}(1 \text{ Hz}) \left(\frac{1 \text{ Hz}}{f}\right)^{\alpha},$$
 (4.20)

der als niederfrequentes magnetisches Zusatz-Flussrauschen bezeichnet wird und dessen Ursprung noch unbekannt ist. Da der Exponent α mit sinkender Temperatur steigt, ist dieser Beitrag bei tiefen Temperaturen typischerweise der dominierende niederfrequente Rauschbeitrag eines SQUIDs. Mögliche Ursachen des niederfrequenten Zusatz-Flussrauschens sind in [Kem16] zusammengefasst. Beim Vergleich der bei verschiedenen Temperaturen gemessenen Rauschspektren unterschiedlicher SQUIDs, die mit unterschiedlichen Materialien und Fabrikationsanlagen an verschiedenen Orten hergestellt wurden, konnten dort erstmals Anzeichen für ein universelles Verhalten sowie für eine Material- und SQUID-Typ-Abhängigkeit des niederfrequenten Zusatz-Flussrauschens gefunden werden. So wurden bei Temperaturen zwischen 20 mK und 800 mK für den Exponenten α unterschiedliche Werte-Bereiche, je nach verwendeten Materialien und SQUID-Typ gefunden, die für Einzel-SQUIDs zwischen 0,50 und 0,82 und für SQUID-Arrays zwischen 0,34 und 1,41 lagen. Folglich sollte der Exponent α bei jedem SQUID-Aufbau individuell gemessen werden. In dem untersuchten Temperaturbereich beträgt die Amplitude des 1/f-Rauschens eines dc-SQUIDs bei einer Frequenz von 1 Hz typischerweise etwa $\sqrt{S_{\Phi_{S,1/f}}(1 \text{ Hz})} \approx 5 \,\mu \Phi_0 / \sqrt{\text{Hz}}.$

Gesamtrauschen eines SQUID-Aufbaus mit Flussrückkopplungs-Schaltung

Wird das zur Auslesung eines magnetischen Kalorimeters verwendete SQUID mit der in Abschnitt 4.1.1 diskutierten einstufigen Flussrückkopplungs-Schaltung betrieben, so verursacht die bei Raumtemperatur betriebene Auslesungselektronik ein Spannungsrauschen $S_{U_{\text{El}}}$ sowie ein Stromrauschen $S_{I_{\text{El}}}$, die jeweils als scheinbarer Beitrag zum Flussrauschen wahrgenommen werden. Diese zusätzlichen Rauschbeiträge und das intrinsische SQUID-Rauschen $S_{\Phi_{\text{S}}}$ addieren sich inkohärent zu einem scheinbaren Gesamt-Flussrauschen mit der spektralen Leistungsdichte

$$S_{\Phi_{\rm S,FLL1}} = S_{\Phi_{\rm S}} + \frac{S_{U_{\rm El}}}{V_{\Phi}^2} + \frac{S_{I_{\rm El}}}{I_{\Phi}^2}.$$
(4.21)

Das Spannungsrauschen der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Auslesungselektronik⁴ ist in [Dru06] diskutiert. Bei hohen Frequenzen f > 100 Hz wird es von einem weißen Beitrag von etwa $\sqrt{S_{U_{\rm El}}} \approx 0.33 \,\mathrm{nV}/\sqrt{\mathrm{Hz}}$ dominiert. Für Frequenzen f < 100 Hz ist der weiße Rauschbeitrag um etwa 50 % größer. Bei tiefen Frequenzen f < 1 Hz dominiert ein 1/f-Rauschen, das bei einer Frequenz von 0.1 Hz etwa

⁴Modell XXF-1, Magnicon GmbH - Barkhausenweg 11, 22339 Hamburg, Deutschland

 $\sqrt{S_{U_{\rm El}}} \approx 0.8 \,\mathrm{nV}/\sqrt{\mathrm{Hz}}$ beträgt. Das weiße Stromrauschen der verwendeten Auslesungselektronik von $\sqrt{S_{I_{\rm El}}} \approx 2.6 \,\mathrm{pA}/\sqrt{\mathrm{Hz}}$ ist hierbei bei einem dynamischen Widerstand des Verstärker-SQUIDs von typischerweise etwa $R_{\rm d2} \approx 10 \,\Omega$ vernachlässigbar gering gegenüber dem Beitrag des Spannungsrauschens. Mit einem Fluss-zu-Spannungs-Transferkoeffizienten von typischerweise $V_{\Phi} \approx 100 \,\mu\mathrm{V}/\Phi_0$ resultiert aus dem Spannungsrauschen ein Flussrauschen mit einem weißen Beitrag von $3.3 \,\mu\Phi_0/\sqrt{\mathrm{Hz}}$ und einem 1/f-Beitrag von $8 \,\mu\Phi_0/\sqrt{\mathrm{Hz}}$ bei $0.1 \,\mathrm{Hz}$, das somit in einem großen Frequenzbereich das Gesamt-Flussrauschen der einstufigen Flussrückkopplungs-Schaltung dominiert.

Bei Verwendung der in Abschnitt 4.1.2 beschriebenen zweistufigen Flussrückkopplungs-Schaltung kommen zu dem in Gleichung 4.21 gegebenen Gesamtrauschen noch zusätzlich das thermische Rauschen des Widerstands $R_{\rm g}$, sowie das Flussrauschen $S_{\Phi_{S2}}$ des Verstärker-SQUIDs hinzu, welches durch die Fluss-zu-Fluss-Verstärkung G_{Φ} in seinem Einfluss reduziert wird. Der Beitrag der Raumtemperatur-Elektronik zum scheinbaren Flussrauschen im Detektor-SQUID wird dabei allerdings ebenfalls aufgrund der Fluss-zu-Fluss-Verstärkung reduziert. Insgesamt ergibt sich somit ein im Vergleich zu Gleichung 4.21 verringertes scheinbares Gesamtflussrauschen mit der spektralen Leistungsdichte

$$S_{\Phi_{\rm S,FLL2}} = S_{\Phi_{\rm S1}} + \frac{4k_{\rm B}TR_{\rm g}}{V_{\Phi1}^2} + \frac{S_{\Phi_{\rm S2}}}{G_{\Phi}^2} + \frac{S_{U_{\rm El}}}{V_{\Phi2}^2 G_{\Phi}^2} + \frac{S_{I_{\rm El}}}{I_{\Phi2}^2 G_{\Phi}^2}$$
(4.22)

der zweistufigen Flussrückkopplungs-Schaltung, wobei $V_{\Phi 1}$, $V_{\Phi 2}$ und $I_{\Phi 2}$ die Fluss-zu-Spannungs-Transferkoeffizienten des Detektor-SQUIDs und des Verstärker-SQUIDs sowie der Fluss-zu-Strom-Transferkoeffizient des Verstärker-SQUIDs sind.

4.2 Präparation des felderzeugenden Dauerstroms

Wie in Abschnitt 3.3.1 erläutert, wird das zur Ausrichtung der magnetischen Momente im Sensormaterial benötigte Magnetfeld bei den im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Detektoren von einem durch die mäanderförmigen Detektionsspulen fließenden Dauerstrom I_0 erzeugt. Zur Präparation dieses Dauerstroms besitzt eine der Verbindungsleitungen zwischen den Detektionsspulen eine langgezogene Ausbuchtung, die durch ein zusätzliches, im Folgenden als Feldleitungen bezeichnetes Leitungspaar kontaktiert wird. Über dem Ende dieser Ausbuchtung befindet sich ein Widerstand, der als Heizer dient und durch eine dünne nichtleitende Schicht elektrisch von der darunterliegenden Leitung isoliert ist. Zur elektrischen Kontaktierung des Heizerwiderstands dient ein weiteres Leitungspaar, das im Folgenden als Heizerleitungen bezeichnet wird. Die Ausbuchtung der Verbindungsleitungen mit dem daraufliegenden Heizerwiderstand wird im Rahmen dieser Arbeit auch als Dauerstromschalter bezeichnet.



Abb. 4.4: Schematische Darstellung der einzelnen Schritte zur Präparation des Dauerstroms in den Detektionsspulen. Hierbei sind supraleitende Leitungen mit durchgezogenen Linien und normalleitende Leitungen mit gestrichelten Linien dargestellt. Die von dem Feldstrom dominant durchflossenen Leitungen sind grün gezeichnet, während die von dem Heizerstrom durchflossenen Leitungen rot gezeichnet sind. Die Stromrichtung, die beliebig gewählt werden kann, ist hierbei beispielhaft durch Pfeile angedeutet.

Abbildung 4.4 zeigt schematisch die einzelnen Schritte der Präparation des felderzeugenden Dauerstroms, die bei einer Temperatur unterhalb der Sprungtemperatur der Detektionsspulen durchgeführt wird, sodass diese supraleitend sind. Wird zunächst ein Strom $I_{\rm F}$ in der Höhe des gewünschten Dauerstroms durch die Feldleitungen getrieben, so teilt sich dieser zwischen den Detektionsspulen und dem Dauerstromschalter gemäß der Induktivitäten auf, sodass fast der gesamte Strom, wie in Abbildung 4.4a) gezeigt, über den kurzen Weg durch den Dauerstromschalter fließt. Damit der Strom stattdessen über den langen Weg durch die Detektionsspulen fließt, wird dann zusätzlich für eine kurze Zeit, wie in Abbildung 4.4b) gezeigt, ein Strom $I_{\rm H}$ über die Heizerleitungen durch den Heizerwiderstand getrieben. Der Strom durch die Heizerleitungen wird dabei derart gewählt, dass die durch den Widerstand verursachte Leistungsdissipation zu einer lokalen Erwärmung der Leitungen in der direkten Umgebung des Widerstands auf eine Temperatur oberhalb der Sprungtemperatur führt. Dadurch wird der unter dem Widerstand liegende Teil der Leitung normalleitend, während die Detektionsspulen supraleitend bleiben. Geschieht dieser Schritt bei einer Detektortemperatur unterhalb der Sprungtemperatur der Verbindungsleitungen zwischen den Detektionsspulen und der Einkoppelspule des SQUIDs, so wird sich der Feldstrom $I_{\rm F}$ zwischen den Detektionsspulen und der Einkoppelspule gemäß den Induktivitäten aufteilen. Die Präparation des Dauerstroms wird daher in der Regel bei einer Temperatur oberhalb der Sprungtemperatur der Verbindungsleitungen zwischen Detektor und SQUID vorgenommen, bei der diese normalleitend sind, was in Abbildung 4.4 durch gestrichelte Linien dargestellt ist. Somit fließt der gesamte Strom $I_{\rm F}$ durch die Detektionsspulen, in denen er einen magnetischen Fluss

erzeugt. Sobald schließlich kein Strom mehr durch die Heizerleitungen getrieben wird, wird der Dauerstromschalter wieder supraleitend, sodass die Detektionsspulen wieder eine geschlossene supraleitende Schleife bilden, in der Flusserhaltung gilt. Wird nun die Stromstärke des von außen eingespeisten Feldstroms geändert, so wird in dem Dauerstromschalter ein Strom induziert, der einer Änderung des magnetischen Flusses innerhalb der Schleife entgegenwirkt und somit die Aufgabe der externen Stromquelle übernimmt. Wie in Abbildung 4.4c) gezeigt, fließt somit dauerhaft ein Strom in der Höhe $I_0 \approx I_F$ durch die Detektionsspulen, selbst wenn kein Strom mehr über die Feldleitungen eingespeist wird.

4.3 Konzept des experimentellen Aufbaus

Im Rahmen dieser Arbeit wurden verschiedene Experimente mit metallischen magnetischen Kalorimetern durchgeführt, bei denen experimentelle Aufbauten in unterschiedlichen Ausführungen verwendet wurden. Sie folgen jedoch alle dem gleichen Konzept, das in diesem Unterkapitel vorgestellt wird. Die Besonderheiten der einzelnen experimentellen Aufbauten werden jeweils im Kapitel des entsprechenden Experiments beschrieben.



Abb. 4.5: Schematische Darstellung des Grundkonzepts der experimentellen Aufbauten zum Betrieb metallischer magnetischer Kalorimeter. Zur besseren Sichtbarkeit der Detektorleitungen wurde auf eine Darstellung der Absorber des Detektors verzichtet und die Sensoren wurden in transparentem Orange gezeichnet.

Abbildung 4.5 zeigt exemplarisch eine schematische Darstellung eines Messaufbaus. Die hierbei eingesetzten Detektoren sind, ebenso wie die verwendeten SQUIDs, auf dünnen Substraten aus Silizium strukturiert. Diese werden auf Halterungen aufgeklebt, die, wie in Unterkapitel 4.4 beschrieben wird, in einem Kryostaten befestigt werden, der den gesamten Aufbau auf die benötigte Betriebstemperatur von unter 100 mK kühlt. Als Klebstoff wurden dabei im Rahmen dieser Arbeit unterschiedliche Materialien verwendet, welche sich im jeweiligen Kapitel des entsprechenden Experiments finden. Wie auf der linken Seite von Abbildung 4.5 zu sehen ist, wird der Detektor zusammen mit dem Detektor-SQUID auf einem gemeinsamen Halter aufgebracht. Bei Verwendung der in Abschnitt 4.1.2 beschriebenen zweistufigen dc-SQUID-Auslesung bietet es sich an, das Verstärker-SQUID wie in Abbildung 4.5 rechts gezeigt auf einem separaten Halter aufzubringen. Dadurch wird von diesem dissipierte Wärme von der Detektorhalterung ferngehalten, was insbesondere bei großen Detektorarrays, wie beispielsweise dem in Kapitel 6 beschriebenen Detektor MOCCA, für deren Auslesung viele SQUIDs benötigt werden, relevant ist.

Zur elektrischen Kontaktierung der Leitungen des Detektors und der SQUIDs wird auf beiden Halterungen jeweils eine mit Kupferbahnen und Steckern versehene Platine aufgeschraubt. Die Bahnen auf der Platine werden durch dünne ultraschallverschweißte Aluminiumdrähte mit den in Unterkapitel 4.2 diskutierten Feld- und Heizerleitungen des Detektors sowie mit den Leitungen der SQUIDs verbunden.

Ebenso werden auch die Leitungen der Detektionsspulen des Detektors durch Aluminiumdrähte mit der Einkoppelspule des Detektor-SQUIDs verbunden, welche sich, wie bereits in Abschnitt 4.1.1 erwähnt, genau wie die Rückkoppelspule direkt auf dem SQUID-Chip befindet. Die Verwendung von Drähten aus Aluminium, welche bei Temperaturen unterhalb von $T_{\rm c}({\rm Al}) = 1.2 \,{\rm K}$ supraleitend sind, hat dabei einerseits den Vorteil, dass die schlechte Wärmeleitfähigkeit der supraleitenden Drähte zur thermischen Separation zwischen Detektor und SQUID beiträgt. Andererseits erlaubt es die vergleichsweise geringe Sprungtemperatur der Aluminiumdrähte, die Präparation des Dauerstroms in den Detektionsspulen, wie in Unterkapitel 4.2 erläutert, bei einer Temperatur durchzuführen, bei der die aus Niob gefertigten Detektionsspulen selbst supraleitend sind, $T_{\rm c}({\rm Nb}) = 9.2 \,{\rm K}$, während die Verbindungsleitungen zwischen Detektionsspulen und Einkoppelspule normalleitend sind. Die durch die Aluminiumdrähte realisierten Verbindungsleitungen bringen allerdings eine, in Abschnitt 3.3.2 als $L_{\rm w}$ bezeichnete, zusätzliche parasitäre Induktivität mit sich, die eine Verschlechterung der in Gleichung 3.38 gegebenen Fluss-zu-Fluss-Kopplung $\Delta \Phi_{\rm S}/\Delta \Phi$ zwischen SQUID und Detektor und somit eine Verringerung des Signalzu-Rauschen-Verhältnisses zur Folge hat. Um die parasitäre Induktivität $L_{\rm w}$ gering zu halten, wird die elektrische Verbindung daher einerseits durch jeweils mindestens zwei parallel geschaltete Aluminiumdrähte hergestellt, andererseits wird ein sehr geringer Abstand zwischen Detektor und SQUID gewählt, um eine möglichst geringe Länge der Verbindungsdrähte erzielen zu können.

Die elektrische Verbindung zwischen Detektor-SQUID und Verstärker-SQUID wird, wie im jeweiligen Kapitel des entsprechenden Experiments erläutert, durch lackisolierte Drähte oder weitere Platinen hergestellt. Von dem gesamten zweistufigen SQUID-Aufbau führen insgesamt neun Leitungen zu der bei Raumtemperatur betriebenen Auslesungselektronik, von denen zwei zur Bereitstellung des Betriebsstroms des Detektor-SQUIDs und drei zum Betrieb sowie zur Auslesung des Verstärker-SQUIDs über eine Dreidrahtmessung dienen. Die weiteren Leitungen kontaktieren die Rückkoppelspule des Detektor-SQUIDs und die des Verstärker-SQUIDs, welche in Abbildung 4.3 zur Vereinfachung nicht eingezeichnet ist und mit der der magnetische Fluss im Verstärker-SQUID am Arbeitspunkt variiert werden kann. Genau wie die Leitungen, die die Feld- und Heizerleitungen des Detektors kontaktieren, sind diese Leitungen innerhalb des Kryostaten durch Kabel aus lackisolierten Drähten realisiert, die fest im jeweiligen Kryostaten montiert sind und in Unterkapitel 4.4 beschrieben werden.

Zusätzlich zu den hier diskutierten elektrischen Kontaktierungen werden zum Betrieb der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Detektoren auch thermische Kontaktierungen benötigt. Wie in Unterkapitel 3.1 erläutert, ist zur Abführung der Wärme, die durch einen Energieeintrag in die Detektoren eingebracht wird, eine schwache thermische Ankopplung der Sensoren an ein von dem Kryostaten gekühltes Wärmebad erforderlich. Zu diesem Zweck befinden sich auf den Detektorsubstraten große, mit Gold bedeckte Flächen, die über einen schwachen thermischen Kontakt mit den Sensoren verbunden sind. Diese Thermalisierungsflächen werden dann über eine möglichst gute thermische Verbindung an die Detektorhalterung angekoppelt. Im Rahmen dieser Arbeit wurde dafür eine Vielzahl dünner ultraschallverschweißter Golddrähte verwendet, die zusammengenommen einen so guten thermischen Kontakt bieten, dass die Wärmeleitung in der thermischen Verbindung zwischen Sensor und Thermalisierungsflächen die in Abschnitt 3.4.1 diskutierte Signalabklingzeit des Detektors bestimmt. Da die Detektorhalterung somit als Wärmebad dient und daher eine gute Wärmeleitfähigkeit haben sollte, wurden sämtliche im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Halterungen aus Kupfer gefertigt. Zur zusätzlichen Verbesserung der Wärmeleitfähigkeit wurden diese zudem nach der Fertigung getempert, was eine Reduktion der Gitterdefekte bewirkt. Darüber hinaus wurden alle Kontaktflächen zwischen einzelnen Komponenten der Kupferhalterung sowie die Kontaktflächen zum Kryostaten zur Verringerung des thermischen Kontaktwiderstands dünn mit Vakuumfett⁵ bestrichen.

Zusätzlich zu den in Abbildung 4.5 gezeigten Komponenten des experimentellen Aufbaus wird bei der Detektion von Röntgenphotonen oder massiven Teilchen in der Regel ein Kollimator über der Detektorhalterung angebracht, der nur die Absorber oder nur einen Teil der Absorber frei lässt und somit die SQUIDs sowie das Detektorsubstrat vor der zu detektierenden Strahlung abschirmt. Zur Abschirmung

⁵Apiezon N, M&I Materials Ltd., Hibernia Way, Stretford, Manchester M32 0ZD, Vereinigtes Königreich

des Aufbaus vor fluktuierenden externen Magnetfeldern werden zudem sowohl das Verstärker-SQUID als auch der Detektor zusammen mit dem Detektor-SQUID jeweils von einer supraleitenden Hülle umschlossen. Diese wirkt aufgrund der Flusserhaltung in geschlossenen supraleitenden Schleifen einer Änderung des magnetischen Flusses in ihrem Inneren entgegen. Bei den im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Messaufbauten wurde der Kollimator jeweils in Form eines oder mehrerer Löcher in der supraleitenden Hülle realisiert.

4.4 Kryostat

Zur Erzeugung der geringen Betriebstemperaturen magnetischer Kalorimeter von $T < 100 \,\mathrm{mK}$ wurden im Rahmen dieser Arbeit verschiedene ³He/⁴He-Verdünnungskryostaten verwendet. Das Funktionsprinzip eines solchen Kryostaten ist ausführlich in [Ens05, Pob07] erläutert und wird daher im Folgenden nicht näher beschrieben. Stattdessen werden hier nur die wichtigsten Gemeinsamkeiten der verwendeten Kryostaten zusammengefasst. Die Besonderheiten der verschiedenen Kryostaten werden dann im Kapitel des jeweiligen Experiments diskutiert.

Den kältesten Ort in jedem ³He/⁴He-Verdünnungskryostaten stellt die Mischkammer dar, die kontinuierlich Temperaturen im Millikelvin-Bereich erreichen kann. Diese befindet sich in einem guten thermischen Kontakt zu einer Plattform, die im Folgenden als Mischkammerplattform bezeichnet wird und bei allen im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Kryostaten aus getempertem Kupfer besteht, welches zum Schutz vor Oxidation vergoldet wurde. An dieser Plattform werden die Detektoren zusammen mit dem gesamten experimentellen Aufbau, dessen Konzept in Unterkapitel 4.3 vorgestellt wurde, befestigt.

Oberhalb der Mischkammerplattform besitzen die verwendeten Kryostaten mehrere weitere aufeinanderfolgende Plattformen mit schrittweise steigender Temperatur und Kühlleistung, die im Folgenden als Temperaturstufen bezeichnet werden. Die Temperaturen der einzelnen Plattformen werden dabei mit Widerstandsthermometern gemessen, die über eine Widerstandsmessbrücke⁶ ausgelesen werden. Die Kalibrierung⁷ des Widerstandsthermometers an der Mischkammerplattform, welches aus Ruthenium(IV)-oxid (RuO₂) besteht, wurde jeweils mithilfe eines Rauschthermometers [Net07, Rot13, Müc16, Stä18] überprüft. Auf der Mischkammer ist darüber hinaus ein Heizer angebracht, der von einem PID-Regler gesteuert wird und somit eine Regelung und Stabilisierung der Temperatur der Mischkammerplattform ermöglicht.

Zur Abschirmung der Mischkammer vor Wärmestrahlung ist diese von 3 zwiebelartig

⁶Lake Shore Cryotronics, Inc., 575 McCorkle Boulevard, Westerville, Ohio 43082, USA

⁷durchgeführt von BlueFors Cryogenics Oy, Arinatie 10, 00370 Helsinki, Finnland

angeordneten Strahlungsschilden umgeben, die thermisch an den einzelnen Temperaturstufen des Kryostaten bei Temperaturen von etwa 50 K, 4 K und 0,75 K angekoppelt sind. Der Platz für den im Kryostaten befestigten experimentellen Aufbau ist dabei durch die Maße des innersten Strahlungsschilds limitiert, welches somit das Experimentiervolumen des Kryostaten vorgibt. Der gesamte Aufbau wird von einem Vakuumtopf umschlossen, sodass sich alle beim Betrieb des Kryostaten kalten Bauteile in einem Isolationsvakuum befinden.

Zur Kontaktierung der Detektoren und SQUIDs führen von der bei Raumtemperatur außerhalb des Kryostaten betriebenen Auslesungselektronik mehrere Kabel aus lackisolierten Drähten durch Vakuumdurchführungen in das Innere des Vakuumtopfs bis hinab zu der Mischkammerplattform. In den verschiedenen im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Kryostaten wurden dabei Drähte aus unterschiedlichen, im jeweiligen Kapitel des entsprechenden Experiments beschriebenen Materialien montiert. Die beiden Drähte eines hin- und zurücklaufenden Leitungspaares sind dabei jeweils miteinander verdrillt, ebenso wie die drei Drähte zum Betrieb und zur Auslesung des Verstärker-SQUIDs über eine Dreidrahtmessung, wodurch mögliche Störungen durch das Einkoppeln fluktuierender externer Magnetfelder minimiert werden. Um den Wärmeeintrag der Kabel auf der Mischkammerplattform gering zu halten, sind diese zudem thermisch gut an den einzelnen Temperaturstufen des Kryostaten angekoppelt.

4.5 Datenaufnahme und -analyse

Wie in den Unterkapiteln 3.1 und 4.1 erläutert wurde, resultiert ein Energieeintrag im Detektor in einem Spannungssignal am Ausgang der verwendeten SQUID-Elektronik. Zur Aufzeichnung dieser Signale wurden im Rahmen dieser Arbeit einerseits ein ausführlich in [Sch00] beschriebenes, auf einem Analog-Digitalwandler⁸ basierendes zwei-Kanal-Datenaufnahmesystem und andererseits ein in [Hen17] eingerichtetes 32-Kanal-Datenaufnahmesystem, welches auf zwei 16-Kanal-Analog-Digitalwandlern⁹ basiert, verwendet. Für jedes getriggerte Spannungssignal wurde dabei ein Zeitfenster mit 16.384 Datenpunkten aufgenommen, wobei jeweils etwa ein Viertel bis die Hälfte des Zeitfensters für vor dem Triggerzeitpunkt gemessene Spannungswerte verwendet wurde. Im Falle eines nicht perfekt gradiometrischen Detektors enthält dieses vor dem Auslösen des Triggers aufgenommene Spannungssignal Informationen über die Detektortemperatur zum Zeitpunkt des Energieeintrags.

Die Amplituden der auf diese Weise gemessenen Signale verhalten sich, wie in Unterkapitel 3.1 erläutert wurde, in guter Näherung proportional zur eingetragenen

⁸CompuScope 12100, GaGe, 900 North State Street, Lockport, IL 60441, USA

⁹SIS3316, Struck Innovative Systeme GmbH, Harksheider Str. 102, 22399 Hamburg

Energie. Die relativen Amplituden wurden entweder durch die Anpassung eines Mustersignals durch vertikale Streckung und Verschiebung an die einzelnen gemessenen Signale, oder durch Verwendung der in [Mos84, Fle03, McC05] beschriebenen Methode des optimalen Filterns, ermittelt.

Da die Gesamtwärmekapazität des Detektors, ebenso wie die Temperaturabhängigkeit der Sensormagnetisierung allerdings von der Betriebstemperatur des Detektors abhängen, sind auch die Amplituden der gemessenen Signale abhängig von der Temperatur. Somit haben Temperaturschwankungen eine Variation der Signalamplitude zur Folge, welche in einer Verbreiterung der gemessenen Energieauflösung resultieren kann. Diese Temperaturabhängigkeit der Amplituden wurde daher jeweils unter der Annahme einer linearen Korrelation zwischen Detektortemperatur und Signalamplitude korrigiert. 4. Experimentelle Methoden

5. Detektion massiver Teilchen

Mikrokalorimeter werden derzeit oftmals für die hochaufgelöste Gamma- und Röntgenspektroskopie (z.B. [Rot08, Fle09b, Jac09, Pie12a, Por14, Ull15]) entwickelt, bei der Photonen hauptsächlich über den Photoeffekt im Absorber absorbiert werden und ihre gesamte Energie in diesem deponieren. Der im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Detektor soll hingegen an dem in Kapitel 2 diskutierten kryogenen Speicherring CSR zur Detektion neutraler Molekülfragmente mit kinetischen Energien im Bereich einiger keV eingesetzt werden.

Im Vergleich zu der Detektion von keV-Röntgenphotonen, bei der Mikrokalorimeter Energieauflösungen in der Größenordnung von 1 eV erzielen können [Fle09a, Smi12, Por14, Kem18], wurde bei der Detektion massiver atomarer und molekularer Teilchen in der Vergangenheit bereits eine Verbreiterung der gemessenen Linienbreite festgestellt. So wurden in [Fra99] die Anwendung von Mikrokalorimetern in der Massenspektrometrie von Biomolekülionen diskutiert sowie die dabei mit drei unterschiedlichen Mikrokalorimetern erzielten Energieauflösungen bei Ionenenergien zwischen 6 keV und 30 keV verglichen. Als Materialien zur Absorption der Biomoleküle wurden dabei Niob [Fra96, Ben97], Zinn [Twe96] und Silber [Hil98] verwendet. Die erreichte Energieauflösung war hierbei jeweils um etwa einen Faktor 10 schlechter als die erwartete Energieauflösung, welche anhand der bei der Detektion von 6 keV-Röntgenphotonen gemessenen Energieauflösung extrapoliert wurde. Das Zustandekommen dieser Verschlechterung der Energieauflösung wurde dort allerdings nicht weiter untersucht. Auch bei der Detektion von α -Teilchen mit kinetischen Energien von etwa 5,5 MeV wurden, verglichen mit der Detektion von Photonen, bereits verschlechterte Energieauflösungen beobachtet. Dabei ergab sich in [Hor10] bei der Verwendung von Mikrokalorimetern mit Absorbern aus Zinn eine um etwa 960 eV verschlechterte Energieauflösung von etwa 1,1 keV, während bei der Verwendung von metallischen magnetischen Kalorimetern mit Absorbern aus Gold Energieauflösungen von etwa 2,8 keV [Ran11] und etwa 1,2 keV [Yoo15] gemessen wurden. Die Detektion schwerer Ionen mit noch höheren kinetischen Energien im MeV- und GeV-Bereich in Absorbern aus Saphir wurde in [Ege05] diskutiert. Während für ¹³C-, $^{197}\mathrm{Au-}$ und $^{238}\mathrm{U}\text{-Ionen}$ mit Energien zwischen 20 MeV und 60 MeV dort jeweils eine relative Energieauflösung von $\Delta E/E \approx 7 \cdot 10^{-3}$ erzielt wurde, ergab sich bei der Detektion von ²³⁸U-Ionen aus einem gekühlten Ionenstrahl mit einer Energie von $85,7 \,\text{GeV}$ eine relative Energieauflösung von $1,1 \cdot 10^{-3}$.

Als mögliche Ursache für die beobachtete Verschlechterung der Energieauflösung kommen hierbei die in Abschnitt 5.1.2 diskutierten Festkörpereffekte Rückstreuung, Sputtern und die Erzeugung von Gitterdefekten infrage, die bei der Absorption massiver Teilchen in Festkörpern auftreten können und allesamt dazu führen, dass ein Teil der kinetischen Energie der Teilchen im Absorber nicht in Wärme umgewandelt wird und somit bei der energieaufgelösten Teilchendetektion fehlt. Eine statistische Variation der fehlenden Energie kann dabei in einer vergrößerten gemessenen Linienbreite resultieren. In [Hor10] wurde die Erzeugung von Gitterdefekten im Absorbermaterial als Hauptursache für die Verschlechterung der Energieauflösung diskutiert und anhand von Simulationen mit dem Programm SRIM¹ untersucht. Die aufgrund dieser Simulationen erwartete Verschlechterung der Energieauflösung um 650 eV unterschätzt den dort experimentell gefundenen Wert allerdings um etwa 32 %. Auch in [And86] wurden die bei der Detektion massiver Teilchen mit Mikrokalorimetern potentiell auftretenden Festkörpereffekte theoretisch untersucht. Die durch diese Effekte verursachte Verschlechterung der Energieauflösung wurde dort für vier verschiedene Absorbermaterialien – Diamant, Aluminium, Kupfer und Niob – und für drei verschiedene, mit unterschiedlichen kinetischen Energien auftreffende atomare Teilchen – Kupferionen mit $E_{\rm kin} = 100 \,\rm keV$, Heliumionen mit $E_{\rm kin} = 5.5 \,\rm MeV$ und Bromionen mit $E_{\rm kin} = 25 \,{\rm MeV}$ – berechnet. Während sich hierbei für 100 keV-Kupferionen Werte zwischen 60 keV und 85 keV und für 5,5 MeV-Heliumionen Werte zwischen 1,0 keV und 2,2 keV ergaben, lag die berechnete Verschlechterung der Energieauflösung im Fall von 25 MeV-Bromionen sogar zwischen 290 keV und 715 keV.

Wie die hier erwähnten experimentellen sowie theoretischen Ergebnisse zeigen, können die bei der Detektion massiver Teilchen auftretenden Festkörpereffekte die erreichbare Energieauflösung von Mikrokalorimetern limitieren. Da die gemessene kinetische Energie $E_{\rm kin,f}$ eines am CSR erzeugten Molekülfragments wie in Kapitel 2 erläutert zur Bestimmung der Fragmentmasse $m_{\rm f}$ und somit zur Teilchenidentifikation genutzt werden soll, wird die erreichbare Massenauflösung $\Delta m_{\rm f} \approx m_{\rm i} \Delta E_{\rm kin,f}/E_{\rm kin,i}$ in diesem Fall durch die Energieauflösung $\Delta E_{\rm kin,f}$ begrenzt. Mit einer Energieauflösung von $\Delta E_{\rm kin,f} = 1 \,\mathrm{keV}$ wäre bei der Fragmentation eines Molekülions mit einer Masse von $m_{\rm i} = 160 \,\mathrm{u}$ beispielsweise für Ionenstrahlenergien $E_{\rm kin,i} \geq 160 \,\mathrm{keV}$ eine Massenauflösung von $\Delta m_{\rm f} \leq 1 \,\mathrm{u}$ und somit eine Identifikation sämtlicher potentiell entstehender Fragmente möglich.

Um eine Abschätzung der am CSR erreichbaren Energieauflösung zu ermöglichen, werden systematische Studien zur Untersuchung der bei der Detektion atomarer und molekularer Teilchen mit metallischen magnetischen Kalorimetern auftretenden Festkörpereffekte benötigt. Im Rahmen dieser Arbeit wurden die dadurch verursachten Energieverluste bei der Messung der Teilchenenergie und die potentielle Verschlechterung der Energieauflösung daher in Abhängigkeit von der Energie, Masse und Art der zu detektierenden Teilchen sowie in Abhängigkeit vom Absorbermaterial anhand

¹SRIM - The Stopping and Range of Ions in Matter, lizenzfreie Software, www.srim.org
von Simulationen sowie einer experimentellen Studie untersucht. In diesem Kapitel werden zunächst die unterschiedlichen Absorptionsmechanismen bei der Detektion von Photonen und massiven Teilchen sowie die bei der Detektion massiver Teilchen zusätzlich auftretenden Festkörpereffekte kurz zusammengefasst. Nach der Diskussion der Simulationsergebnisse werden dann der experimentelle Aufbau und die experimentellen Ergebnisse der durchgeführten Messungen vorgestellt. Zuletzt werden mögliche Langzeitauswirkungen auf die Absorber von Mikrokalorimetern infolge der Detektion massiver Teilchen am CSR diskutiert.

5.1 Mechanismen der Teilchenabsorption

Wie bereits in Unterkapitel 3.1 erläutert, deponieren auf den Absorber eines metallischen magnetischen Kalorimeters auftreffende massive Teilchen ebenso wie auftreffende Röntgenphotonen einen Teil $\Delta E_{\rm kin} < E_{\rm kin}$ beziehungsweise $\Delta E_{\gamma} = E_{\gamma}$ ihrer Energie im Absorber, der dann von dem Kalorimeter in eine messbare Magnetisierungsänderung umgewandelt wird. Da hierbei unterschiedliche Absorptionsmechanismen zugrunde liegen, werden im Folgenden zunächst kurz die Unterschiede zwischen der Absorption von Röntgenphotonen und der Absorption massiver Teilchen erläutert.

5.1.1 Absorption von Röntgenphotonen

Die Absorption von Röntgenstrahlung $E_{\gamma} \lesssim 100 \,\mathrm{keV}$ in Festkörpern geschieht in erster Linie über den Photoeffekt, wobei zunächst ein hochenergetisches Elektron entsteht. Die darauf folgenden Thermalisierungsprozesse sind ausführlich in [Koz00, Koz12] diskutiert und werden Folgenden kurz zusammengefasst. Das Photoelektron verliert seine Energie sehr schnell durch Elektron-Elektron-Streuung, sodass die durchschnittliche Energie der athermischen Elektronen nach bereits etwa 10^{-13} s in der Größenordnung von 1 eV liegt. Anschließend erfolgt der Energieverlust vorwiegend durch Erzeugung hochfrequenter Phononen, die dann durch Wechselwirkung mit den Leitungselektronen thermalisieren. Im weiteren Verlauf der Thermalisierung wird die meiste Energie an das Elektronensystem zurückgegeben, welches bei tiefen Temperaturen eine deutlich größere Wärmekapazität als das System der Phononen besitzt. Zu dem Zeitpunkt, zu dem die Elektronen eine Temperatur von etwa 1 K erreichen, hat sich die durch ein Röntgenphoton deponierte Energie im Absorber über ein Volumen von wenigen Kubikmikrometern ausgebreitet. Die weitere Thermalisierung innerhalb des Absorbers erfolgt schließlich über Wärmediffusion.

Da es sich bei der Absorption von Röntgenstrahlung in Festkörpern um einen statistischen Effekt handelt, lässt sich anstelle der Eindringtiefe eines Röntgenphotons



Abb. 5.1: Wahrscheinlichkeit der Absorption eines senkrecht auf einen Absorber auftreffenden Röntgenphotons innerhalb des Absorbervolumens in Abhängigkeit von der Photonenenergie für verschiedene Absorberdicken und -materialien (Daten aus [Hub04]).

innerhalb des Absorbers nur der Anteil der innerhalb des Absorbervolumens absorbierten Photonen an der Gesamtzahl der auftreffenden Photonen berechnen. Die so definierte Absorptionswahrscheinlichkeit hängt dabei von dem Material und der Dicke des Absorbers sowie von der Energie der zu detektierenden Photonen ab. Abbildung 5.1 zeigt die Abhängigkeit der Absorptionswahrscheinlichkeit von der Photonenenergie für drei Absorber aus Gold mit Dicken von $2 \,\mu m$, $20 \,\mu m$ und $200 \,\mu m$, sowie für zwei weitere 200 µm dicke Absorber aus Silber und Aluminium. Die nicht absorbierten Photonen deponieren keine Energie innerhalb des Absorbers und werden somit nicht vom Detektor registriert. Je nach Energie der zu detektierenden Photonen sind demnach unterschiedlich dicke Absorber nötig, um eine ausreichend hohe Absorptionseffizienz zu erreichen. Wird beispielsweise ein Detektor mit Absorbern aus Gold zur Detektion von Röntgenphotonen mit einer Energie von 60 keV genutzt, so werden bei einer Absorberdicke von $2\,\mu m$ gerade einmal etwa $1.7\,\%$ der eintreffenden Photonen innerhalb des Absorbers gestoppt und somit detektiert. Bei 20 µm dicken Absorbern steigt dieser Wert auf etwa 16 %, während bereits eine Absorberdicke von 200 μ m nötig ist, um eine Absorptionswahrscheinlichkeit von etwa 83 % zu erreichen. Da zudem eine hohe Absorptionswahrscheinlichkeit durch eine hohe Teilchendichte sowie eine hohe Kernladungszahl des Absorbermaterials erreicht werden kann, ist Gold als Absorbermaterial zur Detektion von Röntgenphotonen besonders gut geeignet. Während beispielsweise in einem $200\,\mu\text{m}$ dicken Absorber aus Silber noch etwa 70% der $60 \,\mathrm{keV}$ -Photonen gestoppt werden, reduziert sich diese Zahl bei der Verwendung von Aluminium auf nur noch etwa 1,5%.

5.1.2 Absorption von massiven Teilchen

Massive Teilchen verhalten sich beim Durchqueren von Materie fundamental anders als Röntgenphotonen. Trifft ein zu detektierendes atomares Teilchen auf den Absorber eines metallischen magnetischen Kalorimeters, so dringt es bis zu einer bestimmten Tiefe in das Absorbermaterial ein. Die mittlere Eindringtiefe, die dabei von der Masse und Energie des auftreffenden Teilchens sowie vom Absorbermaterial abhängt, ist allerdings in der Regel um mehrere Größenordnungen geringer als die Halbwertslänge von Röntgenphotonen der gleichen Energie. So werden beispielsweise, wie in Unterkapitel 5.2 gezeigt, sämtliche am CSR erzeugten Molekülfragmente mit Energien $E_{\rm kin} \leq 300 \,\rm keV$ bereits innerhalb der obersten 2 µm eines Absorbers aus Gold gestoppt. Bei der Detektion massiver atomarer sowie molekularer Teilchen sind daher bereits sehr dünne Absorber ausreichend um die zu detektierenden Teilchen vollständig zu stoppen.

Die sehr unterschiedlichen Bremsvermögen eines Absorbers bei der Detektion von Röntgenphotonen und massiven Teilchen resultieren hierbei aus den unterschiedlichen Absorptionsmechanismen. Ein eindringendes atomares Teilchen verliert auf seiner Trajektorie innerhalb des Absorbers seine kinetische Energie durch Wechselwirkungen mit den Elektronen des Absorbermaterials und Stöße mit den Absorberatomen, wobei es zu einer Erzeugung von Phononen sowie zu einer Anderung der Bewegungsrichtung des eindringenden Teilchens kommt. Übersteigt der Energieübertrag auf die Absorberatome dabei deren Versetzungsenergie $E_{\rm v}$ innerhalb des Kristallgitters des Absorbers, so können diese von ihren regulären Gitterplätzen im Absorber gestoßen werden, woraufhin sie die so gewonnene kinetische Energie ebenfalls durch Stöße mit weiteren Absorberatomen verlieren. Im Idealfall werden diese Absorberatome schließlich wieder auf regulären Gitterplätzen im Kristallgitter des Absorbers eingebaut und das eindringende Teilchen wird innerhalb des Absorbervolumens gestoppt, wo es als Fremdatom zurückbleibt und somit seine gesamte kinetische Energie, abzüglich seiner vernachlässigbar kleinen potentiellen Energie im Kristallgitter des Absorbers, in Form von Wärme im Absorber deponiert.

Der hier beschriebene Idealfall einer verlustfreien Teilchendetektion ist allerdings extrem unwahrscheinlich, da es in der Realität infolge der Kollisionen des eintreffenden Teilchens mit Absorberatomen, beziehungsweise der Kollisionen der Absorberatome untereinander zu verschiedenen Festkörpereffekten kommen kann, die dazu führen, dass nicht die gesamte kinetische Energie des Teilchens in Wärme umgewandelt wird. Diese Festkörpereffekte sind in Abbildung 5.2 stark vereinfacht schematisch dargestellt und werden im Folgenden erläutert.



Abb. 5.2: Schematische Darstellungen der bei der Absorption eines atomaren Teilchens in einem Absorber potentiell auftretenden Festkörpereffekte: a) Rückstreuung des auftreffenden Teilchens, b) Sputtern von Absorberatomen und c) Erzeugung von Gitterdefekten im Absorber. Die Skizzen zeigen jeweils schematisch einen Ausschnitt aus dem Kristallgitter des Absorbers, dessen Atome in Gelb dargestellt sind, sowie das in Rot dargestellte auf den Absorber auftreffende Teilchen. Die Trajektorien der einzelnen Atome sind dabei durch Pfeile entsprechender Farben symbolisiert. Ursprünglich besetzte Gitterplätze im Absorber, die infolge des jeweiligen Prozesses frei werden, sind durch Kreise dargestellt.

Rückstreuung des auftreffenden Teilchens

Kollidiert ein in den Absorber eintretendes massives Teilchen mit Absorberatomen, so kann es dabei so stark von seiner ursprünglichen Bewegungsrichtung abgelenkt werden, dass es wie in Abbildung 5.2a) schematisch dargestellt den Absorber wieder verlässt und zurückgestreut wird. Dabei nimmt es einen Teil seiner ursprünglichen kinetischen Energie mit sich, der somit nicht zur Erwärmung des Absorbers beiträgt und bei der Messung der Teilchenenergie fehlt.

Sputtern von Absorberatomen

Des Weiteren kann bei Kollisionen des zu detektierenden Teilchens oder gestreuter Absorberatome mit Atomen an der Absorberoberfläche so viel Energie auf diese übertragen werden, dass sie wie schematisch in Abbildung 5.2b) gezeigt den Absorber verlassen, wobei sie ihre kinetische Energie wegtragen. Ein solches Entfernen von oberflächennahen Absorberatomen, das auch als Sputtern bezeichnet wird, führt somit nicht nur zu einem Verlust von Absorbermaterial, welcher in Unterkapitel 5.5 diskutiert wird, sondern auch zu einer reduzierten Erwärmung des Absorbers und zu einer Verringerung der gemessenen Energie. Wie in Abschnitt 5.2.2 erläutert wird, ist dabei eine besonders hohe Anzahl gesputterter Absorberatome zu erwarten, wenn die Masse des auftreffenden Teilchens ungefähr der Masse der Absorberatome entspricht.

Erzeugung von Gitterdefekten

Wie in Abbildung 5.2c) vereinfacht dargestellt, kann ein gestreutes Absorberatom, das von einem regulären Platz im Kristallgitter des Absorbers gestoßen wurde, schließlich auch auf einem Zwischengitterplatz landen, sodass der ursprünglich besetzte reguläre Gitterplatz frei bleibt. Ein solcher Gitterdefekt bestehend aus einem leeren regulären Gitterplatz und einem Absorberatom auf einem benachbarten Zwischengitterplatz wird als Frenkel-Paar bezeichnet.



Abb. 5.3: Schematische Darstellung der potentiellen Energie eines Atoms im Kristallgitter eines Absorbers in Abhängigkeit von der Position in einer der Kristallrichtungen. Zusätzlich ist hier die Lage eines Absorberatoms in diesem Potential dargestellt, welches von einem regulären Gitterplatz entfernt wird und schließlich auf einem Zwischengitterplatz landet, wodurch ein Frenkel-Paar entsteht.

Abbildung 5.3 zeigt schematisch den räumlichen Verlauf der potentiellen Energie eines Kristallgitters mit regulären Gitterplätzen und Zwischengitterplätzen in eine der Kristallrichtungen. Zur Veranschaulichung ist hier zudem der Prozess der Entfernung eines Absorberatoms von einem regulären Gitterplatz skizziert, wofür die potentielle Energie $E_{\rm v}$ benötigt wird. Das skizzierte Absorberatom landet hierbei schließlich auf einem Zwischengitterplatz. Während ein Großteil der so entstehenden Frenkel-Paare bei Raumtemperatur sehr schnell rekombinieren würde [Kin55, Vog74], sind diese bei den geringen Betriebstemperaturen der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Mikrokalorimeter sehr stabil [dW75]. Die potentielle Frenkel-Paar-Energie $E_{\rm FP}$ ist somit zunächst in dem um den Defekt herum angespannten Kristallgitter gespeichert und wird daher bei der Teilchendetektion nicht in Wärme umgewandelt, sodass sie bei der Messung der Teilchenenergie fehlt. Ein zu detektierendes massives Teilchen kann auf seiner Trajektorie durch den Absorber mehrere hundert solcher Gitterdefekte erzeugen. Die genaue Anzahl der erzeugten Frenkel-Paare variiert dabei statistisch von Teilchen zu Teilchen, ebenso wie die dadurch insgesamt bei der Messung fehlende Energie. Die Erzeugung von Frenkel-Paaren im Absorber bei der Detektion massiver Teilchen kann somit eine Vergrößerung der gemessenen Linienbreite sowie eine Verschiebung der mittleren gemessenen Teilchenenergie hin zu niedrigeren Energien zur Folge haben.

5.2 Simulation

Um den Einfluss der im vorigen Unterkapitel beschriebenen Festkörpereffekte auf die bei der Detektion massiver Teilchen gemessenen Energiespektren sowie die erreichbare Energieauflösung abschätzen zu können, wurde im Rahmen dieser Arbeit das Abbremsen verschiedener energetischer Ionen in unterschiedlichen Absorbermaterialien simuliert. Die Simulationen wurden mit dem Monte-Carlo-Computerprogramm SRIM² [Bie80, Zie10, Zie15] durchgeführt, welches die Trajektorien einzelner Ionen innerhalb des Absorbers simuliert. Die Ionen verlieren ihre kinetische Energie nahezu kontinuierlich durch Wechselwirkungen mit den Elektronen des Absorbermaterials sowie in diskreter Weise durch Kollisionen mit den Absorberatomen³. Diese beiden Energieverlustmechanismen werden dabei als voneinander unabhängig angenommen. Zur Berechnung der nuklearen Kollisionen werden hierbei das in [Bie84] beschriebene Modell harter Kugeln sowie die Näherung elastischer Zweierstöße verwendet, bei der der Einfluss von Nachbaratomen vernachlässigt wird. Während die Ionen infolge der nuklearen Kollisionen ihre Bewegungsrichtung ändern, wirken sich die Wechselwirkungen mit den Elektronen des Absorbermaterials auch zwischen diesen Kollisionen abbremsend auf die Ionen aus. Für jedes neu auftreffende Ion wird jeweils eine neue Berechnung durchgeführt. Zuvor simulierte Ionen werden bei der Simulation des nächsten Ions somit nicht berücksichtigt. Für die Berechnungen wird ein Zufallszahlengenerator basierend auf [L'E88] verwendet. Der Absorber wird in der Simulation als amorph angenommen, sodass richtungsabhängige Eigenschaften des Kristallgitters und dadurch entstehende Effekte wie der Gitterführungseffekt [Rob63] ignoriert werden. Ebenso werden thermische Effekte wie thermische Diffusion oder thermisches Ausheilen vernachlässigt. Die Simulationen entsprechen somit der Situation, die bei einer Temperatur von 0K vorliegen würde. Während Gitterdefekte in metallischen Absorbern bei Raumtemperatur extrem schnell ausheilen können [Kin55, Vog74] und die finale Anzahl der entstandenen Gitterdefekte somit in der Simulation überschätzt wird, beschreibt diese Näherung die Situation, die bei den geringen Betriebstemperaturen der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Detektoren von unter 100 mK vorliegt, deutlich besser.

²SRIM - The Stopping and Range of Ions in Matter, lizenzfreie Software, www.srim.org

³Genau genommen sind hierbei Kollisionen mit den durch die inneren Elektronen abgeschirmten Atomkernen des Absorbermaterials gemeint, die im Folgenden auch als nukleare Kollisionen bezeichnet werden.

Parameter der Simulation

Im Rahmen dieser Arbeit wurde unter anderem das Auftreffen verschiedener atomarer Ionen⁴ mit unterschiedlichen kinetischen Energien auf Absorbern aus Gold simuliert. Um den Einfluss des Absorbermaterials zu untersuchen wurden zudem noch weitere Simulationen durchgeführt, bei denen verschiedene Metalle als potentiell mögliche Absorbermaterialien simuliert wurden. Die Dicke des jeweiligen Absorbers wurde dabei jeweils ausreichend groß gewählt, sodass keine Ionen den Absorber komplett durchdringen und somit, abgesehen von den zurückgestreuten Ionen, keine Ionen den Absorber wieder verlassen können. Für jede der untersuchten Kombinationen aus Absorbermaterial, kinetischer Energie und Art der Ionen wurde ein senkrechtes Auftreffen von jeweils 10.000 Ionen auf dem metallischen Absorber simuliert. Durch Verfolgung der Trajektorien der einzelnen Ionen innerhalb des Absorbers wurden dann die Anzahl und Verteilung der im Absorber verbleibenden Ionen bestimmt, ebenso wie die Anzahl der zurückgestreuten Ionen und deren kinetische Energie beim Verlassen des Absorbers. Für jedes einzelne auftreffende Ion wurde zudem die Anzahl der gesputterten Absorberatome und deren kinetische Energie sowie die Anzahl der erzeugten Frenkel-Paare ermittelt.

Die verwendeten Parameter der simulierten Absorbermaterialien sind in Tabelle A.1 in Anhang A zusammengefasst. Die Versetzungsenergie $E_{\rm v}$ gibt dabei den Energieübertrag auf ein Absorberatom an, der mindestens benötigt wird, um das Atom von seinem ursprünglichen Gitterplatz im Kristallgitter des Absorbers zu entfernen. Des Weiteren wird in SRIM eine effektive Energie $E_1 < E_{\rm v}$ definiert, die berücksichtigt, dass ein Ion bei Durchqueren des Kristallgitters des Absorbers eine potentielle Energie aufbringt, welche nicht wiedergewonnen wird, wenn das Ion einen neuen Gitterplatz besetzt, sondern in Form von Phononen frei wird. Die kinetische Energie eines Absorberatoms, welches seinen Gitterplatz infolge eines Energieübertrags $\Delta E > E_{\rm v}$ verlässt, beträgt bei einer Kollision mit einem weiteren Absorberatom somit maximal $E_{\rm kin} = \Delta E - E_{\rm l}$.

Um ein Atom an der Absorberoberfläche durch Sputtern komplett aus dem Absorber zu entfernen, wird die Oberflächenbindungsenergie E_o benötigt. Diese Bindungsenergie, mit der die Atome an der Oberfläche gebunden sind, ist in der Regel geringer als die Versetzungsenergie eines Atoms innerhalb des Absorbers, da die Oberflächenatome von weniger Absorberatomen umgeben sind als die Atome innerhalb des Absorbers und somit weniger Bindungen "aufgebrochen" werden müssen, um sie aus dem Absorber zu entfernen.

⁴Wie die in Unterkapitel 5.4 vorgestellten Messungen zeigen, kann der Ladungszustand der zu detektierenden Teilchen bei den im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Energien vernachlässigt werden. Die zu detektierenden Teilchen werden im Folgenden zwar zur besseren Unterscheidbarkeit als Ionen bezeichnet, die Simulationsergebnisse sollten aber ebenfalls für neutrale Teilchen gelten.

5.2.1 Detektion von 50 keV-Kohlenstoffionen in Absorbern aus Gold

Zur theoretischen Untersuchung der Energieverluste und Auflösungsverschlechterung bei der Detektion massiver Teilchen aufgrund der in Abschnitt 5.1.2 diskutierten Festkörpereffekte betrachten wir zunächst beispielhaft Simulationsergebnisse für das Auftreffen von Kohlenstoffionen mit einer kinetischen Energie von 50 keV auf einem Absorber aus Gold.



Abb. 5.4: Simulierte Tiefenverteilung von Kohlenstoffionen in einem Absorber aus Gold infolge des Auftreffens von 10.000 Kohlenstoffionen mit einer kinetischen Energie von 50 keV.

Abbildung 5.4 zeigt das resultierende Tiefenprofil der gestoppten Kohlenstoffionen innerhalb des Absorbers. Die Eindringtiefe der einzelnen Ionen ist dabei durch deren longitudinale Reichweite R entlang der ursprünglichen Flugrichtung gegeben. Die mittlere Eindringtiefe $\overline{R} \approx 56$ nm der Kohlenstoffionen innerhalb des Absorbers ist in Abbildung 5.4 mit einer roten Linie gekennzeichnet. Ebenso ist der Bereich $\overline{R} \pm \sigma$ durch grüne Linien markiert, wobei die Standardabweichung $\sigma \approx 29$ nm beträgt. Im betrachteten Fall werden sämtliche Ionen bereits innerhalb der ersten 200 nm des Absorbers gestoppt.

Durch Integration der hier gezeigten Verteilung ergibt sich eine Gesamtzahl von etwa 7.750 im Absorber verbleibenden Kohlenstoffionen. Die fehlenden Kohlenstoffionen wurden in der Simulation zurückgestreut. Des Weiteren ergeben sich aus der Simulation eine mittlere Anzahl gesputterter Absorberatome pro auftreffendem Kohlenstoffion von etwa 1,28 und eine mittlere Energie der gesputterten Absorberatome beim Verlassen des Absorbers von etwa 54 eV. Die mittlere Anzahl erzeugter Frenkel-Paare pro auftreffendem Ion beträgt in der Simulation etwa $\overline{N}_{\rm FP} \approx 460$.

Wie in Abschnitt 5.1.2 erläutert wurde, haben die zurückgestreuten Kohlenstoff-

ionen, die gesputterten Absorberatome und die erzeugten Frenkel-Paare jeweils zur Folge, dass ein Teil der kinetischen Energie der Kohlenstoffionen im Absorber nicht in Wärme umgewandelt wird und somit bei der energieaufgelösten Teilchendetektion fehlt. Um den Einfluss dieser Energieverluste⁵ auf ein gemessenes Energiespektrum abschätzen zu können, wurden für jedes auftreffende Ion die jeweiligen Energieverluste zunächst separat von der ursprünglichen Ionenenergie $E_{\rm kin} = 50 \,\rm keV$ abgezogen. Abbildung 5.5 zeigt oben die resultierenden Energieverteilungen der einzelnen Ionen, bei denen jeweils nur die Energieverluste durch Rückstreuung (rosa), Sputtern (grün) und die Erzeugung von Frenkel-Paaren (blau) berücksichtigt wurden. Zur Berechnung der Energieverluste durch die Erzeugung von Frenkel-Paaren wurde dabei die in Abschnitt 5.4.3 ermittelte Frenkel-Paar-Energie $E_{\rm FP} = 2,8 \,\rm eV$ angenommen. Aufgrund des beschränkten Bereichs der y-Achse ist hier jeweils die Linie bei $E = 50 \,\rm keV$ in der durch Rückstreuung sowie in der durch Sputtern verursachten Energieverteilung nicht vollständig zu sehen.

Wie hier erkennbar ist, sind die zurückgestreuten Ionen in einem gemessenen Spektrum monoenergetischer atomarer Ionen der kinetischen Energie $E_{\rm kin}$ über einen großen Energiebereich $0 < E < E_{\rm kin}$ verteilt. Die zurückgestreuten Ionen, die hierbei einen relativ großen Anteil von etwa 22,5 % der auftreffenden Ionen ausmachen, sind somit schwer der richtigen Ionenenergie zuzuordnen und gehen daher bei der energieaufgelösten Teilchendetektion verloren. In dem hier betrachteten Fall haben die zurückgestreuten Ionen zwar keinen Einfluss auf die eigentliche Linienform, in einem gemessenen Spektrum von Ionen unterschiedlicher Energien stellen sie aber einen störenden Untergrund dar. Bei der Untersuchung der Dissoziationsreaktionen von Molekülionen könnte dieser Untergrund beispielsweise Linien von Molekülfragmenten im Energiespektrum überdecken, die aus Zerfallskanälen mit kleinem Verzweigungsverhältnis resultieren.

Die Energieverluste durch das Sputtern von Absorberatomen hingegen verursachen in einem gemessenen Spektrum monoenergetischer atomarer Ionen einen zusätzlichen niederenergetischen Abfall, der sich durch die Funktion $A/(E_{\rm kin} - E)$ mit der Amplitude A beschreiben lässt. Das Sputtern von Absorberatomen führt somit zu einer leichten Asymmetrie der gemessenen Linienform.

Die Erzeugung von Frenkel-Paaren und die dadurch verursachten Energieverluste führen bei der Detektion atomarer Ionen zu einer Verschiebung der mittleren gemessenen Ionenenergie hin zu niedrigeren Energien, wobei der mittlere Energieverlust pro auftreffendem Ion in dem simulierten Fall etwa $\overline{N}_{\rm FP} E_{\rm FP} \approx 1,3 \,\rm keV$ beträgt. Da die Anzahl erzeugter Frenkel-Paare dabei von Ion zu Ion statistisch variiert, kommt

⁵Der Begriff Energieverlust wird im Folgenden für den Anteil der Ionenenergie verwendet, der aufgrund von Rückstreuung, Sputtern, oder der Erzeugung von Frenkel-Paaren im Absorber nicht in Wärme umgewandelt wird.



Abb. 5.5: Simulierte Energieverteilungen von 10.000 Kohlenstoffionen, die mit einer kinetischen Energie von 50 keV auf einen Absorber aus Gold treffen nach Abzug der Energieverluste durch Rückstreuung, durch Sputtern sowie durch die Erzeugung von Frenkel-Paaren (oben) und nach Abzug der Summe dieser drei Energieverluste (unten), jeweils im Energiebereich von 0 keV bis 55 keV (links) und von 47,2 keV bis 50,2 keV (rechts). Hierbei wurde eine Frenkel-Paar-Energie von $E_{\rm FP} = 2,8$ eV angenommen. Dem unten gezeigten Gesamtspektrum ist zudem jeweils eine numerische Anpassung von Gleichung 5.1 in dem in 5.2 definierten Energiebereich überlagert.

es zudem zu einer Vergrößerung der instrumentellen Linienbreite. Die in der Simulation zurückgestreuten Ionen erzeugen im Mittel weniger Frenkel-Paare als Ionen, die innerhalb des Absorbers gestoppt werden, da die kinetische Energie, die sie bei Verlassen des Absorbers wegtragen, nicht mehr zur Erzeugung von Frenkel-Paaren beiträgt. Im hier in Blau gezeigten Energiespektrum, bei dem nur die Energieverluste durch die erzeugten Frenkel-Paare separat berücksichtigt wurden, machen sich die zurückgestreuten Ionen daher als zusätzliche Schulter auf der hochenergetischen Flanke der Verteilung bemerkbar. In dem im Folgenden diskutierten Gesamtspektrum, bei dem alle Energieverluste einschließlich der von den zurückgestreuten Ionen weggetragenen Energie berücksichtigt werden, taucht diese Schulter nicht auf (vgl. Abbildung 5.5 unten).

Die insgesamt im Absorber in Form von Wärme deponierte Energie der einzelnen Ionen berechnet sich aus deren kinetischer Energie abzüglich der Summe der Energieverluste durch Rückstreuung, Sputtern und die Erzeugung von Frenkel-Paaren. Abbildung 5.5 zeigt unten das auf diese Weise ermittelte Energiespektrum. Das Sputtern von Absorberatomen hat in diesem Fall nur einen vernachlässigbar geringen Einfluss auf das Gesamtspektrum.

Zur Modellierung der aufgrund der erzeugten Frenkel-Paare entstehenden Linienform wurde im Rahmen dieser Arbeit, wie in [L'H84] vorgeschlagen, eine Faltung aus einer Gauß-Verteilung und einem niederenergetischen exponentiellen Abfall verwendet, die durch die in [Bor87] eingeführte Funktion

$$f_{\rm FP}(E) = \frac{A}{2\tau} \exp\left(\frac{E - E_0}{\tau} + \frac{\sigma_{\rm FP}^2}{2\tau^2}\right) \operatorname{erfc}\left(\frac{1}{\sqrt{2}} \left(\frac{E - E_0}{\sigma_{\rm FP}} + \frac{\sigma_{\rm FP}}{\tau}\right)\right)$$
(5.1)

beschrieben wird. Diese Funktion ist ebenfalls zur Modellierung der gemessenen Linienform bei der Detektion monoenergetischer α -Strahlung verbreitet [Hor10]. Hierbei sind E_0 und $\sigma_{\rm FP}$ der Erwartungswert und die Standardabweichung der Gauß-Verteilung, τ beschreibt den zusätzlichen exponentiellen Abfall, A ist die Amplitude der Verteilung und erfc(x) die komplementäre Fehlerfunktion. In Abbildung 5.5 unten ist in Rot eine numerische Anpassung von Gleichung 5.1 an das in der Simulation ermittelte Gesamtspektrum gezeigt. Die Anpassung wurde hierbei in einem Energiebereich

$$E_0 - 3\sigma_{\rm FP} - 3\tau \le E \le E_0 + 3\sigma_{\rm FP} \tag{5.2}$$

durchgeführt, der iterativ mit angepasst wurde und in dem die Energieverluste durch die Erzeugung von Frenkel-Paaren gegenüber den anderen Energieverlusten dominieren. Während die Anpassung das simulierte Spektrum in dem gewählten Energiebereich sehr gut beschreibt, wird das Spektrum bei geringeren Energien wiederum von zurückgestreuten Ionen dominiert. Aus dieser Anpassung ergeben sich ein zusätzlicher exponentieller Abfall mit der Konstanten $\tau = (189 \pm 21) \text{ eV}$, eine Verschiebung des Erwartungswerts der Gauß-Verteilung hin zu einer Energie von $E_0 = (48,76 \pm 0,01) \text{ keV}$ sowie eine Standardabweichung der Gauß-Verteilung von $\sigma_{\text{FP}} = (217 \pm 9) \text{ eV}$. Die bei der Detektion der Kohlenstoffionen erwartete instrumentelle Linienform ergibt sich schließlich durch Faltung des hier simulierten Energiespektrums mit der Energieverteilung, die aus der intrinsischen Energieauflösung des verwendeten Detektors resultiert.

5.2.2 Einfluss der Energie und Masse der auftreffenden Ionen

Um den Einfluss der kinetischen Energie und der Masse der auftreffenden Ionen auf die in Abschnitt 5.2.1 gezeigten Simulationsergebnisse zu untersuchen, wurden im Rahmen dieser Arbeit weitere SRIM-Simulationen durchgeführt, bei denen einerseits Kohlenstoffionen mit unterschiedlichen kinetischen Energien zwischen 10 keV und der am CSR maximal möglichen kinetischen Energie von 300 keV, sowie andererseits verschiedene atomare Ionen mit Massen zwischen 1 u (Wasserstoff) und 40 u (Argon) mit einer kinetischen Energie von 50 keV auf einen Absorber aus Gold treffen. Anhand dieser Simulationen wurden jeweils die mittlere Eindringtiefe \overline{R} der Ionen innerhalb des Absorbers, die Standardabweichung σ dieser Eindringtiefe und der prozentuale Anteil an zurückgestreuten Ionen ermittelt. Zudem wurde jeweils die mittlere Anzahl gesputterter Absorberatome, der mittlere Energieverlust durch Sputtern, sowie die mittlere Anzahl erzeugter Frenkel-Paare pro auftreffendem Ion bestimmt.

Eindringtiefe

Abbildung 5.6 zeigt die simulierte mittlere Eindringtiefe \overline{R} der Ionen im Absorber. Links ist diese für Kohlenstoffionen gegen die Ionenenergie $E_{\rm kin}$ aufgetragen, während rechts die Eindringtiefe verschiedener atomarer Ionen mit einer kinetischen Energie von jeweils $E_{\rm kin} = 50 \text{ keV}$ gegen die Ionenmasse $m_{\rm i}$ aufgetragen ist. Zusätzlich ist hier der Bereich $\overline{R} \pm \sigma$ mit grünen Linien markiert. Die Eindringtiefe der Ionen nimmt dabei mit steigender Ionenenergie sowie mit sinkender Ionenmasse zu.

In dem hier betrachteten Bereich kleiner Ionenenergien $E_{\rm kin} < m_{\rm i} v_0^2 Z_{\rm i}^{4/3}/2$, mit $v_0 = e^2/(4\pi\varepsilon_0\hbar) \approx 2.19 \cdot 10^6 \,\mathrm{m/s}$, kann das Bremsvermögen des Absorbers in erster Näherung durch die LSS-Theorie [Lin61, Lin63b] beschrieben werden, wobei $e = 1.60 \cdot 10^{-19} \,\mathrm{C}$ die Elementarladung, $\varepsilon_0 = 8.85 \cdot 10^{-12} \,\mathrm{As/Vm}$ die elektrische Feldkonstante und $\hbar = 1.05 \cdot 10^{-34} \,\mathrm{Js}$ das reduzierte Plancksche Wirkungsquantum sind. Das durch die Wechselwirkung der eindringenden Ionen mit den Elektronen des Absorbermaterials gegebene elektronische Bremsvermögen

$$S_{\rm el} = k_{\rm el} \sqrt{E_{\rm kin}} \tag{5.3}$$

verhält sich hierbei proportional zur Wurzel der Ionenenergie $E_{\rm kin}$. Das nukleare Bremsvermögen⁶

$$S_{\rm n} = k_{\rm n} \tag{5.4}$$

⁶Der Begriff nukleares Bremsvermögen hat sich in der Literatur zur Beschreibung des Abbremsens der Ionen infolge von Kollisionen mit den durch die inneren Elektronen abgeschirmten Atomkernen des Absorbermaterials durchgesetzt.



Abb. 5.6: Simulierte mittlere Eindringtiefe von atomaren Ionen in einem Absorber aus Gold für Kohlenstoffionen in Abhängigkeit von deren kinetischer Energie (links), sowie für verschiedene Ionen mit einer kinetischen Energie von 50 keV in Abhängigkeit von deren Masse (rechts). In Rot ist hier zudem jeweils eine numerische Anpassung von Gleichung 5.8 an den links gezeigten Verlauf überlagert.

durch die Kollisionen der Ionen mit den Absorberatomen hingegen ist in diesem Energiebereich in erster Näherung unabhängig von der Ionenenergie. Die Konstanten

$$k_{\rm el} = \frac{8\pi\hbar^2}{m_{\rm e}} \frac{Z_{\rm i}^{7/6} Z_{\rm a}}{\left(Z_{\rm i}^{2/3} + Z_{\rm a}^{2/3}\right)^{3/2}} \sqrt{\frac{2}{m_{\rm i} v_0^2}}$$
(5.5)

und

$$k_{\rm n} = \frac{\pi^2 \hbar^2}{2,7183 \, m_{\rm e}} \frac{Z_{\rm i} Z_{\rm a}}{\left(Z_{\rm i}^{2/3} + Z_{\rm a}^{2/3}\right)^{1/2}} \frac{m_{\rm i}}{(m_{\rm i} + m_{\rm a})} \tag{5.6}$$

[Lin61, Lin63b] hängen dabei von den Massen m_i und m_a sowie den Kernladungszahlen Z_i und Z_a der auftreffenden Ionen und der Absorberatome ab. Hierbei ist $m_e = 5,49 \cdot 10^{-4}$ u die Elektronenmasse. Das nukleare Bremsvermögen dominiert folglich bei kleinen Ionenenergien und großen Ionenmassen.

Da die elektronischen und die nuklearen Energieverluste, wie zu Beginn dieses Unterkapitels erläutert, in der Simulation als voneinander unabhängig angenommen werden, ergibt sich die mittlere Gesamtreichweite [Lin63b]

$$\overline{R}_{\text{ges}} = \frac{1}{n} \int_{0}^{E_{\text{kin}}} \frac{1}{S_{\text{el}}(E) + S_{\text{n}}} dE = \frac{2}{n} \left(\frac{\sqrt{E_{\text{kin}}}}{k_{\text{el}}} - \frac{k_{\text{n}}}{k_{\text{el}}^2} \ln \left(\left| \frac{k_{\text{el}}}{k_{\text{n}}} \sqrt{E_{\text{kin}}} + 1 \right| \right) \right)$$
(5.7)

der Ionen im Absorber durch Integration der inversen Summe der beiden Bremsvermögen über die Energie und Division durch die Atomdichte n des Absorbermaterials.

Aufgrund der nuklearen Kollisionen ergibt sich zusätzlich innerhalb des Absorbers eine Verteilung der Bewegungsrichtungen der Ionen orthogonal zur ursprünglichen Bewegungsrichtung. Um anhand der Gesamtreichweite ein Modell zur Beschreibung der in Abbildung 5.6 gezeigten mittleren Eindringtiefe \overline{R} abzuleiten, wurde das nukleare Bremsvermögen in Gleichung 5.7 daher im Rahmen dieser Arbeit mit einem Korrekturfaktor $k \geq 1$ multipliziert:

$$\overline{R} = \frac{1}{n} \int_{0}^{E_{\rm kin}} \frac{1}{S_{\rm el}(E) + k S_{\rm n}} dE = \frac{2}{n} \left(\frac{\sqrt{E_{\rm kin}}}{k_{\rm el}} - \frac{k_{\rm n} k}{k_{\rm el}^2} \ln \left(\left| \frac{k_{\rm el}}{k_{\rm n} k} \sqrt{E_{\rm kin}} + 1 \right| \right) \right)$$
(5.8)

Hierbei wurde angenommen, dass der Korrekturfaktor k, wie auch das nukleare Bremsvermögen selbst, nicht von der Ionenenergie aber von dem Verhältnis $m_{\rm a}/m_{\rm i}$ der Absorberatommasse zur Ionenmasse abhängt. Zur Überprüfung dieses Modells wurde ein Korrekturfaktor

$$k = 1 + c_{\rm n} \frac{m_{\rm a}}{m_{\rm i}} \tag{5.9}$$

mit einer Konstanten c_n gewählt, für den im Grenzfall großer Ionenenergien und kleiner Ionenmassen, in dem die nuklearen Energieverluste vernachlässigbar sind, $k = 1 = \overline{R}_{\text{ges}}/\overline{R}$ gilt.

In Abbildung 5.6 ist links in Rot eine numerische Anpassung dieses Modells an die simulierten Daten gezeigt, bei der nur c_n als freier Parameter variiert und zu $c_n = 0.412 \pm 0.001$ bestimmt wurde. Diese Anpassung beschreibt die simulierte mittlere Eindringtiefe im gesamten simulierten Energiebereich mit relativen Abweichungen von unter 25 % und einer maximalen absoluten Abweichung von 4 nm sehr gut.

Für den Grenzfall kleiner Ionenenergien und großer Ionenmassen, in dem die elektronischen Energieverluste vernachlässigbar sind, ist das Verhältnis $\overline{R}_{\text{ges}}/\overline{R}$ der Gesamtreichweite zur Eindringtiefe durch den Korrekturfaktor k gegeben. Der im Rahmen dieser Arbeit ermittelte Korrekturfaktor stimmt gut mit der für diesen Grenzfall unter Verwendung der LSS-Theorie ermittelten Näherung [Boh84]

$$\overline{R}_{\rm ges}/\overline{R} = 1 + 0.4 \frac{m_{\rm a}}{m_{\rm i}} \tag{5.10}$$

überein.

In Abbildung 5.6 ist rechts das ermittelte Modell ebenfalls in Rot den simulierten Daten überlagert. Die Abhängigkeit der Kernladungszahl Z_i der Ionen von deren Masse m_i wurde dabei durch einen Polynomzug⁷ angepasst, um eine reine Massen-

⁷Ein Polynomzug (auch als "Spline" bezeichnet) ist eine stetig differenzierbare Funktion zur approximativen Beschreibung von Datenpunkten, die sich aus mehreren aneinandergereihten Polynomen zusammensetzt.

abhängigkeit zu erhalten. Das Modell weicht hierbei jeweils um weniger als 50 % und um weniger als 26 nm von den simulierten Daten ab. Im Rahmen dieser Arbeit konnte somit ein Modell gefunden werden, das die in den Simulationen ermittelte Eindringtiefe für alle simulierten Ionenenergien und -massen gut beschreibt. Wie in Abschnitt 5.2.4 gezeigt wird, stellt dieses Modell auch für andere simulierte Absorbermaterialien eine gute Näherung zur Berechnung der mittleren Eindringtiefe der Ionen dar. Anhand dieser lässt sich einerseits für verschiedene Ionenenergien und -massen die zum Stoppen der Ionen benötigte Absorberdicke abschätzten, andererseits lassen sich Rückschlüsse auf die im Folgenden diskutierten Festkörpereffekte ziehen.

Rückstreuung des auftreffenden Teilchens

Abbildung 5.7 zeigt den simulierten prozentualen Anteil an zurückgestreuten Ionen, links wieder für auftreffende Kohlenstoffionen in Abhängigkeit von der Ionenenergie $E_{\rm kin}$ sowie rechts für verschiedene Ionen mit $E_{\rm kin} = 50 \,\rm keV$ in Abhängigkeit von der Ionenmasse. Da bei kleinen Energien auch die mittlere Eindringtiefe der Ionen inner-



Abb. 5.7: Simulierter prozentualer Anteil an Ionen, die infolge des Auftreffens auf einen Absorber aus Gold zurückgestreut werden, für Kohlenstoffionen in Abhängigkeit von deren kinetischer Energie (links), sowie für verschiedene atomaren Ionen mit einer kinetischen Energie von 50 keV in Abhängigkeit von deren Masse (rechts).

halb des Absorbers, wie in Abbildung 5.6 gezeigt, geringer ist und die Trajektorien der Ionen somit näher an der Absorberoberfläche verlaufen, werden Ionen mit kleinen Energien eher zurückgestreut, als Ionen mit höheren Energien. Ebenso steigt bei konstanter Ionenenergie und steigender Ionenmasse bis etwa $m_i \approx 10$ u der Anteil an

zurückgestreuten Ionen steil an, da die Eindringtiefe der Ionen in diesem Massenbereich stark abnimmt. Bei höheren Ionenmassen ändern sich die Eindringtiefe und somit auch der Anteil an zurückgestreuten Ionen nur noch geringfügig. Der hier erkennbare leichte Abfall für $m_i \gtrsim 20$ u ist darauf zurückzuführen, dass schwere Ionen ihre Bewegungsrichtung durch Stöße mit den Absorberatomen deutlich weniger stark ändern als leichte Ionen. Im Fall von Ionen mit unterschiedlichen Massen aber ungefähr gleich großen mittleren Eindringtiefen werden schwerere Ionen somit weniger häufig zurückgestreut. Bei der Detektion atomarer Ionen mit magnetischen Kalorimetern mit Absorbern aus Gold ist folglich insbesondere für kleine Ionenenergien und Ionenmassen zwischen etwa 10 u und 40 u ein besonders hoher Anteil an zurückgestreuten Ionen, die nicht der richtigen Ionenenergie zugeordnet werden können und zu einem erhöhten Untergrund beitragen, zu erwarten.

Sputtern von Absorberatomen

In Abbildung 5.8 ist oben die durchschnittliche Anzahl gesputterter Absorberatome pro auftreffendem Ion aufgetragen. Anhand des simulierten mittleren Energieverlusts pro gesputtertem Absorberatom wurde daraus zudem der durchschnittliche Gesamtenergieverlust durch Sputtern pro auftreffendem Ion berechnet, der in Abbildung 5.8 unten aufgetragen ist. Links ist hierbei jeweils wieder für Kohlenstoffionen die Abhängigkeit von der Ionenenergie und rechts für Ionen mit einer kinetischen Energie von $E_{\rm kin} = 50 \,\rm keV$ die Abhängigkeit von der Ionenmasse gezeigt.

Auch für das Sputtern von Absorberatomen ist die in Abbildung 5.6 gezeigte Eindringtiefe der Ionen im Absorber relevant. Da bei niedrigen Ionenenergien die Trajektorien innerhalb des Absorbers näher an der Absorberoberfläche verlaufen, werden im Mittel bei niedrigen Energien auch mehr Oberflächenatome durch Sputtern aus dem Absorber entfernt. Gleichermaßen ist in diesem Fall allerdings auch der mittlere Energieübertrag auf die Oberflächenatome und somit die mittlere Energie der gesputterten Absorberatome geringer. Insgesamt ergibt sich dadurch pro auftreffendem Ion ein Energieverlust durch Sputtern zwischen etwa 40 eV und 70 eV, der nur geringfügig von der Ionenenergie abhängt. In Abbildung 5.8 ist unten links in Rot eine lineare Anpassung an die simulierten Daten gezeigt, die den geringfügigen Abfall dieses Energieverlusts mit steigender Ionenenergie verdeutlicht.

Mit steigender Ionenmasse steigt in der Simulation die Anzahl an gesputterten Absorberatomen. Hier spielt vor allem der Anteil der Ionenenergie, der jeweils durch einen Stoß auf ein Absorberatom übertragen wird, eine große Rolle. Je größer der Energieübertrag auf die oberflächennahen Absorberatome ist, desto mehr weitere Absorberatome können diese wiederum durch Kollisionen von ihren Gitterplätzen entfernen und desto höher wird die Wahrscheinlichkeit, dass Absorberatome infolge solcher



Abb. 5.8: Simulierte mittlere Anzahl gesputterter Absorberatome (oben) und simulierter mittlerer Energieverlust durch Sputtern (unten) pro auf einen Absorber aus Gold auftreffendem Ion, jeweils für Kohlenstoffionen in Abhängigkeit von deren kinetischer Energie (links), sowie für verschiedene atomare Ionen mit einer kinetischen Energie von 50 keV in Abhängigkeit von deren Masse (rechts).

Kollisionen den Absorber verlassen. Der Energieübertrag auf ein Absorberatom ist dabei durch

$$\Delta E = \frac{4m_{\rm i}m_{\rm a}}{(m_{\rm i} + m_{\rm a})^2} \sin^2\left(\frac{\theta}{2}\right) E_{\rm kin} \tag{5.11}$$

gegeben, wobe
i θ der Streuwinkel im Schwerpunktsystem ist. In jedem Stoß kann folglich maximal der Anteil

$$\frac{\Delta E}{E_{\rm kin}} = \frac{4m_{\rm i}m_{\rm a}}{(m_{\rm i}+m_{\rm a})^2} \tag{5.12}$$

der kinetischen Energie der Ionen auf die Absorberatome übertragen werden. Bei einer gegebenen Ionenenergie ist somit eine maximale Anzahl gesputterter Absorberatome zu erwarten, wenn die Ionenmasse m_i ungefähr der Absorberatommasse m_a entspricht. Da in dem untersuchten Massenbereich $m_i \ll m_a$ zudem auch die Energie der gesputterten Absorberatome mit steigender Ionenmasse ansteigt, ergibt sich insgesamt eine sehr starke Abhängigkeit des mittleren Energieverlusts durch Sputtern pro auftreffendem Ion von der Ionenmasse. Während im rechts gezeigten Fall einer Ionenenergie von $E_{\rm kin} = 50 \,\rm keV$ beispielsweise pro auftreffendem Wasserstoffion im Mittel nur etwa 0,04 eV durch Sputtern verloren gehen, ergibt sich für Argonionen ein über 20.000-mal so hoher Energieverlust von etwa 860 eV. Da die Energieverluste durch das Sputtern von Absorberatomen allerdings in allen hier simulierten Fällen weniger als 2% der ursprünglichen Ionenenergie ausmachen, haben diese verglichen mit den im Folgenden untersuchten Energieverlusten durch die Erzeugung von Frenkel-Paaren selbst im Fall großer Ionenmassen nur einen geringen Einfluss auf das bei der Teilchendetektion resultierende Energiespektrum.

Erzeugung von Frenkel-Paaren

Abbildung 5.9 zeigt die simulierte durchschnittliche Anzahl an Frenkel-Paaren, die pro auftreffendem Ion erzeugt werden. Die Anzahl der erzeugten Frenkel-Paare steigt hierbei mit steigender Ionenenergie und mit steigender Ionenmasse an. In einem gemessenen Energiespektrum atomarer Ionen ist somit eine zunehmende Verschiebung der gemessenen Ionenenergie hin zu niedrigeren Energien sowie eine zunehmende Verbreiterung der gemessenen Linienbreite mit steigender Ionenenergie und -masse zu erwarten.

In Blau und gestrichelt ist hier zudem die nach dem Modell von Kinchin und Pease [Kin55] unter Vernachlässigung der elektronischen Energieverluste berechnete durchschnittliche Anzahl

$$\overline{N}_{\rm FP} \approx \frac{E_{\rm kin}}{2E_{\rm v}} \tag{5.13}$$

an pro auftreffendem Ion erzeugten Frenkel-Paaren eingezeichnet. Dieses Modell beschreibt somit den Grenzfall, in dem der Energieverlust der Ionen durch nukleare Kollisionen dominiert wird. Hierbei ist $E_{\rm v}$ die Versetzungsenergie des Absorbermaterials, für die in der Simulation der in SRIM angegebene Wert von $E_{\rm v} = 25 \,\mathrm{eV}$ verwendet wurde. Die in Abbildung 5.9 gezeigten simulierten Verläufe werden von diesem Modell im links gezeigten Fall von Kohlenstoffionen nur bei sehr kleinen Energien unter etwa $E_{\rm kin} = 10 \,\mathrm{keV}$ und im rechts gezeigten Fall einer Ionenenergie von 50 keV nur bei großen Ionenmassen oberhalb von etwa $m_{\rm i} = 25 \,\mathrm{u}$ gut beschrieben. Für steigende Ionenenergien und sinkende Ionenmassen nimmt der Anteil $\Delta E_{\rm el}$ des Energieverlusts durch Wechselwirkungen mit den Elektronen des Absorbermaterials immer weiter zu und die Anzahl der erzeugten Frenkel-Paare weicht zunehmend von dem Modell ab.



Abb. 5.9: Simulierte mittlere Anzahl der pro auftreffendem Ion in einem Absorber aus Gold erzeugten Frenkel-Paare, für Kohlenstoffionen in Abhängigkeit von deren kinetischer Energie (links), sowie für verschiedene atomare Ionen mit einer kinetischen Energie von 50 keV in Abhängigkeit von deren Masse (rechts).

In [Tor72] wurde das Modell von Kinchin und Pease unter Berücksichtigung der elektronischen Energieverluste erweitert zu

$$\overline{N}_{\rm FP} \approx \kappa \, \frac{(E_{\rm kin} - \Delta E_{\rm el})}{2E_{\rm v}},\tag{5.14}$$

wobei die Versetzungseffizien
z $\kappa\approx 0.8$ eingeführt wurde. Für diesen Ausdruck ergibt sich aus der LSS-Theorie [Lin63a]

$$\overline{N}_{\rm FP} \approx \kappa \, \frac{E_{\rm kin}}{2E_{\rm v} \left(1 + k_{\rm el}^* g(E_{\rm kin})\right)}.\tag{5.15}$$

Der dimensionslose Parameter

$$k_{\rm el}^* = k_{\rm el} \sqrt{\frac{\epsilon}{E_{\rm kin}}} \, \frac{n \, r}{\rho} \tag{5.16}$$

berechnet sich dabei aus der in Gleichung 5.5 gegebenen Konstante $k_{\rm el}$ des elektronischen Bremsvermögens unter Verwendung der in [Lin63b] eingeführten dimensionslosen Maße

$$\epsilon = \frac{4\pi\varepsilon_0 a}{e^2 Z_{\rm i} Z_{\rm a}} \frac{m_{\rm a}}{(m_{\rm i} + m_{\rm a})} E_{\rm kin}$$
(5.17)

und

$$\rho = 4\pi a^2 \frac{m_{\rm i} m_{\rm a}}{(m_{\rm i} + m_{\rm a})^2} \, n \, r \tag{5.18}$$

für die kinetische Energie $E_{\rm kin}$ und die zurückgelegte Strecke r der Ionen. Hierbei ist $a = a_0 (9\pi^2/128)^{1/3} (Z_{\rm i}^{2/3} + Z_{\rm a}^{2/3})^{-1/2}$ die in [Lin68] verwendete Thomas-Fermi-Abschirmlänge mit dem Bohrschen Radius $a_0 = 4\pi\varepsilon_0\hbar^2/(m_{\rm e}e^2)$. Die Funktion $g(E_{\rm kin})$ lässt sich dabei durch die numerische Näherung

$$g(E_{\rm kin}) = \epsilon + 0.40244\epsilon^{3/4} + 3.4008\epsilon^{1/6}$$
(5.19)

beschreiben [Rob70]. Dieses Modell, das in Abbildung 5.9 jeweils strich-punktiert in Grün eingezeichnet ist, unterschätzt die Anzahl der in der Simulation erzeugten Frenkel-Paare jeweils um etwa 70%.

Um ein Modell zur Beschreibung der simulierten Daten zu erhalten, wurde im Rahmen dieser Arbeit daher das durch Gleichung 5.15 gegebene Modell um einen Skalierungsfaktor $c_{\rm f}$ erweitert zu

$$\overline{N}_{\rm FP} \approx c_{\rm f} \kappa \, \frac{E_{\rm kin}}{2E_{\rm v} \left(1 + k_{\rm el}^* g(E_{\rm kin})\right)}.\tag{5.20}$$

In Abbildung 5.9 ist durchgezogen in Rot jeweils eine Anpassung dieses Modell an den links gezeigten Verlauf eingezeichnet, bei der ein Skalierungsfaktor $c_{\rm f} = 3,584 \pm 0,005$ ermittelt wurde. Zur Beschreibung des rechts gezeigten Verlaufs wurde die Abhängigkeit der Kernladungszahl $Z_{\rm i}$ der Ionen von deren Masse $m_{\rm i}$ hierbei wieder durch einen Polynomzug angepasst, um eine reine Abhängigkeit von der Ionenmasse zu erhalten. In dem Bereich, in dem das in Gleichung 5.13 gegebene Modell von Kinchin und Pease seine Gültigkeit verliert, beschreibt das auf diese Weise skalierte Modell aus Gleichung 5.20 die simulierten Daten sehr gut. Während in dem rechts gezeigten Fall verschiedener Ionen hierbei für Massen zwischen 2 u und 27 u Abweichungen von unter 22 % und weniger als 60 erzeugten Frenkel-Paaren pro auftreffendem Ion zu finden sind, liegen die relativen und absoluten Abweichungen in dem links gezeigten Fall von Kohlenstoffionen im gesamten simulierten Energiebereich unter 14 % und unter 17 Frenkel-Paaren pro Ion.

Extremfall: Detektion von 300 keV-Wasserstoffionen

Wie zu Beginn dieses Abschnitts gezeigt wurde, steigt die mittlere Eindringtiefe der simulierten atomaren Ionen in einem Absorber aus Gold mit steigender Ionenenergie und mit sinkender Ionenmasse an. Bei den am CSR geplanten Messungen ist somit die höchste Eindringtiefe der Molekülfragmente im Absorber für atomare Fragmente mit minimaler Masse und maximaler kinetischer Energie zu erwarten. Um abschätzen zu können, welche Absorberdicke hierbei mindestens nötig ist, um sämtliche Fragmente zu stoppen, wurde im Rahmen dieser Arbeit eine weitere Simulation durchgeführt, bei der Wasserstoffionen ($m_i = 1 u$) mit der am CSR maximal möglichen kinetischen Energie von $E_{kin} = 300 \text{ keV}$ auf einen Absorber aus Gold treffen.



Abb. 5.10: Simulierte Tiefenverteilung von Wasserstoffionen in einem Absorber aus Gold infolge des Auftreffens von 10.000 Wasserstoffionen mit einer kinetischen Energie von 300 keV.

Abbildung 5.10 zeigt das resultierende simulierte Tiefenprofil der Wasserstoffionen im Absorber. Die mittlere Eindringtiefe der Ionen beträgt hierbei etwa $\overline{R} \approx 1,18 \,\mu\text{m}$ mit einer Standardabweichung von $\sigma \approx 0,22 \,\mu\text{m}$. Die maximale Eindringtiefe beträgt in diesem Fall etwa 1,58 μm . Für die Detektion von Molekülfragmenten am CSR in Absorbern aus Gold ist demnach eine Absorberdicke von unter 2 μm ausreichend, um – abgesehen von zurückgestreuten Fragmenten – sämtliche potentiell am CSR entstehenden Fragmente innerhalb des Absorbervolumens zu stoppen.

5.2.3 Detektion molekularer Ionen

In den Abschnitten 5.2.1 und 5.2.2 wurden die bei der Detektion atomarer Ionen in Absorbern aus Gold auftretenden Energieverluste durch Rückstreuung, Sputtern und die Erzeugung von Frenkel-Paaren im Absorber sowie deren Abhängigkeit von der Energie und Masse der Ionen anhand von Simulationen untersucht. Wie in Kapitel 2 erläutert wurde, können am kryogenen Speicherring CSR bei der dissoziativen Rekombination von positiven Molekülionen allerdings sowohl atomare als auch molekulare Molekülfragmente entstehen.

Um die bei der Detektion molekularer Fragmente erwartete Linienform zu simulieren, wurde im Rahmen dieser Arbeit beispielhaft das Auftreffen von 10.000 Methyl(CH₃)ionen mit einer kinetischen Energie von $E_{\rm kin,i} = 50 \,\rm keV$ auf einen Absorber aus Gold anhand von weiteren Simulationen untersucht. Da eine direkte Simulation molekularer Ionen in dem verwendeten Programm SRIM allerdings nicht möglich ist, wurde hierfür angenommen, dass die Moleküle beim Auftreffen auf den Absorber instantan in einzelne Atome aufbrechen. Die dabei freiwerdende molekulare Bindungsenergie in der Größenordnung weniger Elektronenvolt ist bei den hier betrachteten kinetischen Energien der Moleküle im keV-Bereich in erster Näherung vernachlässigbar. Die Detektion des Moleküls entspricht somit der gleichzeitigen Detektion der einzelnen Atome des Moleküls. Um die Detektion von Methylionen zu simulieren, wurden im Rahmen dieser Arbeit daher vier unabhängige Simulationen für die einzelnen atomaren Fragmente eines Methylions durchgeführt, wobei jeweils das Auftreffen von 10.000 Kohlenstoff- beziehungsweise Wasserstoffionen simuliert wurde. Die kinetische Energie $E_{\rm kin,f} = E_{\rm kin,i} m_{\rm f}/m_{\rm i}$ der einzelnen atomaren Fragmente berechnet sich dabei jeweils aus der ursprünglichen Ionenenergie $E_{kin,i} = 50 \text{ keV}$ und dem Verhältnis der Fragmentmasse $m_{\rm f}$ zur Ionenmasse $m_{\rm i}$. Um für die drei Wasserstoffionen unterschiedliche, voneinander unabhängige Simulationsergebnisse zu erzielen, wurden bei den einzelnen Simulationen verschiedene Anfangswerte für den Zufallszahlengenerator verwendet. Die simulierten Energieverluste der einzelnen Fragmente durch Rückstreuung, Sputtern und die Erzeugung von Frenkel-Paaren wurden anschließend jeweils von der ursprünglichen kinetischen Energie $E_{\rm kin,i} = 50 \,\rm keV$ der einzelnen Ionen abgezogen. Für die Frenkel-Paar-Energie wurde hierbei wieder ein Wert von $E_{\rm FP} = 2.8 \, {\rm eV}$ angenommen.

Abbildung 5.11 zeigt das auf diese Weise simulierte Energiespektrum. Im Gegensatz



Abb. 5.11: Berechnete Energieverteilung von 10.000 Methylionen, die mit einer kinetischen Energie von 50 keV auf einen Absorber aus Gold treffen nach Abzug der in den Simulationen ermittelten Energieverluste der einzelnen Atome der Methylionen durch Rückstreuung, Sputtern und die Erzeugung von Frenkel-Paaren. Für die Berechnung der Energieverluste durch die Erzeugung von Frenkel-Paaren wurde hierbei eine Frenkel-Paar-Energie von $E_{\rm FP} = 2,8 \, {\rm eV}$ angenommen.

zur simulierten Linienform atomarer Ionen ist hierbei ein zusätzliches Plateau auf der niederenergetischen Flanke der Verteilung zu erkennen. Mit roten Pfeilen sind zudem die Ionenstrahlenergie $E_{\rm kin,i}$ sowie die kinetischen Energien der Ionen nach Abzug der Energie $nE_{\rm kin,H}$ von einem (n = 1), von zwei (n = 2) und von allen drei (n = 3) Wasserstoffatomen sowie nach Abzug der kinetischen Energie $E_{\rm kin,C}$ des Kohlenstoffatoms markiert. Während die vielen einzelnen Ereignisse bei niedrigen Energien, $E < 40 \,\mathrm{keV}$, hierbei durch die Rückstreuung des Kohlenstoffatoms verursacht werden, kann das zusätzliche niederenergetische Plateau auf die unabhängige Rückstreuung der einzelnen Wasserstoffatome zurückgeführt werden. Um dies zu verdeutlichen, ist in Abbildung 5.12 ein Vergleich dieses Energiespektrums mit den entsprechenden simulierten Spektren, die sich ergeben, wenn jeweils nur die Fragmente CH₂ (rosa), CH (grün) und C (blau) der ursprünglichen Methylionen auf den Absorber treffen, gezeigt. Da die Wahrscheinlichkeit, dass mindestens ein Was-



Abb. 5.12: Vergleich der in Abbildung 5.11 gezeigten simulierten Verteilung der in einem Absorber aus Gold deponierten Energie von 10.000 Methylionen mit einer kinetischen Energie von 50 keV mit den entsprechenden Energieverteilungen, die bei der Detektion von nur den Fragmenten CH_2 , CH sowie C der ursprünglichen Methylionen zu erwarten sind.

serstoffatom zurückgestreut wird, mit zunehmender Anzahl an Wasserstoffatomen steigt, wird auch das dadurch verursachte Plateau mit zunehmender Anzahl an Wasserstoffatomen immer größer. Während bei der Detektion von atomaren Teilchen vor allem die Erzeugung von Frenkel-Paaren zu einer Degradierung der Energieauflösung führt, ist bei der Detektion molekularer Teilchen somit insbesondere die Rückstreuung einzelner Fragmente des ursprünglichen Moleküls problematisch, die wie hier gezeigt einen signifikanten Einfluss auf die Linienform haben kann.

5.2.4 Einfluss des Absorbermaterials

Wie in den Abschnitten 5.2.1, 5.2.2 und 5.2.3 gezeigt wurde, resultieren die bei der Detektion massiver Teilchen erzeugten Frenkel-Paare im Absorber in einer Vergrößerung der Linienbreite sowie einer Asymmetrie der Linienform, während das Sputtern von Absorberatomen eine leichte zusätzliche Asymmetrie der Linienform zur Folge hat. Die Rückstreuung zu detektierender Ionen, insbesondere die Rückstreuung einzelner Fragmente von zu detektierenden molekularen Ionen hingegen verursacht einen zusätzlichen Untergrund. Um die Abhängigkeit dieser Effekte von dem Absorbermaterial zu untersuchen und somit möglicherweise eine Optimierung des Detektors bezüglich der Detektion von Molekülfragmenten zu ermöglichen, wurden im Rahmen dieser Arbeit weitere Simulationen durchgeführt, bei denen jeweils 10.000 Kohlenstoffionen mit einer kinetischen Energie von 50 keV auf Absorber aus verschiedenen Metallen⁸ treffen. Die dabei verwendeten Parameter der simulierten Materialien sind in Tabelle A.1 in Anhang A zusammengefasst. Anhand dieser Simulationen wurden jeweils die mittlere Eindringtiefe \overline{R} der Ionen im Absorber, der prozentuale Anteil zurückgestreuter Kohlenstoffionen, sowie pro auftreffendem Kohlenstoffion die mittlere Anzahl gesputterter Absorberatome, der durchschnittliche Energieverlust durch Sputtern von Absorberatomen und die mittlere Anzahl erzeugter Frenkel-Paare ermittelt. In Abbildung 5.13 sind die dabei resultierenden Werte jeweils in Abhängigkeit von der Masse $m_{\rm a}$ der Absorberatome gezeigt. Um zudem den Zusammenhang der jeweiligen Größen mit der in der Simulation angenommenen Dichte des Absorbermaterials nachvollziehbar zu machen, ist diese in Abbildung 5.13a) ebenfalls gegen die Absorberatommasse aufgetragen.

Eindringtiefe

Die in Abbildung 5.13b) gezeigte mittlere Eindringtiefe \overline{R} der Ionen sinkt mit steigender Dichte ρ_a des Absorbermaterials. In Rot ist hier das im Rahmen dieser Arbeit ermittelte Modell aus Gleichung 5.8 für alle Elemente des Periodensystems bis zu der Ordnungszahl 83 überlagert. Um eine reine Abhängigkeit von der Absorberatommasse zu erhalten wurde hierbei die Abhängigkeit der Kernladungszahl Z_a von der Masse m_a der Absorberatome durch einen Polynomzug angepasst. Für gasförmige Elemente ergibt sich dabei aufgrund der geringen Dichte eine sehr hohe Eindringtiefe, die weit über dem hier gezeigten Bereich liegt. Die generelle Abhängigkeit der mittleren Eindringtiefe von der Absorberatommasse wird von dem im Rahmen dieser Arbeit ermittelten Modell gut beschrieben. Die relativen und absoluten Abweichungen von den simulierten Daten liegen dabei jeweils unter 30 % und maximal bei 30 nm.

⁸Wie in Unterkapitel 3.1 erläutert wurde, sind normalleitende Metalle aufgrund ihrer kurzen intrinsischen Thermalisierungszeiten besonders gut als Absorbermaterial geeignet.



Abb. 5.13: a) In der Simulation angenommene Dichte des Absorbermaterials sowie ermittelte Werte für b) die mittlere Eindringtiefe der Ionen im Absorber, c) den prozentualen Anteil zurückgestreuter Ionen, d) die Anzahl gesputterter Absorberatome pro Ion, e) den Gesamtenergieverlust durch Sputtern pro Ion und f) die Anzahl erzeugter Frenkel-Paare pro Ion, jeweils in Abhängigkeit von der Absorberatommasse. Simuliert wurde jeweils das Auftreffen von Kohlenstoffionen mit einer kinetischen Energie von 50 keV. Die Simulationsergebnisse für Absorber aus Gold (Au), Silber (Ag) und Aluminium (Al) sind beispielhaft mit grünen Kreisen markiert.

Rückstreuung des auftreffenden Teilchens

Der in Abbildung 5.13c) gezeigte prozentuale Anteil zurückgestreuter Ionen nimmt mit steigender Absorberatommasse immer weiter zu, während die Abhängigkeit von der Dichte ρ_a nur geringfügig ist. Der hier erkennbare lineare Zusammenhang mit der Absorberatommasse legt nahe, dass für eine bestimmte Ionenmasse und Energie jeweils eine Absorberatommasse existiert, unter der keine Ionen mehr zurückgestreut werden. In Rot ist hier eine lineare Anpassung an die simulierten Daten gezeigt, aus der sich in diesem Fall eine Steigung (0.123 ± 0.005) %/u und eine Absorberatommasse $m_{\rm a} = (20, 6 \pm 3, 8)$ u, unter der keine Rückstreuung mehr zu erwarten ist, ergeben. Um die Rückstreuung von auftreffenden Ionen zu reduzieren, ist demnach ein Absorbermaterial mit einer möglichst geringen Atommasse wünschenswert. Während sich der Anteil zurückgestreuter Kohlenstoffionen beispielsweise durch die Verwendung von Silber als Absorbermaterial anstelle von Gold um mehr als die Hälfte auf etwa 10% reduzieren lässt, wird bei der Verwendung von Aluminium nur noch ein Anteil von etwa 0,6 % der Kohlenstoffionen zurückgestreut. Ein noch geringerer Anteil zurückgestreuter Ionen ergibt sich unter allen simulierten Materialien nur für Beryllium, für welches in der Simulation keines der 10.000 Kohlenstoffionen zurückgestreut wurde. Mit den im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Verfahren zur Herstellung der Detektoren kommt ein Einsatz von Beryllium aufgrund dessen hoher Toxizität allerdings nicht infrage.

Sputtern von Absorberatomen

Die mittlere Anzahl gesputterter Absorberatome pro auftreffendem Ion ist in Abbildung 5.13d) gezeigt. Da die Eindringtiefe der Ionen im Absorber bei steigender Dichte des Absorbermaterials kleiner wird, werden bei einer höheren Dichte im Mittel auch mehr Absorberatome gesputtert. Mit steigender Absorberatommasse fällt der dadurch verursachte Anstieg der Anzahl gesputterter Absorberatome allerdings geringer aus, da in dem hier betrachteten Fall eine höhere Absorberatommasse tendenziell eine geringere Anzahl gesputterter Absorberatome zur Folge hat. Dies ist darauf zurückzuführen, dass mit steiger
nder Absorberatommasse $m_{\rm a}$ einerseits die Eindringtiefe der Ionen im Absorber größer wird und andererseits der durch Gleichung 5.11 gegebene Energieübertrag auf die Absorberatome ansteigt, da in den meisten simulierten Fällen $m_{\rm a} > m_{\rm i}$ gilt. Für das Sputtern von Absorberatomen spielt allerdings zudem die Oberflächenbindungsenergie $E_{\rm o}$ des Absorbermaterials eine große Rolle, da Oberflächenatome im Fall von kleinen Oberflächenbindungsenergien leichter aus dem Absorber entfernt werden können. Sehr kleine Werte für die Oberflächenbindungsenergie von $E_{\rm o} \lesssim 2 \,\mathrm{eV}$ sind in SRIM für Absorber aus Zink (Zn), Technetium (Tc), Cadmium (Cd), Thallium (Tl) und Blei (Pb) angegeben, für

die sich somit auch eine vergleichsweise große Anzahl gesputterter Absorberatome ergibt. Die entsprechenden simulierten Werte sind hier mit blauen Kreisen markiert.

Der in Abbildung 5.13e) gezeigte mittlere Gesamtenergieverlust durch Sputtern pro auftreffendem Kohlenstoffion sinkt mit steigender Absorberatommasse, wobei die Abhängigkeit von der Dichte nur gering ist. Während dieser Energieverlust für Silber nur etwa 10 % höher ist als für Gold, ergibt sich für Aluminium ein verglichen mit Gold fast doppelt so großer Energieverlust von etwa 134 eV pro Ion, der allerdings nur etwa 0,27 % der ursprünglichen Ionenenergie ausmacht. Wie zuvor erläutert hat dieser geringe Energieverlust auch in diesem Fall verglichen mit den Energieverlusten durch die Erzeugung von Frenkel-Paaren nur einen geringen Einfluss auf das bei der Teilchendetektion gemessene Energiespektrum.

Erzeugung von Frenkel-Paaren

Die in der Simulation ermittelte mittlere Anzahl erzeugter Frenkel-Paare pro auftreffendem Kohlenstoffion ist in Abbildung 5.13f) gezeigt. Tendenziell werden mehr Frenkel-Paare bei steigender Dichte und sinkender Atommasse des Absorbermaterials erzeugt. Da keines der in Abschnitt 5.2.2 diskutierten Modelle zur Abschätzung der Anzahl erzeugter Frenkel-Paare eine Abhängigkeit von der Dichte des Absorbermaterials beinhaltet, wurde das für Absorber aus Gold gefundene Modell aus Gleichung 5.20 im Rahmen dieser Arbeit empirisch angepasst zu

$$\overline{N}_{\rm FP} \approx c_{\rm f} \kappa \, \frac{E_{\rm kin}}{2E_{\rm v} \left(1 + k_{\rm el}^* g(E_{\rm kin})\right)} \frac{\rho_{\rm a}}{\rho_{\rm Au}} \sqrt{\frac{m_{\rm Au}}{m_{\rm a}}},\tag{5.21}$$

wobei die auf die Werte ρ_{Au} und m_{Au} von Gold normierte Absorbermaterialdichte und Absorberatommasse verwendet wurden. In Abbildung 5.13f) ist dieses Modell für alle Elemente des Periodensystems bis zu der Ordnungszahl 83 in Rot den simulierten Daten überlagert. Die Abhängigkeit der Kernladungszahl $Z_{\rm a}$ von der Masse $m_{\rm a}$ der Absorberatome wurde hierbei wieder durch einen Polynomzug angepasst. Für die Versetzungsenergie $E_{\rm v}$ wurden jeweils die von SRIM bereitgestellten Werte verwendet. Die generelle Abhängigkeit der simulierten Daten von der Absorberatommasse wird durch das gezeigte Modell gut beschrieben. Mit Ausnahme von Beryllium ergeben sich hierbei jeweils Abweichungen von unter 35%. Um die Erzeugung von Frenkel-Paaren im Absorber bei der Detektion massiver Teilchen zu reduzieren, ist nach diesem Modell insbesondere eine geringe Dichte des Absorbermaterials wünschenswert. So lässt sich die Anzahl der erzeugten Frenkel-Paare beispielsweise durch die Verwendung von Silber anstelle von Gold als Absorbermaterial um etwa 12% und durch die Verwendung von Aluminium sogar um etwa 32% reduzieren. Eine noch geringere Anzahl erzeugter Frenkel-Paare ergibt sich unter den simulierten Materialien neben Beryllium nur für Lanthan und Blei. Für die letzten beiden ist allerdings verglichen mit Aluminium aufgrund der höheren Atommasse ein um ein Vielfaches höherer Anteil zurückgestreuter Ionen zu erwarten.

Eine durch die Verwendung eines anderen Absorbermaterials reduzierte Anzahl erzeugter Frenkel-Paare resultiert im Fall von Materialien mit gleich großen Frenkel-Paar-Energien auch in einem geringeren mittleren Energieverlust sowie einer geringeren Vergrößerung der instrumentellen Linienbreite. Anhand von berechneten Werten sind hierbei beispielsweise für Silber [Wal94] und Aluminium [Iye14] ähnliche Frenkel-Paar-Energien wie für Gold [Wal94] mit Abweichungen von nur etwa 10 % zu erwarten.

Anhand der hier gezeigten Simulationen wurde beispielhaft für die Detektion von Kohlenstoffionen mit einer kinetischen Energie von 50 keV in Absorbern aus Silber sowie Aluminium die insgesamt in Form von Wärme im Absorber deponierte Energie der einzelnen Ionen berechnet. Hierzu wurden jeweils die Energieverluste durch Rückstreuung, Sputtern und die Erzeugung von Frenkel-Paaren von der ursprünglichen kinetischen Energie der einzelnen Ionen abgezogen, wobei jeweils eine Frenkel-Paar-Energie von $E_{\rm FP} = 2,8 \, {\rm eV}$ angenommen wurde. Abbildung 5.14 zeigt das resultierende Energiespektrum für Absorber aus Silber (links) und Aluminium (rechts). Zur Modellierung der durch die Erzeugung von Frenkel-Paaren verursachten Linien-



Abb. 5.14: Simulierte Energieverteilungen von 10.000 Kohlenstoffionen, die mit einer kinetischen Energie von 50 keV auf einen Absorber aus Silber (links) bzw. Aluminium (rechts) treffen nach Abzug der Summe der Energieverluste durch Rückstreuung, Sputtern und die Erzeugung von Frenkel-Paaren. Für die Berechnungen wurde jeweils eine Frenkel-Paar-Energie von $E_{\rm FP} = 2,8 \,\text{eV}$ angenommen. Den simulierten Energieverteilungen ist jeweils in Rot eine numerische Anpassung von Gleichung 5.1 überlagert. In Blau ist zudem jeweils die entsprechende, in Abbildung 5.5 unten gezeigte Energieverteilung für einen Absorber aus Gold als Vergleich gezeigt.

form wurde die in Gleichung 5.1 gegebene Funktion jeweils in dem in 5.2 definierten Energiebereich an die gezeigten Spektren angepasst. Die daraus resultierenden Werte für die Konstante τ des zusätzlichen exponentiellen niederenergetischen Abfalls sowie den Erwartungswert E_0 und die Standardabweichung $\sigma_{\rm FP}$ des Gauß-förmigen Anteils der Verteilung finden sich im jeweiligen Spektrum. In Hellblau ist in Abbildung 5.14 zudem jeweils das entsprechende Spektrum für Absorber aus Gold gezeigt. Die geringere Anzahl an Ereignissen in diesem Spektrum im dargestellten Energiebereich ist dabei auf die zuvor diskutierte höhere Anzahl zurückgestreuter Kohlenstoffionen zurückzuführen. Die Asymmetrie der hier gezeigten Linienform, die sich durch das Verhältnis $\tau/\sigma_{\rm FP}$ beschreiben lässt, ist für Absorber aus Aluminium deutlich ausgeprägter als für Absorber aus Gold und Silber. Während sich die durch die Erzeugung von Frenkel-Paaren verursachte Verschiebung der gemessenen Linie durch die Verwendung von Silber als Absorbermaterial anstelle von Gold um etwa 24% und durch die Verwendung von Aluminium um etwa 46 % reduzieren lässt, verringert sich die durch die Standardabweichung $\sigma_{\rm FP}$ gegebene zusätzliche Gauß-förmige Verbreiterung der Linie im Fall von Silber um etwa 13% und im Fall von Aluminium sogar um etwa 40 %.

Wahl des Absorbermaterials

Von allen simulierten Absorbermaterialien erscheint Aluminium als am besten geeignet für die Detektion von Molekülfragmenten am kryogenen Speicherring CSR. Insbesondere die anhand der Simulationen erwartete Reduktion der Rückstreuung zu detektierender massiver Teilchen, die wie in Abschnitt 5.2.3 gezeigt vor allem bei der Detektion molekularer Teilchen problematisch sein kann, macht Aluminium hierbei zu einem besonders geeigneten Kandidaten als Absorbermaterial. Wie in Abschnitt 5.1.1 erläutert wurde, wären für Absorber aus purem Aluminium allerdings sehr hohe Dicken nötig, um eine ausreichend hohe Absorptionswahrscheinlichkeit der typischerweise zur Kalibration der Detektoren verwendeten Röntgenphotonen zu erzielen.

Aufgrund der geringen Eindringtiefe von massiven Teilchen in Festkörpern ist es dabei ausreichend, den Absorber stattdessen mit einer dünnen Schicht des gewünschten Materials in der Größenordnung von etwa 100 nm zu bedecken. Die benötigte Schichtdicke ist hierbei abhängig von dem gewünschten Absorbermaterial sowie der Energie und Masse der zu detektierenden Atome. Bei der Detektion von Kohlenstoffionen mit einer kinetischen Energie von 50 keV in Absorbern aus Aluminium beispielsweise beträgt die mittlere Eindringtiefe der Ionen etwa $\overline{R} = 126$ nm. Den Simulationen zufolge ist in diesem Fall eine 180 nm dünne Aluminiumschicht auf den Absorbern ausreichend, um über 90 % der auftreffenden Kohlenstoffionen bereits innerhalb der Aluminiumschicht zu stoppen.

5.3 Experimenteller Aufbau

Zur experimentellen Überprüfung der in Unterkapitel 5.2 diskutierten Simulationsergebnisse wurde im Rahmen dieser Arbeit ein Experiment am Max-Planck-Institut für Kernphysik (MPIK) in Heidelberg durchgeführt, bei dem metallische magnetische Kalorimeter mit unterschiedlichen atomaren und molekularen Ionen sowie neutralen Molekülfragmenten mit Massen zwischen 1 u und 58 u und mit kinetischen Energien von bis zu 150 keV bestrahlt wurden. Im Folgenden werden zunächst die dabei verwendeten Detektoren sowie der Aufbau der Detektorplattform für deren Betrieb und Auslesung vorgestellt. Des Weiteren werden der Kryostat, der zur Bereitstellung der benötigten Betriebstemperaturen von unter 100 mK dient, und die zur Kalibration der Detektoren verwendete radioaktive Quelle beschrieben. Im Anschluss wird dann kurz der Aufbau zur Erzeugung der Ionenstrahlen erläutert. Die experimentellen Ergebnisse der mit diesem Aufbau durchgeführten Messungen werden in Unterkapitel 5.4 diskutiert.

5.3.1 MaXs-200-Detektoren

Zur Detektion der Ionen wurden zwei Detektorchips vom Typ maXs-200 verwendet, deren hier erzielte intrinsische Energieauflösung von etwa 100 eV vergleichbar mit der erwarteten intrinsischen Energieauflösung des für die Messungen am CSR entwickelten Detektors MOCCA ist, welcher in Kapitel 6 beschrieben wird. Die maXs-200-Detektoren sind eindimensionale Arrays von metallischen magnetischen Kalorimetern, die in [Pie12b] zur Detektion von harten Röntgenphotonen entwickelt wurden und für eine Photonen-Energie von bis zu 200 keV optimiert sind.

Abbildung 5.15a) zeigt eine schematische Zeichnung von zwei Mikrokalorimetern eines solchen Detektorarrays. Diese bilden zusammen ein Gradiometer, wie es in Abschnitt 3.3.2 beschrieben wurde. Die beiden gemeinsam von einem SQUID ausgelesenen mäanderförmigen Detektionsspulen bestehen aus 250 nm hohen und 6 μ m breiten Mäanderbahnen mit einem Mitte-zu-Mitte-Abstand von 10 μ m und decken jeweils eine Fläche von 450 μ m · 2000 μ m ab. Die daraufliegenden 3,5 μ m hohen Sensoren haben, ebenso wie die 200 μ m hohen Absorber, die gleiche Grundfläche wie die Detektionsspulen und bestehen aus der in Unterkapitel 3.2 diskutierten Legierung <u>Au</u>:Er, wobei die Erbium-Konzentration der hier verwendeten Sensoren 750 ppm beträgt. Die lange Thermalisierungszeit innerhalb des verhältnismäßig großen Volumens der Absorber, die in [Pie12b] vollflächigen Kontakt zu den Sensoren hatten, dominierte dort die Anstiegszeit des Detektorsignals, woraus eine Abhängigkeit der Signalanstiegszeit vom Absorptionsort des Energieeintrags im Absorber resultierte. Um diese Ortsabhängigkeit zu reduzieren, sind die hier verwendeten Absorber einer-



Abb. 5.15: a) Schematische Explosionszeichnung eines Mikrokalorimeter-Paares eines maXs-200-Detektors. b) Fotografie eines maXs-200-Detektorchips mit acht Mikrokalorimetern.

seits durch 16 Stämme mit einem Durchmesser von jeweils 30 µm mit dem Sensor verbunden. Durch diese Stämme, die genau wie die Absorber, aus galvanisch abgeschiedenem Gold bestehen, wird die Kontaktfläche zum Sensor auf etwa 1% verringert. Um darüber hinaus eine schnelle Thermalisierung der relativ großflächigen Sensoren zu ermöglichen, ist jeder Sensor zudem vollflächig mit einer 2,5 µm hohen galvanisch abgeschiedenen Goldschicht bedeckt, die nur um die Stämme herum durch 50 µm breite Löcher ausgespart wurde. Auf diese Weise wird der Signalanstieg wie in Abschnitt 3.4.1 diskutiert ausgebremst, sodass die Signalanstiegszeit von etwa 14 µs durch die Wärmeleitung innerhalb des kleinen Sensorbereichs unterhalb der 10 µm breiten Schlitze zwischen den Stämmen und der Goldschicht limitiert wird. Die Goldschicht auf den Sensoren ist zudem über einen schmalen Steg aus Gold mit einer mit Gold bedeckten Thermalisierungsfläche verbunden, wodurch wie in Unterkapitel 4.3 beschrieben eine schwache thermische Verbindung zum Sensor zur Abführung der eingetragenen Wärme hergestellt wird. Die durch diese thermische Verbindung definierte Abklingzeit des Detektorsignals beträgt etwa 5 ms. Auf den beiden verwendeten Detektorchips findet sich die in Abbildung 5.15a) dargestellte Struktur mit zwei Absorbern jeweils viermal.

Abbildung 5.15b) zeigt eine Fotografie eines solchen maXs-200-Detektorchips. Die acht Absorber haben einen Mitte-zu-Mitte-Abstand von jeweils $555 \,\mu\text{m}$ und bil-

den zusammen eine sensitive Fläche von insgesamt $7,2 \text{ mm}^2$. Die Thermalisierungsflächen sind an der oberen Chipkante zu sehen. Die Anschlüsse für die SQUID-Einkoppelspulen und die Feld- und Heizerleitungen befinden sich an den restlichen drei Chipkanten. Um zudem den in Abschnitt 5.2.4 simulierten Einfluss des Absorbermaterials auf die bei der Detektion massiver Teilchen auftretenden und in Abschnitt 5.1.2 diskutierten Festkörpereffekte überprüfen zu können, wurden die Absorber eines der beiden verwendeten Detektorchips zusätzlich mit einer etwa 180 nm dicken Aluminiumschicht bedeckt. Bis auf diese zusätzliche Aluminiumschicht sind die beiden verwendeten Detektoren baugleich.

5.3.2 Detektorplattform

Die im vorigen Abschnitt beschriebenen Detektoren wurden genau wie die verwendeten Detektor-SQUIDs⁹ mit einem Spulen-Lack¹⁰ auf einer gemeinsamen Halterung aus Kupfer aufgeklebt, wodurch ein guter thermischer Kontakt zwischen Halterung und Detektor- beziehungsweise SQUID-Substrat hergestellt wird. Diese Detektorhalterung wurde dann stirnseitig an einem Kupferarm angebracht, der wiederum an der Mischkammerplattform des in Abschnitt 5.3.3 beschriebenen Kryostaten befestigt wurde.

Abbildung 5.16 zeigt den im Kryostaten montierten Kupferarm mit allen daran befestigten Komponenten des experimentellen Aufbaus, dessen Konzept bereits in Unterkapitel 4.3 diskutiert wurde. Die unterschiedlichen Absorbermaterialien der verwendeten Detektoren sind hier gut unterscheidbar. Ebenfalls zu erkennen sind die zur Thermalisierung der Detektoren genutzten Golddrähte sowie die zur elektrischen Kontaktierung verwendeten Aluminiumdrähte. Unter den Detektor-SQUID-Chips wurde die Detektorhalterung zudem mit einer 1 µm dicken Niobschicht bedeckt, die bei den geringen Betriebstemperaturen der verwendeten Detektoren supraleitend ist und somit die SQUID-Spule vor dem in Abschnitt 3.4.4 diskutierten magnetischen Johnson-Rauschen der Kupferhalterung abschirmt. Die auf der Detektorhalterung angeschraubte Platine zur Kontaktierung der SQUIDs und der Feld- und Heizerleitungen der Detektoren besitzt mittig eine kreuzförmige Aussparung, sodass die Detektor- und SQUID-Chips direkt auf der Kupferhalterung aufliegen. An den vier Seiten besitzt sie zudem flexible Verlängerungsstücke, deren Enden zur Kontaktierung der Verstärker-SQUID-Platine mit jeweils einem Stecker versehen sind. Die Verstärker-SQUIDs¹¹ und die Verstärker-SQUID-Platine sind, wie in Unterkapitel 4.3 erläutert, auf einer separaten Halterung aufgebracht, die durch ein Vierkantrohr aus Kupfer realisiert ist, welches den Kupferarm umgibt. An diesem ist es mit Schrauben

⁹C6X1NM, Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB), Abbestraße 2, 10587 Berlin

¹⁰GE-7031, Lake Shore Cryotronics, Inc., 575 McCorkle Boulevard, Westerville, Ohio 43082, USA

¹¹C6X16FL, Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB), Abbestraße 2, 10587 Berlin



Abb. 5.16: Fotografie des an der Mischkammerplattform des Kryostaten befestigten Kupferarms, der die Kupferhalterung mit den Detektoren und den Detektor-SQUIDs sowie das Vierkantrohr mit den Verstärker-SQUIDs trägt.

befestigt, die zur thermischen Isolation mit dünnem Teflon-Band umwickelt und mit Plastikscheiben unterlegt sind. Das Vierkantrohr selbst ist über geflochtene Kupferdrähte ebenfalls thermisch an die Mischkammerplattform angekoppelt. Bei dem hier beschriebenen Aufbau wurden nur an der Unterseite des Vierkantrohrs Verstärker-SQUIDs angebracht, die daher in Abbildung 5.16 nicht zu sehen sind.

Als Abschirmung gegen fluktuierende externe Magnetfelder wurde ein 27 cm langer, bei den Betriebstemperaturen der verwendeten Detektoren supraleitender Niobhohlzylinder mit Kappe verwendet. Dieser wird über den gesamten in Abbildung 5.16 gezeigten Aufbau gestülpt und dient somit als gemeinsame Abschirmung für Detektoren, Detektor-SQUIDs und Verstärker-SQUIDs. In der Kappe des Niobzylinders befindet sich mittig eine kreisförmige Öffnung mit einem Durchmesser von 8 mm, sodass die zu detektierenden massiven Teilchen auf die Absorber der Detektoren gelangen können. In Abbildung 5.16 sind zudem vier Schrauben aus Messing zu sehen, die seitlich an der Detektorhalterung angebracht sind. Diese Schrauben fixieren den Niobzylinder an der Detektorplattform, um Relativbewegungen zwischen den Detektoren und dem Niobzylinder zu verhindern. Darüber hinaus stellen sie einen ausreichend guten thermischen Kontakt zu der Detektorplattform her, sodass der Niobzylinder unter seine kritische Temperatur gekühlt und somit supraleitend wird. Durch Verstellen der Schrauben ist dabei eine Positionierung des Niobzylinders relativ zu der Detektorhalterung möglich.

5.3.3 Kryostat

Zum Erzeugen der Betriebstemperaturen der verwendeten Detektoren wurde ein trockener ${}^{3}\text{He}/{}^{4}\text{He-Verdünnungskryostat}{}^{12}$ (siehe Unterkapitel 4.4) verwendet, der auf der Mischkammerplattform eine Basistemperatur von unter 10 mK erreicht.

Zum Betrieb der Detektoren und der SQUIDs ist dieser Kryostat mit Kabeln aus lackisolierten Drähten ausgestattet, die wie in Unterkapitel 4.4 beschrieben verdrillt und thermisch an den einzelnen Temperaturstufen des Kryostaten angekoppelt sind. Zwischen Raumtemperatur und der 4 K-Stufe des Kryostaten sind diese Drähte aus einer $Cu_{0,98}Ni_{0,02}$ -Legierung¹³ gefertigt, welche im Vergleich zu reinem Kupfer den Vorteil einer reduzierten Wärmeleitfähigkeit bietet. Auf der 4 K-Stufe gehen die Drähte in supraleitende Drähte¹⁴ aus Niob-Titan-Multifilamenten in einer Kupfer-Nickel-Matrix über, die bis zu der Mischkammerplattform reichen. Durch die Verwendung von supraleitenden Drähten wird die Leistungsdissipation auf den niedrigen Temperaturstufen des Kryostaten reduziert.

Abschirmung der Wärmestrahlung

Der in Abschnitt 5.3.2 beschriebene Kupferarm, welcher an der Mischkammerplattform des Kryostaten befestigt ist und die Detektoren und SQUIDs trägt, ragt etwa 27 cm weit aus dem ursprünglichen Experimentiervolumen des verwendeten Kryostaten heraus. Zur thermischen Abschirmung der Detektoren und SQUIDs wurden die Strahlungsschilde des Kryostaten daher durch mehrere konzentrisch um den Kupferarm angeordnete Rohre erweitert, die thermisch an den verschiedenen Temperaturstufen des Kryostaten angekoppelt sind.

Abbildung 5.17 zeigt eine Zeichnung dieser zusätzlichen Strahlungsschilde, die den Kupferarm mit dem darübergestülpten Niobzylinder umgeben. Um die Platzierung der Verstärker-SQUIDs anzudeuten, ist die an der Unterseite der Verstärker-SQUID-Halterung angebrachte Verstärker-SQUID-Platine in dieser schematischen Abbildung seitlich eingezeichnet. Die zusätzlichen Strahlungsschilde auf der 0,75 K- und der 4 K-Temperaturstufe (0,75 K-Rohr und 4 K-Rohr) sind aus Aluminium und das Strahlungsschild auf der 50 K-Temperaturstufe (50 K-Rohr) aus Kupfer gefertigt. Da das

¹²BF-LD250, BlueFors Cryogenics Oy, Arinatie 10, 00370 Helsinki, Finnland

¹³Alloy 30, Isabellenhütte Heusler GmbH & Co. KG, Eibacher Weg 3-5, 35683 Dillenburg

¹⁴European Advanced Superconductors GmbH & Co. KG, inzwischen: Bruker EAS GmbH, Ehrichstraße 10, 63450 Hanau



Abb. 5.17: Schematische Darstellung der an der Mischkammerplattform des Kryostaten angebrachten Detektorplattform mit dem Niobzylinder und den Strahlungsschilden.

0,75 K-Rohr somit beim Betrieb des Kryostaten supraleitend ist, dient es darüber hinaus neben dem Niobzylinder ebenfalls als Abschirmung gegenüber fluktuierenden externen Magnetfeldern. Am Vakuumtopf des Kryostaten wurde über einen Deckelflansch mit Loch zudem ein weiteres Rohr aus Edelstahl angeflanscht. Dieses Vakuumrohr wurde dann mit dem Strahlrohr des in Abschnitt 5.3.5 beschriebenen Ionenbeschleunigers verbunden, sodass der Kryostat und der Beschleuniger ein gemeinsames Vakuum teilen.

Um ein ungehindertes Auftreffen der zu detektierenden Ionen auf den Absorbern zu ermöglichen, haben sämtliche Rohre stirnseitig eine kreisförmige Öffnung über den Detektoren. Diese Öffnungen bringen allerdings den Nachteil mit sich, dass auch Wärmestrahlung aus dem 50 K-Rohr und aus dem bei Raumtemperatur betriebenen Strahlrohr direkt auf die Detektoren gelangt. Üblicherweise werden zur Abschirmung dieser Wärmestrahlung mehrere dünne, infrarotabsorbierende Folien verwendet. Da die Reichweite massiver Teilchen in Festkörpern, wie in Unterkapitel 5.2 gezeigt, jedoch sehr gering ist, würden solche Folien auch die zu detektierenden Ionen selbst komplett absorbieren.

Zur Abschirmung der Wärmestrahlung wurde daher stattdessen vor der Öffnung des 4 K-Rohrs eine 5 µm dicke Goldfolie mit sechs Löchern mit einem Durchmesser von jeweils nur 4 µm angebracht, die im Reinraum durch Mikrostrukturierungsprozesse

hergestellt wurde. Ein Teil der Ionen kann so ungehindert durch die Löcher auf die Absorber treffen. Der gewählte Lochabstand von 1387,5 μ m entspricht hierbei genau dem 2,5-fachen Mitte-zu-Mitte-Abstand zweier Absorber, sodass jeweils nur eines der beiden gemeinsam von einem SQUID ausgelesenen Mikrokalorimeter von den Ionen getroffen wird. Durch diese Goldfolie werden somit zwar der Anteil der auf die Detektoren treffenden Ionen, aber auch die auftreffende Wärmestrahlung aus dem 50 K-Rohr und dem Strahlrohr stark reduziert.

Um sicherzustellen, dass Wärmestrahlung aus dem Strahlrohr nur auf direktem Weg durch die Öffnung im 50 K-Rohr und anschließend durch die Löcher in der Goldfolie gelangen kann, aber nicht zusätzlich noch aufgrund von Reflexionen an der Innenfläche des 50 K-Rohrs, wurden an der Öffnung des 50 K-Rohrs mehrere aufeinanderfolgende ringförmige Aluminiumblenden mit einem Innenradius von jeweils $R = 5 \,\mathrm{mm}$ angebracht. Diese sollen die auftreffende Wärmestrahlung durch mehrfache Reflexion und Absorption möglichst gut absorbieren. Um die Absorption der Wärmestrahlung zusätzlich zu unterstützen, wurden die vom Strahlrohr abgewandten Oberflächen der Aluminiumblenden mit dem Epoxidharz ECCOSORB¹⁵ beschichtet, welches Infrarotstrahlung besonders gut absorbiert. Um ein elektrisches Aufladen des elektrisch nichtleitenden Harzes durch auftreffende Ionen zu verhindern, wurde dabei einerseits auf eine Beschichtung der dem Strahlrohr zugewandten Oberflächen verzichtet, andererseits wurden die beschichteten Oberflächen zusätzlich mit einer dünnen Goldschicht bedeckt. In erster Näherung können die Aluminiumblenden somit als idealer schwarzer Tunnel betrachtet werden, welcher den Raumwinkel der passierenden Wärmestrahlung so stark begrenzt, dass keine Wärmestrahlung direkt auf die Innenfläche des 50 K-Rohrs treffen kann.

Die Wärmestrahlung, die somit aus der Umgebung des Strahlrohrs mit der Temperatur $T_1 = 300$ K durch die Aluminiumblenden und durch ein Loch in der Goldfolie auf ein Mikrokalorimeter gelangt, lässt sich mit Hilfe des Stefan-Boltzmann-Gesetzes [Ste79, Bol84] abschätzen. Aus dem Strahlrohr gelangt die Wärmestrahlung dabei zunächst durch die Aluminiumblenden in das Innere des 50 K-Rohrs, wobei sich die effektive strahlende Fläche aus dem Innenradius R der Blenden zu πR^2 berechnet. Beim Erreichen der Goldfolie im Abstand $L \approx 60$ mm hat sich die Wärmestrahlung auf eine Halbkugeloberfläche $A_{\rm h} = 2\pi L^2$ ausgebreitet. Da der Radius $r = 2 \,\mu$ m der Löcher in der Goldfolie viel kleiner ist als der Innenradius R = 5 mm der Aluminiumblenden, der wiederum viel kleiner ist als der Abstand L der Goldfolie zur äußersten Blende, lässt sich der Anteil dieser Wärmestrahlung, der auf ein Loch in der Goldfolie trifft, durch das Verhältnis $A_{\rm r}/A_{\rm h}$ der Lochfläche $A_{\rm r} = \pi r^2$ zu der Halbkugeloberfläche $A_{\rm h}$ abschätzen. Insgesamt ergibt sich die effektive mit einer Temperatur von

¹⁵ECCOSORB CR-117, Emerson & Cuming Microwave Products, Inc., 28 York Avenue, Randolph, MA 02368 USA
$T_1 = 300 \,\mathrm{K}$ strahlende Fläche somit zu

$$A_{300\,\mathrm{K}}^* \approx \frac{R^2}{2L^2} \pi r^2. \tag{5.22}$$

Mit der Stefan-Boltzmann-Konstanten $\sigma = 2\pi^5 k_{\rm B}^4/(15h^3c^2)$ erhält man damit die Leistung

$$P_{300\,\mathrm{K}} = A^*_{300\,\mathrm{K}} \sigma T_1^4 \approx 20\,\mathrm{pW} \tag{5.23}$$

der auftreffenden Wärmestrahlung aus dem Strahlrohr, wobei $k_{\rm B} = 1,38 \cdot 10^{-23} \,\text{J/K}$ die Boltzmann-Konstante, $h = 6,63 \cdot 10^{-34} \,\text{Js}$ das Plancksche Wirkungsquantum und $c = 299792458 \,\text{m/s}$ die Lichtgeschwindigkeit bezeichnen. Zusammen mit der mittleren Photonenenergie

$$\overline{E}_{300\,\mathrm{K}} = \frac{\pi^4 k_\mathrm{B}}{30\zeta(3)} T_1 \approx 1.1 \cdot 10^{-20} \,\mathrm{J},\tag{5.24}$$

die sich aus dem Planckschen Strahlungsgesetz ergibt, berechnet sich aus dieser Strahlungsleistung der mittlere Photonenfluss

$$\frac{\langle n_{300\,\mathrm{K}} \rangle}{\Delta t} = \frac{P_{300\,\mathrm{K}}}{\overline{E}_{300\,\mathrm{K}}} = A_{300\,\mathrm{K}}^* \frac{30\zeta(3)}{\pi^4 k_\mathrm{B}} \sigma T_1^3 \approx \frac{1.8 \cdot 10^9}{\mathrm{s}} \tag{5.25}$$

auf dem Mikrokalorimeter. Hierbei sind $\zeta(s) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^s}$ die Riemannsche Zeta-Funktion mit $\zeta(3) \approx 1,202$ und $\langle n_{300\,\text{K}} \rangle$ die mittlere Anzahl der in einem Zeitintervall Δt auftreffenden Photonen. Da die Absorber aus Gold, ebenso wie die zusätzliche Aluminiumschicht auf den Absorbern, im Infrarotbereich jeweils eine sehr hohe Reflektivität $\varrho > 90\%$ besitzen sollten [Bas95], wird jedoch nur ein geringer Bruchteil $1 - \varrho$ der auftreffenden Infrarotphotonen absorbiert. Während der Dauer eines Detektorereignisses von etwa 5 ms variiert die Anzahl $n_{300\,\text{K}}$ der absorbierten Infrarotphotonen folglich mit einer Standardabweichung von $\sqrt{\langle n_{300\,\text{K}} \rangle (1-\varrho)} \lesssim 950$. Durch die Wärmestrahlung aus dem Strahlrohr ist somit ein zusätzlicher Beitrag zur Linienbreite des Detektors von etwa

$$\Delta E_{\rm FWHM}^{300\,\rm K} \approx 2\sqrt{2\ln 2} \,\sqrt{\langle n_{300\,\rm K} \rangle \,(1-\varrho)} \,\,\overline{E}_{300\,\rm K} \lesssim 150\,\rm eV \tag{5.26}$$

zu erwarten.

Für die Wärmestrahlung, die vom 50 K-Rohr $(T_2 = 50 \text{ K})$ selbst durch die Löcher in der Goldfolie gelangt, gilt entsprechend

$$A_{50\,\mathrm{K}}^* \approx \left(1 - \frac{R^2}{2L^2}\right) \pi r^2,$$
 (5.27)

$$P_{50\,\mathrm{K}} \approx A_{50\,\mathrm{K}}^* \sigma T_2^4 \approx 4\,\mathrm{pW},$$
 (5.28)

$$\overline{E}_{50\,\mathrm{K}} = \frac{\pi^4 k_\mathrm{B}}{30\zeta(3)} T_2 \approx 1.9 \cdot 10^{-21} \,\mathrm{J}$$
(5.29)

und

$$\frac{\langle n_{50\,\mathrm{K}} \rangle}{\Delta t} = A_{50\,\mathrm{K}}^* \frac{30\zeta(3)}{\pi^4 k_\mathrm{B}} \sigma T_2^3 \approx \frac{2.4 \cdot 10^9}{\mathrm{s}}.$$
(5.30)

Unter Berücksichtigung der Reflektivität der Absorber von über 90%folgt daraus ein Beitrag zur Linienbreite von

$$\Delta E_{\rm FWHM}^{50\,\rm K} \approx 2\sqrt{2\ln 2} \sqrt{\langle n_{50\,\rm K} \rangle (1-\varrho)} \ \overline{E}_{50\,\rm K} \lesssim 30\,\rm eV.$$
(5.31)

Insgesamt ist somit durch die von dem 50 K-Rohr und dem bei Raumtemperatur betriebenen Strahlrohr aus auf ein Mikrokalorimeter treffende Wärmestrahlung ein zusätzlicher Beitrag zur Linienbreite des Detektors von bis zu

$$\Delta E_{\rm FWHM} = \sqrt{(\Delta E_{\rm FWHM}^{300\,\rm K})^2 + (\Delta E_{\rm FWHM}^{50\,\rm K})^2} \lesssim 150\,\rm eV \tag{5.32}$$

zu erwarten. Dieser Beitrag dominiert zwar gegenüber der ohne auftreffender Wärmestrahlung erwarteten intrinsischen Energieauflösung eines maXs-200-Detektors von etwa 35 eV, für die im folgenden Unterkapitel diskutierten Messungen ist die damit erreichbare Energieauflösung allerdings ausreichend. Insbesondere bei der Massenspektroskopie von Fragmenten der dort untersuchten Molekülionen mit Massen von bis zu 58 u und kinetischen Energien zwischen etwa 13 keV und etwa 150 keV ist diese Verbreiterung der Energieauflösung nicht limitierend, wenn eine Massenauflösung von $\Delta m_{\rm f} \leq 1$ u erreicht werden soll.

Von der insgesamt mit einer Strahlungsleistung von

$$P_{\rm m} \approx P_{300\,\rm K} + P_{50\,\rm K} \approx \pi r^2 \sigma \left(\frac{R^2}{2L^2}(T_1^4 - T_2^4) + T_2^4\right) \approx 24\,\rm pW$$
 (5.33)

auf ein Mikrokalorimeter treffenden Wärmestrahlung werden aufgrund der Reflektivität $\rho > 90 \%$ weniger als 2,4 pW absorbiert. Bei einer Betriebstemperatur von 20 mK, bei der ein Mikrokalorimeter eines maXs-200-Detektors eine Gesamtwärmekapazität von $C_{\rm ges} \approx 700 \, {\rm pJ/K}$ sowie eine Signalabklingzeit von $\tau_{\rm b} \approx 5 \, {\rm ms}$ hat, resultiert mit dem Wärmeleitwert $G_{\rm sb} \approx C_{\rm ges}/\tau_{\rm b}$ aus dieser Strahlungsleistung eine absolute Temperaturerhöhung von etwa

$$\Delta T_{\rm m} \approx P_{\rm m} \frac{\tau_{\rm b}}{C_{\rm ges}} (1 - \varrho) \approx 0.02 \,\mathrm{mK}$$
(5.34)

und somit ein Anstieg der Detektortemperatur um nur etwa 0,1%.

Für die Wärmestrahlung, die insgesamt durch die n = 6 Löcher in der Goldfolie auf die Detektorplattform gelangt, ergibt sich eine Strahlungsleistung von

$$P_{\rm ges} = nP_{\rm m} \approx 147\,\mathrm{pW},\tag{5.35}$$

welche verglichen mit der nominellen Kühlleistung des Kryostaten von etwa $10 \,\mu W$ bei einer Betriebstemperatur von $20 \,\mathrm{mK}$ vernachlässigbar gering ist. Mit Hilfe der hier beschriebenen Bauteile zur Abschirmung von Wärmestrahlung kann somit eine ausreichend niedrige und stabile Temperatur zum Betrieb der Detektoren gewährleistet werden.

5.3.4 Kalibrationsquelle

Zur Kalibration der Detektoren wurde eine gekapselte ²⁴¹Am-Quelle im Vakuumrohr des Kryostaten in einem Abstand von etwa 15 cm zu den Detektoren angebracht. Das Americium-Isotop ²⁴¹Am zerfällt mit einer Halbwertszeit von 432,2 Jahren über einen Alpha-Zerfall in den angeregten Kernzustand von ²³⁷Np, woraufhin es zu der Erzeugung von Gamma- und Röntgen-Photonen kommt. Während diese das Gehäuse der verwendeten Quelle verlassen können, werden die entstehenden Alpha-Teilchen bereits innerhalb des Gehäuses gestoppt. Für die Energiekalibration wurde im Rahmen dieser Arbeit die dominanteste Gamma-Linie bei einer Photonenenergie von $E_{\gamma} = 59,5409 \,\text{keV}$ [Hel00] verwendet.

5.3.5 Ionenstrahl-Erzeugung

Bei den im folgenden Unterkapitel vorgestellten Messungen wurden nahezu monoenergetische Ionenstrahlen aus den einfach geladenen atomaren Kationen von Wasserstoff (H⁺), Kohlenstoff (C⁺), Stickstoff (N⁺) und Argon (Ar⁺), sowie den molekularen Kationen der Methylgruppe (CH_3^+) , von Kohlenstoffdioxid (CO_2^+) und von Aceton $(CH_3COCH_3^+)$ auf die in Abschnitt 5.3.1 beschriebenen Detektoren gelenkt. Abbildung 5.18a) zeigt eine schematische Zeichnung des Aufbaus zur Erzeugung, Fokussierung und Ablenkung dieser Ionenstrahlen. Die Ionenstrahl-Erzeugung erfolgte dabei auf der Hochspannungs-Ionenstrahl-Plattform des MPIK [Kra11]. Durch eine Gasentladung wurden dort zunächst positiv geladene Ionen in einer Penning-Ionenquelle erzeugt. Diese wurden dann von einem ersten Beschleuniger auf eine kinetische Energie von etwa 13 keV beschleunigt und anschließend von einem 90° -Dipol-Magneten nach ihrem Masse-zu-Ladungs-Verhältnis gefiltert. Beim Verlassen der Plattform wurden die Ionen schließlich in einer zweiten Beschleunigerstufe durch das Plattform-Potential auf ihre endgültige kinetische Energie beschleunigt, wobei zwei verschiedene Spannungsquellen zur Verfügung standen, die im Folgenden als Spannungsquelle A und Spannungsquelle B bezeichnet werden. Während Spannungsquelle A mit einer Spannung U_{2A} von maximal 40 kV Ionenstrahlenergien von bis zu ~ 53 keV ermöglichte, konnten mit der Spannung U_{2B} der Quelle B von maximal 137 kV noch höhere Ionenstrahlenergien von bis zu 150 keV erzielt werden. Zur anschließenden Fokussierung der Ionenstrahlen auf die Detektoren wurden ein



Abb. 5.18: a) Schematische Darstellung des verwendeten experimentellen Aufbaus zur Erzeugung, Fokussierung und Ablenkung der Ionenstrahlen. b) Fotografie des mit dem Ionenbeschleuniger-Strahlrohr verbundenen Kryostaten.

elektrostatischer Quadrupol sowie zwei magnetische Ablenker verwendet.

Abbildung 5.18b) zeigt eine Fotografie des betriebsbereiten Messaufbaus am MPIK. Zu sehen ist hier der in Abschnitt 5.3.3 beschriebene Kryostat, in dem die Detektoren montiert sind, sowie ein Teil des Strahlrohrs des Ionenbeschleunigers inklusive des letzten magnetischen Ablenkers vor den Detektoren. Um zu verhindern, dass sich Ladungen von dem Ionenbeschleuniger auf den Kryostaten und den darin montierten Detektoraufbau übertragen, wurde zwischen dem Vakuumrohr des Kryostaten und dem Strahlrohr eine vakuumdichte galvanische Trennung angebracht.

Energieschärfe des Ionenstrahls

In den beiden Beschleunigerstufen mit den Beschleunigungsspannungen U_1 und U_2 gewinnen die Ionen jeweils eine kinetische Energie von $E_{1/2} = q U_{1/2}$, wobei die Ladung q = e der einzelnen einfach geladenen Ionen gerade der Elementarladung entspricht. Die Ionenstrahlenergie, also die gesamte kinetische Energie der beschleunigten Ionen, ergibt sich aus der Summe

$$E_{\rm kin} = E_1 + E_2 \tag{5.36}$$

dieser beiden Energien. Als relative und absolute systematische Unsicherheit¹⁶ wurden für die so berechnete Ionenstrahlenergie Werte von $\pm 0.5\%$ und $\pm 300 \,\text{eV}$ abge-

 $^{^{16} \}mathrm{Als}$ Fehlerbereich wird im Rahmen dieser Arbeit jeweils der abgeschätzte $1\sigma\text{-}\mathrm{Bereich}$ angegeben.

schätzt.

Aufgrund von Spannungsschwankungen der beiden Beschleunigerstufen mit den Halbwertsbreiten ΔU_1 und ΔU_2 ergeben sich zudem Schwankungen der Energien E_1 und E_2 , die im Folgenden vereinfachend jeweils durch eine Gauß-Verteilung mit der Standardabweichung

$$\sigma_{E1/2} = \frac{q \,\Delta U_{1/2}}{2\sqrt{2 \ln 2}} \tag{5.37}$$

beschrieben werden. Die Verteilung der kinetischen Energien der einzelnen Ionen ist folglich wiederum durch eine Gauß-Verteilung um die Energie E_{kin} mit einer Standardabweichung von

$$\sigma_{E_{\rm kin}} = \sqrt{\sigma_{E1}^2 + \sigma_{E2}^2} \tag{5.38}$$

gegeben. Die Beschleunigungsspannung $U_1 \approx 13 \,\mathrm{kV}$ der ersten Beschleunigerstufe war dabei innerhalb von $\Delta U_1 \approx 5 \,\mathrm{V}$ stabil. Die Spannung $U_{2\mathrm{A}}$ von Quelle A der zweiten Beschleunigerstufe war innerhalb von $\Delta U_{2A} \approx 4 V$ stabil, woraus insgesamt eine Standardabweichung der Ionenstrahlenergie von $\sigma_{E_{\rm kin}}^{\rm A} \approx 3 \, {\rm eV}$ resultiert, die verglichen mit der intrinsischen Energieauflösung der verwendeten Detektoren vernachlässigbar gering ist. Spannungsquelle B hingegen unterlag deutlich stärkeren Spannungsschwankungen, deren Spannungsspektrum sich in erster Näherung durch eine Gauß-Verteilung mit einer Halbwertsbreite von etwa 136 V beschreiben lässt. Für die zusätzliche Verbreiterung der gemessenen Spektren aufgrund dieser Spannungsschwankungen ist demnach eine Standardabweichung σ_{E2B} von 58 eV zu erwarten. Bei Vergleichsmessungen von Spektren atomarer Ionen, die jeweils mit Quelle A und B beschleunigt wurden, ergaben sich allerdings bei der Annahme einer Gaußförmigen Verbreiterung durch Quelle B und unter Verwendung der in Abschnitt 5.4.1 diskutierten Verteilung aus Gleichung 5.43 zur Beschreibung der gemessenen Linienform teilweise deutlich höhere Werte von bis zu 145 eV. Die genaue Ursache für die teilweise erhöhten Werte von σ_{E2B} konnte hierbei nicht gefunden werden. Zur Beschreibung der zusätzlichen Verbreiterung der gemessenen Spektren bei der Verwendung von Spannungsquelle B wird daher im Folgenden eine Gauß-Verteilung mit der Standardabweichung

$$\sigma_{E2B} \approx (100 \pm 50) \,\mathrm{eV} \tag{5.39}$$

verwendet.

Messung des Ionenstroms

Um eine Messung des auf die Goldfolie treffenden Ionenstroms zu ermöglichen, wurde diese an einem Faraday-Becher befestigt, der elektrisch von dem 4 K-Rohr isoliert vor dessen Öffnung angebracht wurde. Als Suppressorelektrode dienten hierbei die am 50 K-Rohr angebrachten Aluminiumblenden, die zu diesem Zweck elektrisch von dem 50 K-Rohr isoliert und auf ein negatives Potential von -120 V gebracht wurden. Auf diese Weise kann verhindert werden, dass Sekundärelektronen, die durch auftreffende Ionen aus der Goldfolie herausgeschlagen werden, den Faraday-Becher verlassen und somit das Messsignal verfälschen.

5.4 Experimentelle Ergebnisse

Unter Verwendung des im vorigen Unterkapitel diskutierten experimentellen Aufbaus wurden Energiespektren verschiedener atomarer und molekularer Ionen mit Massen zwischen 1 u und 58 u und kinetischen Energien zwischen 13 keV und 150 keV gemessen. Des Weiteren wurde an neutralen Fragmenten der Molekülionen die Fähigkeit des Aufbaus zur Massenspektroskopie demonstriert. Um den Einfluss des Absorbermaterials auf die gemessenen Spektren zu untersuchen wurden hierbei sowohl Messungen mit dem Detektor mit Absorbern aus reinem Gold als auch mit dem Detektor mit einer zusätzlichen 180 nm dicken Aluminiumschicht auf den Absorbern durchgeführt. Zur Kalibration der Detektoren wurden Photonen mit einer Energie von $E_{\gamma} = 59,541 \,\text{keV}$ aus der in Abschnitt 5.3.4 beschriebenen ²⁴¹Am-Quelle verwendet. Da die erwartete Nichtlinearität der hier verwendeten Detektoren bei dieser Photonenenergie weit unter 0,1 % liegt [Bat16], wurde hierbei eine lineare Energie-abhängigkeit der Amplituden der gemessenen Detektorsignale angenommen.

Im Folgenden werden zunächst einige Eigenschaften der verwendeten Detektoren besprochen. Anschließend werden die Messergebnisse, die bei der Detektion atomarer und molekularer Ionen, sowie bei der Massenspektroskopie neutraler Molekülfragmente erzielten wurden, diskutiert. Ein Teil der hier vorgestellten Ergebnisse wurde bereits in [Nov15] veröffentlicht.

5.4.1 Detektor-Eigenschaften

Bevor die bei der Detektion der Ionen erzielten Ergebnisse vorgestellt werden, sollen in diesem Abschnitt einige wesentliche Eigenschaften der verwendeten Detektoren erläutert werden. Hierbei werden zunächst der zeitliche Verlauf eines Detektorsignals sowie die hier erreichte intrinsische Energieauflösung der Detektoren und anschließend das bei der Detektion der Ionen erwartete Energiespektrum diskutiert.

Signaverlauf

Abbildung 5.19 zeigt ein gemitteltes Detektorsignal, welches bei der Detektion von $60 \,\mathrm{keV}$ -Gamma-Photonen aus der ²⁴¹Am-Quelle mit dem Detektor mit Absorbern aus



Abb. 5.19: Gemitteltes Signal des Detektors mit Absorbern aus Gold bei der Detektion von Photonen mit einer Energie von $E_{\gamma} = 59,541 \text{ keV}$. Zur Beschreibung der Signalform ist links eine Anpassung eines exponentiellen Anstiegs mit der Zeitkonstanten $\tau_{\rm a}$ und rechts eine Anpassung einer Summe von zwei exponentiellen Abfällen mit den Zeitkonstanten $\tau_{\rm b}$ und $\tau_{\rm Au}$ jeweils in Rot dem gemessenen Signal überlagert.

Gold gemessen wurde. Im linken Bild ist hierbei der nach Gleichung 3.44 erwartete exponentielle Signalanstieg gut erkennbar. Dem gemessenen Signal ist in Rot eine numerische Anpassung des erwarteten exponentiellen Anstiegs überlagert, aus der sich eine Anstiegszeit $\tau_{\rm a} = (14, 1 \pm 0, 3) \,\mu \text{s}$ ergibt, die von der in Abschnitt 5.3.1 beschriebenen thermischen Verbindung zwischen Absorber und Sensor bestimmt wird. Da die Sensoren der hier verwendeten Detektoren aus der in Unterkapitel 3.2 diskutierten Legierung <u>Au</u>:Er bestehen, lässt sich der rechts gezeigte Signalabfall nicht wie in dem in Abschnitt 3.4.1 diskutierten Fall durch einen einfachen exponentiellen Abfall beschreiben. Wie in Abschnitt 3.2.2 erläutert, stellen die Kernquadrupolmomente der Goldatome im Sensor hierbei ein zusätzliches thermodynamisches System dar, in das die Energie aus dem Spinsystem fließen kann, wodurch sich ein zusätzlicher Signalabfall mit der Zeitkonstante $\tau_{\rm Au}$ ergibt. Die Punktantwortfunktion des Detektors aus Gleichung 3.44 muss somit zu

$$p(t) = \beta \left(-e^{-t/\tau_{a}} + (1 - a_{Au}) e^{-t/\tau_{b}} + a_{Au} e^{-t/\tau_{Au}} \right)$$
(5.40)

erweitert werden, wobei a_{Au} den relativen Anteil des zusätzlichen Abfalls an der Signalhöhe beschreibt. Zur Beschreibung des Signalabfalls wurde daher eine Summe aus zwei Exponentialfunktionen verwendet, die an den gemessenen Signalabfall angepasst wurde und in Abbildung 5.19 rechts ebenfalls in Rot eingezeichnet ist. Aus dieser Anpassung ergeben sich eine Abklingzeit $\tau_{\rm b} = (5,009 \pm 0,005)$ ms, die durch die in Abschnitt 5.3.1 beschriebene thermische Verbindung zwischen Sensor und Thermalisierungsfläche definiert ist, sowie eine zusätzliche schnellere Abklingzeit $\tau_{Au} = (426 \pm 2) \,\mu$ s, die auf die Kernquadrupolmomente der Goldatome zurückzuführen ist. Der durch den Parameter a_{Au} gegebene Anteil dieses zusätzlichen exponentiellen Abfalls macht dabei $(28 \pm 9) \%$ an dem Gesamtabfall aus.

Intrinsische Energieauflösung

Zur Bestimmung der in dem hier verwendeten Aufbau erzielten intrinsischen Energieauflösung der Detektoren wurden zusätzlich zu den gemessenen Ereignissen aus der ²⁴¹Am-Quelle Nullsignale aufgenommen. Der in Unterkapitel 4.5 beschriebene Algorithmus zur Bestimmung der Signalamplituden wurde auch auf diese Nullsignale angewendet. Abbildung 5.20 zeigt das aus den so ermittelten Amplituden resultierende, mit dem Detektor mit Absorbern aus Gold gemessene Energiespektrum. In Rot



Abb. 5.20: Mit dem Detektor mit Absorbern aus Gold gemessenes Energiespektrum von Nullsignalen. In Rot ist die numerische Anpassung einer Gauß-Verteilung zur Bestimmung der intrinsischen Energieauflösung ΔE_{d0} des Detektors überlagert.

ist hierbei die Anpassung einer Gauß-Verteilung überlagert, aus der sich eine Standardabweichung $\sigma_{d0} = (45,5 \pm 1,0) \text{ eV}$ und somit eine intrinsische Energieauflösung des Detektors von

$$\Delta E_{\rm d0} = 2\sqrt{2\ln(2)}\sigma_{\rm d0} = (107 \pm 2)\,\rm eV \tag{5.41}$$

ergibt. Wie in Abschnitt 5.3.3 diskutiert wurde, wird der dominierende Beitrag zu dieser Energieauflösung durch auf die Absorber des Detektors auftreffende Wärmestrahlung verursacht. Die Obergrenze dieses Beitrags wurde in Gleichung 5.32 abgeschätzt, wobei eine Reflektivität der Absorber gegenüber Infrarotphotonen von $\rho > 90\%$ angenommen wurde. Die unter Berücksichtigung der zusätzlichen Verbreiterung durch auftreffende Wärmestrahlung berechnete Energieauflösung stimmt dabei für eine Reflektivität $\rho \approx 96\%$ mit dem hier gemessenen Wert überein.

Erwartetes Energiespektrum bei der Detektion massiver Teilchen

Das bei der Detektion der Ionen gemessene Energiespektrum f(E) entsteht aus einer Überlagerung mehrerer Verteilungen. Zunächst ergibt sich, wie in Abschnitt 5.3.5 erläutert, aufgrund von Spannungsschwankungen bei der Ionenbeschleunigung eine Verteilung $f_{E_{\rm kin}}(E)$ der kinetischen Energien der Ionen, die im Folgenden durch eine Gauß-Verteilung mit dem Erwartungswert $E_{\rm kin}$ und der Standardabweichung $\sigma_{E_{\rm kin}}$ beschrieben wird. Aufgrund der in Abschnitt 5.1.2 diskutierten Festkörpereffekte ergibt sich darüber hinaus eine Verteilung $f_{\rm FK}(E)$ des Anteils der Ionenenergie, der im Absorber in Wärme umgewandelt wird. Zuletzt resultiert die endliche Energieauflösung des Detektors in einer zusätzlichen Verteilung $f_{\rm d0}(E)$ der gemessenen Energien, die sich, wie im vorigen Unterabschnitt erläutert, durch eine Gauß-Verteilung mit dem Erwartungswert $E_{\rm d0} = 0 \,\mathrm{eV}$ und der Standardabweichung $\sigma_{\rm d0}$ beschreiben lässt. Das erwartete Energiespektrum ergibt sich somit durch die Faltung

$$f(E) = f_{\rm d0}(E) * f_{\rm FK}(E) * f_{E_{\rm kin}}(E).$$
(5.42)

Die in Unterkapitel 5.2 anhand von Simulationen untersuchte Verteilung $f_{\rm FK}(E)$ resultiert dabei wiederum, wie in Abschnitt 5.2.1 erläutert, aus den Energieverlusten durch die Rückstreuung zu detektierender Teilchen, das Sputtern von Absorberatomen und die Erzeugung von Frenkel-Paaren im Absorber. Im Fall von monoenergetischen atomaren Ionen wird die Verteilung $f_{\rm FK}(E)$ im Bereich der gemessenen Linie im Spektrum durch die Erzeugung von Frenkel-Paaren dominiert. Die aus der Schwankung der Energieverluste durch die Erzeugung von Frenkel-Paaren pro auftreffendem Ion resultierende Energieverteilung $f_{\rm FP}(E)$ lässt sich dabei anhand der in Gleichung 5.1 gegebenen Faltung aus einer Gauß-Verteilung mit der Standardabweichung $\sigma_{\rm FP}$ und einem niederenergetischen exponentiellen Abfall mit der Konstanten τ beschreiben. Insgesamt ergibt sich bei der Detektion monoenergetischer atomarer Ionen somit eine Verteilung

$$f(E) = f_{d0}(E) * f_{FP}(E) * f_{E_{kin}}(E)$$

= $\frac{A}{2\tau} \exp\left(\frac{E - E_0}{\tau} + \frac{\sigma^2}{2\tau^2}\right) \operatorname{erfc}\left(\frac{1}{\sqrt{2}}\left(\frac{E - E_0}{\sigma} + \frac{\sigma}{\tau}\right)\right)$ (5.43)

in dem Energiebereich

$$E_0 - 3\sigma - 3\tau \le E \le E_0 + 3\sigma, \tag{5.44}$$

die wieder einer Faltung aus einer Gauß-Verteilung und einem niederenergetischen exponentiellen Abfall entspricht. Die gemessene Standardabweichung

$$\sigma = \sqrt{\sigma_{\rm d0}^2 + \sigma_{\rm FP}^2 + \sigma_{E_{\rm kin}}^2} \tag{5.45}$$

des Gauß-förmigen Anteils der Verteilung setzt sich dabei aus den Standardabweichungen σ_{d0} , $\sigma_{E_{kin}}$ und σ_{FP} zusammen. Bei geringeren Energien wird das gemessene Spektrum hingegen durch zurückgestreute Ionen dominiert.

Wie in Abschnitt 5.3.5 erläutert wurde, wird die Instabilität der Ionenstrahlenergie und somit auch deren Standardabweichung $\sigma_{E_{\rm kin}}$ in erster Linie durch die bei der Ionenbeschleunigung verwendeten Spannungsquellen bestimmt. Bei Verwendung der Spannungsquelle B wird im Folgenden die Näherung $\sigma_{E_{\rm kin}} = \sigma_{E2B} = (100 \pm 50) \, \text{eV}$ verwendet, während in allen anderen Fällen $\sigma_{E_{\rm kin}}$ gegenüber der Standardabweichung σ_{d0} des intrinsischen Detektorrauschens vernachlässigt wird, sodass gilt

$$\sigma = \sqrt{\sigma_{\rm d0}^2 + \sigma_{\rm FP}^2}.\tag{5.46}$$

5.4.2 Detektion atomarer Ionen

Die bei der Detektion atomarer Ionen gemessene Linienform wird im Folgenden zunächst beispielhaft für den Detektor mit Absorbern aus Gold und Kohlenstoffionen mit einer kinetischen Energie von etwa 53 keV diskutiert. Der Einfluss der Energie und Masse der zu detektierenden Ionen auf das gemessene Energiespektrum wird anschließend für den gleichen Detektor anhand der gemessenen Spektren verschiedener atomarer Ionen mit unterschiedlichen kinetischen Energien untersucht. Zuletzt wird der Einfluss des Absorbermaterials anhand eines Vergleichs dieser Spektren mit entsprechenden Spektren, die mit dem Detektor mit einer zusätzlichen Aluminiumschicht auf den Absorbern gemessenen wurden, diskutiert.

Detektion von 53 keV-Kohlenstoffionen in Absorbern aus Gold

Abbildung 5.21 zeigt das mit dem Detektor mit Absorbern aus Gold gemessene Energiespektrum von Kohlenstoffionen mit einer kinetischen Energie von etwa 53 keV. In Rot ist dem gemessenen Spektrum eine Anpassung von Gleichung 5.43 in dem in 5.44 definierten Energiebereich überlagert. Aus dieser Anpassung ergeben sich für den Gauß-förmigen Anteil der Verteilung ein Erwartungswert $E_0 = (52,79 \pm 0,01)$ keV und eine Standardabweichung $\sigma = (167 \pm 7)$ eV sowie ein zusätzlicher exponentieller Abfall mit der Konstanten $\tau = (166 \pm 17)$ eV. Anhand von Gleichung 5.45 berechnet sich daraus die Standardabweichung der zusätzlichen Gauß-förmigen Verbreiterung durch die Erzeugung von Frenkel-Paaren zu $\sigma_{\rm FP} = (125 \pm 41)$ eV. Die Form des gemessenen Spektrums ist der in Abbildung 5.5 unten gezeigten simulierten Verteilung



Abb. 5.21: Energiespektrum von Kohlenstoffionen mit einer kinetischen Energie von 53,05 keV, gemessen mit dem Detektor mit Absorbern aus Gold, im gesamten Energiebereich (links) sowie im Bereich der eigentlichen Linie im Spektrum (rechts). Dem gemessenen Spektrum ist jeweils in Rot eine numerische Anpassung von Gleichung 5.43 in dem in 5.44 definierten Energiebereich überlagert. Die nominelle Ionenenergie ist rechts mit einem grünen Pfeil markiert.

 $f_{\rm FK}(E)$ für Kohlenstoffionen mit einer kinetischen Energie von 50 keV sehr ähnlich. Während der hier ermittelte Wert für $\sigma_{\rm FP}$ dabei etwa 40 % geringer ist, als der anhand der Simulationen ermittelte Wert, stimmen die beiden Werte für τ innerhalb der Fehlergrenzen überein.

Genau wie im simulierten Spektrum sind auch in dem links in Abbildung 5.21 gezeigten gemessenen Gesamtspektrum viele breit verteilte Ereignisse bei niedrigen Energien zu sehen, die auf zurückgestreute Kohlenstoffionen zurückzuführen sind. Der prozentuale Anteil zurückgestreuter Ionen wurde anhand der Gesamtzahl N_{ges} der gemessenen Signale und des Integrals über die angepasste Verteilung f(E) abgeschätzt durch

$$\frac{N_{\rm R}}{N_{\rm ges}} = 1 - \frac{1}{N_{\rm ges}} \int_{0}^{\infty} f(E) dE.$$
 (5.47)

Bei der Bestimmung der Anzahl N_{ges} wurden dabei die Ereignisse von der Kalibrationsquelle bei Energien um $E_{\gamma} = 59,541 \text{ keV}$ abgezogen. Unter Verwendung der statistischen Unsicherheit von N_{ges} ergibt sich damit ein Anteil zurückgestreuter Ionen von $N_{\text{R}}/N_{\text{ges}} = (22,5 \pm 1,6)$ %. Dieser Wert stimmt sehr gut mit dem in Abschnitt 5.2.1 anhand von Simulationen für eine Ionenenergie von 50 keV ermittelten Anteil zurückgestreuter Kohlenstoffionen von 22,5% überein.

Einfluss der Energie und Masse der auftreffenden Ionen

Um den Einfluss der kinetischen Energie und Masse der zu detektierenden Ionen auf ein gemessenes Energiespektrum monoenergetischer atomarer Ionen zu untersuchen, wurden mit dem Detektor mit Absorbern aus Gold weitere Spektren der atomaren Kationen von Wasserstoff (H⁺), Kohlenstoff (C⁺), Stickstoff (N⁺) und Argon (Ar⁺) mit kinetischen Energien zwischen etwa 13 keV und etwa 150 keV gemessen. Abbildung 5.22 zeigt links die gemessenen Spektren von Kohlenstoffionen mit unterschiedlichen kinetischen Energien sowie rechts die gemessenen Spektren der verschiedenen atomaren Ionen mit einer kinetischen Energie von jeweils etwa 53 keV. Die Spektren bei denen die Spannungsquelle B des in Abschnitt 5.3.5 diskutierten Ionenbeschleunigers verwendet wurde und für die somit eine zusätzliche Verbreiterung der gemessenen Linie zu erwarten ist, sind hierbei hellblau hinterlegt. In Rot ist den gemessenen Spektren zudem jeweils eine Anpassung nach Gleichung 5.43 in dem in 5.44 definierten Energiebereich überlagert.

In dem Bereich aus 5.44 werden alle Spektren der hier betrachteten atomaren Ionen sehr gut von den Anpassungen beschrieben. Anhand der Anpassungen ermittelte Werte für E_0 , σ und τ finden sich jeweils in dem entsprechenden Spektrum. Die gemessenen Spektren zeigen, wie anhand der in Abschnitt 5.2.1 diskutierten Simulationen erwartet, eine asymmetrische Linienform, die auf die Erzeugung von Frenkel-Paaren zurückzuführen ist, sowie zusätzliche Ereignisse bei niedrigen Energien, die durch die Rückstreuung von Kohlenstoffionen verursacht werden. Bei Berücksichtigung der zusätzlichen Verbreiterung durch Spannungsquelle B ist hier sowohl mit steigender Ionenenergie als auch mit steigender Ionenmasse eine Zunahme der Gesamtbreite der Verteilung erkennbar. Die zunehmende Linienbreite ist dabei jeweils auf eine erhöhte Anzahl erzeugter Frenkel-Paare zurückzuführen, wie sie auch anhand der Simulationen aus Abschnitt 5.2.2 zu erwarten ist. Bezüglich der damit einhergehenden Verschiebung der gemessenen Linie ist hierbei allerdings, wie im Folgenden diskutiert wird, die relativ hohe Unsicherheit der nominellen Ionenenergie zu beachten. Während die gemessene Linie zudem im Fall von Kohlenstoffionen mit steigender Ionenenergie zunehmend symmetrischer wird, ist für eine konstante Ionenenergie von $E_{\rm kin} \approx 53 \,\rm keV$ mit steigender Ionenmasse auch eine Zunahme der Asymmetrie der Linienform erkennbar.

Um den Einfluss der Erzeugung von Frenkel-Paaren im Absorber zu beschreiben, wurden aus den numerischen Anpassungen jeweils die Verschiebung $E_{\rm kin} - E_0$ der gemessenen Linien im Spektrum, die Standardabweichung $\sigma_{\rm FP}$ der zusätzlichen Gaußförmigen Verbreiterung und die Konstante τ des zusätzlichen exponentiellen Abfalls ermittelt. Des Weiteren wurde anhand der Anpassungen der prozentuale Anteil zurückgestreuter Ionen durch das in Gleichung 5.47 definierte Verhältnis $N_{\rm R}/N_{\rm ges}$ unter Verwendung der statistischen Fehler abgeschätzt. Die so ermittelten Werte sind



Abb. 5.22: Energiespektren von Kohlenstoffionen mit verschiedenen kinetischen Energien (links) sowie von unterschiedlichen atomaren Ionen mit einer kinetischen Energie von etwa 53 keV (rechts), gemessen mit dem Detektor mit Absorbern aus Gold. In Rot ist jeweils eine Anpassung nach Gleichung 5.43 in dem in 5.44 definierten Energiebereich überlagert. Die nominelle Ionenenergie $E_{\rm kin}$ ist zudem jeweils mit einem grünen Pfeil markiert. Für die hellblau hinterlegten Spektren wurde Spannungsquelle B des Ionenbeschleunigers verwendet.

in Abbildung 5.23 jeweils gegen die Ionenenergie aufgetragen. Im Fall von Wasserstoffionen mit kinetischen Energien von 89,9 keV und 151,5 keV war hierbei keine Asymmetrie der Linien feststellbar, sodass eine Anpassung von Gleichung 5.43 aus numerischen Gründen nicht möglich war. In diesen Fällen wurde daher stattdessen eine Gauß-Verteilung an die gemessenen Linien angepasst. Für die Konstante des



Abb. 5.23: a) Verschiebung $E_{\rm kin} - E_0$, b) Standardabweichung $\sigma_{\rm FP}$ der zusätzlichen Gaußförmigen Verbreiterung und c) Konstante τ des zusätzlichen exponentiellen Abfalls der gemessenen Linien aufgrund der Erzeugung von Frenkel-Paaren im Absorber sowie d) durch Gleichung 5.47 abgeschätzter Anteil $N_{\rm R}/N_{\rm ges}$ zurückgestreuter Ionen bei der Detektion atomarer Ionen mit dem Detektor mit Absorbern aus Gold, jeweils in Abhängigkeit von der kinetischen Energie $E_{\rm kin}$ der Ionen. Die Werte wurden jeweils anhand einer numerischen Anpassung von Gleichung 5.43 in dem in 5.44 definierten Energiebereich an die gemessenen Spektren ermittelt.

exponentiellen Abfalls ist hier ein Wert von $\tau = 0 \,\text{eV}$ eingetragen, der somit eine komplett symmetrische Linienform repräsentiert.

Anhand der in Abschnitt 5.2.2 diskutierten Simulationen ist mit zunehmender Ionenenergie und -masse eine zunehmende Anzahl erzeugter Frenkel-Paare und somit eine zunehmende Verschiebung der gemessenen Linie hin zu niedrigeren Energien zu erwarten. Über die Abhängigkeit der in Abbildung 5.23a) gezeigten Verschiebung $E_{\rm kin} - E_0$ von der Ionenmasse kann aufgrund der hohen Unsicherheit der nominellen Ionenenergie keine eindeutige Aussage getroffen werden. Tendenziell ist aber wie erwartet ein leichter Anstieg mit steigender Ionenenergie erkennbar.

Die in Abbildung 5.23b) gezeigte Standardabweichung $\sigma_{\rm FP}$ des Gauß-förmigen Anteils der Verbreiterung durch Frenkel-Paare steigt tendenziell mit steigender Ionenenergie an. Dieser Anstieg von $\sigma_{\rm FP}$ lässt sich durch einen Anstieg der Anzahl erzeugter Frenkel-Paare erklären, wie er auch anhand der Simulationen aus Abschnitt 5.2.2 erwartet wird. Eine Abhängigkeit von der Ionenmasse ist dabei nicht zu erkennen. Die hier ermittelten Werte für $\sigma_{\rm FP}$ liegen zwischen $\sigma_{\rm FP} = (15 \pm 17) \,\text{eV}$ für Wasserstoffionen mit einer kinetischen Energie von $E_{\rm kin} = 14,7 \,\text{keV}$ und $\sigma_{\rm FP} = (171 \pm 38) \,\text{eV}$ für Stickstoffionen mit $E_{\rm kin} = 53 \,\text{keV}$.

Die in Abbildung 5.23c) gezeigte Konstante τ des zusätzlichen niederenergetischen exponentiellen Abfalls nimmt mit steigender Ionenmasse zu, was sich wieder, wie anhand der Simulationen erwartet, durch eine steigende Anzahl erzeugter Frenkel-Paare erklären lässt. In diesem Fall ist keine eindeutige Abhängigkeit von der Ionenenergie erkennbar. Insgesamt nimmt somit, wie schon anhand der in Abbildung 5.22 gezeigten Spektren beobachtet, die Asymmetrie der Linienform, die sich durch das Verhältnis τ/σ beschreiben lässt, mit sinkender Energie und steigender Masse der Ionen zu. Der ausgeprägteste zusätzliche exponentielle Abfall wurde dabei im Fall von Argonionen mit $E_{\rm kin} = 19.6$ keV gefunden, für die ein Wert von $\tau = (579 \pm 41)$ eV sowie ein Verhältnis $\tau/\sigma = 11 \pm 2$ ermittelt wurden.

Der anhand von Gleichung 5.47 abgeschätzte, in Abbildung 5.23d) gezeigte Anteil zurückgestreuter Ionen nimmt - mit Ausnahme von Argonionen - wie bereits anhand der in Abschnitt 5.2.2 diskutierten Simulationen erwartet, tendenziell mit steigender Ionenenergie ab. Während somit der höchste abgeschätzte Anteil zurückgestreuter Ionen von $N_{\rm R}/N_{\rm ges} = (32 \pm 3) \%$ für Argonionen mit $E_{\rm kin} = 150,95 \,\rm keV$ gefunden wurde, wurde der geringste Anteil von $N_{\rm R}/N_{\rm ges} = (9 \pm 5) \%$ für Kohlenstoffionen mit $E_{\rm kin} = 150,7 \,\rm keV$ abgeschätzt.

Um die bei der Detektion der Ionen erreichte Energieauflösung abzuschätzen, wurde von den angepassten Verteilungen jeweils die zusätzliche Verbreiterung durch die Spannungsquellen des Ionenbeschleunigers gemäß den Gleichungen 5.43 und 5.45 abgezogen. Die Halbwertsbreite $\Delta E_{\rm FWHM}$ der daraus resultierenden Energieverteilung gibt somit die reine Detektorauflösung an. Bei der Detektion von atomaren Ionen in Absorbern aus Gold ergaben sich hierbei relative Detektorauflösungen zwischen $\Delta E_{\rm FWHM}/E_{\rm kin} \approx 2.4 \cdot 10^{-3}$ im Fall von Wasserstoffionen mit einer kinetischen Energie von $E_{\rm kin} = 151,5$ keV und $\Delta E_{\rm FWHM}/E_{\rm kin} \approx 2.7 \cdot 10^{-2}$ im Fall von Argonionen mit $E_{\rm kin} = 19,6$ keV. Bei der Massenspektroskopie neutraler Molekülfragmente am CSR wären mit diesen Energieauflösungen Massenauflösungen zwischen $2.4 \cdot 10^{-3}$ u und 1,08 u erreichbar.

Einfluss des Absorbermaterials

Aufgrund der in Abschnitt 5.2.4 diskutierten Simulationen ist durch eine Beschichtung der Absorber mit Aluminium insbesondere eine signifikante Reduktion der Rückstreuung zu detektierender massiver Teilchen zu erwarten. Um die Auswirkungen einer solchen Aluminiumschicht auf den Absorbern experimentell zu untersuchen, wurden einige der im vorigen Unterabschnitt diskutierten Messungen sowohl mit dem Detektor mit Absorbern aus purem Gold als auch mit dem Detektor mit zusätzlicher Aluminiumschicht auf den Absorbern durchgeführt. An die dabei gemessenen Spektren wurde ebenfalls jeweils Gleichung 5.43 in dem in 5.44 gegebenen Energiebereich angepasst. Die aus diesen Anpassungen resultierenden Werte für die Parameter $E_{\rm kin} - E_0, \sigma_{\rm FP}, \tau$ und $N_{\rm R}/N_{\rm ges}$ sind in Abbildung 5.24 gegen die kinetische Energie $E_{\rm kin}$ der Ionen aufgetragen. Zum Vergleich sind hier zudem in Dunkelgrau jeweils die entsprechenden Werte für Absorber aus purem Gold gezeigt.

Anhand der in Abschnitt 5.2.4 diskutierten Simulationen ist durch die zusätzliche Aluminiumschicht auf den Absorbern eine reduzierte Anzahl erzeugter Frenkel-Paare und somit eigentlich eine verringerte Verschiebung der gemessenen Linien im Energiespektrum zu erwarten. In Abbildung 5.24a) zeigt sich für den Detektor mit zusätzlicher Aluminiumschicht auf den Absorbern allerdings keine signifikante Änderung der Verschiebung $E_0 - E_{\rm kin}$ der gemessenen Linien von Wasserstoffionen, während für die gemessenen Linien von Argonionen sogar eine erhöhte Verschiebung erkennbar ist. Des Weiteren ist auch für die in Abbildung 5.24b) gezeigte Standardabweichung $\sigma_{\rm FP}$ der Gauß-förmigen Verbreiterung nicht die anhand der Simulationen erwartete Abnahme zu erkennen. Da zudem die in Abbildung 5.24c) gezeigte Konstante τ des zusätzlichen exponentiellen Abfalls wie bereits anhand der Simulationen erwartet durch die zusätzliche Aluminiumschicht ansteigt, ergibt sich somit im Vergleich zu den mit dem Detektor mit Absorbern aus purem Gold gemessenen Spektren insgesamt eine erhöhte Gesamtlinienbreite. Nach Abzug der zusätzlichen Verbreiterung durch die Spannungsquellen ergeben sich hierbei relative Detektorauflösungen zwischen etwa $\Delta E_{\rm FWHM}/E_{\rm kin} \approx 2.2 \cdot 10^{-3}$ im Fall von Wasserstoffionen mit einer kinetischen Energie von $E_{\rm kin} = 151,5 \,\rm keV$ und $\Delta E_{\rm FWHM}/E_{\rm kin} \approx 1,4 \cdot 10^{-2}$ im Fall von Argonionen mit $E_{\rm kin} = 52.6 \,\rm keV$, womit Massenauflösungen zwischen etwa $2.2 \cdot 10^{-3} \,\rm u$ und $0.56 \,\rm u$ erreichbar wären.

Die zusätzliche Verbreiterung der gemessenen Linien im Spektrum lässt sich, ebenso wie die zusätzliche Verschiebung der Linien hin zu niedrigeren Energien, durch das supraleitende Verhalten der Aluminiumschicht bei der geringen Betriebstemperatur der Detektoren erklären. In einem supraleitenden Absorber kann die Energiedeposition durch auftreffende Ionen eine Erzeugung langlebiger Quasiteilchen-Anregungen verursachen [Kap76, Cos93, Per04]. Ein Teil der deponierten Energie wird somit im Absorber nicht direkt in Wärme umgewandelt und fehlt daher bei der energieaufge-



Abb. 5.24: a) Verschiebung $E_{\rm kin} - E_0$, b) Standardabweichung $\sigma_{\rm FP}$ der zusätzlichen Gaußförmigen Verbreiterung und c) Konstante τ des zusätzlichen exponentiellen Abfalls der gemessenen Linien aufgrund der Erzeugung von Frenkel-Paaren im Absorber sowie d) durch Gleichung 5.47 abgeschätzter Anteil $N_{\rm R}/N_{\rm ges}$ zurückgestreuter Ionen bei der Detektion atomarer Ionen, jeweils in Abhängigkeit von der kinetischen Energie $E_{\rm kin}$ der Ionen. Die Werte wurden jeweils anhand einer numerischen Anpassung von Gleichung 5.43 in dem in 5.44 definierten Energiebereich an die gemessenen Spektren ermittelt. Farbige Symbole repräsentieren hier die ermittelten Werte für den Detektor mit zusätzlicher Aluminiumschicht auf den Absorbern. Zum Vergleich sind in Dunkelgrau jeweils die entsprechenden Werte für den Detektor mit Absorbern aus purem Gold gezeigt.

lösten Teilchendetektion, sodass eine zu geringe Energie gemessen wird. Eine vom Auftreffort abhängige Variation der fehlenden Energie pro auftreffendem Ion kann dabei in einer Verbreiterung der gemessenen Linien resultieren. Für die zur Kalibration der Detektoren verwendeten 60 keV-Photonen aus der ²⁴¹Am-Quelle hingegen ist durch diesen Effekt keine Verschiebung oder Verbreiterung der gemessenen Spek-

trallinie zu erwarten, da, wie in Abschnitt 5.1.1 erläutert wurde, der Großteil der Photonen nicht in der Aluminiumschicht, sondern erst in dem darunterliegenden Gold absorbiert wird.

Wie anhand der in Abschnitt 5.2.4 diskutierten Simulationen erwartet, konnte die Rückstreuung zu detektierender Ionen durch die zusätzliche Aluminiumschicht auf den Absorbern signifikant reduziert werden. Der in Abbildung 5.24d) gezeigte abgeschätzte Anteil $N_{\rm R}/N_{\rm ges}$ zurückgestreuter Ionen verringert sich bei Verwendung des Detektors mit zusätzlicher Aluminiumschicht auf den Absorbern dabei um bis zu etwa 60 %. Eine derartige Reduktion der Rückstreuung ist, wie im Folgenden gezeigt wird, insbesondere bei der Detektion molekularer Ionen wünschenswert. Für die am CSR geplante Detektion neutraler Molekülfragmente ist eine Beschichtung der Absorber mit Aluminium somit sinnvoll.

Die kritische Temperatur der Aluminiumschicht könnte dabei durch die Verwendung von mit Mangan dotiertem Aluminium anstelle von reinem Aluminium verringert werden. Anhand der in [O'N10] vorgestellten Messungen ist zu erwarten, dass hierbei eine Mangan-Konzentration von etwa 3.000 ppm benötigt wird, um eine kritische Temperatur von $T_c \leq 20 \text{ mK}$ zu erreichen, sodass die Aluminium-Mangan-Schicht bei den Betriebstemperaturen der Detektoren noch normalleitend ist. Auf diese Weise kann die hier beobachtete zusätzliche Verschiebung und Verbreiterung der gemessenen Linien im Energiespektrum, die durch die supraleitende Aluminiumschicht verursacht wird, vermieden werden.

5.4.3 Detektion molekularer Ionen

Im vorigen Abschnitt wurden die gemessenen Spektren monoenergetischer atomarer Ionen diskutiert, die jeweils von einer einzigen Linie dominiert sind, welche sich anhand der in Gleichung 5.43 gegebenen Funktion beschreiben lässt. Den in Abschnitt 5.2.3 vorgestellten Simulationen zufolge ist bei der Detektion molekularer Ionen hingegen ein teilweise signifikanter Einfluss durch die individuelle Rückstreuung atomarer Fragmente auf die gemessenen Spektren zu erwarten. Zur experimentellen Untersuchung der dabei auftretenden Linienform wurden daher Messungen mit den molekularen Kationen CH_3^+ (Methylionen), CO_2^+ (Kohlenstoffdioxidionen) und $C_3H_6O^+$ (Acetonionen) durchgeführt. Die dabei gemessenen Spektren werden in diesem Abschnitt beispielhaft für die Detektion von Methylionen diskutiert. Der hierbei festgestellte Einfluss der Rückstreuung von Fragmenten hat sich dabei in ähnlicher Form auch für Kohlenstoffdioxid- und Acetonionen gezeigt.

Abbildung 5.25 zeigt das mit dem Detektor mit Absorbern aus Gold gemessene Spektrum von Methylionen mit einer kinetischen Energie von 53,28 keV. Das Spektrum zeigt hierbei den anhand der in Abschnitt 5.2.3 diskutierten Simulationen erwarteten



Abb. 5.25: Spektrum von CH_3^+ -Ionen mit einer kinetischen Energie von 53,28 keV, gemessen mit dem Detektor mit Absorbern aus Gold. In Rot ist hierbei eine Faltung der mit SRIM simulierten Verteilung der im Absorber in Form von Wärme deponierten Energie mit zwei Gauß-Verteilungen zur Beschreibung der intrinsischen Detektorauflösung und der Schwankungen der Ionenstrahlenergie überlagert, die durch Variation der Frenkel-Paar-Energie $E_{\rm FP}$ an das gemessene Spektrum angepasst wurde. Die grünen Pfeile geben die ursprüngliche Ionenenergie $E_{\rm kin,i}$ sowie die Energie eines CH_3^+ -Ions nach Abzug der kinetischen Energie von einem, zwei und drei Wasserstoffatomen sowie nach Abzug der kinetischen Energie des Kohlenstoffatoms an.

Verlauf. Das Maximum bei ~ 53 keV wird demnach von den Ereignissen verursacht, bei denen das gesamte Methylion absorbiert wurde, während sich das zusätzliche niederenergetische Plateau auf die unabhängige Rückstreuung von Wasserstoffatomen und die Ereignisse bei Energien $E \leq 43 \text{ keV}$ auf die Rückstreuung des Kohlenstoffatoms zurückführen lassen. Die Messungen bestätigen somit den anhand der Simulationen erwarteten gravierenden Einfluss der Rückstreuung von Molekülfragmenten auf die gemessene Linienform.

Um das gemessene Spektrum zu modellieren, wurden im Rahmen dieser Arbeit die in Abschnitt 5.2.3 diskutierten SRIM¹⁷-Simulationen für unterschiedliche kinetische Energien der Methylionen wiederholt. Hierzu wurden wieder, wie in Abschnitt 5.2.3 erläutert, jeweils unabhängige Simulationen für die einzelnen atomaren Fragmente der Methylionen durchgeführt, aus denen dann die jeweiligen Energieverluste durch Rückstreuung, Sputtern und die Erzeugung von Frenkel-Paaren ermittelt wurden. Durch Abzug dieser Energieverluste von der ursprünglichen Ionenenergie wurde zunächst die Verteilung $f_{\rm FK}(E)$ der insgesamt im Absorber in Form von Wärme depo-

¹⁷SRIM - The Stopping and Range of Ions in Matter, lizenzfreie Software, www.srim.org

nierten Energie der einzelnen Methylionen ermittelt. Die zusätzliche Verbreiterung der gemessenen Verteilung durch die intrinsische Energieauflösung des Detektors und die Instabilität der Ionenstrahlenergie wurde anschließend durch Faltung der Verteilung $f_{\rm FK}(E)$ gemäß Gleichung 5.42 mit zwei Gauß-Verteilungen mit den Standardabweichungen $\sigma_{d0} = (45,5 \pm 1,0) \text{ eV}$ und $\sigma_{E2B} = (100 \pm 50) \text{ eV}$ in das Modell integriert. Aufgrund der geringen relativen Instabilität der Ionenstrahlenergie von $\Delta E_{2B}/E_{\rm kin.i} < 1\%$ ist es dabei gerechtfertigt, die Schwankung der Ionenstrahlenergie den simulierten Daten erst nachträglich zu überlagern, anstatt die Energie der einzelnen Ionen bereits in der Simulation zu variieren. Durch Variation der Frenkel-Paar-Energie wurde das so ermittelte Modell dann an das gemessene Spektrum angepasst. Wegen der hohen Unsicherheit der nominellen Ionenstrahlenergie wurde diese in dem Modell ebenfalls angepasst. Die beste Übereinstimmung mit dem gemessenen Spektrum ergibt sich hierbei für eine Ionenstrahlenergie von $E_{kin,i} = 54,0 \text{ keV}$ und eine Frenkel-Paar-Energie von $E_{\rm FP} = (2, 8^{+0,2}_{-0,4})$ eV. Dieser Wert stimmt mit berechneten Werten, die etwa zwischen 3 eV und 4 eV liegen [Wal94], überein. In Abbildung 5.25 ist das so ermittelte Modell in Rot den gemessenen Daten überlagert. Im gesamten Energiebereich beschreibt dieses Modell das gemessene Spektrum sehr gut.

Einfluss der Ionenengie

Um den Einfluss der Ionenenergie bei der Detektion molekularer Ionen zu untersuchen, wurde ein weiteres Spektrum von Methylionen mit einer deutlich höheren kine-



Abb. 5.26: Energiespektrum von CH_3^+ -Ionen mit einer kinetischen Energie von 150,6 keV, gemessen mit dem Detektor mit Absorbern aus Gold. In Rot ist dem gemessenen Spektrum eine numerische Anpassung von Gleichung 5.43 in dem in 5.44 definierten Energiebereich überlagert.

tischen Energie von 150,6 keV mit dem Detektor mit Absorbern aus Gold gemessen, welches in Abbildung 5.26 gezeigt ist. Das zusätzliche niederenergetische Plateau ist hierbei deutlich weniger stark ausgeprägt, da die Rückstreuung von Fragmenten der Methylionen, wie bereits anhand der in Abschnitt 5.2.2 diskutierten Simulationen erwartet, mit zunehmender Ionenenergie geringer wird. Zur Beschreibung der Linienform kann somit wieder eine Anpassung nach Gleichung 5.43 in dem Energiebereich aus 5.44 verwendet werden. Die dabei ermittelte Standardabweichung $\sigma = (224 \pm 23) \text{ eV}$ des Gauß-förmigen Anteils der Verteilung stimmt mit dem bei der Detektion atomarer Kohlenstoffionen beobachteten Wert überein.

Einfluss des Absorbermaterials

Wie die in diesem Abschnitt diskutierten Messungen zeigen, kann bei der Detektion molekularer Ionen die unabhängige Rückstreuung einzelner Fragmente einen großen Einfluss auf die gemessene Linienform haben und zu zusätzlichen Plateaus auf den niederenergetischen Flanken der Linien im Spektrum führen. Insbesondere bei der Detektion molekularer Ionen ist es somit wünschenswert, die Rückstreuung zu reduzieren. In Abschnitt 5.4.2 wurde bereits für die Detektion atomarer Ionen gezeigt. dass sich die Rückstreuung der Ionen durch eine Aluminiumschicht auf den Absorbern teilweise signifikant reduzieren lässt. Um den Einfluss dieser Aluminiumschicht bei der Detektion molekularer Ionen zu untersuchen, wurde daher ein Spektrum von Methylionen mit einer kinetischen Energie von 53,28 keV mit dem Detektor mit Aluminiumschicht auf den Absorbern gemessen. Das resultierende Energiespektrum ist in Abbildung 5.27 oben gezeigt. In Rosa ist hier zudem das entsprechende, mit dem Detektor mit Absorbern aus reinem Gold gemessene Spektrum unterlegt, welches dafür auf die gleiche Anzahl gemessener Ereignisse normiert wurde. Ein Vergleich der beiden Spektren verdeutlicht die Wichtigkeit der Wahl eines geeigneten Absorbermaterials bei der Detektion molekularer Ionen. Wie bereits zuvor bei atomaren Ionen ist auch hier für den Detektor mit Aluminiumschicht auf den Absorbern eine zusätzliche Verschiebung der gemessenen Linie hin zu geringeren Energien zu sehen. Wie erwartet konnten aber die vielen einzelnen durch zurückgestreute Kohlenstoffatome verursachten Ereignisse bei Energien $E \leq 43 \text{ keV}$ durch die Aluminiumschicht stark reduziert werden. Dies wird insbesondere anhand der in Abbildung 5.27 unten gezeigten logarithmierten Darstellung der beiden Spektren deutlich. Darüber hinaus konnte auch das durch die Rückstreuung von Wasserstoffatomen verursachte zusätzliche niederenergetische Plateau durch die Beschichtung der Absorber mit Aluminium signifikant reduziert werden. Für die Linie selbst ergibt sich dadurch, skaliert auf die Gesamtzahl gemessener Ereignisse, eine etwa 2,8-mal so hohe Intensität.



Abb. 5.27: Oben: Energiespektrum von CH_3^+ -Ionen mit einer kinetischen Energie von 53,28 keV, gemessen mit dem Detektor mit zusätzlicher Aluminiumschicht auf den Absorbern. In Rosa ist das entsprechende, auf die Anzahl gemessener Ereignisse normierte Spektrum des Detektors mit Absorbern aus purem Gold unterlegt. Unten: Logarithmierte Darstellung der oben gezeigten Spektren.

5.4.4 Massenspektroskopie

Im vorigen Abschnitt wurde die Detektion molekularer Ionen anhand der gemessenen Spektren von CH_3^+ -Ionen diskutiert. Ein "Schmutzeffekt", nämlich das im Strahlrohr des Ionenbeschleunigers vorhandene Restgas, ermöglichte jedoch drüber hinaus Massenspektroskopiemessungen, die den am kryogenen Speicherring CSR angestrebten Messungen bereits sehr nahe kommen. Im Strahlrohr können die zu detektierenden Molekülionen unter anderem infolge von Stößen mit den Restgasmolekülen dissoziieren (kollisionsinduzierte Dissoziation) oder durch Elektronentransfer neutralisiert werden, was wiederum in vielen Fällen eine Dissoziation der neutralisierten Moleküle zur Folge hat (Elektronentransferdissoziation) [Zub08]. Aufgrund der geringen Wirkungsquerschnitte dieser Prozesse haben die entstehenden Molekülfragmente allerdings keine sichtbaren Auswirkungen auf die zuvor gezeigten Spektren.

Zur Untersuchung derartiger Dissoziationsreaktionen wurden daher Messungen mit Molekülionen mit kinetischen Energien von etwa 150 keV durchgeführt, bei denen der ursprüngliche Ionenstrahl wie in Abbildung 5.28 schematisch dargestellt in die Strahlrohrwand abgelenkt wurde, sodass nur die bei der Dissoziation entstehenden neutralen Molekülfragmente ebenso wie neutralisierte Molekülionen auf die Detektoren treffen können. Um hierbei zudem eine höhere Reaktionsrate zu erzielen, wur-



Abb. 5.28: Schematische Darstellung der Ionenstrahlführung, die eine Detektion von neutralen Molekülfragmenten, welche bei Dissoziationsreaktionen im Restgas des Strahlrohrs entstanden sind, sowie von neutralisierten Molekülionen ermöglicht.

den sowohl die Strahlintensität als auch der Restgasdruck verglichen mit den zuvor diskutierten Messungen erhöht. Da die bei den Dissoziationsreaktionen freigesetzte Energie in der Größenordnung einiger eV dabei um ein Vielfaches geringer ist als die hier gewählte Ionenstrahlenergie von $E_{\rm kin,i} \approx 150 \,\rm keV$, entspricht die Geschwindigkeit $v_{\rm f}$ der entstehenden Fragmente in erster Näherung der ursprünglichen Ionengeschwindigkeit $v_{\rm i}$. Die Masse $m_{\rm f}$ der Fragmente kann somit durch die Messung ihrer kinetischen Energie

$$E_{\rm kin,f} \approx \frac{m_{\rm f}}{m_{\rm i}} E_{\rm kin,i}$$
 (5.48)

bestimmt werden. Auf diese Weise sind Massenspektroskopiemessungen neutraler Molekülfragmente möglich, wie sie auch zur Untersuchung der Kapitel 2 diskutierten dissoziativen Rekombination von Molekülionen am kryogenen Speicherring CSR geplant sind. Die mit diesem Aufbau durchgeführten Massenspektroskopiemessungen der entstehenden neutralen Fragmente von Methylionen (CH_3^+), Kohlenstoffdioxidionen (CO_2^+) sowie Acetonionen ($CH_3COCH_3^+$) werden im Folgenden diskutiert.

Kohlenstoffdioxid- und Methylionen

Das jeweils obere Bild in den Abbildungen 5.29 und 5.30 zeigt das mit dem Detektor mit Absorbern aus Gold gemessene Spektrum der neutralen Reaktionsprodukte eines Ionenstrahls aus Kohlenstoffdioxidionen bzw. aus Methylionen mit einer kinetischen Energie von etwa $E_{\rm kin,i} \approx 150 \,\rm keV$. Wie hier erkennbar ist, konnten in beiden Fällen sämtliche möglichen neutralen Fragmente erfolgreich aufgelöst und identifiziert



Abb. 5.29: Gemessenes Spektrum der neutralisierten Moleküle und neutralen Fragmente eines Strahls von CO_2^+ -Ionen mit einer kinetischen Energie von $E_{kin,i} = 150,3 \text{ keV}$ nach dem Durchqueren des Restgases im Strahlrohr bei Verwendung des Detektors mit Absorbern aus Gold (oben) sowie des Detektors mit einer Aluminiumschicht auf den Absorbern aus Gold (unten). Mit grünen Pfeilen sind die kinetische Energie des Molekülions sowie die nach Gleichung 5.48 berechneten kinetischen Energien aller potentiell möglichen Fragmente markiert. In Rot ist den gemessenen Linien im Spektrum jeweils eine Anpassung von Gleichung 5.43 in dem in 5.44 definierten Energiebereich überlagert.

werden. Selbst Fragmente, deren Massendifferenz nur eine atomare Masseneinheit beträgt, konnten dabei sehr deutlich voneinander unterschieden werden. Im Fall eines CH_3^+ -Ionenstrahls konnte auch molekularer Wasserstoff identifiziert werden, was zeigt, dass in diesem Fall nicht nur eine Dissoziation, sondern auch eine Rekombination von Fragmenten stattgefunden hat. Bei der Interpretation der relativen Intensitätsverhältnisse der hier gezeigten Linien im Energiespektrum ist zu beach-



Abb. 5.30: Gemessenes Spektrum der neutralisierten Moleküle und neutralen Fragmente eines Strahls von CH_3^+ -Ionen mit einer kinetischen Energie von $E_{kin,i} = 150,6 \text{ keV}$ nach dem Durchqueren des Restgases im Strahlrohr bei Verwendung des Detektors mit Absorbern aus Gold (oben) sowie des Detektors mit einer Aluminiumschicht auf den Absorbern aus Gold (unten). Mit grünen Pfeilen sind die kinetische Energie des Molekülions sowie die nach Gleichung 5.48 berechneten kinetischen Energien aller potentiell möglichen Fragmente markiert. In Rot ist den gemessenen Linien im Spektrum jeweils eine Anpassung von Gleichung 5.43 in dem in 5.44 definierten Energiebereich, beziehungsweise im Fall von H und H₂ die Anpassung einer Gauß-Verteilung überlagert.

ten, dass nur ein kleiner Anteil der entstehenden Fragmente durch die Löcher in der in Abschnitt 5.3.3 beschriebenen Goldfolie auf die Detektoren trifft. Da leichte Fragmente durch die bei der Dissoziationsreaktion freiwerdende Energie stärker von der ursprünglichen Bewegungsrichtung der Molekülionen abgelenkt werden können, ist für diese die Wahrscheinlichkeit das entsprechende Loch in der Goldfolie zu verfehlen höher. Aus den relativen Intensitätsverhältnissen lassen sich folglich nicht direkt die Verzweigungsverhältnisse der entsprechenden Dissoziationsreaktionen ableiten. In Rot ist den gemessenen Linien jeweils eine Anpassung nach Gleichung 5.43 in dem Energiebereich aus 5.44 überlagert, die die generelle Form der jeweiligen Hauptlinien gut beschreibt. Für die Linien von H und H₂ wurde stattdessen aufgrund deren hoher Symmetrie, wie in Abschnitt 5.4.2 erläutert, eine Gauß-Verteilung verwendet. Die zwischen den einzelnen Linien liegenden Ereignisse sowie die zusätzlichen Plateaus auf den niederenergetischen Flanken der Linien, die insbesondere im Fall von CH₃⁺-Ionen sehr ausgeprägt sind, sind hierbei wieder auf zurückgestreute Ionen beziehungsweise zurückgestreute Molekülfragmente zurückzuführen. Wie in Abschnitt 5.4.3 gezeigt wurde, können diese bei der Detektion molekularer Ionen auftretenden Plateaus eine signifikante Reduktion der Intensität der entsprechenden Linien im Spektrum zur Folge haben. Da der Anteil der zurückgestreuten Teilchen von der Art der Fragmente (molekular/atomar) abhängt, kann damit auch eine Anderung der relativen Intensitätsverhältnisse von verschiedenen Linien einhergehen.

In den Abbildungen 5.29 und 5.30 ist unten jeweils das entsprechende, von dem Detektor mit einer Aluminiumschicht auf den Absorbern gemessene Spektrum gezeigt. Wie bereits in Abschnitt 5.4.2 erläutert, ergibt sich aufgrund der supraleitenden Aluminiumschicht auf den Absorbern auch hier wieder eine sichtbare Verbreiterung sowie eine zusätzliche Verschiebung der gemessenen Linien hin zu niedrigeren Energien. Wie zudem erwartet, ist in diesen Spektren die Anzahl der durch Rückstreuung verursachten Ereignisse zwischen den einzelnen Linien stark reduziert. Die Reduktion der Rückstreuung führt insbesondere im Fall von molekularen Ionen zu einer erhöhten Intensität der Linien im Spektrum (vgl. Abbildung 5.27). Beim Vergleich der mit den beiden unterschiedlichen Detektoren gemessenen Spektren ist dies vor allem anhand der Intensitätsverhältnisse der gemessenen Linien von atomarem und molekularem Wasserstoff gut sichtbar. Da die zusätzlichen niederenergetischen Plateaus durch die Aluminiumschicht signifikant reduziert sind, beschreiben die Anpassungen in diesem Fall jeweils das vollständige gemessene Spektrum nicht nur im Bereich der Linien, sondern im gesamten Energiebereich sehr gut.

In Tabelle 5.1 sind die aus den Anpassungen resultierenden Parameter für alle identifizierten Fragmente zusammengefasst. Für Absorber aus Gold stimmt hierbei die gemessene Standardabweichung σ der Linie der neutralisierten CH₃-Atome mit dem Wert der in Abbildung 5.26 gezeigten Linie geladener CH₃⁺-Ionen der gleichen nomi-

	A	bsorber aus	Gold	Absorber	aus Gold +	+ Aluminium	
Fragment	$E_0 [\mathrm{keV}]$	$\sigma [{\rm eV}]$	$\tau [{\rm eV}]$	$E_0 [\mathrm{keV}]$	$\sigma [{\rm eV}]$	$\tau [{\rm eV}]$	
С	40,93	341 ± 74	597 ± 167	38,74	459 ± 158	148 ± 590	
Ο	$54,\!49$	324 ± 32	580 ± 74	52,15	454 ± 57	454 ± 130	
CO	$95,\!27$	390 ± 32	733 ± 73	91,82	788 ± 72	569 ± 177	
CO_2	149,88	266 ± 27	990 ± 71	144,89	635 ± 25	853 ± 55	
Н	10,02	178 ± 5	Х	9,36	204 ± 5	Х	
H_2	20,05	195 ± 6	Х	19,00	179 ± 5	Х	
\mathbf{C}	$119,\!63$	327 ± 21	522 ± 47	116,90	596 ± 55	969 ± 123	
CH	129,72	424 ± 54	669 ± 121	126,97	572 ± 50	991 ± 117	
CH_2	139,86	399 ± 63	801 ± 146	136,93	472 ± 47	1001 ± 111	
CH_3	$150,\!01$	239 ± 19	780 ± 51	146,94	480 ± 21	878 ± 48	

Tab. 5.1: Anhand einer numerischen Anpassung nach Gleichung 5.43 ermittelte Werte des Erwartungswerts E_0 und der Standardabweichung σ des Gauß-förmigen Anteils sowie der Konstante τ des zusätzlichen exponentiellen Abfalls der in den Abbildungen 5.29 und 5.30 gezeigten Linien im Energiespektrum von allen identifizierten Fragmenten.

nellen Ionenstrahlenergie überein. Die nicht-dissoziative Neutralisation des Molekülions hatte folglich keine signifikante Änderung der kinetischen Energie der Moleküle zur Folge. Es kann somit darüber hinaus davon ausgegangen werden, dass der Ladungszustand der Ionen bei der energieaufgelösten Teilchendetektion in dem hier betrachteten Ionenenergiebereich vernachlässigbar ist. Beim Vergleich der gemessenen Standardabweichungen fällt zudem auf, dass teilweise für die neutralen Fragmente der CO_2^+ - und CH_3^+ -Ionen größere Werte für σ gemessen wurden als für die neutralisierten Moleküle CO_2 und CH_3 . Dieser Effekt ist möglicherweise auf die bei der Dissoziation der Moleküle freiwerdende Energie, die in kinetische Energie umgesetzt wird, zurückzuführen.

Die hier ermittelten Werte für den Erwartungswert E_0 sowie das Verhältnis von E_0 zu der berechneten kinetischen Energie $E_{\text{kin,f}}$ der Fragmente sind zudem in Abbildung 5.31 jeweils gegen die berechnete Fragmentenergie $E_{\text{kin,f}}$ aufgetragen. Die blaue Gerade repräsentiert hierbei nicht verschobene Linien im Spektrum, für die $E_0 = E_{\text{kin,f}}$ gilt. Während die mit dem Detektor mit Absorbern aus Gold gemessenen Linien nur geringfügig von dieser Situation abweichen, gibt es bei der Verwendung des Detektors mit Aluminiumschicht auf den Absorbern wie zuvor erläutert eine zusätzliche, von der Fragmentenergie abhängige Verschiebung der Linien. Vor allem bei den Fragmenten komplexer Molekülionen wird dadurch die Massenzuordnung erschwert. In Abbildung 5.31 rechts ist für diesen Detektor allerdings ein in erster Näherung linearer Zusammenhang zwischen dem Verhältnis $E_0/E_{\text{kin,f}}$ und der Fragmentenergie $E_{\text{kin,f}}$ erkennbar. In Rot ist hier eine lineare Anpassung an die er-



Abb. 5.31: Gemessener Erwartungswert E_0 des Gauß-förmigen Anteils der Linien im Energiespektrum (links) und Verhältnis von E_0 zu der berechneten kinetischen Energie $E_{\text{kin,f}}$ (rechts) von allen in den Abbildungen 5.29 und 5.30 identifizierten Fragmenten, jeweils in Abhängigkeit von der Fragmentenergie $E_{\text{kin,f}}$. Die blaue Gerade repräsentiert hierbei den Fall von nicht verschobenen Linien im Spektrum. In Rot ist rechts zudem eine lineare Anpassung an die für den Detektor mit zusätzlicher Aluminiumschicht auf den Absorbern ermittelten Werte gezeigt.

mittelten Werte von $E_0/E_{\text{kin},\text{f}}$ überlagert, aus der sich für die gemessene Energie E_0 der Linien eine Abhängigkeit von $E_{\text{kin},\text{f}}$ gemäß

$$E_0 = aE_{\rm kin,f} + bE_{\rm kin,f}^2 \tag{5.49}$$

mit $a = 0.937 \pm 0.003$ und $b = (2.5 \pm 0.3) \cdot 10^{-4}$ /keV ergibt. Diese Anpassung beschreibt den hier gezeigten Verlauf sowohl für die Fragmente der Kohlenstoffdioxidionen als auch für die Fragmente der Methylionen sehr gut. Die auf diese Weise empirisch ermittelte Funktion ermöglicht somit eine Korrektur der durch die Aluminiumschicht entstehenden zusätzlichen Verschiebung der Linien im Spektrum, sodass die ursprüngliche kinetische Energie $E_{\text{kin,f}}$ des jeweiligen Fragments und damit letztendlich dessen Masse m_{f} anhand der gemessenen Energie E_0 berechnet werden kann.

Acetonionen

Neben Kohlenstoffdioxid- und Methylionen wurden im Rahmen der hier vorgestellten Messungen auch für Acetonionen ((CH_3)₂ CO^+) Massenspektroskopiemessungen der bei den Dissoziationsreaktionen im Restgas des Strahlrohrs entstehenden neutralen Molekülfragmente durchgeführt. Während in vielen der bislang veröffentlichten Studien zu den Dissoziationsreaktionen von Acetonionen nur eine Detektion der geladenen Reaktionsprodukte möglich war, wurden in [Ohk11] bereits zusätzlich neutrale Fragmente detektiert. Infolge der Dissoziation von 3 keV-Acetonionen wurden dort die neutralen Molekülfragmente CH₃CO, CO und CH₃ identifiziert und auf die kollisionsinduzierte Dissoziation der Ionen durch die Reaktion

$$(CH_3)_2CO^+ + X \rightarrow CH_3CO^+ + CH_3 + X$$

$$(5.50)$$

sowie die Elektronentransferdissoziation durch die Reaktionen

$$(CH_3)_2 CO^+ + X \to CH_3 CO + CH_3 + X^+$$

$$(5.51)$$

und

$$(CH_3)_2CO^+ + X \rightarrow CH_3 + CH_3 + CO + X^+$$

$$(5.52)$$

zurückgeführt, wobei X den jeweilige Reaktionspartner repräsentiert. Die dort erzielte relative Energieauflösung von etwa 0,14 ist allerdings für keines der identifizierten Fragmente ausreichend um eine Massenauflösung < 2 u zu erreichen. Eine Unterscheidung von beispielsweise CH₃ und O war dort daher nicht möglich. Bei einem direkten Vergleich der Messungen aus [Ohk11] mit den im Folgenden vorgestellten Messungen müssen auch die sehr unterschiedlichen Bedingungen berücksichtigt werden. Insbesondere zu erwähnen sind hierbei die unterschiedlichen kinetischen Energien der Acetonionen, die verschiedenen Reaktionspartner und die im Rahmen dieser Arbeit zur Abschirmung von Wärmestrahlung verwendete Goldfolie mit Löchern, durch die, wie im vorigen Unterabschnitt erläutert, die Intensitätsverhältnisse der gemessenen Linien im Spektrum verfälscht werden können.

Abbildung 5.32 zeigt oben das mit dem Detektor mit Absorbern aus reinem Gold und unten das mit dem Detektor mit zusätzlicher Aluminiumschicht auf den Absorbern gemessene Energiespektrum der bei den Dissoziationsreaktionen entstehenden neutralen Reaktionsprodukte eines Ionenstrahls aus Acetonionen mit einer kinetischen Energie von $E_{\rm kin,i} = 150,45 \,\rm keV$. Durch die Beschichtung der Absorber mit Aluminium konnte auch in diesem Fall wieder eine deutliche Reduktion des störenden Untergrunds, welcher durch die unabhängige Rückstreuung einzelner Atome entsteht, erzielt werden. Mit grünen Pfeilen sind hierbei die in der Messung erwarteten Energien von möglichen Fragmenten der Acetonionen markiert. Für den Detektor mit Aluminiumschicht auf den Absorbern wurde dabei die im vorigen Unterabschnitt ermittelte Verschiebung der Linien im Spektrum anhand von Gleichung 5.49 eingerechnet. Die kleineren Bilder in Abbildung 5.32 zeigen zudem Ausschnitte aus den gemessenen Spektren, an die jeweils eine, hier in Rot eingezeichnete Überlagerung mehrerer Gauß-Verteilungen zur Bestimmung der gemessenen Erwartungswerte E_0 der einzelnen Linien angepasst wurde. Um dabei die Anzahl freier Parameter klein zu halten und die numerische Anpassung zu erleichtern, wurde anstelle der asymmetrischen Verteilung aus Gleichung 5.43 jeweils eine reine Gauß-Verteilung verwendet.



Abb. 5.32: Gemessenes Spektrum der neutralisierten Moleküle und neutralen Fragmente von Acetonionen mit einer kinetischen Energie von 150,45 keV bei Verwendung des Detektors mit Absorbern aus Gold (oben) sowie des Detektors mit zusätzlicher Aluminiumschicht auf den Absorbern aus Gold (unten). Grüne Pfeile markieren die erwarteten Positionen der Linien von möglichen Fragmenten. Die kleinen Bilder zeigen Ausschnitte aus dem jeweiligen Spektrum, in denen in Rot die numerische Anpassung einer Überlagerung mehrerer Gauß-Verteilungen eingezeichnet ist.

Verglichen mit	der	erwartete	en Ver	schiebung	der	Linien	durch	die	Erzeugung	von
Frenkel-Paaren	im	Absorber	ist der	dadurch	ents	tehende	e syster	nati	sche Fehler	von
E_0 vernachlässi	gbai	r gering.								

	Absorb	er aus Gold	Absorber aus $\operatorname{Gold} + \operatorname{Aluminium}$		
Fragment	$E_{\rm kin,f} [\rm keV]$	$E_0 [\mathrm{keV}]$	$E_0 [\mathrm{keV}]$	$E_0 [\mathrm{keV}]$	
	(berechnet)	(gemessen)	(berechnet)	(gemessen)	
С	31,13	$30{,}51\pm0{,}03$	29,41	$29,15 \pm 0,03$	
				$30{,}58\pm0{,}06$	
CH	33,72	$33{,}13\pm0{,}10$	31,88	$31{,}85\pm0{,}13$	
CH_2	$36,\!32$		34,36	$34{,}47\pm0{,}10$	
CH_3	38,91	$38{,}08\pm0{,}06$	36,84	$36{,}76\pm0{,}03$	
Ο	41,50	$40,\!66\pm0,\!03$	39,32	$39{,}10\pm0{,}03$	
				$40,\!55\pm0,\!06$	
C_2	62,26	$60{,}96\pm0{,}07$	59,30	$59{,}18\pm0{,}09$	
C_2H	64,85	$63{,}84\pm0{,}16$	61,81	$61,\!47\pm0,\!24$	
C_2H_2	67,44	$66,\!43 \pm 0,\!29$	64,33	$64{,}07\pm0{,}23$	
CO	72,63	$71,\!39\pm0,\!02$	$69,\!37$	$69,\!17\pm0,\!02$	

Tab. 5.2: Ermittelte Positionen E_0 der gemessenen Linien in den in Abbildung 5.32 gezeigten Energiespektren sowie Fragmente der Acetonionen, die diesen Linien zugeordnet werden können. Des Weiteren sind für den Detektor mit Absorbern aus Gold die berechneten kinetischen Energien $E_{kin,f}$ der Fragmente und für den Detektor mit zusätzlicher Aluminiumschicht auf den Absorbern die anhand von Gleichung 5.49 berechneten erwarteten Werte für E_0 angegeben.

Die aus den Anpassungen resultierenden Werte für E_0 sind in Tabelle 5.2 zusammengefasst. Zudem sind für mögliche Fragmente jeweils die nach Gleichung 5.48 berechnete kinetische Energie $E_{\text{kin,f}}$ sowie der daraus mit Gleichung 5.49 berechnete, bei Verwendung des Detektors mit zusätzlicher Aluminiumschicht auf den Absorbern erwartete Wert von E_0 angegeben. Die mit dem Detektor mit Absorbern aus purem Gold gemessenen Linien liegen dabei jeweils etwa 2% unter der erwarteten Energie. Für die Energien der mit dem Detektor mit Aluminiumschicht auf den Absorbern gemessenen Linien ergeben sich sehr gute Übereinstimmungen mit den anhand von Gleichung 5.49 berechneten Energien mit Abweichungen von weniger als 1%. Die in Gleichung 5.49 ermittelte Abhängigkeit erlaubt es somit, bei der Verwendung einer Aluminiumschicht auf den Absorbern die gemessenen Linien trotz der zusätzlichen Verschiebung den richtigen Energien und somit den richtigen Fragmentmassen zuzuordnen.

Mit beiden Detektoren konnten eindeutig zusätzliche neutrale Fragmente identifiziert werden, die aus keiner der Reaktionen aus den Gleichungen 5.50, 5.51 und 5.52 stammen. Insbesondere wurden jeweils sehr dominante Signale von atomarem Kohlenstoff und Sauerstoff sowie von C₂-Molekülen gemessen. Während mit dem Detektor mit Absorbern aus purem Gold aufgrund des relativ hohen Untergrunds durch zurückgestreute Fragmente hierbei keine Linie für CH_2 im Spektrum gefunden wurde, ist der Untergrund bei Verwendung des Detektors mit Aluminiumschicht auf den Absorbern wie erwartet signifikant reduziert, sodass auch CH_2 identifiziert werden konnte. Beim Vergleich der beiden Spektren fällt darüber hinaus auf, dass die relative Intensität der gemessenen Linie von CH_3 für Absorber mit zusätzlicher Aluminiumschicht deutlich höher ist. Auch dieser Effekt ist auf die reduzierte Rückstreuung zurückzuführen. Wie bereits in Abbildung 5.27 gezeigt, lässt sich durch die zusätzliche Aluminiumschicht auf den Absorbern das durch die individuelle Rückstreuung von atomaren Fragmenten der CH_3 -Moleküle verursachte Plateau auf der niederenergetischen Flanke der gemessenen Linie signifikant reduzieren, woraus eine höhere Intensität der Linie selbst resultiert.

Des Weiteren wurden für den Detektor mit Aluminiumschicht auf den Absorbern zusätzliche Linien bei $(30,58 \pm 0,06)$ keV und $(40,55 \pm 0,06)$ keV gefunden, die nicht direkt den anhand von Gleichung 5.49 berechneten erwarteten Energien von möglichen Molekülfragmenten zugeordnet werden konnten. Die gemessenen Energien dieser zusätzlichen Linien stimmen allerdings mit den von dem Detektor mit Absorbern aus reinem Gold gemessenen Energien von Kohlenstoff und Sauerstoff überein. Es kann daher vermutet werden, dass sie von entsprechenden Atomen verursacht werden, die nicht in der Aluminiumschicht, sondern erst in dem darunterliegenden Gold gestoppt werden. SRIM-Simulationen zufolge sollten im hier untersuchten Fall allerdings jeweils über 99.9% der Kohlenstoff- und Sauerstoffatome bereits innerhalb der Aluminiumschicht gestoppt werden. Derartige Linien im Spektrum können entstehen, wenn Atome beispielsweise am Rand der Absorber auf freiliegendes Gold unter potentiellen Fehlstellen in der Aluminiumschicht treffen. Die Linien könnten allerdings auch auf eine erhöhte Eindringtiefe von einigen der Ionen aufgrund des Gitterführungseffektes [Rob63] zurückzuführen sein, der wie zu Beginn dieses Unterkapitels erläutert in den Simulationen nicht berücksichtigt wird. Durch die Verwendung einer dickeren Aluminiumschicht auf den Absorbern könnten derartige zusätzliche Linien daher wahrscheinlich in zukünftigen Messungen vermieden werden.

Die in diesem Unterkapitel vorgestellten Messungen zeigen das große Potential metallischer magnetischer Kalorimeter für die Massenspektroskopie neutraler Molekülfragmente auf. Insbesondere durch eine Beschichtung der Absorber mit Aluminium lässt sich hierbei ein sehr geringer Untergrund erzielen, wodurch selbst für Zerfallskanäle mit kleinen Verzweigungsverhältnissen eine Identifikation der entstehenden Reaktionsprodukte ermöglicht wird. Die hier beobachtete zusätzliche Verbreiterung und Verschiebung der gemessenen Linien aufgrund der supraleitenden Aluminiumschicht

131

lässt sich dabei, wie in Abschnitt 5.4.2 erläutert wurde, durch die Verwendung einer bei den Betriebstemperaturen der Detektoren normalleitenden Aluminium-Mangan-Legierung anstelle von purem Aluminium vermeiden.

5.5 Langzeitauswirkungen auf die Absorbereigenschaften

Langfristig können das Wegsputtern von Absorberatomen, die Erzeugung von Frenkel-Paaren im Absorber sowie die im Absorber implantierten Atome bei der Detektion massiver Teilchen Auswirkungen auf die Absorber der Detektoren und somit auf deren Energieauflösung haben. Im Folgenden werden diese Auswirkungen kurz diskutiert. Während der in Unterkapitel 5.4 vorgestellten, relativ kurzen Messungen wurde keine Veränderung des Verhaltens der Detektoren infolge dieser Effekte festgestellt.

5.5.1 Abtrag von Absorbermaterial

Durch das Sputtern von Absorberatomen wird langfristig Absorbermaterial abgetragen. Im Rahmen dieser Arbeit durchgeführte SRIM¹⁸-Simulationen, bei denen die Implantation von Holmiumionen in Absorbern von metallischen magnetischen Kalorimetern untersucht wurde, haben gezeigt, dass dieser Effekt in bestimmten Fällen eine signifikante Degradierung der Absorber zur Folge haben kann. Diese Simulationen wurden als Beitrag zum ECHo-Projekt¹⁹ [Gas17] durchgeführt, bei dem radioaktives ¹⁶³Ho in Absorbern aus Gold implantiert wird, wobei eine Aktivität von etwa 10 Bq pro Absorber erreicht werden soll. Die Simulationsergebnisse werden in [Gam17] diskutiert und hier nur kurz zusammengefasst. Unter anderem wurde dabei das Auftreffen von Holmiumionen auf Absorbern aus Gold in Abhängigkeit von der kinetischen Energie der Ionen untersucht. Da die Atommasse der auftreffenden Holmiumionen ähnlich groß ist, wie die Masse der Goldatome, ist in diesem Fall das Sputtern von Absorberatomen besonders ausgeprägt. Diese Simulationen stellen daher ein geeignetes Beispiel dar, um aufzuzeigen welche Auswirkungen das Sputtern von Absorberatomen haben kann. Bei einer Ionenenergie von 30 keV wurde dabei eine durchschnittliche Anzahl gesputterter Absorberatome pro auftreffendem Holmiumion von 23,7 ermittelt. Ein Abtrag von 0,5 nm Gold ist somit bereits nach etwa 1,4 · 10⁶ pro Quadratmikrometer Implantationsfläche auftreffenden Holmiumionen erreicht. Da bei einer solch hohen Sputterrate nach einer gewissen Implanta-

¹⁸SRIM - The Stopping and Range of Ions in Matter, lizenzfreie Software, www.srim.org

¹⁹ECHo ist ein Akronym für die englische Bezeichnung Electron Capture ¹⁶³Holmium experiment. Ziel von ECHo ist die Bestimmung der Elektron-Neutrinomasse durch eine kalorimetrische Messung des Elektroneneinfangspektrums von ¹⁶³Ho.

tionsdosis auch bereits implantierte Holmiumionen mit abgetragen werden, ist die Anzahl an Holmiumionen, die auf diese Art implantiert werden können, auf einen maximalen Wert begrenzt. Die Simulationen haben für diesen Fall bei der im ECHo-Pojekt angepeilten Implantationsfläche von $160 \,\mu\text{m} \cdot 160 \,\mu\text{m}$ eine maximale Anzahl von Holmiumionen von $3.7 \cdot 10^{11}$ ergeben, was einer Aktivität von nur etwa 1.8 Bq entspricht. Für Projekte wie das ECHo-Projekt, bei denen eine deutlich höhere Aktivität erzielt werden soll, stellt eine Überwindung dieser Limitierung eine besondere Herausforderung dar. Da bei einer höheren kinetischen Energie der Ionen, wie auch in Abschnitt 5.2.2 gezeigt, die Eindringtiefe der Ionen innerhalb des Absorbers größer wird, wurden für höhere Ionenenergien hierbei höhere erreichbare Aktivitäten gefunden. Des Weiteren wurde gezeigt, dass sich auch in diesem Fall das Sputtern von Absorberatomen durch die Wahl eines Absorbermaterials mit geringerer Dichte signifikant reduzieren lässt. So wurde bei einer kinetischen Energie der Holmiumionen von 30 keV für Absorber aus Silber eine um 47 % reduzierte mittlere Anzahl gesputterter Absorberatome pro auftreffendem Holmiumion von 12,6 gefunden und für Absorber aus Aluminium sogar ein um 78 % reduzierter Wert von 5,2 Absorberatomen pro Holmiumion.

Im Gegensatz zu dem oben diskutierten Fall wird bei den am kryogenen Speicherring CSR geplanten Messungen eine Detektion neutraler Fragmente organischer Molekülionen angestrebt. Hierbei sind in erster Linie leichte Atome, insbesondere Kohlenstoff und Wasserstoff von Interesse, für die ein deutlich geringerer Abtrag von Absorbermaterial durch das Sputtern von Absorberatomen zu erwarten ist. Für die Detektion von Kohlenstoffionen mit einer kinetischen Energie von 50 keV in Absorbern aus Gold beispielsweise wurde in Abschnitt 5.2.1 anhand von Simulationen eine mittlere Anzahl gesputterter Absorberatome pro auftreffendem Ion von nur etwa 1,28 ermittelt. Für das im folgenden Kapitel diskutierte Detektorarray MOCCA ergibt sich damit bei einer Teilchenrate von 10 Hz pro Detektorpixel und einer Fläche von $698 \,\mu\text{m} \cdot 698 \,\mu\text{m}$ der einzelnen Absorber nach einem Jahr kontinuierlicher Messzeit ein Abtrag an Absorbermaterial in einer Höhe von nur $1.4 \cdot 10^{-2}$ pm. Der durch Sputtern verursachte Abtrag an Absorbermaterial ist in diesem Fall somit vernachlässigbar gering. Im Fall von mit Aluminium beschichteten Absorbern wäre der Abtrag von Absorbermaterial durch Sputtern sogar noch geringer, wie die in Abschnitt 5.2.4 und die in [Gam17] diskutierten Simulationen zeigen.

5.5.2 Wärmekapazität

Bei der Detektion massiver Teilchen verursachen diese im Absorber Gitterdefekte in Form von Fremdatomen, die eine erhöhte Wärmekapazität des Absorbers zur Folge haben können. Ein recht pessimistisches Szenario wäre nun, dass jeder dieser Gitterdefekte ein Zweiniveausystem mit einer Energieaufspaltung δE darstellt und

somit jedes implantierte Teilchen einen Beitrag

$$C_{\rm d} = k_{\rm B} \left(\frac{\delta E}{k_{\rm B}T}\right)^2 \frac{\mathrm{e}^{\delta E/k_{\rm B}T}}{(\mathrm{e}^{\delta E/k_{\rm B}T} + 1)^2} \tag{5.53}$$

zur Absorberwärmekapazität verursacht, wobei $k_{\rm B} = 1,38 \cdot 10^{-23} \,\text{J/K}$ die Boltzmann-Konstante ist. Dieser Verlauf einer Schottky-Anomalie hat ein Maximum von $C_{\rm d} \approx 0,44 \, k_{\rm B}$ bei einer Temperatur $T \approx 0,42 \, \delta E/k_{\rm B}$. Jedes implantierte Teilchen kann folglich maximal eine zusätzliche Wärmekapazität von $C_{\rm d} \approx 0,44 \, k_{\rm B}$ beitragen. Bei einer Teilchenrate von 10 Hz pro Detektorpixel wäre somit nach einem Jahr kontinuierlicher Messzeit insgesamt eine Erhöhung der Wärmekapazität des Absorbers um höchstens 2 fJ/K zu erwarten. Verglichen mit der Wärmekapazität $C_{\rm a} \approx 2 \,\text{pJ/K}$ eines Absorbers des Detektorarrays MOCCA bei einer Betriebstemperatur von $T = 20 \,\text{mK}$ ist dieser zusätzliche Beitrag zur Wärmekapazität vernachlässigbar gering.

Die bei der Detektion massiver Teilchen im Absorber verursachten Frenkel-Paare sowie die implantierten Teilchen selbst führen darüber hinaus zu einer Amorphisierung und somit im extremsten Fall zu einem glasartigen Verhalten der Absorber. In metallischen Gläsern ergibt sich aufgrund von Tunnelsystemen ein zusätzlicher Beitrag zur spezifischen Wärme, der sich in erster Näherung linear zu der Temperatur verhält und selbst für sehr unterschiedliche Materialien ähnlich groß ist. Bei einer Temperatur von 20 mK ist dabei ein Beitrag in der Größenordnung von etwa $c_{\rm stm} \approx 1 \,\mu J/({\rm mol}\,{\rm K})$ zur spezifischen Wärme zu erwarten [Rei17]. Anhand der Simulationen aus Abschnitt 5.2.1 wurde beispielsweise für das Auftreffen von 50 keV-Kohlenstoffionen auf einem Absorber aus Gold eine mittlere Anzahl von etwa 463 erzeugten Frenkel-Paaren pro auftreffendem Kohlenstoffion ermittelt. Die simulierte mittlere Eindringtiefe der Kohlenstoffionen im Absorber beträgt hierbei allerdings nur etwa 56 nm und alle simulierten Ionen werden bereits innerhalb der ersten 200 nm des Absorbers gestoppt. Eine Amorphisierung der Absorber findet in diesem Fall folglich nur in den obersten 200 nm des Absorbers statt. Nimmt man ein glasartiges Verhalten in diesem Volumen an, so ergibt sich mit der Dichte $\rho = 19.3 \,\mathrm{g/cm^3}$ und der Atommasse m = 197 u von Gold sowie der Fläche $A = 698 \,\mu\text{m} \cdot 698 \,\mu\text{m}$ des Absorbers ein zusätzlicher Beitrag zur Absorberwärmekapazität in einer Größenordnung von etwa $C_{\rm stm} \approx 0.01 \, {\rm pJ/K}$. Auch dieser zusätzliche Beitrag zur Wärmekapazität ist verglichen mit der Wärmekapazität $C_{\rm a} \approx 2\,{\rm pJ/K}$ eines polykristallinen Absorbers vernachlässigbar gering. Insgesamt ist somit keine signifikante Änderung der Absorberwärmekapazität durch die Erzeugung von Gitterdefekten im Absorber zu erwarten.
6. MOCCA - ein 4 k-Pixel-Detektorarray

Wie in Kapitel 2 erläutert, wird für die am kryogenen Speicherring CSR geplanten Messungen ein Detektor zum Nachweis neutraler Molekülfragmente benötigt, der eine große Detektionsfläche in Kombination mit einer guten Energie- und Ortsauflösung besitzt. Zu diesem Zweck wurde im Rahmen dieser Arbeit der Detektor MOCCA entwickelt, hergestellt und charakterisiert. Bei diesem Detektor handelt es sich um ein großflächiges zweidimensionales Array von metallischen magnetischen Kalorimetern mit insgesamt 4.096 Absorbern, die zusammen eine sensitive Fläche von 4,48 cm \cdot 4,48 cm bilden und von nur 32 SQUIDs ausgelesen werden. Die erwartete Energieauflösung dieses Detektors liegt in der Größenordnung von etwa 100 eV. Als Prototyp für den Detektor wurde im Rahmen dieser Arbeit zudem ein kleineres Detektorarray mit 256 Absorbern entwickelt, hergestellt und charakterisiert.

In diesem Kapitel werden zunächst das Detektordesign sowie numerische Berechnungen des erwarteten Signalverlaufs und der Energieauflösung des Detektors MOCCA sowie des Prototypen MOCCAcino diskutiert. Nach einer Beschreibung der Detektor-Herstellung werden dann die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten experimentellen Aufbauten zur Charakterisierung der Detektoren mit Röntgenphotonen und die mit diesen Aufbauten durchgeführten Messungen vorgestellt. Zuletzt wird ein Ausblick auf eine nächste Generation des Detektorarrays MOCCA gegeben.

6.1 Detektordesign

Eine Auslesung jedes einzelnen Pixels mit einem eigenen SQUID-Kanal wäre bei einem hochsegmentierten Detektor wie MOCCA komplex und teuer, da hierbei die Anzahl der benötigten SQUIDs und Leitungen proportional zur Pixelanzahl steigt. Eine Möglichkeit die große Anzahl an benötigten SQUIDs und Leitungen zur Auslesung vieler Detektorpixel zu reduzieren stellen Multiplexverfahren dar. Während diese für die Auslesung von TES¹-Detektoren heutzutage bereits etabliert sind [Irw09], befindet sich die Auslesung metallischer magnetischer Kalorimeter mit geeigneten Multiplexverfahren allerdings derzeit noch in der Entwicklung [Por13, Kem17].

Da es bei der Detektion massiver Teilchen zudem ohnehin, wie in Kapitel 5 gezeigt, zu einer Limitierung der Energieauflösung aufgrund von Festkörpereffekten kommt, bietet es sich für die am CSR geplanten Messungen an, stattdessen eine alternative Auslesung zu verwenden, die verglichen mit der direkten Einzelpixelauslesung eine

 $^{^1\}mathrm{TES}$ ist ein Akronym für den englischen Begriff Transition-Edge Sensor.

Verschlechterung der intrinsischen Energieauflösung der Detektoren zugunsten einer Erhöhung der Anzahl an Detektorpixeln pro SQUID mit sich bringt. Bei dem Detektorarray MOCCA wird daher ein neu entwickeltes, in Abschnitt 6.1.1 diskutiertes Auslesungsprinzip eingesetzt, welches 2n Detektor-SQUIDs zur gleichzeitigen Auslesung von $(2n)^2$ Sensoren verwendet. Dieses Auslesungsprinzip wird dabei mit dem in Abschnitt 6.1.2 beschriebenen Hydra-Prinzip zur Auslesung von vier Absorbern mit einem Sensor kombiniert. Die beiden verwendeten Prinzipien ermöglichen es somit, 4.096 Absorber mit nur 32 SQUID-Kanälen auszulesen und werden im Folgenden erläutert.

6.1.1 Auslesung von 1.024 Sensoren mit 32 SQUID-Kanälen

Für den Detektor MOCCA wurde im Rahmen dieser Arbeit ein neues Auslesungsprinzip entwickelt, das eine gleichzeitige Auslesung von 1.024 Sensoren mit nur 32 SQUID-Kanälen ermöglicht. Abbildung 6.1a) zeigt eine schematische Darstellung dieses Prinzips. Die Sensoren, die hierbei ein 2D-Array aus 32 Zeilen und 32 Spalten bilden, sind in transparentem Orange dargestellt, sodass die darunterliegenden



Abb. 6.1: a) Schematische Darstellung des verwendeten Auslesungsprinzips zur gleichzeitigen Auslesung von $32 \cdot 32$ Sensoren mit 16+16 Detektor-SQUIDs. b) Schaltbild der beiden Detektionsspulen, die sich unter einem Sensor befinden und aus jeweils vier Einzelspulen bestehen. c) Zeichnung der realen Geometrie der Detektionsspulen.

Detektionsspulen zu sehen sind. Im Gegensatz zu dem in Abschnitt 3.3.1 vorgestellten Auslesungsverfahren, bei dem pro Sensor eine Detektionsspule verwendet wird, ist in diesem Fall jeder Sensor induktiv mit zwei Detektionsspulen gekoppelt. Die eine dieser beiden Detektionsspulen wird im Folgenden als Zeilenspule bezeichnet und ist mit allen anderen Zeilenspulen der gleichen Sensorenzeile in Serie geschaltet. Entsprechend ist die zweite Detektionsspule, die im Folgenden als Spaltenspule bezeichnet wird, mit allen anderen Spaltenspulen der gleichen Sensorenspalte in Serie geschaltet. Die Temperaturerhöhung eines Sensors infolge eines Energieeintrags führt folglich sowohl zu einer Änderung des magnetischen Flusses in einer Zeile sowie in einer Spalte von Detektionsspulen. Als Oberbegriff für Zeilen und Spalten wird im Folgenden der Begriff Reihen verwendet.

Die Reihen von in Serie geschalteten Detektionsspulen werden jeweils paarweise von einem Stromsensor-dc-SQUID ausgelesen, wobei sich jede Spulenreihe wie eine einzige große Detektionsspule verhält. Ebenso wie bei der klassischen in Abschnitt 3.3.2 vorgestellten Gradiometerschaltung zur Auslesung von zwei Sensoren mit einem SQUID sind die beiden Reihen von Detektionsspulen auch hier gradiometrisch verschaltet. Gemäß Gleichung 3.38 verursacht eine Flussänderung in einer der beiden Reihen somit ein positives SQUID-Signal (in Abbildung 6.1 rot gezeichnete Reihen), während die gleiche Flussänderung in der anderen Spulenreihe des Paares ein negatives SQUID-Signal verursacht (grün gezeichnete Reihen). Während sich Signale aus Sensoren derselben Reihe folglich im entsprechenden SQUID summieren, subtrahieren sich Signale aus Sensoren der beiden parallel geschalteten Reihen, wodurch wiederum Störungen durch globale externe Temperatur- und Magnetfeldschwankungen unterdrückt werden.

Da jeder Energieeintrag in einen der $32 \cdot 32$ Sensoren koinzidente Signale in zwei der 16 + 16 SQUIDs zur Folge hat, lässt er sich durch Identifikation der beiden SQUIDs und Bestimmung der Polaritäten der beiden Signale dem richtigen Sensor zuordnen. Wird beispielsweise in Spalten-SQUID P ein positives Signal und in Zeilen-SQUID 2 ein negatives Signal gemessen, so fand das in Abbildung 6.1a) skizzierte Ereignis statt. Treten dabei gleichzeitig unterschiedlich große Energieeinträge durch zu detektierende Röntgenphotonen oder massive Teilchen in zwei gemeinsam von einem SQUID ausgelesenen Sensoren auf, so lässt sich der jeweilige Energieeintrag anhand des zweiten SQUID-Signals dennoch dem richtigen Sensor zuordnen. Erst wenn Energieeinträge gleichzeitig sowohl in dem gleichen Paar von Zeilen als auch im gleichen Paar von Spalten auftreten, können sie in der Messung nicht mehr unterschieden werden.

Detektionsspulen

Abbildung 6.1b) zeigt schematisch, wie die beiden unabhängigen Detektionsspulen, die sich unter jedem Sensor befinden, verschaltet sind. Jede der beiden Detektionsspulen selbst setzt sich aus insgesamt vier mäanderförmigen Spulen zusammen. Von diesen vier Spulen sind dabei jeweils zwei Spulen in Serie geschaltet, die dann insgesamt eine Parallelschaltung bilden. Die zurücklaufende Leitung einer Reihe von Detektionsspulen verläuft jeweils in der Mitte der parallelgeschalteten Spulen. Die Stromrichtung ist hier exemplarisch durch Pfeile dargestellt. Da die drei mittleren Leitungen der Spaltenspule dabei die drei mittleren Leitungen der Zeilenspule kreuzen, sind letztere in einer zweiten Leitungsschicht angeordnet.

Die reale Geometrie dieser Detektionsspulen ist in Abbildung 6.1c) dargestellt. Die einzelnen planaren mäanderförmigen Spulen bestehen aus 250 nm hohen und 5 µm breiten aus Niob gefertigten Mäanderbahnen mit einem Mitte-zu-Mitte-Abstand von 9 µm und bedecken zusammen eine 400 µm · 400 µm große Fläche. Die mittleren drei Leitungen der Zeilenspule sind dabei ebenfalls aus Niob gefertigt, 600 nm hoch, 4 µm breit und durch eine insgesamt etwa 400 nm dicke Isolationsschicht aus Niob(V)-oxid (Nb₂O₅) und Siliziumoxid (SiO_x) elektrisch von den darunterliegenden Leitungen der Spaltenspule isoliert. Mit den restlichen Leitungen der Zeilenspulen sind sie supraleitend verbunden. Die Herstellung dieser Strukturen wird in Abschnitt 6.3.2 diskutiert.

Die in Abbildung 6.1c) gezeigte Geometrie wurde dabei so gewählt, dass eine Stromänderung in einer Zeilenspule möglichst keine Flussänderung in der zugehörigen Spaltenspule verursacht und umgekehrt. Auf diese Weise wird das in Abschnitt 6.5.3 untersuchte magnetische Übersprechen zwischen Zeilen- und Spaltenspulen minimal gehalten. Die Verwendung von parallel geschalteten Spulen macht das gesamte Detektordesign darüber hinaus fehlertoleranter. Sollte eine der schmalen Mäanderbahnen, die insgesamt eine Länge von über 9 m haben, an einer Stelle unterbrochen sein, so bleibt die supraleitende Schleife, die die beiden Reihen von Detektionsspulen bilden, dennoch geschlossen. In diesem Fall kann dadurch der Ausfall von zwei kompletten Reihen von Detektionsspulen und somit der Ausfall von 128 Pixeln verhindert werden.

Verbindungsleitungen

Die jeweils 1 mm langen hin- und zurücklaufenden Verbindungsleitungen zwischen den einzelnen Detektionsspulen verursachen, ebenso wie die zusätzlich in Serie geschalteten Detektionsspulen selbst, eine parasitäre Induktivität. Diese führt zu einer Verringerung der in Abschnitt 3.3.2 diskutierten Fluss-zu-Fluss-Kopplung zwischen Detektionsspule und SQUID und somit zu einer Verschlechterung des Signal-zuRauschen-Verhältnisses. Um die in Gleichung 3.38 als L_p bezeichnete parasitäre Induktivität gering zu halten, ist daher eine möglichst geringe Induktivität der Verbindungsleitungen wünschenswert. Da die Induktivität eines Leitungspaars bestehend aus einer hin- und einer zurücklaufenden Leiterbahn mit steigendem Abstand der beiden Leiterbahnen ansteigt, wurde für die Verbindungsleitungen die in Abbildung 6.2 dargestellte Geometrie paralleler Streifenleitungen gewählt. Diese bestehen aus zwei



Abb. 6.2: Schematische Darstellung der Geometrie der Verbindungsleitungen zwischen den einzelnen Detektionsspulen.

übereinanderliegenden planaren Leiterbahnen aus Niob, die durch eine dazwischenliegende dünne nichtleitende Schicht elektrisch voneinander isoliert sind. Durch die Verwendung dieser Geometrie können der durch die Dicke der Isolationsschicht gegebene Abstand d zwischen den beiden Leiterbahnen und somit deren Induktivität

$$L_{\rm sl} = l\mu_0 \frac{d}{w} \tag{6.1}$$

minimiert werden. Hierbei ist $\mu_0 = 4 \pi \cdot 10^{-7}$ Vs/Am die magnetische Feldkonstante, l ist die Länge der Leiterbahnen und w ist für supraleitende Bahnen in guter Näherung die Breite, auf der die beiden Bahnen überlappen. Um mögliche Kurzschlüsse zwischen den beiden Leiterbahnen zu vermeiden, die insbesondere an den Kanten der unteren Leiterbahn auftreten können, wurde hierbei für die obere Leiterbahn, wie in Abbildung 6.2 gezeigt, eine geringere Breite gewählt als für die untere. Die Überlapp-Breite ist somit durch die Breite $w = 30 \,\mu\text{m}$ der oberen Leiterbahn gegeben, während die Breite der unteren Leiterbahn 35 μm beträgt. Die Dicke der Isolationsschicht aus Niob(V)-oxid (Nb₂O₅) und Siliziumoxid (SiO_x) beträgt auch hier etwa $d \approx 400 \,\text{nm}$. Die $l = 1 \,\text{nm}$ langen Verbindungsleitungen zwischen zwei Detektionsspulen haben somit jeweils eine Induktivität von nur $L_{\rm sl} \approx 17 \,\text{pH}$. Für zwei Reihen von Detektionsspulen macht die Gesamtinduktivität aller Verbindungsleitungen von etwa 0,28 nH daher nur einen Anteil von etwa 3% an der in Abschnitt 6.2.1 berechneten Gesamtinduktivität $L_{\rm MO} \approx 8,84 \,\text{nH}$ der beiden Reihen aus.

6.1.2 Auslesung von vier Absorbern mit einem Sensor

Üblicherweise wird jeder Sensor eines metallischen magnetischen Kalorimeters mit jeweils einem Absorber verbunden. Beim Hydra-Prinzip werden hingegen mehrere Absorber thermisch mit einem Sensor verbunden [FF01, Smi09, Por09]. Um die Signale von den verschiedenen Absorbern dennoch eindeutig zuordnen zu können, werden die thermischen Verbindungen zwischen dem Sensor und den jeweiligen Absorbern verschieden gewählt. Damit lässt sich die Zuordnung mit Hilfe der Anstiegszeit der Detektorsignale realisieren.



Abb. 6.3: a) Schematische Darstellung eines metallischen magnetischen Kalorimeters, bei dem vier Absorber von einem Sensor ausgelesen werden. b) Schematische Darstellung der zur Umsetzung des Hydra-Prinzips im Fall von MOCCA verwendeten Geometrie.

Abbildung 6.3a) zeigt die schematische Zeichnung eines metallischen magnetischen Kalorimeters, bei dem das Hydra-Prinzip zur Auslesung von vier Absorbern mit einem Sensor eingesetzt wird. Die Absorber sind dabei über unterschiedliche thermische Widerstände $1/G_{ais}$ (i = 1, 2, 3, 4) mit dem Sensor verbunden, der wiederum wie bei der klassischen Auslesung über eine deutlich schwächere thermische Verbindung $G_{sb} \ll G_{ais}$ an ein Wärmebad angekoppelt ist. In jedem der Absorber hat ein Energieeintrag somit ein Detektorsignal mit einer anderen, durch die jeweilige thermische Verbindung definierten Anstiegszeit zur Folge. Durch Bestimmung der Signalanstiegszeit lässt sich dann der Auftreffort eines Energieeintrags innerhalb einer Gruppe von Absorbern auf einen bestimmten Absorber eingrenzen. Die Ortsauflösung des Detektors ist somit durch die Fläche der einzelnen Absorber gegeben.

Abbildung 6.3b) zeigt schematisch die für MOCCA verwendete Geometrie. Ein Sensor wird dabei zur Auslesung von vier Absorbern aus Gold verwendet, die jeweils eine Fläche von 698 µm · 698 µm abdecken und eine Höhe von 3 µm haben. Der Sensor hat eine quadratische Grundfläche von 394 µm · 394 µm und ist über insgesamt 16 Stege mit den vier Absorbern verbunden. Diese Stege werden gemeinsam mit dem Sensor aus der in Unterkapitel 3.2 diskutierten Legierung <u>Ag</u>:Er mit einer Dicke von 1,5 µm hergestellt. Die Absorber stehen auf jeweils vier Stämmen aus Gold mit einem Durchmesser von je 15 µm, die auf den verbreiterten Enden der jeweils 10 µm breiten Stege aufgebracht sind und so den thermischen Kontakt zwischen Absorber und Sensor herstellen. Um unterschiedliche thermische Widerstände zwischen dem Sensor und den einzelnen Absorbern zu erzielen, haben die vier Stege für jeden Absorber eine andere Länge. Die Längen der Stege wurden dabei so gewählt, dass korrespondierende Anstiegszeiten von etwa $\tau_{a1} \approx 4 \,\mu s$, $\tau_{a2} \approx 10 \,\mu s$, $\tau_{a3} \approx 20 \,\mu s$ und $\tau_{a4} \approx 35 \,\mu s$ zu erwarten sind. Die Verwendung des Hydra-Prinzips ermöglicht es auf diese Weise, bei gleich bleibender Anzahl an Sensoren und somit nahezu gleich bleibender Komplexität der Auslesungsgeometrie, die Anzahl an Absorbern um einen Faktor von vier auf 4.096 zu erhöhen.

6.1.3 Geometrie eines Einzeldetektors des Detektorarrays

Das Detektorarray MOCCA setzt sich aus 1.024 nahezu identischen Einzeldetektoren zusammen, die jeweils aus vier Absorbern, einem Sensor mit thermischer Ankopplung an ein Wärmebad sowie den darunterliegenden Detektionsspulen bestehen und im Folgenden vereinfachend als Hydren bezeichnet werden. Abbildung 6.4 zeigt eine Explosionszeichnung einer solchen Hydra. Von den beiden unabhängigen Detektionsspulen, die sich unter dem Sensor befinden, ist hierbei analog zu Abbildung 6.1c) die Zeilenspule rot und die Spaltenspule grün eingefärbt. Oberhalb der sich kreuzenden Leiterbahnen in der Mitte der Detektionsspulen hat der darüberliegende Sensor eine rechteckige Aussparung, um mögliche Kurzschlüsse mit der oberen, höheren und weniger gut isolierten Schicht von Leiterbahnen zu vermeiden. Seitlich am Sensor sind zudem die in Abschnitt 6.1.2 diskutierten unterschiedlich langen Stege zu sehen, auf deren Enden die transparent gezeichneten Absorber auf jeweils vier Stämmen stehen und durch deren Geometrie die unterschiedlichen Anstiegszeiten der Detektorsignale gegeben sind.

Die einzelnen Absorber, deren Herstellung in Abschnitt 6.3.4 diskutiert wird, sind durch nur $2\,\mu$ m breite Spalte voneinander getrennt. Die Gesamtfläche dieser Spalte macht somit nur etwa 0,6 % der gesamten Detektionsfläche aus, sodass es sehr unwahrscheinlich wird, dass zu detektierende massive Teilchen zwischen den Absorbern auftreffen und nicht detektiert werden. Treffen allerdings dennoch massive Teilchen durch die Spalte auf die Verbindungsleitungen zwischen den Detektionsspulen, so kann der dadurch verursachte Energieeintrag zu einer lokalen Erwärmung der supraleitenden Verbindungsleitungen führen. Diese könnten dann im schlimmsten Fall lo-



Abb. 6.4: Explosionszeichnung einer der insgesamt 1.024 Hydren des Detektorarrays MOCCA. Die Absorber sind hierbei transparent gezeichnet, sodass die darunterliegenden Strukturen zu erkennen sind.

kal normalleitend werden, was zu einer Verringerung des durch die Detektionsspulen fließenden Dauerstroms führen könnte. Aus diesem Grund wurde die Form der Absorber so gewählt, dass die Verbindungsleitungen zum Großteil unter den Absorbern verlaufen und somit von diesen vor auftreffenden massiven Teilchen geschützt sind. Wie in Unterkapitel 5.2 gezeigt wurde, ist dabei die geringe Absorberhöhe von 3 μ m bereits bei weitem ausreichend, um zu verhindern, dass am kryogenen Speicherring CSR entstehende zu detektierende Molekülfragmente den Absorber komplett durchqueren, ohne gestoppt zu werden. Optional können die Absorber zudem mit einer dünnen Aluminiumschicht bedeckt werden, durch die, wie in den Unterkapiteln 5.2 und 5.4 gezeigt wurde, insbesondere die Rückstreuung zu detektierender Teilchen reduziert werden kann.

Des Weiteren ist in Abbildung 6.4 ein Teil der aus 300 nm dickem Gold bestehenden Thermalisierungsfläche zu sehen, an die der Sensor über eine schwache thermische Verbindung zur Abführung der Wärme nach einem Energieeintrag angekoppelt ist. Die schwache thermische Verbindung wird hierbei durch einen ebenfalls 300 nm hohen, 75 µm breiten und 93 µm langen Steg aus Gold realisiert, dessen Geometrie gemäß Gleichung 3.50 zusammen mit der Gesamtwärmekapazität des Detektors die Abklingzeit $\tau_b \approx 4,5$ ms des Detektorsignals bestimmt.

6.1.4 Layout des gesamten Detektorarrays

Die insgesamt $64 \cdot 64$ Absorber des Detektorarrays MOCCA bilden zusammen eine $4,48 \text{ cm} \cdot 4,48 \text{ cm}$ große sensitive Fläche. Die Abbildungen 6.5a) und b) zeigen das Layout des gesamten Detektorchips sowie eines vergrößerten Ausschnitts aus dem Bereich dieser sensitiven Fläche. Die Absorber sind hierbei jeweils transparent gezeichnet, sodass die darunterliegenden Sensoren und Thermalisierungsflächen sowie die Verbindungsleitungen zwischen den Detektionsspulen zu sehen sind. Die Detektionsspulen selbst sind von den Sensoren verdeckt. Eine Hydra, wie sie in Abbildung 6.4 gezeigt ist, ist hier mit einer gestrichelten Linie markiert.

Da es sich bei MOCCA um ein zweidimensionales Array von metallischen magnetischen Kalorimetern handelt, ist eine seitliche thermische Kopplung jedes Sensors an eine als Wärmebad dienende Halterung aus Kupfer nicht möglich. Stattdessen sind die Sensoren von jeweils vier Hydren thermisch schwach an eine gemeinsame, etwa $1,3 \,\mathrm{mm} \cdot 1,3 \,\mathrm{mm}$ große Thermalisierungsfläche angeschlossen. Die thermische Ankopplung dieser Thermalisierungsflächen an die Detektorhalterung wird hierbei durch das Detektorsubstrat hindurch hergestellt. Dazu wird, wie in Abschnitt 6.3.3 beschrieben, unter der Mitte jeder Thermalisierungsfläche ein Loch mit einem Durchmesser von 300 µm durch das etwa 350 µm dicke Siliziumsubstrat geätzt. Durch eine etwa 6 µm dicke Goldschicht auf den Seitenwänden dieser Löcher wird dann ein guter thermischer Kontakt zu einer auf der Rückseite des Detektorsubstrats aufgebrachten, 800 nm dicken Schicht Ag: Er hergestellt, die zum Schutz vor Oxidation mit einer zusätzlichen 200 nm dicken Goldschicht bedeckt wird. Die so beschichtete Rückseite des Detektorsubstrats liegt beim Betrieb des Detektors vollflächig auf der in Abschnitt 6.4.1 diskutierten Detektorhalterung aus Kupfer auf, welche somit zusammen mit den Thermalisierungsflächen und der Ag:Er-Schicht als Wärmebad dient.

Abbildung 6.5c) zeigt einen vergrößerten Ausschnitt des Detektorlayouts im Bereich des Dauerstromschalters und der Feld- und Heizerleitungen, die wie in Unterkapitel 4.2 beschrieben zur Präparation des felderzeugenden Dauerstroms dienen. Ebenso wie die Verbindungsleitungen zwischen den einzelnen Detektionsspulen verlaufen auch die Feld- und Heizerleitungen zum größten Teil unter den Absorbern, sodass sie vor auftreffenden massiven Teilchen geschützt sind. Der Dauerstromschalter selbst liegt ebenfalls unter den Absorbern. Die Anschlüsse für die Feld- und Heizerleitungen finden sich in Abbildung 6.5a) an der linken und der unteren Kante des Detektorchips. Mit diesen Anschlüssen ist eine gleichzeitige Präparation des Dauerstroms in allen Zeilen und Spalten möglich. An den anderen beiden Chipkanten befinden sich zusätzliche Anschlüsse, die optional genutzt werden können und mit denen es beispielsweise zu Testzwecken möglich ist, einen Dauerstrom in nur einem Teil der Detektionsspulen zu präparieren.



Abb. 6.5: Layout des MOCCA-Detektorchips: a) Gesamtansicht, b) vergrößerter Ausschnitt aus dem Bereich der sensitiven Fläche, c) vergrößerter Ausschnitt aus dem Bereich des Dauerstromschalters. Die Absorber sind hierbei jeweils transparent gezeichnet, sodass die darunterliegenden Strukturen zu sehen sind.

Auch die Anschlüsse zum Verbinden von jeweils zwei Reihen von Detektionsspulen mit der Einkoppelspule eines Detektor-SQUIDs befinden sich an der linken und der unteren Kante des Detektorchips. Da sich somit alle zum Betrieb des Detektors benötigten Anschlüsse an nur zwei Seiten des Detektorchips befinden, ist es optional auch möglich, vier MOCCA-Detektorchips zu einem großen Detektorarray mit mehr als 16.000 Pixeln und einer sensitiven Fläche von über 80 cm² zusammenzusetzen.

6.1.5 MOCCAcino

Zusätzlich zu dem 4.096-Pixel-Detektorarray MOCCA wurde im Rahmen dieser Arbeit noch eine kleinere 256-Pixel-Version des Detektors mit einer sensitiven Fläche von $1,12 \text{ cm} \cdot 1,12 \text{ cm}$ und einer erwarteten Energieauflösung von etwa 30 eV entwickelt, hergestellt und getestet. Das in Abschnitt 6.1.1 vorgestellte, für MOCCA entwickelte Auslesungsprinzip wird bei diesem kleineren Detektorarray MOCCAcino in Kombination mit dem in Abschnitt 6.1.2 diskutierten Hydra-Prinzip zur Auslesung von $16 \cdot 16$ Absorbern, also von $8 \cdot 8$ Sensoren bzw. Hydren, mit nur 4 + 4 SQUIDs



Abb. 6.6: Layout des MOCCAcino-Detektorchips. Die Absorber sind hierbei transparent gezeichnet, sodass die darunterliegenden Strukturen zu sehen sind.

eingesetzt.

Abbildung 6.6 zeigt das Layout des MOCCAcino-Detektorchips mit transparent gezeichneten Absorbern. Es sind die gleichen Elemente wie bei dem in Abbildung 6.5 gezeigten Detektorarray MOCCA zu sehen. MOCCAcino ist aufgrund seiner geringeren Komplexität einerseits als Prototyp für MOCCA gedacht, andererseits kann dieser Detektor aufgrund seiner deutlich geringeren Größe und seiner erwartet besseren Energieauflösung auch für Anwendungen interessant sein, bei denen keine so große sensitive Fläche, aber dafür eine etwas bessere Energieauflösung benötigt wird.

6.2 Numerische Berechnungen der Detektoreigenschaften

Nachdem im vorigen Unterkapitel das Detektordesign des 4 k-Pixel-Detektorarrays MOCCA sowie des kleineren 256-Pixel-Detektorarrays MOCCAcino vorgestellt wurden, werden im Folgenden Optimierungsrechnungen dieser Detektoren sowie numerische Berechnungen der erwarteten Energieauflösung und des erwarteten Signalverlaufs diskutiert.

6.2.1 Detektoroptimierung und erwartete Energieauflösung

Wie in Kapitel 5 gezeigt wurde, führt die Variation der Anzahl erzeugter Frenkel-Paare im Absorber zu einem relevanten Beitrag zur Linienbreite des Detektors bei der Detektion massiver Teilchen. Bei der Konzeption des Detektorarrays MOCCA wurde daher, wie bereits in Unterkapitel 6.1 erläutert, eine verschlechterte intrinsische Energieauflösung zugunsten einer reduzierten Anzahl an SQUIDs bei gleich bleibender Anzahl an Detektorpixeln in Kauf genommen. Dabei haben mehrere Aspekte des Detektordesigns eine Degradierung der intrinsischen Energieauflösung im Vergleich zu der in Kapitel 3 beschriebenen konventionellen Auslesung zur Folge, die im Folgenden diskutiert werden.

Da sich unter jedem Sensor zwei Detektionsspulen befinden, erzeugt jeweils nur der halbe Sensor ein Signal in jeder Detektionsspule, woraus eine im Vergleich zu Gleichung 3.29 reduzierte Flussänderung

$$\Delta \Phi = \frac{1}{2} \frac{V_{\rm s}}{C_{\rm ges}} \left\langle \mu_0 \frac{G}{p} \frac{\partial M}{\partial T} \right\rangle \Delta E \tag{6.2}$$

in der mäanderförmigen Detektionsspule infolge eines Energieeintrags ΔE resultiert. Gleichermaßen sind allerdings auch die vom Sensor generierten Rauschbeiträge zum Gesamtrauschen im SQUID reduziert. Insgesamt wird somit der Einfluss des SQUID-Rauschens auf die intrinsische Energieauflösung wichtiger. Darüber hinaus hat das in Abschnitt 6.1.1 beschriebene Auslesungsprinzip mit Zeilen und Spalten von Detektionsspulen, wie bereits in Abschnitt 6.1.1 erläutert wurde, eine verringerte Fluss-zu-Fluss-Kopplung aufgrund der zusätzlichen Induktivitäten der in Serie geschalteten Detektionsspulen und der Verbindungsleitungen zwischen diesen zur Folge. Die n = 32 in Serie geschalteten Detektionsspulen in einer Reihe setzen sich dabei jeweils aus zwei parallelgeschalteten Spulen zusammen, deren jeweilige Einzelinduktivität sich anhand von Gleichung 3.24 zu $L_{\rm m} \approx 1,07$ nH berechnet. Die Induktivität pro Leitungslänge $l_{\rm sl}$ der Verbindungsleitungen zwischen den Detektionsspulen berechnet sich anhand von Gleichung 6.1 zu $L_{\rm sl}/l_{\rm sl} \approx 21,7$ nH/m, woraus eine geringe Gesamtinduktivität der Verbindungsleitungen in zwei Reihen von Detektionsspulen von insgesamt nur $L_{\rm sl,ges} \approx 0,28$ nH resultiert. Somit ergibt sich insgesamt für die beiden gemeinsam von einem SQUID ausgelesenen Reihen von Detektionsspulen inklusive der Verbindungsleitungen eine Gesamtinduktivität

$$L_{\rm MO} = L_{\rm sl,ges} + \frac{1}{2}n\frac{L_{\rm m}}{2} \approx 8,84\,{\rm nH}.$$
 (6.3)

Anhand von Gleichung 3.38 lässt sich damit die Fluss-zu-Fluss-Kopplung

$$\frac{\Delta\Phi_{\rm S}}{\Delta\Phi} = \frac{k\sqrt{L_{\rm i}L_{\rm S}}}{2L_{\rm MO} + 2(L_{\rm i} + L_{\rm w})} \tag{6.4}$$

berechnen. Eine maximale Fluss-zu-Fluss-Kopplung kann folglich bei der Verwendung eines SQUIDs mit einer Einkoppelspulen-Induktivität von etwa $L_{\rm i} \approx L_{\rm MO} + L_{\rm w}$ erzielt werden. Mit einer typischen Induktivität der zur Verbindung von zwei Reihen von Detektionsspulen mit der Einkoppelspule eines SQUIDs verwendeten Aluminiumdrähte von $L_{\rm w} \approx 0.7 \,\mathrm{nH}$ (siehe Abschnitt 6.5.1) folgt somit für die optimale Induktivität der SQUID-Einkoppelspule $L_{\rm i} \approx 9.5 \,\mathrm{nH}$. Für das kleinere 256-Pixel-Detektorarray MOCCAcino gilt entsprechend n = 8 und $L_{\rm MOc} \approx 2.22 \,\mathrm{nH}$, womit sich eine optimale Einkoppelspulen-Induktivität von $L_{\rm i} \approx 2.9 \,\mathrm{nH}$ ergibt. Da im Rahmen dieser Arbeit allerdings keine SQUIDs mit einer an das Detektorarray MOCCA angepassten Einkoppelspulen-Induktivität zur Verfügung standen, wurden für die in Unterkapitel 6.5 diskutierten Charakterisierungsmessungen dieses Detektors stattdessen SQUIDs mit einer Induktivität der Einkoppelspule von $L_{\rm i} \approx 1.1 \,\mathrm{nH}$ verwendet.

Die gleichzeitige Auslesung mehrerer Sensoren mit nur einem SQUID hat weiterhin zur Folge, dass alle 32 + 32 gemeinsam ausgelesenen Sensoren aus zwei Reihen sowie die zugehörigen Absorber mit dem in Abschnitt 3.4.4 diskutierten magnetischen Johnson-Rauschen zum Gesamtrauschen im SQUID beitragen. Jedoch spielt dieser Beitrag eine untergeordnete Rolle. Nicht zu vernachlässigen ist hingegen der Beitrag des in Abschnitt 3.4.4 diskutierten 1/f-Rauschens der Erbiumionen in allen Sensoren der beiden Reihen zum Gesamtrauschen. Des Weiteren haben die ausgebremsten Anstiegszeiten zur Realisierung des in Abschnitt 6.1.2 diskutierten Hydra-Prinzips ebenfalls eine verschlechterte Energieauflösung zur Folge. Während das in Gleichung 3.58 gegebene fundamentale Limit der Energieauflösung für größere Signalanstiegszeiten schlechter wird, ist dieser Effekt im hier betrachteten Fall durch die zusätzlichen Rauschbeiträge zwar abgeschwächt, aber immer noch vorhanden. Darüber hinaus sind aufgrund der verschiedenen Signalanstiegszeiten folglich auch leicht unterschiedliche Energieauflösungen für die vier Absorber einer Hydra zu erwarten.

Zusätzlich tragen alle Wärmekapazitäten C_{ai} der einzelnen Absorber zu der Gesamtwärmekapazität einer Hydra bei, woraus wiederum eine Verschlechterung der Energieauflösung resultiert. Hierbei ist allerdings zu beachten, dass die Thermalisierung des Sensors mit den einzelnen Absorbern aufgrund der unterschiedlichen thermischen Verbindungen unterschiedlich schnell verläuft. In der Zeit, die infolge eines Energieeintrags in einen Absorber für die Thermalisierung dieses Absorbers mit dem Sensor benötigt wird, thermalisieren folglich auch alle anderen Absorber, die eine bessere thermische Verbindung zum Sensor haben, während die Absorber mit schwächerer thermischer Verbindung in dieser Zeit noch nicht vollständig mit dem Sensor thermalisiert sind. Im Fall eines Energieeintrags in den Absorber mit der schwächsten thermischen Verbindung zum Sensor (Absorber 4) kann die Hydra somit in erster Näherung als ein kanonisches Ensemble mit den beiden Subsystemen Absorber und Sensor, wie es in den Abschnitten 3.4.1 und 3.4.2 diskutiert wurde, beschrieben werden, jedoch muss die effektive Absorberwärmekapazität durch $C_a^* = \sum_{i=1}^4 C_{ai}$ ersetzt werden.

Unter Berücksichtigung der hier beschriebenen Aspekte wurden im Rahmen dieser Arbeit basierend auf den in Unterkapitel 3.4 diskutierten Grundlagen numerische Berechnungen zur Optimierung des Detektorarrays MOCCA hinsichtlich der Energieauflösung durchgeführt. Da bei Energieeinträgen in den vier Absorbern einer Hydra die schlechteste Energieauflösung für den Absorber mit der schwächsten thermischen Verbindung zum Sensor zu erwarten ist, wurde der Detektor dabei auf Energieeinträge in diesem Absorber optimiert. Hierbei wurde eine Betriebstemperatur von T = 20 mK angenommen, welche mit dem für das Detektorarray MOCCA vorgesehenen Kryostaten² zuverlässig erreicht werden kann.

In Tabelle 6.1 sind die in den Berechnungen verwendeten Parameter zusammengefasst. Sowohl die Bahnbreite, der Mitte-zu-Mitte-Abstand und die Höhe der Mäanderbahnen der Detektionsspulen als auch die Höhe der über diesen liegenden Isolationsschicht wurden dabei jeweils ausreichend groß gewählt, um eine zuverlässige Herstellung der Detektorleitungen über die gesamte $4,48 \text{ cm} \cdot 4,48 \text{ cm}$ große sensitive Detektorfläche hinweg zu ermöglichen. Um eine gute mittlere Kopplung zwischen den

²BF-LD250, BlueFors Cryogenics Oy, Arinatie 10, 00370 Helsinki, Finnland

Detektionsspulen	Höhe	$250\mathrm{nm}$				
(Nb)	Bahnbreite w	$5\mu\mathrm{m}$				
	Mitte-zu-Mitte-Abstand \boldsymbol{p}	$9\mu{ m m}$				
Verbindungsleitungen (Nb)	Induktivität pro Länge	21,7 nH/m				
Isolationsschicht (SiO_x)	Höhe	350 nm				
Sensor	Fläche	$394\mu\mathrm{m}\cdot394\mu\mathrm{m}$				
(Ag:Er)	Restwiderstandsverhältnis RRR	2,4				
	Erbium-Konzentration	$350\mathrm{ppm}$				
	$1/f$ -Rauschen $S_{\rm m}(1{\rm Hz})$	$0,\!117\mu_{ m B}^2/{ m Hz}$				
	Exponent η des $1/f$ -Rauschens	0,9				
	We chselwirkungsparameter $\alpha_{\underline{\mathrm{Ag}}:\mathrm{Er}}$	12,5				
Absorber	Fläche	$698\mu\mathrm{m}\cdot698\mu\mathrm{m}$				
(Au)	Höhe	$3\mu\mathrm{m}$				
	Restwiderstandsverhältnis RRR	20				
	Wärmekapazität $C_{\mathrm{a}i}$ be i $T=20\mathrm{mK}$	$2,09\mathrm{pJ/K}$				
Zeitkonstanten	Signalanstiegszeit $\tau_{\rm a4}$	35 μs				
	Signalab fallszeit $\tau_{\rm b}$	$4,5\mathrm{ms}$				
Auslesung						
SQUID	Einkoppelspulen-Induktivität $L_{\rm i}$	$1,1\mathrm{nH}$				
	Gegeninduktivität $M_{\rm iS}$	$(12,5\mu{ m A}/\Phi_0)^{-1}$				
	Weißes Rauschen $S_{\Phi_{S,w}}$	$\left(0,3\mu\Phi_0/\sqrt{\mathrm{Hz}} ight)^2$				
	$1/f$ -Rauschen $S_{\Phi_{s,1/s}}(1 \text{ Hz})$	$\left(5\mu\Phi_0/\sqrt{\text{Hz}}\right)^{2'}$				
	Exponent α des $1/f$ -Rauschens	0,9				
Aluminiumdrähte	Induktivität $L_{\rm w}$	0,7 nH				

MOCCA

Tab. 6.1: Übersicht über die verwendeten Parameter bei der numerischen Optimierung zur Bestimmung der optimalen Sensorhöhe, des optimales Betriebsstroms sowie der erwarteten Energieauflösung des 4k-Pixel-Detektorarrays MOCCA und des 256-Pixel-Detektorarrays MOCCAcino. Für den Wechselwirkungsparameter $\alpha_{Ag:Er}$ wurde der in [Hen17] ermittelte Wert verwendet.

magnetischen Momenten des Sensormaterials und den Detektionsspulen zu erzielen, wurde die Sensorfläche hierbei gleich groß gewählt, wie die Fläche der Detektionsspulen. Während die Fläche der Absorber durch die gewünschte sensitive Fläche des Detektorarrays vorgegeben war, wurde die Höhe der Absorber so angepasst, dass bei der gegebenen Fläche eine ausreichende Stabilität der auf Stämmen stehenden Absorber gewährleistet ist. Die zusätzliche Wärmekapazität der optionalen Aluminiumschicht auf den Absorbern wurde in den Berechnungen vernachlässigt, da selbst eine 1 μ m dicke Aluminiumschicht bei einer Betriebstemperatur von $T = 20 \,\mathrm{mK}$ die Absorberwärmekapazität um weniger als 0,6 % erhöhen würde. Die Restwiderstandsverhältnisse des Sensors und des Absorbers sowie die Erbium-Konzentration im Sensor sind durch die bei der in Unterkapitel 6.3 beschriebenen Herstellung der Detektoren verwendeten Prozesse und Materialien limitiert. Des Weiteren wurde für die Signalabfallszeit ein Wert gewählt, mit dem bei der Detektion von Molekülfragmenten am CSR eine Reaktionsrate von bis zu etwa $50 \,\mathrm{s}^{-1}$ problemlos möglich ist, ohne dabei eine signifikante Degradierung der Energieauflösung durch eine zu langsame Thermalisierung zu riskieren. Eine solche Degradierung der Energieauflösung könnte auftreten, wenn Energieeinträge in einer Hydra stattfinden, bevor eine von dem gleichen SQUID ausgelesene Hydra nach einem vorherigen Energieeintrag wieder thermalisiert ist. Für die SQUIDs zur Auslesung des Detektors wurden in den Berechnungen die Parameter der im Rahmen dieser Arbeit verfügbaren SQUIDs angenommen, welche auch bei den in Unterkapitel 6.5 diskutierten Charakterisierungsmessungen verwendet wurden.

Durch Variieren der Sensorhöhe h_s sowie der Stromstärke I_0 des felderzeugenden Dauerstroms wurden dann für eine Betriebstemperatur von 20 mK die optimale Sensorhöhe und die optimale Stromstärke zu $h_s = 1,1 \,\mu\text{m}$ und $I_0 = 64 \,\text{mA}$ bestimmt. Für die damit erreichbare Energieauflösung infolge eines Energieeintrags in dem Absorber 4 der Hydra ergibt sich aus den Optimierungsrechnungen ein Wert von $\Delta E_{\text{FWHM}} = 49,8 \,\text{eV}$. Für Energieeinträge in den anderen drei Absorbern der Hydra sind hierbei etwas bessere Energieauflösungen zu erwarten.

Um eine reduzierte Temperaturabhängigkeit der Signalhöhe zu erzielen, wurde für die im Rahmen dieser Arbeit hergestellten Detektorarrays allerdings eine etwas größere Sensorhöhe von $h_s = 1,5 \,\mu\text{m}$ gewählt. Dadurch kann verglichen mit einem Detektor mit der optimierten Sensorhöhe eine verringerte Sensitivität gegenüber Temperaturschwankungen erreicht werden [Hen17], während sich die erreichbare intrinsische Energieauflösung nur unwesentlich verschlechtert. Für eine Betriebstemperatur von $T = 20 \,\text{mK}$ haben weitere numerische Berechnungen für ein Detektorarray MOCCA mit dieser Sensorhöhe eine um weniger als 2% schlechtere erreichbare Energieauflösung von $\Delta E_{\text{FWHM}} = 50,4 \,\text{eV}$ bei einem optimalen felderzeugenden Dauerstrom von $I_0 = 65 \,\text{mA}$ ergeben. Bei diesen Betriebsparametern beträgt die Wärmekapazität eines Sensors etwa $C_{\rm s} \approx 16,1\,{\rm pJ/K}$. Für das kleinere 265-Pixel-Detektorarray MOCCAcino wurde entsprechend für diese Sensorhöhe bei einer Betriebstemperatur von 20 mK und dem optimalen felderzeugenden Dauerstrom eine Energieauflösung von $\Delta E_{\rm FWHM} = 23,8\,{\rm eV}$ ermittelt.

Um die zu erwartende Energieauflösung für verschiedene Stromstärken I_0 des felderzeugenden Dauerstroms zu bestimmen, wurden zudem weitere numerische Berechnungen für eine Sensorhöhe von $h_s = 1,5 \,\mu\text{m}$ durchgeführt. In Abbildung 6.7 sind



Abb. 6.7: Erwartete intrinsische Energieauflösung des 4 k-Pixel-Detektorarrays MOCCA sowie des 265-Pixel-Detektorarrays MOCCAcino in Abhängigkeit von der Stromstärke I_0 des felderzeugenden Dauerstroms bei Betriebstemperaturen von T = 20 mK (blau) sowie T = 30 mK (rot). Die Werte wurden anhand von numerischen Berechnungen unter der Annahme dass die Energieeinträge in den Absorber einer Hydra mit der schwächsten thermischen Verbindung zum Sensor stattfinden ermittelt, wobei die in Tabelle 6.1 angegebenen Parameter sowie die gewählte Sensorhöhe von $h_s = 1,5 \mu m$ verwendet wurden. Die optimale Stromstärke I_0 ist jeweils mit einem Pfeil der entsprechenden Farbe markiert.

die daraus resultierenden erwarteten intrinsischen Energieauflösungen der Detektorarrays MOCCA und MOCCAcino für eine Betriebstemperatur von T = 20 mKjeweils in Blau gegen die Stromstärke I_0 aufgetragen. Der optimale Dauerstrom $I_0 = 65 \text{ mA}$ ist hier mit einem blauen Pfeil markiert. Für höhere Stromstärken des felderzeugenden Dauerstroms bis 100 mA ergibt sich dabei eine Verschlechterung der Energieauflösung um weniger als 7%. Eine signifikante Degradierung der Energieauflösung um mehr als 10% hingegen ist bei geringeren Stromstärken I_0 erst für Werte von $I_0 < 40 \text{ mA}$ zu erwarten. Zum Vergleich sind in Rot zudem die entsprechenden berechneten Werte für eine Betriebstemperatur von T = 30 mK gezeigt. Wie hier zu sehen ist, hat eine derartig erhöhte Temperatur insbesondere bei geringen Stromstärken I_0 eine signifikante Degradierung der Energieauflösung zur Folge.

6.2.2 Modellieren der ortsaufgelösten Detektion

Wie in Abschnitt 6.1.2 erläutert wurde, sind jeweils vier Absorber einer Hydra des Detektorarrays MOCCA mit den Wärmekapazitäten C_{ai} (i = 1, 2, 3, 4) über unterschiedliche thermische Verbindungen mit den Wärmeleitwerten G_{ais} mit einem Sensor mit Wärmekapazität C_s verbunden. Dieser ist wiederum über eine schwache thermische Verbindung mit dem Wärmeleitwert G_{sb} an ein Wärmebad der Temperatur T_b angeschlossen. Infolge von Energieeinträgen in den vier Absorbern sind folglich unterschiedliche Verläufe der Sensortemperatur und somit Detektorsignale mit unterschiedlichen Signalformen zu erwarten. Die erwarteten Verläufe der Sensortemperatur werden im Folgenden diskutiert.

Analog zu dem in Abschnitt 3.4.1 diskutierten Modell eines kanonischen Ensembles mit zwei Subsystemen wird hierbei ein Ensemble mit fünf Subsystemen, wie es in Abbildung 6.3 gezeigt wurde, bestehend aus dem Sensor mit der Temperatur $T_{\rm s}(t)$ und dem Energiegehalt $E_{\rm s}(t) = C_{\rm s}T_{\rm s}(t)$ sowie den vier Absorbern mit den Temperaturen $T_{\rm ai}(t)$ und den Energiegehalten $E_{\rm ai}(t) = C_{\rm ai}T_{\rm ai}(t)$ betrachtet. Die zeitliche Änderung des Energiegehalts in Absorber *i* lässt sich dabei jeweils gemäß Gleichung 3.41 durch

$$\dot{E}_{ai}(t) = C_{ai}\dot{T}_{ai}(t) = -(T_{ai} - T_s)G_{ais} + \dot{Q}_{ai}(t)$$
(6.5)

beschreiben. Hat ein Energieeintrag ΔE zum Zeitpunkt t_0 in diesem Absorber stattgefunden, so gilt hierbei $\dot{Q}_{ai}(t) = \Delta E \delta(t - t_0)$, während in Abwesenheit eines Energieeintrags $\dot{Q}_{ai}(t) = 0$ gilt.

Zur Beschreibung des Energiegehalts des Sensors müssen dessen thermischen Verbindungen zu allen vier Absorbern berücksichtigt werden, wobei analog zu Gleichung 3.42

$$\dot{E}_{\rm s}(t) = C_{\rm s} \dot{T}_{\rm s}(t) = -\sum_{i=1}^{4} (T_{\rm s} - T_{\rm ai}) G_{\rm ais} - (T_{\rm s} - T_{\rm b}) G_{\rm sb}$$
(6.6)

gilt. Die Lösung dieses Differentialgleichungssystems wurde im Rahmen dieser Arbeit numerisch berechnet, wobei anstelle der absoluten Temperaturen $T_{\rm s}(t)$ und $T_{\rm ai}(t)$ die Temperaturunterschiede $\Delta T_{\rm s}(t) = T_{\rm s}(t) - T_{\rm b}$ und $\Delta T_{\rm ai}(t) = T_{\rm ai}(t) - T_{\rm b}$ zum Wärmebad betrachtet wurden. Die dabei verwendeten Werte für die Wärmekapazitäten der Absorber und des Sensors sowie die Wärmeleitwerte der thermischen Verbindungen zwischen den einzelnen Absorbern und dem Sensor und zwischen dem Sensor und dem Wärmebad finden sich in Tabelle 6.2.

In der folgenden Diskussion wird jeweils der Absorber, in dem ein Energieeintrag stattgefunden hat, als Absorber j bezeichnet. Unter der Annahme, dass ein Energieeintrag ΔE zum Zeitpunkt t_0 in Absorber j (j = 1, 2, 3, 4), aber kein Energieeintrag

	Absorber <i>i</i>					Sensor	
	i = 1	i = 2	i = 3	i = 4			
$C_{\rm ai} \; [pJ/K]$	2,09	2,09	2,09	2,09		$C_{\rm s} \; [{\rm pJ/K}]$	16,1
$G_{\rm ais} \; [{\rm nW/K}]$	508	181	100	$53,\!2$		$G_{\rm sb} \; [{\rm nW/K}]$	$5,\!50$

Tab. 6.2: Bei der numerischen Berechnung des erwarteten Signalverlaufs verwendete Werte für die Wärmekapazitäten der Absorber und des Sensors sowie die Wärmeleitwerte der thermischen Verbindungen zwischen den einzelnen Absorbern und dem Sensor und zwischen dem Sensor und dem Wärmebad. Als Sensorwärmekapazität $C_{\rm s}$ wurde der in Abschnitt 6.2.1 für eine Betriebstemperatur T = 20 mK und den optimalen felderzeugenden Dauerstrom $I_0 = 65$ mA berechnete Wert angenommen.

in den anderen drei Absorbern stattgefunden hat, wurde hierbei ein Temperaturunterschied zwischen Sensor und Wärmebad von

$$\Delta T_{\rm s}(t) = \frac{\Delta E}{C_{\rm s}} \, p_j(t) \tag{6.7}$$

ermittelt, wobei die Punktantwortfunktion $p_j(t)$ der Energieänderung im Sensor auf den Energieeintrag ΔE davon abhängig ist, in welchem Absorber der Energieeintrag stattgefunden hat. Unter Verwendung der Definition

$$p_{ji}(t) = \beta_{ji} \left(-e^{-t/\tau_{ai}} + e^{-t/\tau_{b}} \right)$$
(6.8)

lassen sich die vier ermittelten Punktantwortfunktionen $p_i(t)$ durch

$$p_1(t) = \Theta(t - t_0) \left[p_{11}(t) - p_{12}(t) - p_{13}(t) - p_{14}(t) \right], \tag{6.9}$$

$$p_2(t) = \Theta(t - t_0) \left[p_{21}(t) + p_{22}(t) - p_{23}(t) - p_{24}(t) \right], \tag{6.10}$$

$$p_3(t) = \Theta(t - t_0) \left[p_{31}(t) + p_{32}(t) + p_{33}(t) - p_{34}(t) \right]$$
(6.11)

und

$$p_4(t) = \Theta(t - t_0) \left[p_{41}(t) + p_{42}(t) + p_{43}(t) + p_{44}(t) \right]$$
(6.12)

beschreiben.

Die vier verschiedenen Detektorsignale setzen sich somit jeweils aus fünf Exponentialfunktionen zusammen. Die Zeitkonstanten τ_{ai} sind dabei in erster Linie durch die thermischen Verbindungen zwischen Sensor und Absorber *i* und die Zeitkonstante $\tau_{\rm b}$ durch die thermische Verbindung zwischen Sensor und Wärmebad definiert. Da hierbei für die Wärmeleitwerte $G_{\rm sb} \ll G_{\rm ais}$ gilt, sind die Zeitkonstanten in diesem Fall in erster Näherung durch

$$\tau_{\rm ai} \approx \frac{C_{\rm ai}C_{\rm s}}{G_{\rm ais}(C_{\rm ai}+C_{\rm s})} \tag{6.13}$$

und

$$\tau_{\rm b} \approx \frac{C_{\rm ges}}{G_{\rm sb}}$$
(6.14)

gegeben. Für die Amplituden der Funktionen $p_{ji}(t)$ gilt dabei jeweils $\beta_{ji} > 0$. Da die Hydra bei Energieeinträgen in den Absorber 4 mit der schwächsten thermischen Verbindung zum Sensor, wie im vorigen Abschnitt erläutert wurde, in erster Näherung als kanonisches Ensemble aus dem Sensor und einem Absorber mit effektiver Wärmekapazität $C_{\rm a}^* = \sum_{i=1}^4 C_{\rm ai} = 4C_{\rm a}$ beschrieben werden kann, ist die auf $t = t_0$ extrapolierte Amplitude $\beta_4 := \beta_{41} + \beta_{42} + \beta_{43} + \beta_{44}$ des Signalabfalls der Punktantwortfunktion $p_4(t)$ hierbei in erster Näherung durch

$$\beta_4 \approx \frac{C_{\rm s}}{C_{\rm s} + 4C_{\rm a}} \tag{6.15}$$

gegeben.

	eta_{ji}				$ au_{\mathrm{a}i}$	$ au_{ m b}$
	j = 1	j = 2	j = 3	j = 4		
i = 1	0,959	0,063	0,029	0,014	$3,6\mu { m s}$	
i = 2	0,170	0,819	0,099	0,036	$10,3\mu \mathrm{s}$	1 15 mg
i = 3	0,078	$0,\!154$	$0,\!641$	$0,\!058$	$19,1\mu s$	4,40 ms
i = 4	0,050	0,065	$0,\!105$	$0,\!559$	$36,4\mu\mathrm{s}$	

Tab. 6.3: Numerisch berechnete Werte für die Amplituden β_{ji} und die Zeitkonstanten τ_{ai} und τ_b der in Gleichung 6.8 definierten Funktionen $p_{ji}(t)$, aus denen sich die in den Gleichungen 6.9 bis 6.12 gegebenen Punktantwortfunktionen $p_j(t)$ der Energieänderung im Sensor auf einen Energieeintrag ΔE in Absorber j zusammensetzen.

In Tabelle 6.3 sind die aus den numerischen Berechnungen resultierenden Werte für β_{ji} , τ_{ai} und τ_b zusammengefasst. Abbildung 6.8 zeigt die daraus berechneten Verläufe des Temperaturunterschieds zwischen Sensor und Wärmebad infolge von Energieeinträgen mit einer Energie von $\Delta E = 6$ keV in den vier Absorbern der Hydra. Wie erwartet sind hier für Energieeinträge in die vier Absorber verschiedene Signalformen mit unterschiedlich schnellen Signalanstiegszeiten zu sehen, deren Verlauf nach einer gewissen Zeit von einem langsamen Signalabfall mit einer für alle Signale gleich großen Abfallszeit dominiert wird. Zusätzlich zu diesem langsamen Signalabfall treten infolge von Energieeinträgen in Absorber 1, 2 und 3 noch schnellere Abklingverhalten auf, welche insbesondere für den Absorber mit der besten thermischen Verbindung zum Sensor (Absorber 1) gut zu erkennen sind. Diese zusätzlichen schnelleren Abklingzeiten sind dabei, wie auch anhand der Gleichungen 6.9 bis 6.12 ersichtlich, auf die Thermalisierung des Sensors mit den einzelnen Absorbern der Hydra zurückzuführen.



Abb. 6.8: Numerisch berechnete zeitliche Verläufe des Temperaturunterschieds $\Delta T_{\rm s}(t)$ zwischen Sensor und Wärmebad infolge von Energieeinträgen mit einer Energie $\Delta E = 6 \text{ keV}$ in den vier Absorbern einer Hydra des Detektorarrays MOCCA in den ersten 0,2 ms (links) sowie in den ersten 2 ms (rechts) nach dem Energieeintrag.

6.3 Herstellung

Das im Rahmen dieser Arbeit entwickelte, hergestellte und charakterisierte Detektorarray MOCCA besteht, ebenso wie die kleineren MOCCAcino-Detektorarrays, aus 11 Schichten von planaren Strukturen aus verschiedenen Materialien mit Schichtdicken zwischen wenigen Nanometern und einigen Mikrometern. Die Herstellung dieser Strukturen, deren kleinste Strukturbreiten eine Größe von wenigen Mikrometern besitzen, erfolgte durch Mikrostrukturierungsverfahren im institutseigenen Reinraum der Klasse ISO 5. Als Substrate für die Detektoren dienen etwa 350 µm dicke 3 Zoll-Siliziumwafer³ mit thermisch oxidierter Oberfläche. Die so erzeugte Siliziumdioxidschicht hat eine Dicke von 240 nm und dient einerseits der elektrischen Isolation zwischen dem Substrat und den darauf aufgebrachten Strukturen und andererseits als Atzstopp bei den in den Abschnitten 6.3.2 und 6.3.3 beschrieben Trockenätzprozessen. Da die Mikrostrukturierungsverfahren zur Herstellung der einzelnen Schichten metallischer magnetischer Kalorimeter beispielsweise in [Bur08, Pab08, Pie08] ausführlich erläutert sind, werden die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Methoden zur Materialabscheidung und Strukturierung im Folgenden nur kurz zusammengefasst.

Die Materialien der einzelnen in Abschnitt 6.3.1 diskutierten Schichten wurden in den meisten Fällen durch Kathodenzerstäubung auf dem Substrat abgeschieden, wo-

³Si-Mat Deutschland, Silicon Materials, Viktor-Frankl-Straße 20, 86916 Kaufering

bei zwei verschiedene Anlagen verwendet wurden. Das Abscheiden von Schichten aus Niob, Siliziumdioxid, Gold, Silber-Erbium (Ag:Er) und Aluminium erfolgte hierbei jeweils in einer Ultrahochvakuum-Sputteranlage⁴ der Firma DCA Instruments innerhalb des Reinraums, die einen Basisdruck von $2 \cdot 10^{-9}$ mbar erreicht. Die Schichten aus Gold-Palladium mit Haftvermittler und Schutzschicht aus Titan wurden außerhalb des Reinraums in einer Hochvakuum-Sputteranlage⁵ der Firma Alcatel mit einem Basisdruck von $5 \cdot 10^{-7}$ mbar aufgebracht, ebenso wie die Isolationsschichten aus Siliziumdioxid mit darunterliegendem Haftvermittler aus Niob. Vor jeder Kathodenzerstäubung wurde eine Waferreinigung mittels Argonionenätzung durchgeführt, um mögliche Verunreinigungen wie beispielsweise Lack- oder Lösemittelrückstände von der zu beschichtenden Oberfläche zu entfernen. Während die Schleuse der Ultrahochvakuum-Sputteranlage (DCA), deren Basisdruck etwa 10^{-6} mbar beträgt, zu diesem Zweck mit einer Ionenstrahlkanone ausgestattet ist, wurde vor dem Aufbringen von Schichten in der Hochvakuum-Sputteranlage (Alcatel) auch die Waferreinigung mittels Sputterätzen ("Rücksputtern") [Trä15] direkt in der Anlage vorgenommen. Zur Herstellung einer Niob(V)-oxid-Schicht auf den Niobstrukturen wurde zudem ein Anodisierungsprozess verwendet, der in Abschnitt 6.3.2 beschrieben wird. Alle dickeren Goldstrukturen mit Schichtdicken in der Größenordnung weniger Mikrometer wurden, wie in den Abschnitten 6.3.3 und 6.3.4 beschrieben wird, durch einen Galvanisierungsprozess aufgebracht. Eine allgemeinere Erläuterung dieses Vorgangs findet sich beispielsweise in [Pie08]. Die galvanisch abgeschiedenen Goldschichten bieten zusätzlich zu dem geringeren Materialverlust während der Herstellung gegenüber durch Kathodenzerstäubung aufgebrachten Goldschichten den Vorteil einer besseren Wärmeleitfähigkeit bei den geringen Betriebstemperaturen magnetischer Kalorimeter. Da bei tiefen Temperaturen $T \lesssim 4 \,\mathrm{K}$ kein Beitrag der Elektron-Phonon-Streuung zum elektrischen Widerstand mehr zu erwarten ist, lassen sich die elektrische Leitfähigkeit und der elektronische Beitrag zur Wärmeleitfähigkeit anhand des Verhältnisses des Raumtemperaturwiderstands zu dem bei einer Temperatur von etwa 4 K gemessenen Restwiderstand berechnen. Während das so definierte Restwiderstandsverhältnis der durch Kathodenzerstäubung aufgebrachten Goldschichten etwa RRR = 2 betrug, wurde für die im Rahmen dieser Arbeit galvanisch abgeschiedenen Goldstrukturen ein etwa vier- bis 20-mal so großer Wert erzielt⁶. Die damit verbundene höhere Wärmeleitfähigkeit resultiert in einer schnelleren Thermalisierung der galvanisch aufgebrachten Goldstrukturen.

⁴DCA Instruments Oy, Vajossuonkatu 8, 20360 Turku, Finnland

⁵Alcatel SCM601, Alcatel Vacuum Technology France SAS, inzwischen Teil von Pfeiffer Vacuum SAS, 98 Avenue de Brogny, 74009 Annecy, Frankreich

⁶Mit diesem Galvanisierungsprozess wurden Restwiderstandsverhältnisse zwischen RRR = 7 und RRR = 45 erzielt, die stark von der aktuellen Zusammensetzung des verwendeten Elektrolyten abhängen. Typische Werte liegen hierbei zwischen RRR = 15 und RRR = 20.

Zur Strukturierung der einzelnen aufgebrachten Schichten wurden jeweils Fotolacke verwendet, die berührungsfrei mit einem direktschreibenden UV-Laser-Lithografen⁷ strukturiert wurden. Hierbei wurden einerseits Lift-Off-Prozesse verwendet, bei denen zunächst ein Fotolack auf dem Substrat aufgetragen und strukturiert wird, über dem dann das gewünschte Material abgeschieden wird. Beim anschließenden Entfernen des Lackes mit Lösemittel wird das auf dem Lack abgeschiedene Material mit abgelöst und zurück bleibt eine Materialschicht mit der inversen Struktur des zuvor strukturierten Fotolackes. Des Weiteren wurden auch Ätzprozesse zur Strukturierung einiger Schichten verwendet, bei denen zuerst das gewünschte Material und anschließend der Fotolack aufgetragen wird. Nach dem Strukturieren des Fotolackes wird das freiliegende Material dann entweder in einem Trockenätzprozess in einer ICP-RIE⁸-Plasmaätzanlage⁹ oder in einem nasschemischen Ätzprozess entfernt. Zuletzt werden die verwendeten Fotolacke jeweils mit Lösemitteln oder speziellen Fotolackstrippern zum rückstandsfreien Lösen von sogar stark quervernetzten Fotolacken entfernt. Eine ausführliche Erläuterung der verwendeten Prozesse der Fotolithografie findet sich beispielsweise in [Rin17].

6.3.1 Übersicht: Herstellung der einzelnen Schichten des Detektors

In Tabelle 6.4 sind die einzelnen Schichten des im Rahmen dieser Arbeit hergestellten Detektorarrays MOCCA zusammengefasst. Die hier verwendete Nummerierung der Schichten erfolgt dabei in der Reihenfolge der Herstellung und somit von der Substratoberfläche beginnend von unten nach oben. Ausnahmen bilden hier nur die Schichten, die auf der Substratrückseite aufgebracht werden. Für jede Schicht sind zudem die Schichtdicke und das Material sowie die Methoden der Materialabscheidung und Strukturierung und der zur Strukturierung verwendete Fotolack¹⁰ angegeben. Für ausgewählte Schichten sind in Abbildung 6.9 darüber hinaus mit Hilfe eines Lichtmikroskops aufgenommene Fotografien der Strukturen von einer der 1.024 Hydren des Detektorarrays nach der Fertigstellung der jeweiligen Schicht gezeigt.

Die ersten sechs Schichten des Detektors bilden die Detektorleitungen, die sich zusammensetzen aus den mäanderförmigen Detektionsspulen und den Verbindungsleitungen zwischen diesen, den Dauerstromschaltern und den Leitungen zur in Unterkapitel 4.2 beschriebenen Präparation des felderzeugenden Dauerstroms sowie allen Detektoranschlüssen an den Rändern des Detektorchips. Sie bestehen aus zwei supraleitenden Schichten aus Niobleitungen, die durch drei Isolationsschichten elektrisch

⁷MLA150, Heidelberg Instruments Mikrotechnik GmbH, Tullastrasse 2, 69126 Heidelberg

⁸ICP-RIE ist ein Akronym für den englischen Begriff Inductively Coupled Plasma - Reactive Ion Etching.

⁹SI 500 C, SENTECH Instruments GmbH, Schwarzschildstraße 2, 12489 Berlin

¹⁰MicroChemicals GmbH, Nicolaus-Otto-Straße 39, 89079 Ulm

Nr.	Strukturen	Material	Materialab- scheidung	Fotolack AZ	Struktu- rierung
1	Detektionsspulen, untere Leitungs- bahnen	$250\mathrm{nm}$ Nb	Sputtern	5214 E	ICP
2	Isolationsschicht	50–60 nm Nb_2O_5	Anodisieren	5214 E	_
3	Isolationsschicht	$175\mathrm{nm}\mathrm{SiO}_{\mathrm{x}}$	Sputtern	5214 E	Lift-Off
4	Isolationsschicht	$175\mathrm{nm}\mathrm{SiO}_{\mathrm{x}}$	Sputtern	5214 E	Lift-Off
5	Heizerwiderstände	6 nm Ti 160 nm AuPd 6 nm Ti	Sputtern	5214 E	Lift-Off
6	Kontaktierungen, obere Leitungs- bahnen	$600\mathrm{nm}$ Nb	Sputtern	$5214 \mathrm{E}$	Lift-Off
7	Thermalisierungs- flächen	$\sim 0.6 \mathrm{nm}$ Nb $300 \mathrm{nm}$ Au	Sputtern	5214 E	Lift-Off
8	Thermalisierungs- schicht auf Waferrückseite	$\sim 1.8 \text{ nm Nb}$ 800 nm <u>Ag</u> :Er 200 nm Au	Sputtern	_	_
9	Isolationsschicht	$\sim 2,5\mathrm{nm}~\mathrm{Nb}$ $350\mathrm{nm}~\mathrm{SiO_x}$	Sputtern	5214 E	Lift-Off
10	Sensoren mit Stegen	$\sim 1 \mathrm{nm} \mathrm{Nb}$ $1,5 \mu\mathrm{m} \underline{\mathrm{Ag}}:\mathrm{Er}$	Sputtern	nLof 2070	Lift-Off
11	Absorber auf Stämmen	200 nm Au 3 µm Au 200–500 nm Al	Sputtern Galvanik Sputtern	6632 nLof 2070 5214 E	Siehe Abschnitt 6.3.4

Tab. 6.4: Übersicht über die Strukturen und Materialien der einzelnen Schichten des im Rahmen dieser Arbeit hergestellten und charakterisierten MOCCA-Detektorarrays. Zusätzlich sind für jede Schicht die Methoden zur Materialabscheidung und Strukturierung sowie der dabei verwendete Fotolack angegeben. Für die auch als Sputterdeposition bezeichnete Kathodenzerstäubung wird hier die Kurzform Sputtern verwendet. Für die Strukturierung mittels Trockenätzprozess in der Plasmaätzanlage ist das Kürzel ICP angegeben.



Abb. 6.9: Lichtmikroskopaufnahmen der Strukturen einer Hydra des Detektorarrays MOCCA nach Fertigstellung von a) den ersten 8, b) den ersten 10 und c) allen Detektorschichten. Die Aufgabe der Kontaktierungsleitungen, deren Abdruck in a) und b) zu sehen ist, wird in Abschnitt 6.3.2 erläutert. In c) sind die großen Kristallite der galvanisch abgeschiedenen Absorber erkennbar, welche unter anderem für das hohe Restwiderstandsverhältnis verglichen mit durch Kathodenzerstäubung aufgebrachten Goldschichten verantwortlich sind. Der in c) dargestellte Maßstab gilt für alle drei Bilder.

voneinander getrennt sind. Um elektrische Kontakte zwischen den beiden Leitungsschichten herzustellen sind die Isolationsschichten dabei an einigen Stellen mit einer Aussparung versehen. Zwischen den Isolationsschichten und der zweiten Leitungsschicht befinden sich zudem die Heizerwiderstände aus Gold-Palladium, die somit elektrisch von den darunterliegenden Leitungen isoliert sind und durch die obere Leitungsschicht kontaktiert werden. Die Herstellung dieser Schichten wird in Abschnitt 6.3.2 beschrieben. Nach den Detektionsspulen werden in den Schichten 7 und 8 die Thermalisierungsstrukturen des Detektors hergestellt, die aus den Thermalisierungsflächen aus Gold mit schwachen thermischen Verbindungen zur Kontaktierung der Sensoren und einer auf der Waferrückseite aufgebrachten vollflächigen Schicht aus Silber-Erbium (<u>Ag</u>:Er) und Gold bestehen. In der nächsten Detektorgeneration sollen die Thermalisierungsflächen durch das Substrat hindurch thermisch mit dieser Thermalisierungsschicht auf der Waferrückseite verbunden werden. Die thermische Verbindung wird dabei jeweils durch ein Loch durch das Substrat und eine Goldschicht auf den Seitenwänden des Loches hergestellt, deren Herstellung, ebenso wie die Aufgabe der Thermalisierungsschicht in Abschnitt 6.3.3 erläutert wird.

Zur elektrischen Isolation der Thermalisierungsflächen und der in diesem Fabrikationsschritt noch freiliegenden Verbindungsleitungen werden in der darüberliegenden Schicht zunächst eine etwa 2,5 nm dicke Niobschicht und anschließend in mehreren Schritten eine insgesamt 350 nm dicke Isolationsschicht aus Siliziumdioxid (SiO_x) durch Kathodenzerstäubung aufgebracht und mittels eines Lift-Off-Prozesses strukturiert. Durch diese zusätzliche Isolationsschicht können mögliche Kurzschlüsse zwischen elektrisch leitenden Strukturen des Detektors aufgrund von potentiell herabhängenden Absorbern verhindert werden. Die darunterliegende Niobschicht fungiert hierbei als Haftvermittler zwischen der Siliziumdioxidschicht und den relativ großflächigen Thermalisierungsflächen aus Gold. Die Isolationsschicht wird dabei an den Bereichen ausgespart, an denen im darauffolgenden Prozesschritt Sensormaterial abgeschieden wird, um einen möglichst geringen Abstand der Sensoren zu den darunterliegenden, bereits durch die Schichten 2 bis 4 elektrisch isolierten, mäanderförmigen Detektionsspulen zu erreichen.

Anschließend werden in der 10. Schicht des Detektors die Sensoren mitsamt den Stegen hergestellt. Hierzu werden zunächst eine als Haftvermittler dienende, etwa 1 nm dicke Niobschicht und anschließend eine 1,5 μ m dicke Schicht aus der in Unterkapitel 3.2 diskutierten Legierung Silber-Erbium (Ag:Er) durch Kathodenzerstäubung abgeschieden und durch einen Lift-Off-Prozess strukturiert. An der dabei abgelösten überschüssigen Ag:Er-Folie wurden mit einem SQUID-Magnetometer¹¹ Magnetisierungsmessungen in einem Magnetfeld von 1T bei Temperaturen zwischen 2K und 300 K durchgeführt. Durch Anpassen des in Abschnitt 3.2.2 diskutierten Modells für Erbiumionen in Silber an den gemessenen Temperaturverlauf der Magnetisierung wurde die Erbium-Konzentration der Sensoren zu etwa 350 ppm bestimmt.

Die oberste und zuletzt hergestellte Schicht des Detektors bilden die $3 \,\mu\text{m}$ dicken Absorber aus Gold, die auf Stämmen auf den Stegen der Sensoren stehen. Infolge des in Abschnitt 6.3.4 erläuterten Herstellungsprozesses der Absorber bleibt eine etwa 200 nm bis 500 nm dicke Aluminiumschicht auf diesen zurück, die optional in

¹¹QD MPMSR XL, Quantum Design Inc, 10307 Pacific Center Ct, San Diego, CA 92121, USA

einem nasschemischen Ätzprozess entfernt werden kann. Da die in den Unterkapiteln 5.2 und 5.4 diskutierten Simulationen und Messungen gezeigt haben, dass eine solche Aluminiumschicht auf Absorbern aus Gold bei der Detektion atomarer und molekularer Teilchen insbesondere die Rückstreuung der zu detektierenden Teilchen signifikant reduzieren kann, wurde diese bei dem im Rahmen dieser Arbeit hergestellten und charakterisierten MOCCA-Detektorchip allerdings nicht entfernt. Darüber hinaus wurde in Unterkapitel 5.4 bei der Detektion massiver Teilchen mit metallischen magnetischen Kalorimetern festgestellt, dass eine Aluminiumschicht auf den Absorbern aufgrund ihres supraleitenden Verhaltens eine zusätzliche Verbreiterung und Verschiebung der gemessenen Linien im Energiespektrum verursachen kann. Wie in Abschnitt 5.4.2 erläutert wurde, soll daher in einer späteren Detektorgeneration anstelle von reinem Aluminium eine bei den Betriebstemperaturen des Detektors normalleitende Aluminium-Mangan-Legierung verwendet werden, um diesen unerwünschten Effekt zu vermeiden.

Nach der Fertigstellung aller Schichten werden die Wafer mit einer Wafersäge¹² in einzelne Detektorchips gesägt, welche anschließend mit Lösemittel gereinigt werden. Auf einem 3 Zoll-Wafer können hierbei entweder ein einziger MOCCA-Detektorchip oder 12 kleine MOCCAcino-Detektorchips hergestellt werden.

6.3.2 Herstellung der Detektorleitungen

Wie in Abschnitt 6.1.1 erläutert wurde, werden zur Auslesung des Detektorarrays MOCCA 32 Zeilen und 32 Spalten mit jeweils 32 in Serie geschalteten Detektionsspulen verwendet. Die Leitungen der Zeilen und Spalten, die aus den Detektionsspulen und den dazwischenliegenden Verbindungsleitungen bestehen und sich insgesamt über eine Länge von etwa 14m erstrecken, kreuzen sich dabei mehrfach. An den Kreuzungspunkten sind die Leitungen der Detektionsspulen daher, ebenso wie die in Abschnitt 6.1.1 beschriebenen Verbindungsleitungen, in zwei Schichten von Leitungen ausgeführt. Um Kurzschlüsse zwischen den beiden Leitungsschichten zu vermeiden, die insbesondere an den Kanten der unteren Leitungen auftreten können, ist eine gute elektrische Isolation zwischen den beiden Leitungsschichten essenziell. Im Gegensatz zu anderen in der Arbeitsgruppe hergestellten Detektoren [Sch12, Pie12b, Hen17] gibt es darüber hinaus zwischen den beiden Leitungsschichten des Detektorarrays MOCCA insgesamt über 14.000 Kontaktstellen, durch die der felderzeugende Dauerstrom mit einer Stromstärke von etwa $50 \,\mathrm{mA}$ bis $100 \,\mathrm{mA}$ fließen muss. Genau wie die Detektorleitungen müssen somit auch diese Kontaktstellen supraleitend sein und einen ausreichend hohen kritischen Strom haben, um den Dauerstrom zu tragen. Die Herstellung der in den ersten sechs Detektorschichten

¹²DAD-2H/6, DISCO HI-TEC EUROPE GmbH, Liebigstraße 8, 85551 Kirchheim bei München

strukturierten Detektorleitungen, die in insgesamt 22 Prozessschritten¹³ erfolgt, stellt somit im Fall von MOCCA eine besondere Herausforderung dar und wird daher im Folgenden erläutert. Um sicherzustellen, dass keine Unterbrechungen von Leitungen sowie Kurzschlüsse oder fehlende Kontakte zwischen den beiden Leitungsschichten durch Fotolackrückstände oder andere Verunreinigungen während der Fabrikation auftreten, wurde im Rahmen dieser Arbeit dabei nach jedem Prozessschritt eine visuelle Qualitätskontrolle jeder einzelnen Detektionsspule durchgeführt.

In Abbildung 6.10 sind links einige Schritte zur Herstellung der Detektorleitungen schematisch dargestellt. Gezeigt ist hierbei jeweils ein Schnitt durch den Wafer in der Mitte der Detektionsspulen entlang der in Abbildung 6.10a) eingezeichneten Schnittebene. Rechts daneben sind jeweils lichtmikroskopische Fotografien der Detektionsspulen nach Beendigung der links dargestellten Prozessschritte zu sehen.

Die Herstellung der ersten Schicht von Leitungen ist in Abbildung 6.10a) gezeigt. Hierbei wird zunächst eine 250 nm dicke Niobschicht durch Kathodenzerstäubung vollflächig auf der mittels Argonionenätzung gereinigten Waferoberfläche aufgebracht. Diese wird anschließend mit Hilfe einer Fotolackmaske in der ICP-RIE-Plasmaätzanlage durch einen reaktiven Ionenätzprozess strukturiert. Als Prozessgas wird hierbei Schwefelhexafluorid (SF₆) verwendet. Bei einem Prozessgasdruck von p = 2 Pa und einer Temperatur von T = 5 °C wird durch ein hochfrequentes Wechselfeld mit einer Leistung von $P_{\rm ICP} = 100$ W ein Plasma erzeugt, in dem Fluorradikale entstehenden, die mit dem freiliegenden Niob zu flüchtigen Niobfluoridverbindungen (NbF_x) reagieren. Um hierbei einen anisotropen Materialabtrag zu erzielen, werden die im Plasma entstehenden Ionen zudem durch eine zweites hochfrequentes Wechselfeld mit einer Leistung von $P_{\rm b} = 50$ W in Richtung der Substratoberfläche beschleunigt. Nach dem Ablösen des Fotolackes erscheinen die in Abbildung 6.10a) rechts gezeigten fertigen Strukturen der ersten Schicht von Niobleitungen cremeweiß.

Zur elektrischen Isolation wird die erste Leitungsschicht anschließend, wie in Abbildung 6.10b) gezeigt, mit drei Isolationsschichten bedeckt. Die erste dieser Isolationsschichten wird dabei durch einen Anodisierungsprozess hergestellt, bei dem eine Lösung aus Ethylenglycol ($C_2H_6O_2$), Wasser und Ammoniumpentaborat ($NH_4B_5O_8$) im Mischungsverhältnis 25:19:4 verwendet wird. Bei diesem Prozess werden alle freiliegenden, elektrisch kontaktierten Oberflächen der Niobstrukturen durch Anlegen einer Spannung von 25 V gegenüber einer Platinelektrode zu Niob(V)-oxid (Nb_2O_5) oxidiert. Gegenüber dem Aufbringen einer Isolationsschicht durch Kathodenzerstäubung bietet der Anodisierungsprozess den Vorteil einer vollständigen Bedeckung der Seitenwände der freiliegenden Strukturen selbst bei geringen Schichtdicken. Da die elektrische Kontaktierung zwischen den mäanderförmigen Detektionsspulen und den

¹³Das Aufbringen und Strukturieren von Fotolack wird hier als ein einziger Prozessschritt definiert, ebenso wie das in situ Auftragen mehrerer Schichten durch Kathodenzerstäubung.



Abb. 6.10: Herstellung der Detektorleitungen bestehend aus a) einer ersten Schicht von Niobleitungen, b) drei Isolationsschichten und c) einer zweiten Schicht von Niobleitungen. Links sind dabei jeweils ausgewählte Prozessschritte anhand einer schematischen Darstellung des Querschnitts durch den Wafer entlang der in a) eingezeichneten Schnittebene gezeigt. Rechts daneben finden sich Lichtmikroskopaufnahmen der Detektionsspulen nach Beendigung der links gezeigten Prozessschritte. Die Herstellung der noch vor der zweiten Niobschicht, also vor c), aufgebrachten Heizerwiderstände ist hier nicht gezeigt.

Verbindungsleitungen eigentlich erst durch die zweite Leitungsschicht erfolgt, sind in der ersten Schicht von Niobleitungen bereits zusätzliche Kontaktierungsleitungen für den Anodisierungsprozess implementiert, die in einem späteren Prozessschritt wieder entfernt werden. Um das Entfernen der Kontaktierungsleitungen nicht zu erschweren, werden die Isolationsschichten über diesen ausgespart. Während des Anodisierungsprozesses sind sie daher mit einem zuvor strukturierten Fotolack bedeckt, ebenso wie die in Abbildung 6.5 gezeigten Anschlüsse für die SQUID-Einkoppelspulen und die Feld- und Heizerleitungen, sowie die Stellen, an denen elektrische Kontakte zwischen der ersten und der zweiten Schicht von Niobleitungen vorgesehen sind (vgl. Abbildung 6.10b), Schritt b1). Da bei den in [Kro81] und [Yin14] diskutierten Anodisierungsprozessen Elektrolyte mit ähnlicher Zusammensetzung verwendet wurden wie im Rahmen dieser Arbeit, lässt sich die Dicke der so entstehenden elektrisch isolierenden Niob(V)-oxidschicht anhand der dort ermittelten Abhängigkeit der Schichtdicke von der verwendeten Spannung abschätzen. Bei der im Rahmen dieser Arbeit gewählten Spannung von 25 V ist demnach eine Schichtdicke von 50-60 nm zu erwarten. Darüber hinaus bietet auch die Farbe der anodisierten Niobstrukturen einen Hinweis auf die Dicke der Oxidschicht. Die in [Wu11] und [Kom16] beobachteten Farben bestätigen hierbei die erwartete Schichtdicke. Zur zusätzlichen Isolation wird die erste Schicht von Niobleitungen anschließend mit einer insgesamt 350 nm dicken Schicht aus Siliziumdioxid (SiO_x) bedeckt, die ebenfalls über den Kontaktierungsleitungen und den elektrisch zu kontaktierenden Stellen jeweils mit einer Aussparung versehen ist. Würde diese Isolationsschicht in einem einzigen Lift-Off-Prozess gefertigt, so ergäben sich an den Aussparungen folglich 350 nm hohe Stufen und steile, hohe Grate, über die später die Niobleitungen aus der oberen Schicht verlaufen würden. Die reduzierte Schichtdicke der Leitungen an diesen steilen Graten könnte dann in einem verringerten kritischen Strom resultieren. Um diesen Effekt zu vermindern, wird die Isolationsschicht stattdessen mit zwei kleineren Stufen strukturiert. Hierzu werden zwei 175 nm dicke Siliziumdioxidschichten nacheinander, wie in den Schritten b2-b4 in Abbildung 6.10b) gezeigt, jeweils durch Kathodenzerstäubung aufgebracht und mittels eines Lift-Off-Prozesses strukturiert. Die in Abbildung 6.10b) rechts gezeigten Niobstrukturen, die durch alle drei Isolationsschichten bedeckt sind, erscheinen hier grün, während die nicht isolierten Niobstrukturen cremeweiß und die mit Siliziumdioxid bedeckten Bereiche des Substrats rosa erscheinen.

In den nächsten, in Abbildung 6.10 nicht gezeigten Fabrikationsschritten werden die Heizerwiderstände der Dauerstromschalter auf der isolierten ersten Schicht von Niobleitungen aufgebracht. Dazu werden zunächst eine 6 nm dicke, als Haftvermittler dienende Titanschicht, dann eine 160 nm dicke Schicht aus einer Legierung aus Gold und Palladium (AuPd) und zuletzt eine weitere 6 nm dicke Titanschicht durch Kathodenzerstäubung aufgebracht und mittels eines Lift-Off-Prozesses strukturiert. Die obere Titanschicht dient dabei zum Schutz der Heizerwiderstände während den jeweils vor dem Aufbringen der folgenden Schichten durchgeführten Waferreinigungen durch Argonionenätzung.

Die anschließende Herstellung der oberen Schicht von Niobleitungen ist in Abbildung 6.10c) dargestellt. Die 600 nm dicke Niobschicht wird dabei durch Kathodenzerstäubung aufgebracht und mittels eines Lift-Off-Prozesses strukturiert. In den rechts gezeigten Lichtmikroskopaufnahmen erscheint die zweite Schicht von Niobleitungen genau wie die nicht isolierten Strukturen der ersten Schicht cremeweiß.

Zuletzt werden die Kontaktierungsleitungen für den Anodisierungsprozess durch einen weiteren Trockenätzprozess mit SF₆ (p = 2 Pa, T = 5 °C, $P_{ICP} = 100$ W, $P_b = 50$ W) in der ICP-RIE-Plasmaätzanlage entfernt. Die Entfernung dieser Leitungen erfolgt dabei entsprechend der in Abbildung 6.10a) gezeigten Prozessschritte.



Abbildung 6.11 zeigt lichtmikroskopische Fotografien einiger Strukturen der Detek-

Abb. 6.11: Lichtmikroskopaufnahmen von a), b) dem Dauerstromschalter zur Präparation des felderzeugenden Dauerstroms in zwei Spalten von Detektionsspulen und c), d) den beiden vierteiligen Detektionsspulen zur Auslesung eines Sensors nach Fertigstellung der ersten sechs Detektorschichten. Rechts sind dabei jeweils vergrößerte Ausschnitte aus den links gezeigten Bildern zu sehen.

torleitungen nach deren Fertigstellung. In den Abbildungen 6.11a) und b) ist dabei einer der 32 Dauerstromschalter zur Präparation des felderzeugenden Dauerstroms gezeigt. Zu sehen sind hier unter Anderem der Heizerwiderstand des Dauerstromschalters, der auf der isolierten ersten Schicht von Niobleitungen liegt, welche mit den Feldleitungen verbunden ist, sowie die Heizerleitungen, die den Heizerwiderstand über die zweite Niobschicht kontaktieren. Abbildung 6.11c) zeigt die beiden unabhängigen vierteiligen Detektionsspulen, über denen später der Sensor aufgebracht wird. Wie zu sehen ist, verbleiben auch nach vollständiger Entfernung der Kontaktierungsleitungen für den Anodisierungsprozess noch Spuren von diesen auf dem darunterliegenden Substrat, da die thermische Oxidschicht des Substrates bei dem verwendeten Trockenätzprozess ebenfalls leicht angegriffen wird. Der mittlere Bereich der Detektionsspulen ist in Abbildung 6.11d) vergrößert dargestellt. Wie bereits in Abschnitt 6.1.1 erläutert wurde, sind die drei mittleren Leitungen der Zeilenspule in der zweiten Schicht von Niobleitungen strukturiert.

6.3.3 Herstellung der Thermalisierungsstrukturen

Wie in Abschnitt 6.1.4 erläutert, sind die Sensoren des Detektorarrays MOCCA zur Abführung der durch einen Energieeintrag eingebrachten Wärme jeweils über eine schwache thermische Verbindung mit einer Thermalisierungsfläche aus Gold verbunden. Aus dieser soll die eingebrachte Wärme dann in eine auf der Rückseite des Detektorsubstrats aufgebrachte Thermalisierungsschicht aus Silber-Erbium (<u>Ag</u>:Er) und Gold und schließlich in die Detektorhalterung aus Kupfer abgeführt werden.

In der nächsten Detektorgeneration soll zu diesem Zweck unter jeder Thermalisierungsfläche ein Loch durch das Siliziumsubstrat geätzt werden, auf dessen Seitenwand eine Goldschicht galvanisch abgeschieden werden soll. Diese Goldschicht soll dann einen so guten thermischen Kontakt zwischen den Thermalisierungsflächen und der anschließend auf der Waferrückseite aufgebrachten Thermalisierungsschicht herstellen, dass die Signalabklingzeit des Detektors nur durch die Wärmeleitung innerhalb der schwachen thermischen Verbindung zwischen Sensor und Thermalisierungsfläche dominiert wird. Da nach der Fertigstellung dieser Thermalisierungsstrukturen noch weitere Schichten hergestellt werden, wird für die darauffolgenden Prozessschritte eine intakte Goldschicht über den Löchern benötigt, durch die die Waferoberfläche geschlossen und geglättet wird. Während die Herstellung durchgehender Löcher durch das Detektorsubstrat bereits in [Hen17] und [Sch19] etabliert wurde, befand sich der Prozess zur Herstellung der Goldschichten auf den Loch-Seitenwänden und über den Löchern zum Fabrikationszeitpunkt des im Rahmen dieser Arbeit hergestellten und charakterisierten MOCCA-Detektorchips noch in der Entwicklung. Bei diesem Detektorchip wurde daher auf das Durchätzen und Galvanisieren der Löcher verzichtet. Die Wärmeabfuhr aus den Thermalisierungsflächen ist somit durch die



Abb. 6.12: Schematische Darstellung der einzelnen Prozessschritte zur Herstellung der Thermalisierungsstrukturen. Gezeigt ist jeweils ein Querschnitt durch den Wafer. Die einzelnen Schritte werden im Text näher erläutert.

schlechte Wärmeleitfähigkeit zwischen den Thermalisierungsflächen und dem Siliziumsubstrat begrenzt, woraus, wie in Abschnitt 6.5.4 diskutiert wird, eine zusätzliche Abklingzeit der gemessenen Detektorsignale resultiert. Inzwischen wurde im Rahmen dieser Arbeit allerdings ein geeigneter Prozess zur Herstellung dieser Thermalisierungsstrukturen entwickelt und mehrfach erfolgreich getestet.

In Abbildung 6.12 sind ausgewählte Schritte dieses Herstellungsprozesses anhand eines schematisch dargestellten Querschnitts durch den Wafer gezeigt. Wie im Folgenden erläutert wird, erfolgt die Herstellung der Löcher dabei durch einen Trockenätzprozess bei einer Temperatur von -90 °C. Da eine aus Fotolack bestehende Ätzmaske bei derartig tiefen Temperaturen Risse bilden würde, wird hierbei stattdessen eine Hartmaske aus Aluminium verwendet.

In den ersten Prozessschritten wird zunächst diese Aluminium-Hartmaske auf der Rückseite des Wafers hergestellt. Um dabei die Vorderseite des Wafers mit den zuvor hergestellten Strukturen zu schützen, wird diese zunächst mit Fotolack bedeckt. Anschließend wird auf der Rückseite des Wafers eine 1 μ m dicke Aluminiumschicht durch Kathodenzerstäubung aufgebracht und wie in den Abbildungen 6.12a) und b) gezeigt mit Hilfe einer Fotolackmaske in einem nasschemischen Ätzprozess strukturiert, wobei eine Ätzlösung aus Phosphorsäure (H₃PO₄), Salpetersäure (HNO₃), Essigsäure (CH₃COOH) und Wasser im Mischungsverhältnis 16:1:1:2 verwendet wird.

Zur Herstellung der Thermalisierungsflächen wird anschließend Fotolack auf der Vorderseite des Wafers aufgebracht und so strukturiert, dass die Stellen freigelegt werden, an denen sich später Thermalisierungsflächen befinden sollen. Auf dem strukturierten Fotolack werden zunächst eine etwa 0,6 nm dicke, als Haftvermittler dienende Niobschicht und anschließend eine 300 nm dicke Goldschicht durch Kathodenzerstäubung aufgebracht (vgl. Abbildung 6.12c)).

In den nächsten Prozessschritten werden die Löcher mit einem Durchmesser von jeweils 300 µm in drei aufeinanderfolgenden Trockenätzprozessen in der ICP-RIE-Plasmaätzanlage von der Rückseite beginnend durch den Wafer geätzt. Hierbei wird zunächst das freiliegende, 240 nm dicke thermische Siliziumdioxid auf der Waferrückseite unter Verwendung von Trifluormethan (CHF_3) durch reaktives Ionenätzen bei einer Prozesstemperatur von T = 15 °C und einem Prozessgasdruck von p = 0.5 Pa entfernt. Zur Plasmaerzeugung und zur zusätzlichen Ionenbeschleunigung werden dabei Leistungen von $P_{\rm ICP} = 500 \,\rm W$ und $P_{\rm b} = 450 \,\rm W$ verwendet. Das darunterliegende, etwa 350 µm hohe Siliziumsubstrat wird anschließend reaktiv unter der Verwendung von Schwefelhexafluorid (SF₆) bei einem Prozessgasdruck von p = 1,5 Pa und einer ICP-Leistung von $P_{\rm ICP} = 500 \, {\rm W}$ geätzt. Das freiliegende Silizium reagiert bei diesem Prozess mit den im Plasma entstehenden Fluorradikalen zu gasförmigen Siliziumfluorid-Verbindungen (SiF_x) . Um dabei einen isotropen Materialabtrag und somit ein Unterätzen der Hartmaske zu verhindern, wird dem Prozessgas einerseits ein zusätzlicher Anteil von 7,2 % Sauerstoff beigemischt, wodurch sich auf den freiliegenden Siliziumoberflächen eine SiO_xF_y -Schicht bildet. Da diese bei der geringen Prozesstemperatur von T = -90 °C stabil ist [Mel05], dient sie hierbei der Passivierung der Seitenwände der entstehenden Löcher. Des Weiteren werden die Ionen des Prozessgases durch ein zusätzliches Wechselfeld mit der Leistung $P_{\rm b} = 12$ W in Richtung der Waferoberfläche beschleunigt, was zu einem Aufbrechen der Passivierungsschicht auf dem Boden der Löcher führt, sodass das darunterliegende Silizium freiliegt und weiter geätzt werden kann. Durch den somit gerichteten anisotropen Ätzvorgang lassen sich auf diese Weise Löcher mit geraden und steilen Seitenwänden herstellen, ohne dabei die Aluminium-Hartmaske zu unterätzen (vgl. Abbildung 6.12d)). Zuletzt wird das verbleibende thermische Siliziumdioxid der Wafervorderseite wie zuvor durch einen reaktiven Ionenätzprozess mit Trifluormethan ($p = 0.5 \,\mathrm{Pa}, T = 15 \,^{\circ}\mathrm{C}$, $P_{\rm ICP} = 500 \,{\rm W}, P_{\rm b} = 450 \,{\rm W}$) entfernt. Nach dem Ätzen der Löcher wird die hierbei als Hartmaske verwendete Aluminiumschicht in einem nasschemischen Atzvorgang entfernt.

In dem darauffolgenden Prozessschritt wird eine etwa 6 µm dicke Goldschicht galvanisch auf den Seitenwänden und den durch die Thermalisierungsflächen gebildeten Böden der Löcher abgeschieden. Der Galvanisierungsprozess wird hierbei in einem sulfidischen Gold-Elektrolyten¹⁴ bei einer konstanten Temperatur von 60 °C durchgeführt, wobei eine Anode aus platiniertem Titanstreckmetall¹⁵ verwendet wird. Die

 $^{^{14}}$ Techni
Gold 25 ES, Technic Deutschland GmbH, Baukauer Straße 125, 44653 Herne, Deutschland 15
Typ B, METAKEM GmbH, Achtzehnmorgenweg 3, 61250 Usingen

zu galvanisierende Fläche dient dabei als Kathode, an der mit einer Stromdichte von 1 mA/cm² Goldionen aus dem Elektrolyten reduziert und abgeschieden werden. Da dabei nur an den elektrisch kontaktierten Flächen Gold aufwächst, sollten alle zu galvanisierenden Strukturen elektrisch leitend oder durch eine dünne metallische Startschicht bedeckt sein und elektrischen Kontakt zueinander haben. Als Startschicht dient in diesem Fall die bei diesem Schritt noch vollflächige, 300 nm dicke Goldschicht auf der Vorderseite des Wafers, die alle Löcher elektrisch miteinander verbindet und elektrisch kontaktiert wird. Während des Galvanisierungsprozesses liegt die mit Gold beschichtete Wafervorderseite vollflächig auf einer Halterung aus Teflon auf, sodass Gold ausschließlich an der unter den Löchern freiliegenden Goldschicht sowie an den Loch-Seitenwänden aufwächst (vgl. Abbildung 6.12e)). Da die Rückseite des Wafers durch die thermische Siliziumdioxidschicht elektrisch isoliert ist, scheidet sich auch auf dieser kein Gold ab. Nach dem Galvanisierungsprozess wird der Fotolack zusammen mit dem daraufliegenden überschüssigen Gold durch Lösemittel entfernt.

Zuletzt werden eine etwa 1,8 nm dicke Haftvermittlerschicht aus Niob, eine 800 nm dicke Schicht Silber-Erbium (Ag:Er), sowie eine 200 nm dicke Goldschicht durch Kathodenzerstäubung vollflächig auf der Waferrückseite aufgebracht (vgl. Abbildung 6.12f)). Während die Ag:Er-Schicht dabei aufgrund ihrer hohen Wärmekapazität zusammen mit der Detektorhalterung aus Kupfer als Wärmebad des Detektors fungieren soll, schützt die darüberliegende Goldschicht das Ag:Er vor Oxidation. Die Goldschicht auf den Loch-Seitenwänden stellt eine gute thermische Verbindung zwischen diesen auf der Waferrückseite aufgebrachten Schichten und den Thermali-



Abb. 6.13: Fotografie der Rückseite eines Silizium-Chips, auf dem die Thermalisierungsstrukturen des Detektorarrays MOCCA mit den in Abbildung 6.12 gezeigten Prozessschritten hergestellt wurden (links), sowie Lichtmikroskopaufnahme eines der geätzten Löcher mit Goldschicht auf den Seitenwänden (rechts).

sierungsflächen auf der Wafervorderseite her.

Die Herstellung dieser Thermalisierungsstrukturen wurde inzwischen auf mehreren Wafern erfolgreich getestet. Abbildung 6.13 zeigt links eine Fotografie der Rückseite eines bereits zurechtgesägten Chips eines solchen Testwafers, bei dem alle beschriebenen Prozessschritte durchgeführt wurden. Rechts daneben ist zudem eine unter dem Lichtmikroskop aufgenommene Fotografie von einem der 256 durch das Substrat geätzten Löcher mit den mit Gold beschichteten Seitenwänden gezeigt. Wie auf diesen Bildern erkennbar ist, sind die Seitenwände der hergestellten Löcher vollständig mit Gold bedeckt. Im Rahmen dieser Arbeit konnte somit ein geeigneter Prozess entwickelt werden, um thermische Verbindungen zwischen der Vorder- und Rückseite des Detektorchips durch das Detektorsubstrat hindurch herzustellen.

6.3.4 Herstellung der Absorber

Die einzelnen Absorber des Detektorarrays MOCCA, die aus nur $3 \,\mu\text{m}$ dickem, galvanisch abgeschiedenem Gold bestehen und eine verhältnismäßig große Grundfläche von 698 $\mu\text{m} \cdot 698 \,\mu\text{m}$ haben, stehen jeweils auf nur vier Stämmen aus Gold, die sich, wie in Abbildung 6.4 gezeigt, nur an einer Absorberecke befinden. Voneinander getrennt sind sie durch $2 \,\mu\text{m}$ schmale Spalte.

Bislang erfolgte die Absorberherstellung anderer Detektoren aus der Arbeitsgruppe (siehe z.B. [Kam10, Sch12, Hen17]) durch galvanische Abscheidung von Gold in einzelne Lackmulden, wobei die Seitenwände dieser Mulden mindestens 5 μ m breit sein müssen, um eine ausreichende mechanische Stabilität gewährleisten zu können. Um im Fall von MOCCA allerdings den durch die vielen Spalte mit einer Gesamtlänge von fast 6 m entstehenden Verlust an Detektionsfläche gering zu halten, ist eine möglichst geringe Spaltbreite wünschenswert. Im Rahmen dieser Arbeit wurde daher ein neuer Prozess zur Absorberherstellung entwickelt, bei dem zunächst eine einzige große zusammenhängende Goldschicht galvanisch abgeschieden wird, die anschließend in einem Trockenätzprozess in einzelne Absorber unterteilt wird. Mit diesem Prozess konnte im Rahmen dieser Arbeit bei einer Absorberhöhe von 3 μ m eine Spaltbreite von nur 2 μ m und somit ein Verlust an Detektionsfläche von gerade einmal etwa 0,6 % erzielt werden.

Abbildung 6.14 zeigt die wichtigsten Schritte des entwickelten Herstellungsprozesses anhand eines schematisch dargestellten Querschnitts durch den Wafer. In Orange ist hier zudem einer der zuvor strukturierten Sensoren eingezeichnet. Die restlichen Schichten des Detektors, die alle vor der Herstellung der Absorber bereits aufgebracht sind, sind hier der Übersichtlichkeit wegen nicht gezeigt.


Abb. 6.14: Schematische Darstellung der einzelnen Prozessschritte zur Herstellung der Absorber. Gezeigt ist jeweils ein Querschnitt durch den Wafer, auf dem zusätzlich einer der Sensoren eingezeichnet ist. Die einzelnen Schritte werden im Text näher erläutert.

Zur Herstellung der Stämme wird zunächst Fotolack¹⁶ aufgebracht und so strukturiert, dass nur auf den Enden der Stege des Sensors kreisförmige Flächen mit einem Durchmesser von 15 µm frei bleiben (vgl. Abbildung 6.14a)). Durch diese freien Flächen werden die Grundflächen der Stämme und somit die Kontaktflächen zwischen den Absorbern und den Stegen definiert. Um eine Verrundung der steilen Kanten des so strukturierten Fotolackes zu bewirken, wird dieser anschließend über seinen Erweichungspunkt erwärmt, was zu einem thermischen Verfließen des Lackes führt. Die im nächsten Schritt durch Kathodenzerstäubung aufgebrachte, 200 nm dicke Goldschicht, die bei dem Galvanisierungsprozess der Absorber als Startschicht dient, bedeckt die so abgerundeten Kanten vollständig, sodass die gesamte Waferoberfläche durch eine vollflächige, komplett geschlossene Goldschicht bedeckt ist (vgl. Abbildung 6.14b)).

In den nächsten Prozessschritten werden dann die Absorber als eine einzige große zusammenhängende Fläche galvanisch in eine Fotolackmulde abgeschieden. Hierzu wird auf der Goldschicht zunächst durch Kathodenzerstäubung in situ eine 50 nm dicke Opferschicht aus Niob aufgebracht, über der dann die in Abbildung 6.14 nicht

 $^{^{16}\}mathrm{AZ}$ 6632, MicroChemicals GmbH, Nicolaus-Otto-Straße 39, 89079 Ulm

gezeigte Mulde aus Fotolack¹⁷ strukturiert wird. Anschließend wird eine Waferreinigung mittels Argonionenätzung durchgeführt, um mögliche Lack- oder Lösemittelrückstände von der zu galvanisierenden Fläche zu entfernen, die sonst zu einer verminderten Haftung der abgeschiedenen Goldschicht und einem Ablösen der Absorber führen könnten. Die Opferschicht verhindert bei diesem Schritt, dass Goldatome aus der darunterliegenden Goldschicht durch die Ioneneinwirkung abgetragen werden. Diese könnten sich sonst an den Seitenwänden der Lackmulde absetzen und dort eine elektrisch leitende Schicht bilden, an der in dem folgenden Galvanisierungsprozess ebenfalls Gold abgeschieden werden würde. Die sattdessen abgetragenen Niobatome aus der Opferschicht, die sich ebenfalls an den Seitenwänden der Lackmulde absetzen, werden im nächsten Prozessschritt zusammen mit der verbleibenden Niob-Opferschicht in der ICP-RIE-Plasmaätzanlage durch einen reaktiven Ionenätzprozess mit Schwefelhexafluorid (SF₆, p = 2 Pa, T = 5 °C, $P_{ICP} = 200$ W, $P_{\rm b} = 50 \,\mathrm{W}$) entfernt. Auf der somit unter der Lackmulde wieder freiliegenden Startschicht aus Gold wird dann eine $3\,\mu m$ dicke Goldschicht galvanisch abgeschieden (vgl. Abbildung 6.14c)), wobei ebenfalls der in Abschnitt 6.3.3 beschriebene Galvanisierungsprozess verwendet wird.

Die zusammenhängende Goldschicht wird anschließend in einem physikalischen Ätzprozess durch Ionenbeschuss in einzelne Absorber geteilt. Da eine aus Fotolack strukturierte Atzmaske dabei zu schnell abgetragen werden würde, wird stattdessen eine Hartmaske aus Aluminium verwendet, welches in diesem Prozess um ein Vielfaches langsamer abgetragen wird als Gold. Zur Herstellung dieser Aluminiumhartmaske wird zunächst eine 1 µm dicke Aluminiumschicht durch Kathodenzerstäubung auf der galvanisch abgeschiedenen Goldschicht aufgebracht und wie in den Abbildungen 6.14d)-f) gezeigt mit Hilfe von Fotolack in einem nasschemischen Ätzprozess strukturiert. Als Atzlösung wird auch hier eine Mischung aus Phosphorsäure, Salpetersäure, Essigsäure und Wasser im Verhältnis 16:1:1:2 verwendet. Das unter der Hartmaske freiliegende Gold wird anschließend durch einen physikalischen Trockenätzprozess bei einer Temperatur von $T = 5 \,^{\circ}$ C und einem Druck von $p = 1.5 \,\text{Pa}$ in der ICP-RIE-Plasmaätzanlage entfernt (vgl. Abbildung 6.14g)). Durch den Beschuss mit Argonionen wird dabei ein gerichteter, anisotroper Materialabtrag erzielt. Zur Erzeugung des Plasmas und zur Beschleunigung der Argonionen werden hierbei Leistungen von $P_{\rm ICP} = 200 \,\rm W$ und $P_{\rm b} = 200 \,\rm W$ verwendet. Die verbleibende, schätzungsweise zwischen 200 nm und 500 nm dicke Aluminiumschicht kann nach diesem Prozessschritt optional entfernt werden. Bei dem im Rahmen dieser Arbeit hergestellten und charakterisierten MOCCA-Detektorchip wurde darauf allerdings verzichtet, wie bereits in Abschnitt 6.3.1 erläutert wurde. Zuletzt wird die Lackschicht unter den Absorbern in einer Folge verschiedener Lösemittelbäder entfernt, sodass die Absorber, wie in Abbildung 6.14h) gezeigt, nur noch auf den Stämmen aufliegen.

 $^{^{17}\}mathrm{AZ}$ nLOF 2070, MicroChemicals GmbH, Nicolaus-Otto-Straße 39, 89079 Ulm



Abb. 6.15: Eingefärbte Rasterelektronenmikroskop-Aufnahmen eines kleinen MOCCA Test-Chips mit 16 Absorbern vor (oben) und nach (unten) dem manuellen Entfernen der Absorber.

Die oberen beiden Bilder in Abbildung 6.15 zeigen eingefärbte Rasterelektronenmikroskop-Aufnahmen eines im Rahmen dieser Arbeit hergestellten kleinen MOCCA Test-Chips mit 16 Absorbern. Die Absorber stehen dabei auf den vier Stämmen an nur einem Eck des Absorbers, ohne auf dem Substrat aufzuliegen. In dem rechten Bild ist der Abdruck dieser Stämme gut erkennbar. Die unteren beiden Bilder zeigen den gleichen Chip nach dem manuellem Entfernen der Absorber, sodass einer der darunterliegenden Sensoren mit den 16 Stegen in unterschiedlichen Längen, ein Teil der thermisch mit dem Sensor verbundenen Thermalisierungsfläche sowie die Überreste der Stämme auf den Enden der Stege zu sehen sind. In dem Sensor ist zudem der Abdruck der darunterliegenden mäanderförmigen Detektionsspulen sichtbar. Wie hier zu erkennen ist, konnte auch der Fotolack unter den Absorbern nach deren Fertigstellung rückstandsfrei entfernt werden.

6.4 Experimenteller Aufbau

Zur Charakterisierung des Detektorarrays MOCCA wurden im Rahmen dieser Arbeit Messungen mit Röntgenphotonen aus einer ⁵⁵Fe-Quelle durchgeführt. In diesem Unterkapitel wird der dabei verwendete experimentelle Aufbau vorgestellt. Dabei werden zunächst die Detektorplattform sowie der zur Bereitstellung der Betriebstemperaturen des Detektors verwendete Kryostat und anschließend die verwendete radioaktive Quelle beschrieben.

Des Weiteren wurden mit der ⁵⁵Fe-Quelle auch Charakterisierungsmessungen von mehreren Exemplaren des in Abschnitt 6.1.5 vorgestellten kleineren MOCCAcino-Detektorarrays durchgeführt. Der dabei verwendete experimentelle Aufbau wird am Ende dieses Unterkapitels ebenfalls kurz beschrieben.

6.4.1 Detektorplattform

Zur Installation des MOCCA-Detektors im Kryostaten wurde eine Detektorplattform entwickelt und realisiert, die als Fotografie in Abbildung 6.16 gezeigt ist. Wie in Unterkapitel 4.3 erläutert, besteht diese aus drei wesentlichen Komponenten, dem Detektor mit den Detektor-SQUIDs¹⁸, einer Kupferhalterung, die gleichzeitig als thermische Ankopplung für die SQUID-Chips und den Detektorchip dient und einer Platine¹⁹, die die elektrische Kontaktierung der Bauteile erlaubt. Beim Zusammenbau wird zunächst der Detektorchip zusammen mit den SQUID-Chips auf der etwa $140 \,\mathrm{mm} \cdot 100 \,\mathrm{mm} \cdot 6 \,\mathrm{mm}$ großen Kupferhalterung mit einem Klebestift²⁰ aufgeklebt. Anschließend wird die Platine zur elektrischen Kontaktierung des Detektors und der SQUIDs mit Hilfe von Schrauben aus Messing auf der Halterung aufgebracht. Wie in Abbildung 6.16 zu erkennen ist, besitzt die Platine mittig eine Aussparung für den Detektor und die Detektor-SQUIDs sowie mehrere Laschen, die auf den Rand des Detektorchips drücken und als Klemmen zur zusätzlichen Fixierung dienen. Die Größe dieser Aussparung sowie die Anordnung der Klemmen sind bereits an die nächste Detektorgeneration angepasst, die, wie in Abschnitt 6.6.1 erläutert wird, breitere Randbereiche mit zusätzlichen Thermalisierungsflächen und somit eine größere Gesamtfläche haben wird. An zwei Kanten des Detektorchips wurden daher Schrauben aus Messing mit darunterliegenden Unterlegscheiben aus Teflon anstelle der Klemmen zur Fixierung des Detektors verwendet. Die Ausschnittsvergrößerung in Abbildung 6.16 zeigt eine Lichtmikroskopaufnahme aus dem mit einem Kreis markierten Bereich der rechts gezeigten Detektorplattform. Zusätzlich zu erkennen sind hier die einzelnen Absorber des Detektorarrays und die Aluminiumdrähte, die die

¹⁸HDSQ10, hergestellt in der Arbeitsgruppe

¹⁹Multi Leiterplatten GmbH, Brunnthaler Str. 2, 85649 Brunnthal

²⁰tesa sc, Hugo-Kirchberg-Straße 1, 22848 Norderstedt



Abb. 6.16: Fotografie (rechts) und Lichtmikroskopaufnahme (links) des im Rahmen dieser Arbeit hergestellten Detektorarrays MOCCA, das zusammen mit den Detektor-SQUIDs und einer Platine auf einer gemeinsamen Halterung aus Kupfer aufgebracht wurde.

Feld- und Heizerleitungen des Detektors (F/H) mit den Leitungen der Platine sowie die Leitungen der SQUID-Chips mit den Leitungen der Platine und des Detektors verbinden. Zur Kontaktierung der Leitungen der Platine befinden sich auf dieser elf Stecker²¹ mit jeweils 16 Kontakten, von denen acht Stecker zur Kontaktierung der insgesamt 32 Detektor-SQUIDs und drei Stecker zur Kontaktierung der Feld- und Heizerleitungen (F/H) vorgesehen sind.

Zur Abschirmung des Aufbaus vor variierenden externen Magnetfeldern wurde eine bei den Betriebstemperaturen des Detektors supraleitende Hülle aus 4 mm dickem Aluminium verwendet. Als Kollimator für die in den Charakterisierungsmessungen zu detektierende Röntgenstrahlung dient ein Loch in dieser Abschirmung mit einem Durchmesser von 5,6 mm. Die im Kryostaten montierte Detektorplattform mit der darüberliegenden Aluminiumabschirmung ist in Abbildung 6.17 zu sehen.

²¹SHF-108-01-L-D-TH, Samtec, 520 Park East Boulevard, New Albany, IN 47150, USA

Die Verstärker-SQUIDs²² befinden sich, wie in Unterkapitel 4.3 erläutert wurde, auf einer separaten Halterung, die an der Unterseite der Mischkammerplattform des Kryostaten angebracht wurde und daher in Abbildung 6.17 nicht zu sehen ist. Verwendet wurde hierbei eine Halterung aus verzinntem Kupfer, die gleichzeitig als Halterung und supraleitende Abschirmung dient und dabei die Vorteile der guten Wärmeleitfähigkeit von Kupfer und der Supraleitfähigkeit von Zinn bei den geringen Betriebstemperaturen vereint [All17]. Die Platine²³ zum Kontaktieren der Verstärker-SQUIDs [All17] wird durch Kabel²⁴ aus jeweils 16 paarweise verdrillten Drähten mit der gemeinsamen Platine von Detektor und Detektor-SQUIDs verbunden.

6.4.2 Kryostat

Für die Charakterisierungsmessungen des im Rahmen dieser Arbeit hergestellten Detektorarrays MOCCA wurde die Detektorplattform auf der Mischkammerplattform eines trockenen ${}^{3}\text{He}/{}^{4}\text{He-Verdünnungskryostaten}^{25}$ (siehe Unterkapitel 4.4) angebracht, welche eine Basistemperatur von unter 10 mK erreicht. Abbildung 6.17 zeigt eine Fotografie des verwendeten Kryostaten mit dem an der Mischkammerplattform montierten Detektoraufbau.

Zum Betrieb des Detektors und der SQUIDs ist dieser Kryostat mit 12 Flachbandkabeln²⁶ aus jeweils 30 lackisolierten Drähten aus einer Cu_{0,98}Ni_{0,02}-Legierung²⁷ ausgestattet, die wie in Unterkapitel 4.4 beschrieben verdrillt und mit Nomex-Fasern²⁸ verwoben sind. Zur Kontaktierung der außerhalb des Kryostaten bei Raumtemperatur betriebenen Auslesungselektroniken sind diese Kabel an 24-polige Vakuumdurchführungen²⁹ angeschlossen, von denen aus sie durchgehend bis zur Mischkammerplattform führen. Am unteren Ende der Kabel befinden sich Stecker³⁰ mit 30 Kontakten zur Kontaktierung der Verstärker-SQUID-Platine. Die thermischen Ankopplungen an die einzelnen Temperaturstufen des Kryostaten wurden hierbei durch Stapel von Kupferplatten realisiert, deren Konzeption und Funktion ausführlich in [All17] diskutiert sind.

²²HDSQ5 und HDSQ9, hergestellt in der Arbeitsgruppe

²³Multi Leiterplatten GmbH, Brunnthaler Str. 2, 85649 Brunnthal

²⁴FFTP-08-D-18.00-01-N, Samtec, 520 Park East Boulevard, New Albany, IN 47150, USA

²⁵BF-LD250, BlueFors Cryogenics Oy, Arinatie 10, 00370 Helsinki, Finnland

²⁶Tekdata Interconnections Ltd, Innovation House the Glades, Festival Way, Etruria ST1 5SQ, Vereinigtes Königreich

²⁷Alloy 30, Isabellenhütte Heusler GmbH & Co. KG, Eibacher Weg 3-5, 35683 Dillenburg

²⁸DuPont de Nemours (Deutschland) GmbH, Hugenottenallee 175, 63263 Neu-Isenburg

 $^{^{29}\}mathrm{LEMO}$ Elektronik GmbH, Hanns-Schwindt-Straße 6, 81829 München

³⁰SFM-115-01-S-D, Samtec, 520 Park East Boulevard, New Albany, IN 47150, USA



Abb. 6.17: Fotografie des verwendeten ${}^{3}\text{He}/{}^{4}\text{He-Verdünnungskryostaten mit der an der Mischkammerplattform montierten Detektorplattform in der supraleitenden Abschirmung aus Aluminium.$

6.4.3 Radioaktive Quelle

Zur Charakterisierung des Detektorarrays MOCCA wurde eine gekapselte 55 Fe-Quelle³¹ mit einer Aktivität von etwa 0,35 MBq in einem Abstand von 24 cm vor dem Kollimatorloch der Aluminiumabschirmung angebracht. Das Isotop 55 Fe zerfällt mit einer Halbwertszeit von 2,73 Jahren über einen Elektroneneinfangprozess zu einem angeregten Zustand von 55 Mn. Das eingefangene Elektron stammt dabei in etwa 90 % der Zerfälle aus der K-Schale. Der freiwerdende Zustand wird daraufhin von einem Elektron aus einer höheren Schale besetzt, wobei es zur Erzeugung von Röntgenphotonen oder Auger-Elektronen kommt. Während letztere im Gehäuse der verwendeten

³¹Amersham, AEA Technology, QSA GmbH, Braunschweig, inzwischen: Eckert & Ziegler Nuclitec GmbH, Gieselweg 1, 38110 Braunschweig

Quelle absorbiert werden, können entstehende Röntgenphotonen das Gehäuse der Quelle durch ein 200 µm dickes Röntgenfenster aus Beryllium verlassen. Bei diesen handelt es sich zu etwa 90 % um Mn-K_{α}-Röntgenphotonen mit einer Energie von etwa 5,9 keV, die entstehen, wenn der freie Zustand in der K-Schale von einem Elektron aus der L-Schale besetzt wird. In etwa 10 % der Fälle wird der frei werdende Zustand durch ein Elektron aus der M-Schale besetzt, wobei Mn-K_{β}-Röntgenphotonen mit einer Energie von etwa 6,5 keV erzeugt werden.

6.4.4 Aufbau zur Charakterisierung des Detektorarrays MOCCAcino

Zusätzlich zu dem 4k-Pixel-Detektorarray MOCCA wurden im Rahmen dieser Arbeit mehrere Exemplare des in Abschnitt 6.1.5 vorgestellten kleineren 256-Pixel-Detektorarrays MOCCAcino hergestellt und mit Hilfe von Röntgenphotonen aus der im vorigen Abschnitt beschriebenen ⁵⁵Fe-Quelle charakterisiert. Diese Charakterisierungsmessungen wurden alle in dem in Abschnitt 5.3.3 beschriebenen Kryostaten durchgeführt, wobei eine Detektorplattform ähnlich der in Abschnitt 5.3.2 beschriebenen Plattform verwendet wurde. Abbildung 6.18 zeigt beispielhaft einen der Aufbauten zur Charakterisierung eines MOCCAcino-Detektors, welcher auf der am Kryostaten montierten Detektorplattform aufgebracht ist.

Als Strahlungsschilde zur Abschirmung von Wärmestrahlung wurden dabei die in [Hen17] beschriebenen Rohre verwendet. Da dieser Messaufbau im Gegensatz zu



Abb. 6.18: Fotografie der an der Mischkammerplattform des Kryostaten befestigten Detektorplattform, die sich zusammensetzt aus einem Kupferarm, welcher eine Kupferhalterung mit dem MOCCAcino-Detektorarray und den Detektor-SQUIDs sowie ein Vierkantrohr mit den Verstärker-SQUIDs trägt.

dem in Abschnitt 5.3.3 beschriebenen Aufbau nicht für die Detektion massiver Teilchen vorgesehen war, konnten die stirnseitigen Öffnungen der Rohre hierbei jeweils durch Röntgenfenster aus 6 μ m dicken, mit 40 nm Aluminium beschichteten Polyethylenterephthalat-Folien³² geschlossen werden, sodass keine weitere Abschirmung gegen Wärmestrahlung nötig war. Das um die Strahlungsschilde herum angebrachte Vakuumrohr ist in diesem Fall aus einer weichmagnetischen Legierung³³ gefertigt und fungiert somit als zusätzliche magnetische Abschirmung. Am stirnseitigen Ende des Vakuumrohrs befindet sich ebenfalls eine kreisförmige Öffnung, die vakuumdicht mit einem Röntgenfenster aus einer 25 μ m dicken Beryllium-Folie³⁴ verschlossen wurde. Die in Abschnitt 6.4.3 beschriebene ⁵⁵Fe-Quelle wurde hierbei außerhalb des Kryostaten vor diesem Röntgenfenster platziert.

6.5 Experimentelle Ergebnisse

Unter Verwendung des im vorhergehenden Unterkapitel beschriebenen Messaufbaus wurden im Rahmen dieser Arbeit Charakterisierungsmessungen des Detektorarrays MOCCA mit Röntgenphotonen aus der in Abschnitt 6.4.3 beschriebenen ⁵⁵Fe-Quelle durchgeführt, die im Folgenden diskutiert werden. Die paarweise von einem SQUID ausgelesenen Reihen von in Serie geschalteten Detektionsspulen werden dabei als Zeilenpaare bzw. Spaltenpaare bezeichnet, wobei die Zeilenpaare mit den Zahlen 1 bis 16 und die Spaltenpaare mit den Buchstaben A bis P benannt werden. Die Benennung der zugehörigen Sensoren wurde dabei, wie in Abbildung 6.19a) dargestellt, entsprechend der Polaritäten der beiden SQUID-Signale gewählt, welche ein Energieeintrag in diesen erzeugt. Zur Unterscheidung der vier Absorber einer Hydra des Detektorarrays werden diese im Folgenden, wie in Abbildung 6.19b) gezeigt, mit den Zahlen 1 bis 4 nummeriert, wobei der Absorber mit der besten thermischen Verbindung zum Sensor als Absorber 1 bezeichnet wird.

In diesem Unterkapitel werden zudem in kurzer Form einige Ergebnisse von Charakterisierungsmessungen mehrerer MOCCAcino-Detektorarrays mit dem in Abschnitt 6.4.4 beschriebenen Messaufbau vorgestellt. Die Benennung der Zeilenpaare und Spaltenpaare erfolgt hierbei analog zu Abbildung 6.19a) mit den Zahlen 1 bis 4 und den Buchstaben A bis D.

Bezüglich der im Folgenden diskutierten Ergebnisse ist anzumerken, dass die kritische Stromstärke der Detektionsspulen der hier untersuchten Detektoren maximal nur etwa 20 mA im Fall von MOCCA und etwa 50 mA im Fall von MOCCAcino betrug, sodass die in Abschnitt 6.2.1 ermittelte optimale Stromstärke des felderzeugenden

 $^{^{32}\}mathrm{ES301865},$ Goodfellow GmbH, 61213 Bad Nauheim

³³Magnetic Shields Ltd, Headcorn Rd, Staplehurst TN12 0DS, Vereinigtes Königreich

³⁴DuraBeryllium, MOXTEK, 452 West 1260 North, Orem, UT 84057, USA



Abb. 6.19: Schematische Darstellungen zur Erläuterung der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Notation für a) die Benennung der Sensoren (orange) des Detektorarrays MOCCA gemäß des in Abschnitt 6.1.1 beschriebenen Auslesungsprinzips und b) die Benennung der vier Absorber einer Hydra.

Dauerstroms von 65 mA nicht erreicht werden konnte. Wie in Abschnitt 6.6.2 diskutiert wird, soll dieses Problem in der nächsten Detektorgeneration durch einen neuen Herstellungsprozess der Detektorleitungen behoben werden.

6.5.1 Bestimmung der Induktivitäten

Zur Bestimmung der Induktivitäten der Zeilen und Spalten von Detektionsspulen des Detektorarrays MOCCA wurden jeweils Rauschspektren bei einer Temperatur von T = 3,77 K aufgenommen. Wie in Unterkapitel 4.3 erläutert wurde, sind die Aluminiumdrähte, die je zwei Reihen von Detektionsspulen mit der Einkoppelspule eines Detektor-SQUIDs verbinden, bei dieser Temperatur normalleitend, während die aus Niob bestehenden Detektorleitungen supraleitend sind. Der Widerstand R_w der Aluminiumdrähte verursacht somit ein Stromrauschen mit einer spektralen Leistungsdichte von

$$S_{I_{\rm w}} = \frac{4k_{\rm B}T}{R_{\rm w}} \tag{6.16}$$

in der Einkoppelspule des SQUIDs. Mit der Gegeninduktivität M_{iS} zwischen dem Detektor-SQUID und dessen Einkoppelspule resultiert aus diesem Stromrauschen ein Flussrauschen $S_{I_w}M_{iS}^2$ im SQUID.



Abb. 6.20: a) Schematische Zeichnung und b) Ersatzschaltbild von zwei Reihen von Detektionsspulen des Detektorarrays MOCCA, die über die normalleitenden Aluminiumdrähte mit der Einkoppelspule eines Stromsensor-dc-SQUIDs verbunden sind.

Abbildung 6.20 zeigt eine schematische Darstellung des Stromkreises, welcher aus zwei Reihen von Detektionsspulen des Detektorarrays MOCCA mit Induktivität $L_{\rm MO}$, den Aluminiumdrähten mit Widerstand $R_{\rm w}$ und Induktivität $L_{\rm w}$ sowie der Einkoppelspule des SQUIDs mit Induktivität $L_{\rm i}$ gebildet wird. Der Widerstand $R_{\rm w}$ bildet dabei mit der Gesamtinduktivität $L_{\rm ges} = L_{\rm i} + L_{\rm w} + L_{\rm MO}$ einen Tiefpass mit der Grenzfrequenz

$$f_{\rm g} = \frac{R_{\rm w}}{2\pi L_{\rm ges}}.\tag{6.17}$$

Insgesamt ergibt sich somit ein Beitrag

$$S_{\Phi_{\rm w}} = M_{\rm iS}^2 \, \frac{4k_{\rm B}T}{R_{\rm w}} \, \frac{1}{1 + (f/f_{\rm g})^2} \tag{6.18}$$

der Aluminiumdrähte zum Flussrauschen im SQUID. Mit dem in Abschnitt 4.1.3 diskutierten weißen Beitrag $S_{\Phi_{S,w}}$ zum Flussrauschen des SQUIDs addiert sich dieser Rauschbeitrag zu einem Gesamtrauschen mit der spektralen Leistungsdichte

$$S_{\Phi_{\rm ges}} = S_{\Phi_{\rm S,w}} + S_{\Phi_{\rm w}} \tag{6.19}$$

im SQUID. Das ebenfalls in Abschnitt 4.1.3 diskutierte 1/f-Rauschen des SQUIDs muss hierbei nicht berücksichtigt werden, da es in dem untersuchten Frequenzbereich gegenüber den anderen Rauschbeiträgen vernachlässigbar gering ist.

Abbildung 6.21 zeigt die gemessenen spektralen Leistungsdichten des Flussrauschens in doppelt-logarithmischer Auftragung für verschiedene Zeilen- und Spaltenpaare des Detektors. Wie erwartet ist hier zusätzlich zu dem Plateau des weißen SQUID-Rauschens jeweils ein zweites Plateau bei niedrigeren Frequenzen zu sehen, das durch das Stromrauschen der normalleitenden Aluminiumdrähte verursacht wird. Das Abschneiden des weißen SQUID-Rauschens bei einer Frequenz von etwa 1 MHz wird



Abb. 6.21: Bei einer Temperatur von T = 3,77 K gemessene Rauschspektren von sechs verschiedenen Zeilenpaaren und drei verschiedenen Spaltenpaaren des Detektorarrays MOCCA. In Rot ist jeweils eine numerische Anpassung von Gleichung 6.19 überlagert.

hierbei durch die begrenzte Rückkoppelgeschwindigkeit der in Abschnitt 4.1.2 beschriebenen Raumtemperatur-Auslesungselektronik verursacht. In Rot ist jedem gemessenen Rauschspektrum eine numerische Anpassung³⁵ von Gleichung 6.19 überlagert. Aus diesen Anpassungen wurden jeweils der Widerstand R_w der Aluminiumdrähte sowie die Gesamtinduktivität L_{ges} ermittelt.

³⁵Die Ursache des zusätzlichen Plateaus bei niedrigen Frequenzen im Rauschspektrum von Zeilenpaar 14 ist unbekannt. Möglicherweise könnte ein zufälliges Telegraphenrauschen für diesen Rauschbeitrag verantwortlich sein. Die Anpassung wurde hierbei in einem Frequenzbereich durchgeführt, in dem dieser Beitrag nicht dominiert.

Der Widerstand R_w sowie die Induktivität L_w hängen dabei hauptsächlich von der Länge der Aluminiumdrähte ab und sind daher annähernd proportional zueinander. In [Hen17] wurde der Zusammenhang zwischen diesen beiden Größen für die hier verwendeten Aluminiumdrähte zu

$$L_{\rm w} = R_{\rm w}(0.14 \pm 0.04) \,\frac{\rm nH}{\rm m\Omega} \tag{6.20}$$

abgeschätzt. Mit der Induktivität $L_i \approx 1,1$ nH der Einkoppelspulen der verwendeten SQUIDs ergibt sich somit die Gesamtinduktivität

$$L_{\rm MO} = L_{\rm ges} - L_{\rm i} - L_{\rm w} \tag{6.21}$$

von zwei parallelgeschalteten Reihen von Detektionsspulen.



Abb. 6.22: Gemessene Induktivitäten der paarweise ausgelesenen Zeilen bzw. Spalten von Detektionsspulen des im Rahmen dieser Arbeit hergestellten Detektorarrays MOCCA. Der in Abschnitt 6.2.1 berechnete Wert ist mit einer roten Linie markiert.

Die so ermittelten Werte für die Induktivität $L_{\rm MO}$ sind in Abbildung 6.22 für die Zeilenpaare gegen die Zeilenpaarnummer (1 bis 16) und für Spaltenpaare gegen den Spaltenpaarbuchstaben (A bis P) aufgetragen. Der in Abschnitt 6.2.1 berechnete Wert $L_{\rm MO} \approx 8,84\,\mathrm{nH}$ ist hier mit einer roten Linie markiert. Mit einer relativen Abweichung von nur etwa 15% weicht die gemessene Induktivität von Spaltenpaar P am stärksten von dem berechneten Wert ab. Eine mögliche, wenn auch unwahrscheinliche Ursache für eine etwas geringere Induktivität dieses Spaltenpaars könnte eine leicht erhöhte Breite der Mäanderbahnen der Detektionsspulen sein. Bereits eine insgesamt um etwa 1 μ m zu große Bahnbreite würde dabei in der beobachteten Abweichung resultieren. Auch kurzgeschlossene Detektionsspulen hätten eine geringere Induktivität des Spaltenpaars zur Folge. Da allerdings einerseits während der in Abschnitt 6.3.2 beschriebenen Fabrikation der Detektorleitungen keine Fehlstellen in den Isolationsschichten zwischen den beiden Leitungsschichten der Detektionsspulen sichtbar waren und andererseits auch bei den Raten von positiven und negativen Signalen keine Auffälligkeiten beobachtet wurden, ist auch diese Ursache sehr unwahrscheinlich. Für die Induktivitäten der anderen Zeilen- und Spaltenpaare ergeben sich jeweils noch geringere Abweichungen vom berechneten Wert von weniger als 5%. Anhand der guten Übereinstimmungen der gemessenen Induktivitäten mit dem berechneten Wert konnte im Rahmen dieser Arbeit somit die zuverlässige und homogene Herstellung der nur 5 μ m breiten und insgesamt über 9m langen Leitungen der Detektionsspulen über die gesamte 4,48 cm · 4,48 cm große sensitive Fläche hinweg demonstriert werden.

Für das kleinere 256-Pixel-Detektorarray MOCCAcino wurden ebenfalls entsprechende Rauschmessungen durchgeführt. Die daraus ermittelten Induktivitäten von zwei Reihen von Detektionsspulen stimmen auch in diesem Fall mit relativen Abweichungen von weniger als 11% sehr gut mit dem in Abschnitt 6.2.1 berechneten Wert $L_{\rm MOc} \approx 2,22 \,\mathrm{nH}$ überein.

6.5.2 Demonstration des Auslesungsprinzips

Wie in Abschnitt 6.1.1 erläutert wurde, resultiert ein Energieeintrag in einen der 1.024 Sensoren des Detektorarrays MOCCA in einer Flussänderung im zugehörigen Zeilenpaar sowie im zugehörigen Spaltenpaar von Detektionsspulen und somit in koinzidenten Signalen in den beiden zugehörigen SQUIDs. Dies erlaubt es, den Ort des Energieeintrags auf vier Sensoren einzugrenzen. Der entsprechende Sensor, in dem der Energieeintrag stattgefunden hat, lässt sich dann anhand der Polaritäten der beiden SQUID-Signale ermitteln. Zur Demonstration dieses Auslesungsprinzips wurden die aus einem Energieeintrag durch ein Photon in einem Sensor aus Spaltenpaar M resultierenden SQUID-Signale und zeitgleich jeweils das entsprechende Ausgangssignal des zur Auslesung von Zeilenpaar 1 verwendeten SQUIDs aufgenommen.

Abbildung 6.23 zeigt beispielhaft auf diese Weise gemessene koinzidente Ausgangssignale der beiden SQUIDs für alle möglichen Kombinationen aus positiven und negativen Signalen. Diese können anhand ihrer Polaritäten den Sensoren $M^+/1^-$, $M^-/1^+$, $M^+/1^+$ und $M^-/1^-$ (von links nach rechts) zugeordnet werden. Die gemessene Amplitude des SQUID-Signals von Zeilenpaar 1 ist dabei jeweils um etwa 67 % geringer als die Amplitude des entsprechenden SQUID-Signals von Spaltenpaar M. Diese unterschiedlichen Signalhöhen sind auf unterschiedliche felderzeugende Dauerströme in den Zeilen und Spalten von Detektionsspulen zurückzuführen. Da ohnehin für jedes Zeilen- beziehungsweise Spaltenpaar und somit für jedes SQUID eine separate Energiekalibration durchgeführt wird, ist trotz dieser unterschiedlichen Si-



Abb. 6.23: Koinzidente Signale von Röntgenphotonen aus der ⁵⁵Fe-Quelle in den vier gemeinsamen Sensoren aus Spaltenpaar M und Zeilenpaar 1 des Detektorarrays MOCCA. Beim Aufnehmen der Signale wurde jeweils ein Bandpassfilter (100 Hz bis 100 kHz) verwendet.

gnalhöhen dennoch jeweils eine Bestimmung der deponierten Energie möglich. Wie in Abschnitt 6.6.2 diskutiert wird, soll in der nächsten Detektorgeneration ein neuer Herstellungsprozess für die Detektorleitungen verwendet werden, durch den höhere kritische Stromstärken oberhalb des optimalen Feldstroms erreichbar sind. Somit können in Zukunft derartige Unterschiede der Signalhöhen von Zeilen und Spalten vermieden und generell größere Signalhöhen erreicht werden.

6.5.3 Übersprechen zwischen Zeilen und Spalten

Wie in Abschnitt 6.1.1 erläutert wurde, ist jeder Sensor des Detektorarrays MOCCA für die zeilen- und spaltenweise Auslesung der Sensoren induktiv an zwei unabhängige planare mäanderförmige Detektionsspulen gekoppelt. Die Geometrie und Anordnung dieser beiden Detektionsspulen wurde dabei so gewählt, dass das magnetische Übersprechen zwischen ihnen und somit das Übersprechen zwischen Zeilen und Spalten des Detektorarrays gering ist. Insbesondere zu erwähnen ist diesbezüglich die in dieser Form erstmals verwendete symmetrische Anordnung der Kreuzungspunkte zwischen den Leitungen der Zeilen und Spalten, bei der, wie in Abbildung 6.1b) und c) gezeigt, die Hin- und Rückleitung einer Zeile bzw. Spalte in jeder Leitungsschicht aus drei Leitungsbahnen gebildet wird.

Um das Übersprechen zwischen Zeilen und Spalten von Detektionsspulen des Detek-



Abb. 6.24: Gemitteltes Signal des Detektorarrays MOCCA infolge von Energieeinträgen in Sensoren aus Spalte M⁺ und aus dem Übersprechen zwischen Spaltenpaar M und Zeilenpaar 1 resultierendes gemitteltes Ausgangssignal von Zeilenpaar 1 (links) sowie um einen Faktor 50 vergrößert dargestelltes Übersprechen-Signal, dem in Rosa eine Glättung überlagert ist (rechts). Beim Aufnehmen der Signale wurde jeweils ein Bandpassfilter (100 Hz bis 100 kHz) verwendet.

torarrays MOCCA zu untersuchen, wurden Energieeinträge ausgewählt, welche in Spalte M⁺, nicht aber in Zeilenpaar 1 zu einem offensichtlichen Signal führten. Die Signale können folglich von Energieeinträgen in allen anderen Sensoren aus Spalte M^+ mit Ausnahme der Sensoren $M^+/1^-$ und $M^+/1^+$ herrühren. Abbildung 6.24 zeigt links eine Mittelung der aus diesen Energieeinträgen resultierenden Ausgangssignale des zur Auslesung von Spaltenpaar M verwendeten SQUIDs sowie der zeitgleich aufgenommenen Ausgangssignale des SQUIDs von Zeilenpaar 1. Rechts daneben ist in Schwarz das gemittelte SQUID-Signal von Zeilenpaar 1 um einen Faktor 50 vergrößert dargestellt. Das Übersprechen zwischen Spaltenpaar M und Zeilenpaar 1 ist hierbei derart gering, dass das daraus resultierende Signal vollständig von dem intrinsischen Detektorrauschen überdeckt wird. In Rosa ist in Abbildung 6.24 rechts zudem das gleiche Signal geglättet überlagert. Anhand des geglätteten Signals zeigt sich unter Berücksichtigung der im vorigen Abschnitt diskutierten unterschiedlichen Signalhöhen, dass das Übersprechen zwischen den Zeilen und Spalten von Detektionsspulen deutlich geringer ist als 0,6 %. Bei der am kryogenen Speicherring CSR geplanten Massenspektroskopie neutraler Molekülfragmente ist somit bei der Bestimmung der Masse $m_{\rm f1}$ eines Molekülfragments durch das Übersprechen infolge des Auftreffens eines zweiten Molekülfragments der Masse m_{f2} ein Fehler der Masse von deutlich weniger als $\Delta m_{\rm f1} \approx m_{\rm f2}/200$ zu erwarten.

Zur absoluten Bestimmung des Übersprechens wurden darüber hinaus Messungen



Abb. 6.25: Verwendete Schaltung zur Untersuchung des direkten Übersprechens zwischen dem in Rot dargestellten Spaltenpaar B und dem in Grün dargestellten Zeilenpaar 3 des Detektorarrays MOCCAcino (links) und mit dieser Schaltung gemessenes Übersprechen $I^{\text{eff}}/I_{\text{in}}^{\text{eff}}$ in Abhängigkeit von dem effektiven Strom $I_{\text{in}}^{\text{eff}}$ (rechts). Das über alle Werte von $I_{\text{in}}^{\text{eff}}$ gemittelte Übersprechen ist rechts mit einer roten Linie markiert.

mit einem Lock-in-Verstärker³⁶ an einem MOCCAcino-Detektorarray durchgeführt. Hierbei wurde, wie in Abbildung 6.25 links schematisch dargestellt, eine sinusförmige Wechselspannung $U_{in}(t)$ mit einem Effektivwert U_{in}^{eff} und einer Frequenz f = 922.4 Hz über den Leitungen von Spaltenpaar B und einem Widerstand $R = 10 \text{ k}\Omega$ angelegt. Das aus dem Übersprechen zwischen Spaltenpaar B und Zeilenpaar 3 resultierende Signal wurde dann mithilfe eines zweistufigen SQUID-Aufbaus, wie er in Abschnitt 4.1.2 beschrieben wurde, gemessen.

Der durch die Spannung $U_{\rm in}(t)$ erzeugte Strom $I_{\rm in}(t)$ mit Effektivwert $I_{\rm in}^{\rm eff} = U_{\rm in}^{\rm eff}/R$ teilt sich dabei auf die beiden Spalten von Spaltenpaar B auf, sodass durch diese jeweils ein Strom $I_{\rm B}(t) \approx I_{\rm in}(t)/2$ fließt. Dieser Strom induziert in den beiden Zeilen von Detektionsspulen aus Zeilenpaar 3 jeweils einen Wechselstrom $I_3(t)$ mit einem Effektivwert $I_3^{\rm eff}$. In der Einkoppelspule des Detektor-SQUIDs addieren sich die beiden Ströme zu $I(t) \approx 2I_3(t)$. Wie in den Abschnitten 3.3.2 und 4.1.2 beschrieben wurde, resultiert dieser Wechselstrom mit dem Effektivwert $I^{\rm eff}$ gemäß den Gleichungen 3.35 und 4.10 in einer Wechselspannung U(t) mit Effektivwert $U^{\rm eff} = I^{\rm eff} M_{\rm iS} R_{\rm fb}/M_{\rm fb}$ am Ausgang der Flussrückkopplungs-Schaltung. Hierbei ist $M_{\rm iS} = (12,6 \,\mu{\rm A}/\Phi_0)^{-1}$ die Gegeninduktivität zwischen dem SQUID und dessen Einkoppelspule und $M_{\rm fb} = (36,0 \,\mu{\rm A}/\Phi_0)^{-1}$ und $R_{\rm fb} = 100 \,\mathrm{k}\Omega$ sind die Gegeninduktivi-

 $^{^{36}\}mathrm{SR830},$ Stanford Research Systems Inc, 1290 Reamwood Ave, Sunnyvale, CA 94089, USA

tät zwischen dem SQUID und der Rückkoppelspule sowie der Rückkoppelwiderstand der Schaltung. Das Übersprechen zwischen Spaltenpaar B und Zeilenpaar 3 ist somit durch das Verhältnis

$$\frac{I_3^{\text{eff}}}{I_B^{\text{eff}}} = \frac{I^{\text{eff}}}{I_{\text{in}}^{\text{eff}}} = \frac{M_{\text{fb}}}{M_{\text{iS}}} \frac{R}{R_{\text{fb}}} \frac{U^{\text{eff}}}{U_{\text{in}}^{\text{eff}}}$$
(6.22)

gegeben.

Abbildung 6.25 zeigt rechts das anhand der gemessenen Ausgangsspannung U(t) ermittelte Verhältnis $I^{\text{eff}}/I^{\text{eff}}_{\text{in}}$ in Abhängigkeit von dem Effektivwert $I^{\text{eff}}_{\text{in}}$ der Stromstärke $I_{\text{in}}(t)$. Wie erwartet ist das durch dieses Verhältnis gegebene Übersprechen in erster Näherung unabhängig von dem effektiven Strom $I^{\text{eff}}_{\text{in}}$. Aus den gemessenen Werten ergibt sich ein Mittelwert für das Übersprechen zwischen Spalten und Zeilen von nur $I^{\text{eff}}/I^{\text{eff}}_{\text{in}} \approx 0,046\%$. Für die am CSR geplante Massenspektroskopie neutraler Molekülfragmente ist dieses Übersprechen nicht limitierend, um die gewünschte Massenauflösung von $\Delta m_{\rm f} \leq 1$ u zu erreichen. So würde ein derartig geringes Übersprechen bei der Massenbestimmung eines Molekülfragments selbst im Falle eines Energieeintrags durch ein zeitgleich auftreffendes zweites Fragment mit einer Masse von 160 u nur in einem Fehler von maximal etwa 0,07 u resultieren.

6.5.4 Signalverlauf

In diesem Abschnitt wird zunächst die Thermalisierung des Detektorarrays MOCCA zum Wärmebad anhand des Signalabfalls der gemessenen Detektorsignale untersucht. Anschließend wird anhand des Signalverlaufs das bei dem Detektorarray verwendete Hydra-Prinzip demonstriert. Für die im Folgenden diskutierten Messungen wurde, wie in Unterkapitel 4.2 beschrieben, ein felderzeugender Dauerstrom I_0 in den Reihen von Detektionsspulen präpariert, wobei für den Feldstrom eine Stromstärke von $I_{\rm F} = 20 \,\mathrm{mA}$ verwendet wurde. Die gemessenen Signalhöhen stimmen hierbei etwa mit den bei einer Betriebstemperatur von $T = 20 \,\mathrm{mK}$ und einem felderzeugenden Dauerstrom von $I_0 = 20 \,\mathrm{mA}$ erwarteten Signalhöhen überein.

Thermalisierung zum Wärmebad

Wie in Abschnitt 6.3.3 erläutert wurde, fehlen in dem hier charakterisierten MOCCA-Detektorchip die Löcher durch das Siliziumsubstrat mit der Goldschicht auf den Seitenwänden, die in der nächsten Detektorgeneration implementiert werden und die Thermalisierungsflächen thermisch mit der als Wärmebad dienenden Kupferhalterung verbinden sollen. Der Wärmefluss aus den Thermalisierungsflächen des Detektorarrays ist somit durch die schlechte Wärmeleitfähigkeit zwischen den Thermalisierungsflächen und dem Siliziumsubstrat begrenzt. Aufgrund der geringen Wärmekapazität der Thermalisierungsfläche erfolgt die Thermalisierung einer Hydra daher



Abb. 6.26: Gemitteltes ungefiltertes Detektorsignal des Detektorarrays MOCCA infolge von Energieeinträgen durch Röntgenphotonen aus der ⁵⁵Fe-Quelle zum Zeitpunkt t = 0. In Rot ist eine für t > 0.5 ms durchgeführte Anpassung einer Summe aus zwei exponentiellen Abfällen überlagert. Die Messung wurde bei einer Temperatur von etwa T = 20 mK und einem felderzeugenden Dauerstrom von etwa $I_0 = 20$ mA durchgeführt.

zunächst über diese Fläche mit den anderen drei daran angeschlossenen Hydren. Da ein perfekt gradiometrischer Detektor, wie in Abschnitt 3.3.2 erläutert wurde, nur auf Temperaturunterschiede der Sensoren der beiden von einem SQUID ausgelesenen Reihen von Detektionsspulen sensitiv ist, wäre in diesem Fall die nachfolgende Thermalisierung zum Wärmebad nicht in der Signalform beobachtbar. Jedoch führt eine Asymmetrie in den beiden Reihen von Detektionsspulen, wie sie beispielsweise durch den Dauerstromschalter zur Präparation des felderzeugenden Dauerstroms (vgl. Unterkapitel 4.2) entsteht, oder auch ein asymmetrisch präparierter Dauerstrom dazu, dass das Signal nicht mit der erwarteten Zeitkonstante auf Null abfällt sondern ein zweiter, langsamerer Signalabfall zu sehen ist. Auch eine Asymmetrie in den Wärmekapazitäten der einzelnen Hydren reicht aus, um zusätzlich zu dem durch die thermische Verbindung zwischen Sensor und Thermalisierungsfläche definierten Signalabfall einen zweiten, langsameren Signalabfall zu erzeugen. Um das Thermalisierungsverhalten des Detektorarrays MOCCA zu untersuchen, wurden ungefilterte Signale mit 125 ms langen Zeitfenstern aufgenommen.

Abbildung 6.26 zeigt das auf diese Weise gemessene, aus mehreren Einzelsignalen gemittelte Detektorsignal. In Rot ist dem gemessenen Signalabfall eine Anpassung einer Summe aus zwei exponentiellen Abfällen mit den Zeitkonstanten τ_{b1} und τ_{b2} überlagert. Die Anpassung wurde hierbei in einem Zeitbereich t > 0,5 ms nach dem Energieeintrag zum Zeitpunkt t = 0 durchgeführt, in dem alle Absorber einer Hydra bereits wieder mit dem Sensor thermalisiert sind. Somit kann sichergestellt werden, dass der durch die thermische Verbindung des Sensors zum Wärmebad gegebene Signalabfall im gewählten Zeitbereich gegenüber der internen Thermalisierung einer Hydra dominiert.

Anhand dieser Anpassung wurde für die durch die thermische Verbindung zwischen Sensor und Thermalisierungsfläche definierte Signalabfallszeit ein Wert von $\tau_{\rm b1} = (4,75\pm0,01)$ ms ermittelt. Da die Thermalisierungsfläche mit $C_{\rm therm} \approx 0.7 \, {\rm pJ/K}$ eine gegenüber der Gesamtwärmekapazität $C_{\rm ges} \approx 24,5 \, {\rm pJ/K}$ einer Hydra vernachlässigbar geringe Wärmekapazität besitzt und schlecht an das Wärmebad gekoppelt ist, erfolgt die Thermalisierung wie zuvor erwähnt über das Wärmebad hinaus zu den anderen drei Hydren, die ebenfalls jeweils über eine thermische Verbindung mit Wärmeleitwert $G_{\rm sb} \approx 5,50 \, {\rm nW/K}$ an die Thermalisierungsfläche angeschlossen sind. Für die erwartete Signalabfallszeit

$$\tau_{\rm b1} \approx \frac{C_{\rm ges} 3C_{\rm ges}}{C_{\rm ges} + 3C_{\rm ges}} \left(\frac{1}{G_{\rm sb}} + \frac{1}{3G_{\rm sb}}\right) \approx 4,45\,\rm ms \tag{6.23}$$

ergibt sich damit jedoch der gleiche Wert wie in Abschnitt 6.2.2 numerisch berechnet. Mit einer relativen Abweichung von nur etwa 7% stimmt die gemessene Signalabfallszeit gut mit diesem berechneten Wert überein.

Darüber hinaus wurde ein zweiter, langsamerer Abfall beobachtet, der wie oben erwähnt auf eine Asymmetrie des Detektors gepaart mit der schlechten Wärmeleitfähigkeit zwischen den Thermalisierungsflächen und dem Siliziumsubstrat (Wärmebad) zurückzuführen sein könnte. Für diesen ergeben sich aus der Anpassung eine Abfallszeit $\tau_{b2} = (33,37 \pm 0,06)$ ms sowie ein Anteil an der Gesamtamplitude der beiden Abfälle von $a_{b2} = (35,15 \pm 0,05)$ %.

Der Wärmeleitwert G_{b2} zwischen Thermalisierungsfläche und Siliziumsubstrat lässt sich dabei anhand des Grenzflächenwiderstands

$$R_{\rm g} = \frac{h_{\rm g}}{AT^3} \tag{6.24}$$

abschätzen. In [Swa89] wurde der Parameter $h_{\rm g}$ für den thermischen Kontakt zwischen Gold und Silizium zu $h_{\rm g} \approx 14.2 \,\mathrm{K}^4 \mathrm{cm}^2/\mathrm{W}$ berechnet. Mit der Kontaktfläche $A = (1,3 \,\mathrm{mm})^2$ zwischen der Thermalisierungsfläche und dem Substrat und einer Betriebstemperatur von $T = 20 \,\mathrm{mK}$ ergibt sich damit ein Wärmeleitwert $G_{\rm b2} = 1/R_{\rm g} \approx 9.5 \,\mathrm{nW/K}$. Die daraus resultierende Signalabfallszeit $\tau_{\rm b2}$ berechnet sich unter Vernachlässigung der relativ kleinen Kontaktfläche der Sensoren zum Substrat in erster Näherung aus diesem Wärmeleitwert und der Summe der Wärmekapazitäten der Thermalisierungsfläche und der vier mit der Thermalisierungsfläche verbundenen Hydren zu

$$\tau_{\rm b2} \approx \frac{4C_{\rm ges} + C_{\rm therm}}{G_{\rm b2}} \approx 10,4\,{\rm ms.} \tag{6.25}$$

Die Abweichung der gemessenen Zeitkonstante von diesem Wert kann dabei einerseits auf eine geringere Detektortemperatur als hier angenommen zurückzuführen sein. Aufgrund der starken Temperaturabhängigkeit des Grenzflächenwiderstands hätte bereits eine um 30 % geringere Detektortemperatur einen etwa dreimal so hohen Wert von τ_{b2} zur Folge. Andererseits wurde in dieser Abschätzung die etwa 240 nm dicke Siliziumdioxidschicht zwischen der Thermalisierungsfläche und dem Siliziumsubstrat vernachlässigt, die ebenfalls einen erhöhten Grenzflächenwiderstand und somit eine erhöhte Signalabfallszeit zur Folge haben kann.

Die verzögerte Thermalisierung des Detektors aufgrund des beobachteten zusätzlichen sehr langsamen Signalabfalls erhöht bei einer gegebenen Rate der Signale die Wahrscheinlichkeit, dass Energieeinträge in einer Hydra stattfinden, bevor diese infolge eines vorherigen Energieeinträges wieder thermalisiert ist. Dies erschwert die präzise Bestimmung der zu messenden Energie, was wiederum eine Verbreiterung der gemessenen Linienbreite zur Folge haben kann. Um eine derartige Degradierung der Energieauflösung durch eine zu langsame Thermalisierung des Detektors zu vermeiden, sollte daher die Signalrate entsprechend gering eingestellt werden.

Demonstration des Hydra-Prinzips

Wie in Abschnitt 6.1.2 erläutert wurde, werden jeweils vier Absorber des Detektorarrays MOCCA über einen Sensor ausgelesen, wobei unterschiedliche thermische Verbindungen zwischen dem Sensor und den einzelnen Absorbern in vier verschiedenen Signalanstiegszeiten resultieren. Anhand der gemessenen Signalform lässt sich somit aus den vier Absorbern einer solchen Hydra derjenige Absorber identifizieren, in dem ein Energieeintrag stattgefunden hat.

Die unterschiedlichen Signalverläufe wurden im Rahmen dieser Arbeit anhand der gemessenen Signale bei der Detektion von Röntgenphotonen aus der in Abschnitt 6.4.3 beschriebenen ⁵⁵Fe-Quelle untersucht. Unter den auf diese Weise gemessenen Signalen wurden acht Gruppen von unterschiedlichen Signalen identifiziert. Die gemittelten Signale aus diesen acht Gruppen sind in Abbildung 6.27 links gezeigt. Unter diesen sind vier verschiedene Signalverläufe mit unterschiedlich schnellen Signalanstiegszeiten zu finden, die jeweils mit zwei unterschiedlichen Amplituden vertreten sind. Die Signale mit unterschiedlichen Anstiegszeiten können dabei den vier Absorbern der Hydra zugeordnet werden. Die beiden unterschiedlichen Amplituden der Signale mit gleicher Signalform sind auf Mn-K_{α}- beziehungsweise Mn-K_{β}-Röntgenphotonen aus der ⁵⁵Fe-Quelle mit den Energien $E_{K_{\alpha}} \approx 5,9$ keV und $E_{K_{\beta}} \approx 6,5$ keV zurückzuführen. Um dies zu verdeutlichen, sind die entsprechenden Signale zudem in Abbildung 6.27 rechts aufgetragen, wobei die Signale, die den Mn-K_{β}-Röntgenphotonen zugeordnet wurden, um den Faktor $E_{K_{\alpha}}/E_{K_{\beta}} \approx 0,9$ skaliert sind.



Abb. 6.27: Gemittelte ungefilterte Signale des Detektorarrays MOCCA infolge von Energieeinträgen durch Mn-K_{α}- und Mn-K_{β}-Röntgenphotonen aus der ⁵⁵Fe-Quelle in die vier Absorber einer Hydra (links), sowie die entsprechenden Signale, von denen jeweils die Signale der Mn-K_{β}-Röntgenphotonen um den Faktor $E_{K_{\alpha}}/E_{K_{\beta}} \approx 0.9$ skaliert wurden (rechts).

Die gemessenen Signale zeigen jeweils einen ähnlichen Verlauf wie anhand der in Abschnitt 6.2.2 diskutierten numerischen Berechnungen erwartet. Bei den gemessenen Signalverläufen wurde hierbei allerdings zusätzlich jeweils ein weiterer exponentieller Signalabfall mit einer Zeitkonstante von etwa $\tau_{\rm z}\,=\,215\,\mu{\rm s}$ beobachtet, dessen Amplitude einen Anteil zwischen etwa 11% und etwa 29% an der Amplitude des Gesamtabfalls ausmacht. Der Ursprung dieses zusätzlichen Signalabfalls ist bislang unbekannt. Möglicherweise könnte er auf ein zusätzliches thermodynamisches System innerhalb des Absorbers zurückzuführen sein, dessen Relaxationszeit durch die Zeitkonstante τ_z gegeben ist. Ein solches zusätzliches thermodynamisches System könnte beispielsweise durch eine große Anzahl an Fremdatomen im Absorber verursacht werden. Im Gegensatz zu zuvor in der Arbeitsgruppe hergestellten Detektoren (siehe z.B. [Kam10, Sch12, Hen17]) wurden die Absorber des Detektorarrays MOCCA, wie in Abschnitt 6.3.4 beschrieben wurde, als eine zusammenhängende Goldschicht aufgebracht, die anschließend in einem physikalischen Trockenätzprozess in einzelne Absorber geteilt wurde. Vor dem Aufbringen der dabei verwendeten Aluminiumhartmaske wurde eine Waferreinigung mittels Argonionenätzung durchgeführt, durch die schätzungsweise auch etwa 10¹⁴ Argonionen in jedem Absorber des Detektorarrays implantiert wurden. Verglichen mit der Anzahl an Atomen, die bei der Detektion massiver Teilchen am kryogenen Speicherring CSR innerhalb eines Jahres implantiert werden, ist diese Anzahl um mindestens fünf Größenordnungen höher. Im Gegensatz zu dem in Abschnitt 5.5.2 diskutierten Fall kann somit auch der daraus resultierende Beitrag zur Wärmekapazität deutlich höhere Werte annehmen.

Zur Beschreibung der gemessenen Signalverläufe wurden analog zu den in Abschnitt 6.2.2 ermittelten Punktantwortfunktionen aus den Gleichungen 6.9 bis 6.12 die Funktionen

$$\Delta T_{\rm s,1}(t) = A\Theta(t) \left[f_{11}(t) - f_{12}(t) - f_{13}(t) - f_{14}(t) - f_{\rm z}(t) \right], \tag{6.26}$$

$$\Delta T_{s,2}(t) = A\Theta(t) \left[f_{21}(t) + f_{22}(t) - f_{32}(t) - f_{34}(t) - f_{z}(t) \right], \qquad (6.27)$$

$$\Delta T_{s,3}(t) = A\Theta(t) \left[f_{31}(t) + f_{32}(t) + f_{33}(t) - f_{34}(t) - f_z(t) \right]$$
(6.28)

und

$$\Delta T_{s,4}(t) = A\Theta(t) \left[f_{41}(t) + f_{42}(t) + f_{43}(t) + f_{44}(t) - f_z(t) \right]$$
(6.29)

 mit

$$f_{ji}(t) = a_{ji} \left(-e^{-t/\tau_{ai}} + e^{-t/\tau_{b}} \right)$$
(6.30)

und $a_{ji} > 0$ verwendet. Der beobachtete zusätzliche exponentielle Signalabfall wurde dabei jeweils durch

$$f_{\rm z}(t) = a_{\rm z} \left(-e^{-t/\tau_{\rm z}} + e^{-t/\tau_{\rm b}} \right)$$
 (6.31)

mit $a_z > 0$ und $\tau_z = 215 \,\mu s$ berücksichtigt. Für die durch die thermische Verbindung zwischen Sensor und Thermalisierungsfläche definierte Signalabfallszeit τ_b wurde hierbei der im vorigen Unterabschnitt ermittelte Wert $\tau_b = 4,75 \,\mathrm{ms}$ verwendet. Der dort untersuchte zusätzliche sehr langsame Abfall mit einer Zeitkonstante von etwa 33 ms kann in dem hier betrachteten Zeitbereich vernachlässigt werden.

Abbildung 6.28 zeigt in Dunkelgrau die gemittelten Signale infolge von Energieeinträgen durch Mn-K_{α}-Röntgenphotonen aus der ⁵⁵Fe-Quelle. Mit farbigen Kurven sind Anpassungen von den Gleichungen 6.26 bis 6.29 an die gemessenen Signale überlagert, in denen die in Abschnitt 6.2.2 ermittelten Werte für die Zeitkonstanten τ_{ai} verwendet wurden. Lediglich für die Zeitkonstante τ_{a1} , welche die Thermalisierung zwischen dem Sensor und dem Absorber 1 mit der besten thermischen Verbindung zum Sensor beschreibt, musste ein etwa doppelt so hoher Wert von $\tau_{a1} = 7,1 \,\mu$ s verwendet werden. Diese Abweichung könnte daher herrühren, dass die beste thermische Verbindung zum Sensor durch einen sehr kurzen Steg realisiert wurde, dessen effektive Länge nur näherungsweise abgeschätzt werden konnte. Für den damit berechneten Wärmeleitwert G_{a1s} ergibt sich somit ebenfalls eine relativ hohe Ungenauigkeit.

Da der hier beobachtete zusätzliche exponentielle Abfall, ebenso wie die langsamere Thermalisierung des Absorbers 1 mit dem Sensor sich jeweils auf die Verhältnisse der Amplituden a_{ji} auswirken, wurden diese in den Anpassungen variiert. Die anhand der Anpassungen ermittelten Werte für a_{ji} sind in Tabelle 6.5 zusammengefasst. Um eine bessere Vergleichbarkeit mit den in Abschnitt 6.2.2 numerisch berechneten Amplituden β_{ji} zu ermöglichen, wurden die Amplituden a_{ji} so skaliert, dass die auf t = 0



Abb. 6.28: Gemittelte ungefilterte Signale des Detektorarrays MOCCA infolge von Energieeinträgen durch Mn-K_{α}-Röntgenphotonen aus der ⁵⁵Fe-Quelle zum Zeitpunkt t = 0 in die vier Absorber einer Hydra. Mit farbigen Kurven sind jeweils Anpassungen der Gleichungen 6.26 bis 6.29 an die gemessenen Signale überlagert.

extrapolierte Amplitude $a_{4b} = a_{41} + a_{42} + a_{43} + a_{44} - a_z$ des Signalabfalls mit der Zeitkonstante τ_b infolge eines Energieeintrags in Absorber 4 mit der entsprechend extrapolierten Amplitude β_4 des Signalabfalls der berechneten Punktantwortfunktion $p_4(t)$ übereinstimmt. Aufgrund der vielen freien Parameter der Anpassungen, die jeweils voneinander abhängen, sind die Fehler der ermittelten Werte für die Amplituden a_{ji} jedoch relativ groß. Dennoch liegen die Verhältnisse der meisten Amplituden a_{ji} zumindest in der gleichen Größenordnung wie anhand der numerischen Berechnungen erwartet. Insbesondere die Amplituden a_{jj} der jeweils dominanten Anstiegszeit infolge eines Energieeintrags in Absorber j stimmen mit relativen Abweichungen

	a_{ji} [a.u.]				$ au_{\mathrm{a}i}$	$ au_{ m b}$
	j = 1	j = 2	j = 3	j = 4		
i = 1	0,967	0,133	0,281	0,263	$7,1\mu s$	
i = 2	0,095	0,762	$0,017^{*}$	0,008	$10,3\mu s$	175 mg
i = 3	0,000*	0,030	0,562	$0,000^{*}$	$19,1\mu s$	4,75 ms
i = 4	0,111	$0,000^{*}$	$0,000^{*}$	$0,\!493$	$36,4\mu\mathrm{s}$	

Tab. 6.5: Anhand von numerischen Anpassungen der Gleichungen 6.26 bis 6.29 ermittelte Werte für die Amplituden a_{ji} der gemessenen gemittelten Signale aus Abbildung 6.28 infolge eines Energieeintrags in Absorber j sowie in den Anpassungen verwendete Werte für die Zeitkonstanten τ_{ai} und τ_b . Bei den mit einem Stern markierten Werten ist der Fehler der Anpassung größer als der ermittelte Wert selbst.

von maximal etwa 12 % gut mit den berechneten Werten überein. Mit diesen Parametern beschreiben die Anpassungen jeweils den zeitlichen Verlauf der gemessenen Signale sehr gut. Die kleinen Abweichungen könnten dabei auf weitere thermische Systeme zurückzuführen sein, die in dem in Abschnitt 6.2.2 verwendeten Modell der Hydra zur Berechnung der erwarteten Temperaturverläufe nicht berücksichtigt wurden. Insbesondere wurden hierbei die schwachen thermischen Verbindungen der Thermalisierungsfläche zu drei weiteren Hydren vernachlässigt, durch die ein weitaus komplexerer Signalverlauf als anhand des Modells ermittelt zu erwarten ist.

6.5.5 Linearität

Wie bereits in Unterkapitel 3.1 erläutert wurde, ist die relative Temperaturerhöhung eines metallischen magnetischen Kalorimeters infolge eines Energieeintrags in der Regel so gering, dass die Gesamtwärmekapazität des Detektors, ebenso wie die Temperaturabhängigkeit der Sensormagnetisierung in erster Näherung als konstant angenommen werden können, woraus ein annähernd linearer Zusammenhang zwischen der Signalhöhe und der eingetragenen Energie resultiert. Aufgrund der Temperaturabhängigkeit dieser beiden Größen ergibt sich allerdings eine geringfügige Abweichung von diesem linearen Verhalten. Der daraus resultierende Zusammenhang zwischen der Amplitude A der Detektorsignale und der eingetragenen Energie E lässt sich in guter Näherung durch eine einfache quadratische Funktion

$$A(E) = a\left(1 - \frac{E}{E^*}\right)E\tag{6.32}$$

 mit

$$E^* = 2 \left. \frac{\partial \Phi_{\rm S}}{\partial E} \right|_{E=0} \left(\frac{\left. \frac{\partial \Phi_{\rm S}}{\partial E} \right|_{E=0} \left. \frac{\partial C_{\rm ges}}{\partial T} \right|_{T_0}}{C_{ges}(T_0)^2} - \left. \frac{\left(\frac{\partial}{\partial T} \left. \frac{\partial \Phi_{\rm S}}{\partial E} \right) \right|_{T_0}}{C_{ges}(T_0)} \right)^{-1} > 0 \quad (6.33)$$

beschreiben. Um diese Nichtlinearität des Detektorarrays MOCCA zu untersuchen, wurden die gemessenen Signale einer Hydra zunächst, wie im vorigen Abschnitt beschrieben, jeweils einem bestimmten Absorber der Hydra zugeordnet. Für jeden Absorber wurden dann, wie in Unterkapitel 4.5 erläutert, die relativen Amplituden der einzelnen Signale bestimmt. Zur Beschreibung der gemessenen Amplituden infolge von Energieeinträgen durch Mn-K_{α}- und Mn-K_{β}-Röntgenphotonen wurde an die Verteilungen der gemessenen Amplituden jeweils eine Summe aus zwei Gaußverteilungen numerisch angepasst. Die Linienmitte $A_{K\alpha}$ der gemessenen Mn-K_{α}-Röntgenlinie wurde dabei auf $A_{K\alpha} = 1$ normiert. Anhand der Anpassungen wurde anschließend die Linienmitte $A_{K\beta}$ der gemessenen Mn-K_{β}-Röntgenlinie ermittelt. In Abbildung 6.29 sind links die so bestimmten Amplituden A für die vier Absorber der Hydra jeweils gegen die Photonenenergie aufgetragen. Die dunkelgraue Gerade symbolisiert dabei



Abb. 6.29: Links: Gemessene Signalhöhen infolge von Energieeinträgen durch Mn-K_{α}und Mn-K_{β}-Röntgenphotonen aus der ⁵⁵Fe-Quelle in die vier Absorber einer Hydra des Detektorarrays MOCCA gegen die Photonenenergie E_{γ} . Rechts: Unter der Annahme einer linearen Abhängigkeit der Amplituden ermittelte Energie $A_{K\beta}/A_{K\alpha} E_{K\alpha}$ der Mn-K_{β}-Röntgenphotonen.

einen Detektor mit perfekt linearem Verhalten. Unter der Annahme dieses linearen Verhaltens wurde die Energie $A_{K\beta}/A_{K\alpha} E_{K\alpha}$ der Mn-K_{β}-Röntgenphotonen extrapoliert. Diese ist in Abbildung 6.29 rechts für die verschiedenen Absorber (1 bis 4) aufgetragen. Innerhalb der Fehlergrenzen stimmen alle gemessenen Signalamplituden mit dem durch eine dunkelgraue Linie markierten linearen Verhalten überein. In dem hier betrachteten sehr kleinen Energiebereich ist somit innerhalb der Messgenauigkeit keine Nichtlinearität des Detektorarrays MOCCA feststellbar.

Zur Bestimmung der theoretisch erwarteten Nichtlinearität dieses Detektors wurden numerische Berechnungen durchgeführt. Für eine Temperatur von $T_0 = 20 \text{ mK}$ und die in Abschnitt 6.2.1 ermittelte optimale Stromstärke des felderzeugenden Dauerstroms von $I_0 = 65 \text{ mA}$ ergeben sich dabei eine Gesamtwärmekapazität einer Hydra von $C_{\text{ges}} \approx 24,5 \text{ pJ/K}$ mit der Temperaturabhängigkeit $\partial C_{\text{ges}}/\partial T \approx 130 \text{ pJ/K}^2$ sowie eine Flussänderung pro deponierter Energie von $\partial \Phi_{\text{S}}/\partial E \approx 1,67 \,\mu \Phi_0/\text{eV}$ mit der Temperaturabhängigkeit $\partial/\partial T(\partial \Phi_{\text{S}}/\partial E) \approx -75,3 \,\mu \Phi_0/\text{eV/K}$. Der Nichtlinearitätsparameter aus Gleichung 6.33 berechnet sich mit diesen Werten zu $E^* \approx 6,07 \text{ MeV}$. Damit ergibt sich selbst bei der maximalen Ionenstrahlenergie von $E_{\text{kin,i}} = 300 \text{ keV}$ am kryogenen Speicherring CSR eine erwartete Nichtlinearität von weniger als 5%. Bei der Massenspektroskopie der Molekülfragmente wäre durch diese Nichtlinearität in jedem Fall ein Fehler der Masse $m_{\rm f}$ von weniger als $m_{\rm f}/20$ zu erwarten, der sich zudem auf einfache Weise durch eine Nichtlinearitätskorrektur anhand von Gleichung 6.32 auf ein vernachlässigbares Niveau reduzieren lässt.

6.5.6 Energieauflösung

Um die erzielten Energieauflösungen der vier Pixel einer Hydra des Detektorarrays MOCCA zu bestimmen, wurden die bei einer Temperatur von etwa 20 mK und einem felderzeugenden Dauerstrom von etwa 20 mA gemessenen Signale infolge der Absorption von Röntgenphotonen aus der ⁵⁵Fe-Quelle, wie in Abschnitt 6.5.4 diskutiert, jeweils einem bestimmten Absorber einer Hydra zugeordnet. Für die einzelnen Signale wurde dann, wie in Unterkapitel 4.5 erläutert, die in den Absorber eingetragene Energie ermittelt, wobei wie im vorigen Abschnitt diskutiert eine lineare Energiekalibration anhand der gemessenen Spektrallinie der Mn-K_a-Röntgenphotonen durchgeführt wurde. In Abbildung 6.30 sind die so ermittelten Energien für jeden der vier Absorber in einem Histogramm aufgetragen. Zur Beschreibung des gemessenen Energiespektrums bestehend aus der Mn- K_{α} - und der Mn- K_{β} -Röntgenlinie wurde an jedes Spektrum eine Summe aus zwei Gaußverteilungen numerisch angepasst, wobei die natürliche Linienform und die Feinstruktur vernachlässigt werden konnten. Anhand dieser Anpassungen wurden Energieauflösungen von $(267 \pm 11) \,\mathrm{eV}, (279 \pm 19) \,\mathrm{eV},$ $(292 \pm 18) \text{ eV}$ und $(295 \pm 18) \text{ eV}$ für die Absorber 1, 2, 3 und 4 ermittelt. Bei der Massenspektroskopie neutraler Molekülfragmente mit einer Ionenstrahlenergie von $E_{\rm kin,i} = 300 \,\rm keV$ wären die diesen Energieauflösungen entsprechenden Massenauflösungen für Ionenmassen von bis zu $\Delta m_{\rm i} = 1000 \,{\rm u}$ jeweils besser als 1 u.

In Abbildung 6.31 ist in Rosa das bei den hier verwendeten Betriebsparametern gemessene Rauschspektrum des magnetischen Flusses im Detektor-SQUID in doppeltlogarithmischer Auftragung gezeigt. Mit gestrichelten Linien sind zudem die anhand der in Abschnitt 6.2.1 diskutierten numerischen Berechnungen für einen felderzeugenden Dauerstrom von $I_0 = 20 \text{ mA}$ und eine Detektortemperatur von T = 20 mK ermittelten Rauschbeiträge durch thermische Energiefluktuationen, magnetisches Johnson-Rauschen sowie das 1/f-Rauschen der Erbiumionen aufgetragen. Zur Beschreibung des gemessenen Rauschspektrums wurde für das ebenfalls gestrichelt in Rot gezeigte SQUID-Rauschen ein im Vergleich zu Abschnitt 6.2.1 erhöhter 1/f-Rauschbeitrag mit einer spektralen Leistungsdichte von $S_{\Phi_{S,1/f}}(1 \text{ Hz}) = (11 \,\mu \Phi_0 / \sqrt{\text{Hz}})^2$ verwendet. Zudem weist das gemessene Rauschen noch einen steileren Anstieg hin zu tiefen Frequenzen auf, der sich etwa proportional zum Quadrat der inversen Frequenz verhält. Dieser zusätzliche Rauschbeitrag lässt sich zum Beispiel durch zusätzliche Temperaturfluktuationen mit einer spektralen Leistungsdichte von etwa $S_T(1 \text{ Hz}) = (0.8 \,\mu\text{K}/\sqrt{\text{Hz}})^2$ beschreiben, welche in dem gestrichelt in Hellblau gezeigten Beitrag zum Flussrauschen resultieren würden. Derartige Temperaturfluktuationen könnten auf Temperaturschwankungen des Kryostaten zurückzuführen sein, wie sie auch während der Messungen beobachtet wurden. In Abbildung 6.31 ist in Schwarz das aus den erwähnten Rauschbeiträgen resultierende Gesamtrauschen hinterlegt, welches das gemessene Rauschspektrum sehr gut beschreibt. Unter Be-



Abb. 6.30: Mit dem Detektorarray MOCCA gemessene Energiespektren von Röntgenphotonen aus der ⁵⁵Fe-Quelle für die vier Absorber einer Hydra. Mit farbigen Kurven ist den gemessenen Spektren jeweils eine Anpassung einer Summe aus zwei Gaußverteilungen überlagert, aus der jeweils die Energieauflösung $\Delta E_{\rm FWHM}$ bestimmt wurde. Die Messung wurde bei einer Temperatur von etwa $T = 20 \,\mathrm{mK}$ und einem felderzeugenden Dauerstrom von etwa $I_0 = 20 \,\mathrm{mA}$ durchgeführt. Beim Aufnehmen der Signale wurde ein Bandpassfilter (100 Hz bis 100 kHz) verwendet.

rücksichtigung dieser Rauschbeiträge ergeben die numerischen Berechnungen eine zu erwartende Energieauflösung von $\Delta E_{\rm FWHM} = 265 \, {\rm eV}$. Hierbei ist anzumerken, dass aufgrund von Spannungsschwankungen des Nullsignals bei der Auswertung der Signale jeweils nur ein kleines Zeitfenster um den Signalanstieg betrachtet werden konnte, was einen Teil dieser erhöhten Linienbreite verursacht. Verglichen mit dem in Abschnitt 6.2.1 ermittelten Wert hat zudem auch der zu geringe felderzeugende Dauerstrom I_0 , wie in Abschnitt 6.2.1 gezeigt wurde, eine Degradierung der Ener-



Abb. 6.31: Bei einer Detektortemperatur von etwa T = 20 mK gemessenes Rauschspektrum des Detektorarrays MOCCA. Mit gestrichelten Linien sind für eine Temperatur von T = 20 mK und einen felderzeugenden Dauerstrom von $I_0 = 20 \text{ mA}$ numerisch berechnete Rauschbeiträge überlagert, aus denen sich das in Schwarz dargestellte Gesamtrauschen berechnet.

gieauflösung zur Folge. Durch die Verwendung eines neuen Herstellungsprozesses der Detektorleitungen soll in der nächsten Detektorgeneration, wie in Abschnitt 6.6.2 erläutert wird, ein höherer kritischer Strom der Detektionsspulen erzielt werden, sodass eine derartige Degradierung der Energieauflösung in Zukunft vermieden werden kann.

Die gemessenen Energieauflösungen stimmen relativ gut mit dem hier berechneten Wert überein. Der kleine zusätzliche Beitrag zur gemessenen Linienbreite könnte eventuell auf niederfrequente Rauschbeiträge, zum Beispiel durch sehr langsame Schwankungen der Temperatur des Kryostaten, zurückzuführen sein. Darüber hinaus können auch elektromagnetische Störungen einen zusätzlichen Beitrag zur gemessenen Linienbreite verursachen. Diese können in erster Linie in die verhältnismäßig großflächige Schleife einkoppeln, welche die Aluminiumdrähte bilden, die zwei Reihen von Detektionsspulen mit der Einkoppelspule eines SQUIDs verbinden. Wie im folgenden Unterkapitel diskutiert wird, soll in der nächsten Detektorgeneration ein optimiertes Detektorlayout mit symmetrischeren Anschlüssen für die SQUID-Einkoppelspulen implementiert werden, wodurch derartige Störungen signifikant reduziert werden können. In Zukunft sind somit insgesamt deutlich verbesserte Energieauflösungen der Detektoren zu erwarten.

Zudem ist anzumerken, dass bei den hier diskutierten Messungen Detektor-SQUIDs mit einer Einkoppelspulen-Induktivität von nur $L_i \approx 1,1 \,\mathrm{nH}$ verwendet wurden.

Um eine maximale Fluss-zu-Fluss-Kopplung und somit eine maximale Signalhöhe zu erreichen, wären hingegen, wie in Abschnitt 6.2.1 erläutert, SQUIDs mit einer Einkoppelspulen-Induktivität von $L_i \approx 9,5$ nH optimal, die zum Zeitpunkt der hier diskutierten Messungen noch nicht zur Verfügung standen. Für die Zukunft ist in der Arbeitsgruppe die Entwicklung und Herstellung neuer SQUIDs mit einer an das Detektorarray MOCCA angepassten Einkoppelspulen-Induktivität geplant, mit denen um etwa 64 % höhere Signalhöhen sowie zudem etwas bessere Energieauflösungen



Abb. 6.32: Mit dem Detektorarray MOCCAcino gemessene Energiespektren von Röntgenphotonen aus der ⁵⁵Fe-Quelle für die Absorber mit unterschiedlichen thermischen Verbindungen zum Sensor von allen Hydren einer Spalte. Mit farbigen Kurven ist den gemessenen Spektren jeweils eine Anpassung einer Summe aus zwei Gaußverteilungen überlagert, aus der jeweils die Energieauflösung $\Delta E_{\rm FWHM}$ bestimmt wurde. Die Messung wurde bei einer Temperatur von etwa $T = 20 \,\text{mK}$ und einem felderzeugenden Dauerstrom von etwa $I_0 = 50 \,\text{mA}$ durchgeführt.

erreichbar sind als mit den hier verwendeten SQUIDs.

Mit dem kleineren 256-Pixel-Detektorarray MOCCAcino wurden im Rahmen dieser Arbeit ebenfalls entsprechende Messungen mit Röntgenphotonen aus der ⁵⁵Fe-Quelle bei einer Temperatur von etwa $T = 20 \,\mathrm{mK}$ und einem felderzeugenden Dauerstrom von etwa $I_0 = 50 \,\mathrm{mA}$ durchgeführt, bei denen allerdings nur die Spalten von Detektionsspulen ausgelesen wurden. Infolge von Energieeinträgen in den Absorbern 1, 2, 3 und 4 der insgesamt acht Hydren einer Spalte wurden hierbei Energieauflösungen von $(137 \pm 4) \text{ eV}$, $(175 \pm 4) \text{ eV}$, $(225 \pm 7) \text{ eV}$ und $(279 \pm 9) \text{ eV}$ gemessen. Die entsprechenden Energiespektren sind in Abbildung 6.32 gezeigt. Für die verschlechterte Energieauflösung im Vergleich zu dem in Abschnitt 6.2.1 numerisch berechneten Wert sind auch in diesem Fall die gleichen Effekte wie oben für das MOCCA-Detektorarray erläutert verantwortlich, weshalb in der nächsten Generation dieses Detektors ebenfalls die im folgenden Unterkapitel beschriebenen Verbesserungen im Detektordesign und der Detektorfabrikation implementiert werden sollen. Ein Teil der hier gemessenen Linienbreite könnte zudem auf potentiell leicht unterschiedliche Signalhöhen der acht Hydren zurückzuführen sein. Bei einer zusätzlichen Auslesung der Zeilen von Detektionsspulen könnte in diesem Fall durch eine Zuordnung der jeweiligen Signale zu den einzelnen Hydren ebenfalls eine bessere Energieauflösung erzielt werden. Die jeweils sehr symmetrischen gemessenen Linienformen sind allerdings ein Hinweis auf eine gute Übereinstimmung der Signalhöhen der einzelnen Hydren und somit auf eine gute Homogenität des gesamten Detektorarrays.

6.6 Ausblick: Nächste Detektorgeneration

Im vorigen Unterkapitel wurden Charakterisierungsmessungen des im Rahmen dieser Arbeit hergestellten MOCCA-Detektorchips vorgestellt. Bei diesem Detektor wurde auf eine thermische Kontaktierung der Thermalisierungsflächen durch das Detektorsubstrat hindurch verzichtet, da der dazu verwendete, in Abschnitt 6.3.3 diskutierte Herstellungsprozess zum Zeitpunkt der Detektorfabrikation noch nicht vollständig etabliert war. Wie in Abschnitt 6.3.3 gezeigt, wurde im Rahmen dieser Arbeit jedoch inzwischen ein vollständiger Prozess zur Herstellung dieser thermischen Kontaktierungen entwickelt, der in der nächsten Detektorgeneration implementiert wird. Dadurch kann der in Abschnitt 6.5.4 beobachtete zusätzliche langsame exponentielle Signalabfall vermieden werden, sodass bei der Detektion von Moldekülfragmenten am kryogenen Speicherring CSR, wie in Abschnitt 6.2.1 erläutert wurde, selbst bei einer Reaktionsrate von etwa $50 \, {\rm s}^{-1}$ keine signifikante Degradierung der Energieauflösung durch eine zu langsame Thermalisierung zu erwarten ist. Darüber hinaus wurden sowohl das in Abbildung 6.5 gezeigte Detektorlayout als auch der in Abschnitt 6.3.2 diskutierte Herstellungsprozess der Detektorleitungen für die nächste Generation des Detektorarrays MOCCA im Rahmen dieser Arbeit weiterentwickelt, wie im Folgenden diskutiert wird.

6.6.1 Neues Detektorlayout

Abbildung 6.33 zeigt einen Vergleich des Layouts des im Rahmen dieser Arbeit hergestellten und charakterisierten MOCCA-Detektorchips aus Abbildung 6.5 mit dem optimierten neuen Detektorlayout. Letzteres beinhaltet einerseits zusätzlich zu den 256



Abb. 6.33: Layout des gesamten MOCCA-Detektorchips: a) Im Rahmen dieser Arbeit hergestellter und charakterisierter Detektorchip (vgl. Abbildung 6.5). b) Neues Detektorlayout mit verbreiterten Randbereichen, zusätzlichen Thermalisierungsflächen und neu angeordneten Anschlüssen für die Einkoppelspulen der SQUIDs. Die Absorber sind jeweils transparent gezeichnet, sodass die darunterliegenden Strukturen zu sehen sind.

Thermalisierungsflächen zwischen den Sensoren noch weitere Thermalisierungsflächen an den vier Kanten des Detektorchips, die ebenfalls jeweils über ein Loch durch das Substrat und eine Goldschicht auf der Seitenwand des Loches thermisch mit der <u>Ag</u>:Er-Schicht auf der Rückseite des Detektorchips verbunden werden. Diese zusätzlichen Thermalisierungsflächen können durch ultraschallverschweißte Golddrähte mit der Detektorhalterung aus Kupfer verbunden werden, wodurch der thermische Kontakt zwischen den Thermalisierungsflächen und der als Wärmebad dienenden Kupferhalterung weiter verbessert werden kann. Um ausreichend große Thermalisierungsflächen zum Aufbringen der Golddrähte herstellen zu können, wurden die Randbereiche des Detektorchips in dem neuen Detektorlayout verbreitert.

Des Weiteren wurden auch die Anschlüsse für die SQUID-Einkoppelspulen modifiziert. Auf dem in Abbildung 6.5 gezeigten Detektorlayout sind jeweils zwei Anschlüsse vorgesehen, um die Einkoppelspule eines Stromsensor-SQUIDs mit zwei Reihen von Detektionsspulen zu verbinden. Die elektrische Verbindung wird dabei, wie in Unterkapitel 4.3 erläutert, durch dünne ultraschallverschweißte Aluminiumdrähte hergestellt. Die Aluminiumdrähte bilden somit eine Schleife, in die Störungen durch fluktuierende externe Magnetfelder einkoppeln können. Um diesen Effekt zu reduzieren, wurde für das neue Detektorlayout eine symmetrisierte Anordnung mit drei Anschlüssen gewählt, die in [Sch19] beschrieben ist und so konzipiert wurde, dass sich einkoppelnder magnetischer Fluss gerade aufheben sollte. Auch das Layout der in der Arbeitsgruppe hergestellten Stromsensor-SQUIDs wurde bereits entsprechend modifiziert. Im Rahmen dieser Arbeit durchgeführte Messungen an Teststrukturen mit der neuen symmetrischen Anordnung der Anschlüsse zeigten verglichen mit der alten Anordnung eine um einen Faktor von 50 bis 100 reduzierte Empfindlichkeit gegenüber externen Magnetfeldänderungen.

Genau wie bei dem im Rahmen dieser Arbeit hergestellten MOCCA-Detektorarray liegen auch bei dem neuen Detektorlayout alle zum Betrieb des Detektors essenziell benötigten Anschlüsse an zwei Seiten des Detektorchips. Durch ein Entfernen der verbreiterten Randbereiche auf diesen beiden Seiten mit der Wafersäge ist es somit auch hier möglich, vier Detektorchips wie in Abschnitt 6.1.4 beschrieben zu einem einzigen 16 k-Pixel-Detektorarray mit einer über 80 cm^2 großen quadratischen Detektionsfläche zusammenzusetzen.

6.6.2 Neuer Herstellungsprozess der Detektorleitungen

Wie in Abschnitt 6.3.2 erläutert wurde, werden die supraleitenden Leitungen der in Serie geschalteten Detektionsspulen des Detektorarrays MOCCA von einem Dauerstrom in der Größenordnung von einigen 10 mA durchflossen. Die maximal mögliche Stromstärke des Dauerstroms ist dabei durch den kritischen Strom der Detektionsspulen begrenzt, der bei dem im Rahmen dieser Arbeit hergestellten MOCCA-Detektorarray nur etwa 20 mA beträgt. Die in Unterkapitel 6.2 anhand von numerischen Berechnungen ermittelte optimale Stromstärke des Dauerstroms von etwa 65 mA konnte somit bei den in Unterkapitel 6.5 diskutierten Charakterisierungsmessungen dieses Detektorchips nicht erreicht werden.

Die geringe kritische Stromstärke der Detektionsspulen konnte dabei auf die Kontaktstellen zwischen den beiden Schichten von Niobleitungen zurückgeführt werden und wird vermutlich durch eine dünne Materialschicht zwischen den beiden Leitungsschichten verursacht, welche bei dem verwendeten Trockenätzprozess der ersten Niobschicht entstehen kann. Wie bereits in [Ade93] festgestellt, kann sich bei der Verwendung einer Ätzmaske aus Fotolack in einem reaktiven Ionenätzprozess von Niob mit Schwefelhexafluorid eine ätzresistente Schicht auf den Niob-Seitenwänden unter dem strukturierten Fotolack bilden, die wahrscheinlich Kohlenstoff aus dem verwendeten Fotolack enthält. In [Sau95] wird zudem eine polymerisierte Fotolackschicht erwähnt, die während des reaktiven Ionenätzprozesses von Niob mit Schwefelhexafluorid entsteht. Es kann daher vermutet werden, dass sich bei dem im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Trockenätzprozess aus den Prozessgasen und Kohlenstoff aus dem Fotolack eine Polymerschicht auf der ersten Niobschicht bildet, die nicht durch die folgenden Oberflächenreinigungen mit Lösemitteln und mittels Argonionenätzung entfernt wird. Auch das Durchführen eines Veraschungsprozesses nach dem Trockenätzprozess der ersten Niobschicht hat bei Teststrukturen diesbezüglich keinen Erfolg gezeigt.

Um daher bereits das Entstehen einer derartigen Schicht während des Ätzprozesses der ersten Niobschicht zu verhindern, soll in der nächsten Detektorgeneration die aufgebrachte Niobschicht zunächst in situ mit einer 100 nm dicken Goldschicht bedeckt werden. Diese Goldschicht und die darunterliegende Niobschicht werden anschließend nacheinander mit derselben Fotolackmaske jeweils in einem Trockenätzprozess in der ICP-RIE-Plasmaätzanlage strukturiert, wobei die Goldschicht als Sperrschicht zwischen Niob und Fotolack dient. Nach dem Ablösen des Fotolackes wird die Goldschicht in einem nasschemischen Ätzprozess mit einer Iod-Kaliumiodid-Lösung entfernt und der gesamte Wafer wird mit Lösemittel gereinigt. Die weitere Herstellung der Detektorleitungen erfolgt dann wieder wie in Abschnitt 6.3.2 anhand der Abbildungen 6.10b) und c) beschrieben. Erste Vorversuche haben in diesem Zusammenhang vielversprechende Ergebnisse mit kritischen Stromstärken von über 100 mA gezeigt.

7. Zusammenfassung

Ziel dieser Arbeit war die Entwicklung eines Detektors für die Massenspektroskopie neutraler Molekülfragmente am kryogenen Speicherring CSR des Max-Planck-Instituts für Kernphysik in Heidelberg. Unter der Verwendung des Detektionsprinzips metallischer magnetischer Kalorimeter sollen hierbei die kinetischen Energien der in Dissoziationsreaktionen entstehenden Molekülfragmente gemessen werden, anhand derer die jeweiligen Massen der Fragmente bestimmt werden. Beim Auftreffen massiver Teilchen auf dem Absorber eines magnetischen Kalorimeters kann es allerdings aufgrund verschiedener Prozesse dazu kommen, dass die kinetische Energie im Absorber nicht vollständig in Wärme umgewandelt wird. Zu diesen Prozessen gehören die teilweise, oder auch vollständige Rückstreuung der zu detektierenden Teilchen, das Sputtern von Absorberatomen sowie die Erzeugung von Gitterdefekten, insbesondere Frenkel-Paaren im Absorber. Die statistische Natur dieser Prozesse führt darüber hinaus zu einer Verbreiterung der instrumentellen Linienform.

Der Einfluss dieser Effekte bei der Detektion atomarer und molekularer Ionen in Absorbern aus Gold wurde im Rahmen dieser Arbeit anhand von experimentellen Studien sowie Monte-Carlo-Simulationen für kinetische Energien zwischen 10 keV und 300 keV und Ionenmassen zwischen 1 u und 58 u untersucht. Die Simulationen ergaben, dass der Einfluss des Sputterns im untersuchten Massen- und Energiebereich vernachlässigbar gering ist, aber die Erzeugung von Frenkel-Paaren in einem zusätzlichen Beitrag zur Linienbreite und einer Asymmetrie der Linienform resultiert. Die zurückgestreuten Ionen hingegen sind im Energiespektrum über einen weiten Energiebereich verteilt und stellen somit einen störenden Untergrund dar. Sowohl der Verlauf der gemessenen Energiespektren als auch die anhand der Messungen ermittelte Abhängigkeit der jeweiligen Effekte von der kinetischen Energie und Masse der auftreffenden Ionen wurden jeweils in den Simulationen gut wiedergegeben. An ein gemessenes Spektrum von 53 keV-Methylionen wurde zudem ein entsprechendes, anhand von Simulationen ermitteltes Energiespektrum durch Variieren der Frenkel-Paar-Energie angepasst, wobei eine hervorragende Ubereinstimmung der beiden Spektren erzielt werden konnte. Die dabei ermittelte Frenkel-Paar-Energie von $E_{\rm FP} = (2, 8^{+0,2}_{-0,4})$ eV stimmt gut mit berechneten Werten überein [Wal94].

Um eine Optimierung der Detektoren hinsichtlich der auftretenden Festkörpereffekte zu ermöglichen, wurde der Einfluss des Absorbermaterials anhand von weiteren Simulationen untersucht. Von allen simulierten Materialien wurde Aluminium als am besten zur Absorption der Ionen geeignet eingestuft. In den Messungen wurde daher neben dem Detektor mit Absorbern aus purem Gold noch ein zweiter baugleicher Detektor mit einer zusätzlichen, etwa 180 nm dicken Aluminiumschicht auf den Absorbern verwendet. Wie erwartet konnte dadurch der Untergrund aufgrund zurückgestreuter Ionen im gemessenen Energiespektrum signifikant reduziert werden.

Mit beiden Detektoren wurden darüber hinaus Massenspektroskopiemessungen durchgeführt, bei denen neutrale Fragmente und neutralisierte Moleküle verschiedener Ionen detektiert wurden. Dabei wurden im Fall von Kohlenstoffdioxid- und Methylionen alle potentiell möglichen Fragmente erfolgreich identifiziert. Im Fall von Acetonionen zeigte sich darüber hinaus, dass mit dem magnetischen Kalorimeter Fragmente nachgewiesen werden können, die mit herkömmlichen Detektoren aufgrund einer zu geringen Massenauflösung bislang nicht aufgelöst werden konnten [Ohk11]. Mit dem Detektor mit zusätzlicher Aluminiumschicht auf den Absorbern konnte zudem eine weitere Linie im Spektrum der Fragmente der Acetonionen beobachtet werden, die bei dem gemessenen Energiespektrum des Detektors mit Absorbern aus purem Gold vom Untergrund verdeckt war. Für die Massenspektroskopie neutraler Molekülfragmente am CSR ist eine Aluminiumschicht auf den Absorbern daher sinnvoll. Anhand der Simulationen und Messungen wurde die herausragende Fähigkeit metallischer magnetischer Kalorimeter zur Massenspektroskopie neutraler Molekülfragmente klar nachgewiesen. Relevante Langzeitauswirkungen auf die Absorber durch die untersuchten Festkörpereffekte sind hierbei, basierend auf weiteren Simulationen und Abschätzungen, nicht zu erwarten.

Um die vollständigen kinematischen Abläufe der am CSR stattfindenden Prozesse zu rekonstruieren, ist zusätzlich zu der Messung der Fragmentmassen auch eine Messung der Auftrefforte auf einer verhältnismäßig großen Detektionsfläche nötig. Zu diesem Zweck wurde im Rahmen dieser Arbeit das hochsegmentierte Detektorarray MOCCA entwickelt, hergestellt und charakterisiert. Mit einer sensitiven Fläche von 4,48 cm \cdot 4,48 cm ist dieses Detektorarray der weltweit größte hochauflösende α -Detektor. Eine neu entwickelte Methode, bei der die Sensoren über paarweise mit der Einkoppelspule eines Stromsensor-SQUIDs verbundene Zeilen und Spalten von Detektionsspulen ausgelesen werden, ermöglicht dabei eine Auslesung von n^2 Sensoren mit n SQUID-Kanälen. Darüber hinaus werden mit Hilfe des Hydra-Prinzips [FF01, Smi09, Por09] vier Absorber über einen Sensor ausgelesen, wobei unterschiedliche thermische Verbindungen zum Sensor verwendet werden, um unterschiedliche Signalanstiegszeiten zu erzielen, anhand derer die gemessenen Signale den jeweiligen Absorbern zugeordnet werden können. Auf diese Weise ist eine Auslesung der 4.096 Absorber des Detektors mit nur 32 SQUID-Kanälen möglich. Als Prototyp des Detektorarrays MOCCA wurde zudem im Rahmen dieser Arbeit das von 8 SQUID-Kanälen ausgelesene kleinere 256-Pixel-Detektorarray MOCCAcino mit einer sensitiven Fläche von $1,12 \,\mathrm{cm} \cdot 1,12 \,\mathrm{cm}$ entwickelt, hergestellt und charakterisiert, welches neben dem kompakteren Format und der geringeren Komplexität auch den Vorteil
einer etwas besseren Energieauflösung bietet.

Um eine geringe Spaltbreite zwischen den einzelnen Absorbern des Detektorarrays zu erzielen und somit den durch die Spalte entstehenden Verlust an sensitiver Fläche gering zu halten, wurde im Rahmen dieser Arbeit ein neuer Prozess entwickelt und zur Fabrikation der Detektoren eingesetzt, welcher eine Herstellung der 698 μ m · 698 μ m · 3 μ m großen Absorber mit sehr kleinen, nur 2 μ m breiten Spalten zwischen diesen ermöglicht. Des Weiteren wurde ein vollständiger Prozess zur Herstellung niederohmiger thermischer Kontakte durch das Detektorsubstrat etabliert, welcher in der nächsten Detektorgeneration implementiert werden soll, um ein wohldefiniertes Abfließen der durch Energieeinträge in den einzelnen Hydren des zweidimensionalen Detektorarrays eingebrachten Wärme zu gewährleisten.

An den im Rahmen dieser Arbeit hergestellten MOCCA- und MOCCAcino-Detektorarrays wurden jeweils Charakterisierungsmessungen mit Röntgenphotonen aus einer ⁵⁵Fe-Quelle durchgeführt. Anhand der ermittelten Induktivitäten wurde dabei die Homogenität der nur $5\,\mu m$ breiten und im Fall von MOCCA insgesamt über 9 m langen Leitungen der Detektionsspulen über die gesamte Detektorfläche hinweg gezeigt. Für das Übersprechen zwischen Zeilen und Spalten von Detektionsspulen wurde ein Wert von unter 0.05% ermittelt. In dem am CSR interessanten Massenbereich ist dieses Übersprechen nicht limitierend um eine Massenauflösung von unter 1 u zu erzielen. Darüber hinaus wurden das verwendete Auslesungsprinzip durch die Messung koinzidenter Signale in den Zeilen und Spalten von Detektionsspulen sowie das verwendete Hydra-Prinzip anhand der gemessenen Signalverläufe demonstriert. Die dabei erzielten Energieauflösungen des Detektorarrays MOCCA zwischen 267 eV und 295 eV bestätigen die Eignung dieses Detektors für die am CSR geplanten Experimente. Mit dem kleineren Detektorarray MOCCAcino wurden Energieauflösungen zwischen 137 eV und 279 eV erzielt. Des Weiteren wurde im Rahmen dieser Arbeit das Detektorlayout für die nächste Generation der Detektorarrays optimiert. Durch die Verwendung des optimierten Detektorlayouts in Kombination mit einem neuen Herstellungsprozess der Detektorleitungen sollten in Zukunft Energieauflösungen von etwa 50 eV für das Detektorarray MOCCA und etwa 24 eV für das Detektorarray MOCCAcino erreichbar sein.

Der für das Jahr 2020 angepeilte Einsatz des Detektorarrays MOCCA am CSR wird in Zukunft die hochaufgelöste Rekonstruktion der vollständigen kinematischen Abläufe der dort stattfindenden Dissoziationsreaktionen bei Umgebungsbedingungen ähnlich derer in interstellaren Molekülwolken ermöglichen. Auf diese Weise können einzigartige Erkenntnisse über die in interstellaren Molekülwolken ablaufende Ionenchemie gewonnen werden. 7. Zusammenfassung

A. Anhang

Absorber-	$m_{ m a}$	$ ho_{ m a}$	$E_{\rm l}$	$E_{\mathbf{v}}$	$E_{\rm o}$
material	[u]	$[g/cm^3]$	[eV]	[eV]	[eV]
Be	9,012	1,848	3	25	3,38
Al	26,982	2,702	3	25	$3,\!36$
Si	28,086	2,3212	2	15	4,70
Sc	44,956	2,989	3	25	$3,\!49$
Ti	47,9	4,519	3	25	4,89
V	50,942	5,960	3	25	$5,\!33$
Cr	$51,\!996$	$7,\!200$	3	25	$4,\!12$
Mn	$54,\!938$	$7,\!4341$	3	25	$2,\!98$
Fe	$55,\!847$	$7,\!8658$	3	25	$4,\!34$
Co	$58,\!933$	8,900	3	25	4,43
Ni	$58,\!69$	$8,\!8955$	3	25	$4,\!46$
Cu	$63,\!546$	8,92	3	25	$3,\!52$
Zn	$65,\!39$	$7,\!14$	3	25	$1,\!35$
Ga	69,72	$5,\!904$	3	25	$2,\!82$
Ge	$72,\!61$	$5,\!35$	2	15	$3,\!88$
Υ	$88,\!905$	4,469	3	25	4,24
Zr	$91,\!22$	6,490	3	25	$6,\!33$
Nb	$92,\!906$	$8,\!57$	3	25	$7,\!59$
Mo	$95,\!94$	10,206	3	25	$6,\!83$
Tc	97	11,500	3	25	$2,\!00$
Ru	$101,\!07$	$12,\!300$	3	25	$6,\!69$
Rh	102,91	$12,\!399$	3	25	5,78
Pd	106,4	$12,\!02$	3	25	$3,\!91$
Ag	$107,\!87$	$10,\!473$	3	25	$2,\!97$

Tab. A.1: Bei den Simulationen verwendete Werte für die Atommasse $m_{\rm a}$, die Dichte $\rho_{\rm a}$, die effektive Energie $E_{\rm l}$, die Versetzungsenergie $E_{\rm v}$ und die Oberflächenbindungsenergie $E_{\rm o}$ der simulierten Absorbermaterialien. Die Werte wurden jeweils von dem bei der Simulation verwendeten Programm SRIM bereitgestellt. Fortgesetzt in Tabelle A.2.

Absorber-	$m_{ m a}$	$ ho_{ m a}$	$E_{\rm l}$	$E_{\mathbf{v}}$	$E_{\rm o}$
material	[u]	$[g/cm^3]$	[eV]	[eV]	[eV]
Cd	112,4	8,642	3	25	1,16
In	114,82	$7,\!300$	3	25	$2,\!49$
Sn	118,71	7,2816	3	25	$3,\!12$
La	$138,\!91$	$6,\!1738$	3	25	4,42
Hf	$178,\!49$	13,310	3	25	$6,\!31$
Ta	180,95	$16,\!601$	3	25	8,10
W	$183,\!85$	$19,\!350$	3	25	8,68
Re	186,2	$20,\!530$	3	25	8,09
Os	190,2	$22,\!480$	3	25	8,13
Ir	192,2	22,421	3	25	$6,\!90$
Pt	$195,\!08$	$21,\!450$	3	25	$5,\!86$
Au	$196,\!97$	19,311	3	25	$3,\!80$
Tl	204,38	$11,\!850$	3	25	1,88
Pb	$207,\!19$	$11,\!3437$	3	25	2,03

Tab. A.2: Fortsetzung von Tabelle A.1.

Literaturverzeichnis

- [Abr70] A. Abragam und B. Bleaney, Electron Paramagnetic Resonance of Transition Metals, Claredon Press, Oxford, 1970.
- [Ade93] D. J. Adelerhof, M. E. Bijlsma, P. B. M. Fransen, T. Weiman, J. Flokstra und H. Rogalla, Fabrication of Nb/Al,AlO_x/Al/Nb Josephson tunnel junctions using reactive ion etching in SF₆, *Physica C*, **209**(4), 477 – 485, 1993.
- [All17] S. Allgeier, Entwicklung einer modularen 36-Kanal-Auslesekette mit rauscharmen SQUID-basierten Vorverstärkern für die 4k-Pixel-Molekülkamera MOCCA, Masterarbeit, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2017.
- [And86] H. H. Andersen, Calorimetric energy-dispersive detectors for ion beam analysis, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B, 15, 722–728, 1986.
- [Ban93] S. R. Bandler, C. Enss, R. E. Lanou, H. J. Maris, T. More, F. S. Porter und G. M. Seidel, Metallic Magnetic Bolometers for Particle Detection, J. Low Temp. Phys., 93(3/4), 709–714, 1993.
- [Bas95] M. Bass, E. W. V. Stryland, D. R. Williams und W. L. Wolfe, Handbook of Optics Volume II Devices, Measurements, and Properties 2nd edition, Number Bd. 1-2 in Handbook of Optics, McGraw-Hill, New York, 1995.
- [Bat50] D. R. Bates, Dissociative Recombination, Phys. Rev., 78, 492–493, 1950.
- [Bat16] C. R. Bates, C. Pies, S. Kempf, D. Hengstler, A. Fleischmann, L. Gastaldo, C. Enss und S. Friedrich, Reproducibility and calibration of MMC-based high-resolution gamma detectors, *Appl. Phys. Lett.*, **109**(2), 023513, 2016.
- [Ben97] W. H. Benner, D. M. Horn, J. M. Jaklevic, M. Frank, C. Mears, S. Labov und A. T. Barfknecht, Simultaneous measurement of flight time and energy of large MALDI ions with a superconducting tunnel junction detector, J. Am. Soc. Mass Spectrom., 8, 1094–1102, 1997.
- [Ber13] O. Berné, G. Mulas und C. Joblin, Interstellar C60+, A&A, 550, L4, 2013.
- [Büh93] M. Bühler, T. Fausch und E. Umlauf, Measurement of Spin-Lattice Relaxation Times at Millikelvin Temperatures, *Europhys. Lett.*, 23(7), 529–534, 1993.

212	Literaturverzeichnis
[Bie80]	J. P. Biersack und L. G. Haggmark, A Monte Carlo computer program for the transport of energetic ions in amorphous targets, <i>Nucl. Instrum. Methods</i> , $174(1)$, 257 – 269, 1980.
[Bie84]	J. P. Biersack und W. Eckstein, Sputtering studies with the Monte Carlo Program TRIM.SP, Appl. Phys. A, 34 (2), 73–94, 1984.
[Boh84]	J. Bohdansky, A universal relation for the sputtering yield of monatomic solids at normal ion incidence, <i>Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B</i> , $2(1)$, 587 – 591, 1984.
[Bol84]	L. Boltzmann, Ableitung des Stefan'schen Gesetzes, betreffend die Abhän- gigkeit der Wärmestrahlung von der Temperatur aus der electromagneti- schen Lichttheorie, Annalen der Physik, 258 (6), 291–294, 1884.
[Bor87]	G. Bortels und P. Collaers, Analytical function for fitting peaks in alpha- particle spectra from Si detectors, <i>Int. J. Rad. Appl. Instrum. A</i> , 38 (10), 831–837, 1987.
[Bru82]	J. J. P. Bruines, V. J. de Waal und J. E. Mooij, Comment on: "DC SQUID: Noise and Optimization" by Tesche and Clarke, <i>J. Low Temp. Phys.</i> , $46(3/4)$, 383–386, 1982.
[Bur04]	A. Burck, Entwicklung großflächiger magnetischer Kalorimeter zur ener- gieaufgelösten Detektion von Röntgenquanten und hochenergetischen Teil- chen, Diplomarbeit, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2004.
[Bur08]	A. Burck, Entwicklung großflächiger mikrostrukturierter magnetischer Ka- lorimeter mit Au:Er- und Ag:Er-Sensoren für den energieaufgelösten Nach- weis von Röntgenquanten und hochenergetischen Teilchen, Dissertation, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2008.
[Cam10]	J. Cami, J. Bernard-Salas, E. Peeters und S. E. Malek, Detection of C_{60} and C_{70} in a Young Planetary Nebula, <i>Science</i> , 329 (5996), 1180–1182, 2010.
[Cam15]	E. K. Campbell, M. Holz, D. Gerlich und J. P. Maier, Laboratory confirmation of C_{60}^+ as the carrier of two diffuse interstellar bands, <i>Nature</i> , 523 , 322, 2015.
[Cam16]	E. K. Campbell, M. Holz, J. P. Maier, D. Gerlich, G. A. H. Walker und D. Bohlender, Gas Phase Absorption Spectroscopy of C_{60}^+ and C_{70}^+ in a Cryogenic Ion Trap: Comparison with Astronomical Measurements, ApJ , 822 , 17, 2016.

- [Cam18] J. Cami, N. L. Cox, A. Farhang, J. Smoker, M. Elyajouri, R. Lallement, X. Bacalla, N. H. Bhatt, E. Bron, M. A. Cordiner, A. de Koter, P. Ehrenfreund, C. Evans, B. H. Foing, A. Javadi, C. Joblin, L. Kaper, H. G. Khosroshahi, M. Laverick, F. . Le Petit, H. Linnartz, C. C. Marshall, A. Monreal-Ibero, G. Mulas, E. Roueff, P. Royer, F. Salama, P. J. Sarre, K. T. Smith, M. Spaans, J. T. . van Loon und G. Wade, The ESO Diffuse Interstellar Band Large Exploration Survey (EDIBLES), *The Messenger*, **171**, 31–36, 2018.
- [Cla04] J. Clarke und A. Braginski (Ed.), The SQUID Handbook: Fundamentals and Technology of SQUIDs and SQUID Systems, Wiley - Weinheim, 2004.
- [Cos93] E. Cosulich, F. Gatti und S. Vitale, Further results on μ -calorimeters with superconducting absorber, J. Low Temp. Phys., **93**(3), 263–268, 1993.
- [Dan05] T. Daniyarov, Metallische magnetische Kalorimeter zum hochaulösenden Nachweis von Röntgenquanten und hochenergetischen Molekülen, Dissertation, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2005.
- [Dru04] D. Drung und M. Mück, SQUID Electronics, in J. Clarke und A. Braginski (Ed.), The SQUID Handbook: Fundamentals and Technology of SQUIDs and SQUID Systems, Wiley - Weinheim, 2004.
- [Dru06] D. Drung, C. Hinnrichs und H.-J. Barthelmess, Low-noise ultra-high-speed dc SQUID readout electronics, *Supercond. Sci. Technol.*, **19**, S235–S241, 2006.
- [dW75] H. de Waard, The Investigation of Radiation Damage and Lattice Location by Nuclear Hyperfine Interaction Techniques, *Physica Scripta*, **11**(3-4), 157, 1975.
- [Ege05] P. Egelhof und S. Kraft-Bermuth, Heavy Ion Physics, in C. Enss (Ed.), Cryogenic Particle Detection, 469–500, Springer, Berlin, Heidelberg, 2005.
- [Ens00] C. Enss, A. Fleischmann, K. Horst, J. Schönefeld, J. Sollner, J. S. Adams, Y. H. Huang, Y. H. Kim und G. M. Seidel, Metallic Magnetic Calorimeters for Particle Detection, J. Low Temp. Phys., 121(3/4), 137–176, 2000.
- [Ens05] C. Enss und S. Hunklinger, Low-Temperature Physics, Springer, Berlin, Heidelberg, 2005.
- [FF01] E. Figueroa-Feliciano, Theory and Development of Position-Sensitive Quantum Calorimeters., Dissertation, Stanford Univ., 2001.

214	Literaturverzeichnis
[Fle00]	A. Fleischmann, J. Schönefeld, J. Sollner, C. Enss, J. S. Adams, S. R. Bandler, Y. H. Kim und G. M. Seidel, Low Temperature Properties of Erbium In Gold, <i>J. Low Temp. Phys.</i> , 118 (1/2), 7–21, 2000.
[Fle03]	A. Fleischmann, Magnetische Mikrokalorimeter: Hochauflösende Röntgen- spektroskopie mit energiedispersiven Detektoren, Dissertation, Kirchhoff- Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2003.
[Fle04]	A. Fleischmann, M. Link, T. Daniyarov, H. Rotzinger, C. Enss und G. Sei- del, Metallic magnetic calorimeters (MMC): detectors for high-resolution X-ray spectroscopy, <i>Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A</i> , 520 (1), 27 – 31, 2004, Proceedings of the 10th International Workshop on Low Temperature Detectors.
[Fle05]	A. Fleischmann, C. Enss und G. M. Seidel, Metallic Magnetic Calori- meters, in C. Enss (Ed.), <i>Cryogenic Particle Detection</i> , Springer, Berlin, Heidelberg, 2005.
[Fle09a]	 A. Fleischmann, L. Gastaldo, S. Kempf, A. Kirsch, A. Pabinger, C. Pies, JP. Porst, P. Ranitzsch, S. Schäfer, F. v. Seggern, T. Wolf, C. Enss und G. M. Seidel, Metallic magnetic calorimeters, <i>AIP Conference Proceedings</i>, 1185, 571–578, 2009.
[Fle09b]	 L. Fleischmann, M. Linck, A. Burck, C. Domesle, C. Höhn, S. Kempf, S. Lausberg, A. Pabinger, C. Pies, JP. Porst, H. Rotzinger, S. Schäfer, R. Weldle, A. Fleischmann, C. Enss und G. M. Seidel, Metallic Magnetic Calorimeters for X-ray Spectroscopy, <i>IEEE Trans. Appl. Supercond.</i>, 19(2), 63–68, 2009.
[Fra76]	S. Fraga, Handbook of Atomic Data, Elsevier Scientific Publishing Company, Amsterdam, 1976.
[Fra96]	M. Frank, C. A. Mears, S. E. Labov, W. H. Benner, D. Horn, J. M. Jakle- vic und A. T. Barfknecht, High-efficiency Detection of 66000 Da Protein Molecules Using a Cryogenic Detector in a Matrix-assisted Laser Desorp- tion/Ionization Time-of-flight Mass Spectrometer, <i>Rapid Commun. Mass</i> <i>Spectrom.</i> , 10 (15), 1946–1950, 1996.
[Fra99]	M. Frank, S. E. Labov, G. Westmacott und W. H. Benner, Energy-sensitive cryogenic detectors for high-mass biomolecule mass spectrometry, <i>Mass Spectrom. Rev.</i> , 18 (3-4), 155–186, 1999.
[Gam13]	L. Gamer, Ein großflächiges magnetisches Kalorimeter zur energie- und ortsauflösenden Detektion von Melekülfragmenten Masterarbeit

- [Gam17] L. Gamer, C. E. Düllmann, C. Enss, A. Fleischmann, L. Gastaldo, C. Hassel, S. Kempf, T. Kieck und K. Wendt, Simulation and optimization of the implantation of holmium atoms into metallic magnetic microcalorimeters for neutrino mass determination experiments, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, 854, 139–148, 2017.
- [Gas17] L. Gastaldo, K. Blaum, K. Chrysalidis, T. Day Goodacre, A. Domula, M. Door, H. Dorrer, C. E. Düllmann, K. Eberhardt, S. Eliseev, C. Enss, A. Faessler, P. Filianin, A. Fleischmann, D. Fonnesu, L. Gamer, R. Haas, C. Hassel, D. Hengstler, J. Jochum, K. Johnston, U. Kebschull, S. Kempf, T. Kieck, U. Köster, S. Lahiri, M. Maiti, F. Mantegazzini, B. Marsh, P. Neroutsos, Y. N. Novikov, P. C. O. Ranitzsch, S. Rothe, A. Rischka, A. Saenz, O. Sander, F. Schneider, S. Scholl, R. X. Schüssler, C. Schweiger, F. Simkovic, T. Stora, Z. Szücs, A. Türler, M. Veinhard, M. Weber, M. Wegner, K. Wendt und K. Zuber, The electron capture in ¹⁶³Ho experiment – ECHo, *The European Physical Journal Special Topics*, **226**(8), 1623–1694, 2017.
- [Gra11] C. Granata, A. Vettoliere, R. Russo, M. Russo und B. Ruggiero, Critical current noise investigations in underdamped Josephson devices, *Phys. Rev.* B, 83, 092504, 2011.
- [Gur11] Y. B. Gurov, S. V. Isakov, V. S. Karpukhin, S. V. Lapushkin, V. G. Sandukovsky und B. A. Chernyshev, Measuring the thickness of dead layers in semiconductor detectors, *Instrum. Exp. Tech.*, 51(1), 59, 2011.
- [Hah92] W. Hahn, M. Loewenhaupt und B. Frick, Crystal field excitations in dilute rare earth noble metal alloys, *Physica B*, 180-181, 176–178, 1992.
- [Hel00] R. Helmer und C. van der Leun, Recommended standards for γ -ray energy calibration (1999), Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, **450**(1), 35 70, 2000.
- [Hen17] D. Hengstler, Development and characterization of two-dimensional metallic magnetic calorimeter arrays for the high-resolution X-ray spectroscopy, Dissertation, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2017.
- [Her95] G. H. Herbig, The Diffuse Interstellar Bands, Annu. Rev. Astron. Astrophys., 33, 19–74, 1995.
- [Her00] T. Herrmannsdörfer, R. König und C. Enss, Properties of er-doped au at ultralow temperatures, *Phys. B*, **284 288, Part 2**, 1698–1699, 2000.
- [Hil98] G. Hilton, J. Martinis, D. Wollman, K. Irwin, L. Dulcie, D. Gerber, P. Gillevet und D. Twerenbold, Impact energy measurement in time-of-flight

mass spectrometry with cryogenic microcalorimeters, *Nature*, **391**(6668), 672–675, 1998.

- [Hof12] V. Hoffmann, Messung der AC-Suszeptibilität von paramagnetischem Au:Er bei Temperaturen oberhalb des Spinglasübergangs, Bachelorarbeit, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2012.
- [Hor10] R. D. Horansky, G. M. Stiehl, J. A. Beall, K. D. Irwin, A. A. Plionis, M. W. Rabin und J. N. Ullom, Measurement of ion cascade energies through resolution degradation of alpha particle microcalorimeters, J. Appl. Phys., 107(4), 044512, 2010.
- [Hub04] J. H. Hubbell und S. M. Seltzer, Tables of X-Ray Mass Attenuation Coefficients and Mass Energy-Absorption Coefficients (Version 1.4), National Institute of Standards and Technology, 2004, Originally published as NISTIR 5632, National Institute of Standards and Technology, 1995.
- [Irw09] K. D. Irwin, Shannon Limits for Low-Temperature Detector Readout, AIP Conference Proceedings, 1185, 229–236, 2009.
- [Iye14] M. Iyer, V. Gavini und T. M. Pollock, Energetics and nucleation of point defects in aluminum under extreme tensile hydrostatic stresses, *Phys. Rev.* B, 89, 014108, 2014.
- [Jac09] T. Jach, J. N. Ullom und W. T. Elam, The microcalorimeter X-ray detector: A true paradigm shift in X-ray spectroscopy, *Eur. Phys. J. Spec. Top.*, 169(1), 237–242, 2009.
- [Jos62] B. D. Josephson, Possible New Effects in Superconducting Tunneling, Phys. Lett., 1(7), 251–253, 1962.
- [Jos65] B. D. Josephson, Supercurrents through barriers, Adv. Phys., 14(56), 419–456, 1965.
- [Kam10] A. Kampkötter, Design-Studie und Entwicklung eines großflächigen metallisch magnetischen Kalorimeters zur orts- und energieauflösenden Detektion von hochenergetischen Molekülfragmenten, Diplomarbeit, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2010.
- [Kap31] J. Kaplan, The Light of the Night Sky, Phys. Rev., 38, 1048–1051, 1931.
- [Kap76] S. B. Kaplan, C. C. Chi, D. N. Langenberg, J. J. Chang, S. Jafarey und D. J. Scalapino, Quasiparticle and phonon lifetimes in superconductors, *Phys. Rev. B*, 14(11), 4854–4873, 1976.

- [Kas56] T. Kasuya, A Theory of Metallic Ferro- and Antiferromagnetism on Zener´s Model, Prog. Theor. Phys., 16(1), 45, 1956.
- [Kem16] S. Kempf, A. Ferring und C. Enss, Towards noise engineering: Recent insights in low-frequency excess flux noise of superconducting quantum devices, Appl. Phys. Lett., 109(16), 162601, 2016.
- [Kem17] S. Kempf, M. Wegner, A. Fleischmann, L. Gastaldo, F. Herrmann, M. Papst, D. Richter und C. Enss, Demonstration of a scalable frequencydomain readout of metallic magnetic calorimeters by means of a microwave SQUID multiplexer, AIP Advances, 7(1), 015007, 2017.
- [Kem18] S. Kempf, A. Fleischmann, L. Gastaldo und C. Enss, Physics and Applications of Metallic Magnetic Calorimeters, J. Low Temp. Phys., 2018.
- [Kin55] G. H. Kinchin und R. S. Pease, REVIEW ARTICLES: The Displacement of Atoms in Solids by Radiation, *Rep. Prog. Phys.*, 18, 1–51, 1955.
- [Kit05] C. Kittel, Introduction to Solid State Physics, 8th. edition, Wiley, 2005.
- [Koc83] R. H. Koch, J. Clarke, W. M. Goubau, J. M. Marinis, C. M. Pegrum und D. J. van Harlingen, Flicker (1/f) noise in tunnel junction dc SQUIDs, J. Low Temp. Phys., 51, 207–224, 1983.
- [Kog81] S. M. Kogan, 1/f noise in spin glasses and in the disordered kinetic ising model, *Solid State Commun.*, **38**(11), 1015–1018, 1981.
- [Kom16] I. Komatsu, H. Aoki, M. Ebisawa, A. Kuroda, K. Kuroda und S. Maeda, Color change mechanism of niobium oxide thin film with incidental light angle and applied voltage, *Thin Solid Films*, 603, 2016.
- [Koz00] A. G. Kozorezov, A. F. Volkov, J. K. Wigmore, A. Peacock, A. Poelaert und R. den Hartog, Quasiparticle-phonon downconversion in nonequilibrium superconductors, *Phys. Rev. B*, **61**, 11807–11819, 2000.
- [Koz12] A. Kozorezov, Energy Down-Conversion and Thermalization in Metal Absorbers, J. Low Temp. Phys., 167(3), 473–484, 2012.
- [Kra11] C. Krantz, F. Berg, K. Blaum, F. Fellenberger, M. Froese, M. Grieser, R. von Hahn, M. Lange, F. Laux, S. Menk, R. Repnow, A. Shornikov und A. Wolf, The Cryogenic Storage Ring and its application to molecular ion recombination physics, J. Phys. Conf. Ser., 300(1), 012010, 2011.
- [Kro81] H. Kroger, L. N. Smith und D. W. Jillie, Selective niobium anodization process for fabricating Josephson tunnel junctions, Appl. Phys. Lett., 39(3), 280–282, 1981.

Lar97]	M. Larsson, DISSOCIATIVE RECOMBINATION WITH ION STORAGE RINGS, Annu. Rev. Phys. Chem., 48(1), 151–179, 1997.
[L'E88]	P. L'Ecuyer, Efficient and Portable Combined Random Number Generators, <i>Commun. ACM</i> , 31 (6), 742–751, 1988.
[L'H84]	A. L'Hoir, Study of the asymmetrical response of silicon surface barrier detectors to MeV light ions. Application to the precise analysis of light ions energy spectra I. Helium ions, <i>Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.</i> , 223 (2), 336 – 345, 1984.
Lin61]	J. Lindhard und M. Scharff, Energy Dissipation by Ions in the kev Region, <i>Phys. Rev.</i> , 124 , 128–130, 1961.
Lin63a]	J. Lindhard, V. Nielsen, M. Scharff und P. V. Thomsen, INTEGRAL EQUATIONS GOVERNING RADIATION EFFECTS. (NOTES ON ATO- MIC COLLISIONS, III), volume 33 (10), Munksgaard, 1963.
[Lin63b]	J. Lindhard, M. Scharff und H. Schiøtt, Range concepts and heavy ion ranges (notes on atomic collisions, 2), volume 33 (14) of <i>Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk.</i> , Munksgaard, 1963.
Lin68]	J. Lindhard, V. Nielsen und M. Scharff, Approximation Method in Classical Scattering by Screened Coulomb Fields: Notes on Atomic Collisions, 1, volume 36 (10) of <i>Matematisk-fysiske meddelelser</i> , Munksgaard, København, 1968.
Lon50]	F. London, Superfluids, Wiley, New York, 1950.
Müc16]	J. F. Mücke, Entwicklung eines Rauschthermometers mit kreuzkorrelierter Auslese für Temperaturen von 4K bis unter 1mK, Masterarbeit, Kirchhoff- Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2016.
[McC05]	D. McCammon, Thermal Equilibrium Calorimeters - An Introduction, in C. Enss (Ed.), <i>Cryogenic Particle Detection</i> , Springer, Berlin, Heidelberg, 2005.
[McG18]	B. A. McGuire, 2018 Census of Interstellar, Circumstellar, Extragalactic, Protoplanetary Disk, and Exoplanetary Molecules, Astrophys J Suppl S., 239 (2), 17, 2018.
Mel05]	X. Mellhaoui, R. Dussart, T. Tillocher, P. Lefaucheux, P. Ranson, M. Bouf- nichel und L. J. Overzet, SiOxFy passivation layer in silicon cryoetching, J. Appl. Phys., 98 (10), 104901, 2005.

Literaturverzeichnis

218

- [Mer34] P. W. Merrill, Unidentified Interstellar Lines, PASP, 46, 206–207, 1934.
- [Mos84] S. H. Moseley, J. C. Mather und D. McCammon, Thermal detectors as x-ray spectrometers, J. Appl. Phys., 56(5), 1257–1262, 1984.
- [Nak12] Y. Nakano, W. Morimoto, T. Majima, J. Matsumoto, H. Tanuma, H. Shiromaru und T. Azuma, A cryogenic electrostatic storage ring project at RIKEN, J. Phys. Conf. Ser., 388(14), 142027, 2012.
- [Nak17] Y. Nakano, Y. Enomoto, T. Masunaga, S. Menk, P. Bertier und T. Azuma, Design and commissioning of the RIKEN cryogenic electrostatic ring (RICE), *Rev. Sci. Instrum.*, 88(3), 033110, 2017.
- [Net07] A. Netsch, Suche nach einem neuartigen, auf wechselwirkenden atomaren Tunnelsystemen basierenden Wärmediffusionsprozess in Gläsern bei ultratiefen Temperaturen, Dissertation, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2007.
- [Nov15] O. Novotny, S. Allgeier, C. Enss, A. Fleischmann, L. Gamer, D. Hengstler, S. Kempf, C. Krantz, A. Pabinger, C. Pies, D. W. Savin, D. Schwalm und A. Wolf, Cryogenic micro-calorimeters for mass spectrometric identification of neutral molecules and molecular fragments, J. Appl. Phys., 118(10), 104503, 2015.
- [Ohk11] M. Ohkubo, S. Shiki, M. Ukibe, S. Tomita und S. Hayakawa, Direct mass analysis of neutral molecules by superconductivity, Int. J. Mass Spectrom., 299(2), 94 – 101, 2011.
- [O'N10] G. C. O'Neil, D. R. Schmidt, N. A. Tomlin und J. N. Ullom, Quasiparticle density of states measurements in clean superconducting AlMn alloys, J. Appl. Phys., 107(9), 093903, 2010.
- [Orl08] D. A. Orlov, M. Lange, M. Froese, R. von Hahn, M. Grieser, V. Mallinger, M. Rappaport, T. Sieber, T. Weber und A. Wolf, CRYOGENIC AND VA-CUUM TECHNOLOGICAL ASPECTS OF THE LOW-ENERGY ELEC-TROSTATIC CRYOGENIC STORAGE RING, AIP Conference Proceedings, 985(1), 1233–1239, 2008.
- [Pab08] A. Pabinger, Entwicklung eines vollständig mikrostrukturierten magnetischen Kalorimeters für die hochauflösende Röntgenspektroskopie, Diplomarbeit, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2008.

- [Per04] E. Perinati, M. Barbera, A. Collura, S. Serio und E. Silver, Spectral broadening by incomplete thermalization of the energy in X-ray microcalorimeters with superconducting absorber and NTD-Ge thermal sensor, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, 531(3), 459 – 466, 2004.
- [Pie08] C. Pies, Entwicklung eines Detektor-Arrays basierend auf magnetischen Kalorimetern für die hochaufgelöste Röntgenspektroskopie an hochgeladenen Ionen, Diplomarbeit, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2008.
- [Pie12a] C. Pies, S. Schäfer, S. Heuser, S. Kempf, A. Pabinger, J.-P. Porst, P. Ranitzsch, N. Foerster, D. Hengstler, A. Kampkötter, T. Wolf, L. Gastaldo, A. Fleischmann und C. Enss, maXs: Microcalorimeter Arrays for High-Resolution X-Ray Spectroscopy at GSI/FAIR, J. Low Temp. Phys., 167(3/4), 269–279, 2012.
- [Pie12b] C. Pies, maXs-200: Entwicklung und Charakterisierung eines Röntgendetektors basierend auf magnetischen Kalorimetern für die hochauflösende Spektroskopie hochgeladener Ionen, Dissertation, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2012.
- [Pob07] F. Pobell, Matter and Methods at Low Temperatures, Springer Berlin Heidelberg, 2007.
- [Por09] J.-P. Porst, S. R. Bandler, J. S. Adams, W.-T. Hsieh, H. Rotzinger, G. M. Seidel, S. J. Smith und T. R. Stevenson, Development of Position-Sensitive Magnetic Calorimeter X-ray Detectors, in B. Young, B. Cabrera und A. Miller (Ed.), American Institute of Physics Conference Series, volume 1185 of American Institute of Physics Conference Series, 599–602, 2009.
- [Por13] J. Porst, S. R. Bandler, J. S. Adams, M. Balvin, J. Beyer, S. E. Busch, D. Drung, M. E. Eckart, R. L. Kelley, C. A. Kilbourne, F. S. Porter, J. E. Sadleir, G. M. Seidel, S. J. Smith und T. R. Stevenson, Time Domain Multiplexed Readout of Magnetically Coupled Calorimeters, *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, 23(3), 2500905–2500905, 2013.
- [Por14] J.-P. Porst, S. R. Bandler, J. S. Adams, M. A. Balvin, S. E. Busch, M. E. Eckart, R. L. Kelley, C. A. Kilbourne, S. J. Lee, P. C. Nagler, F. S. Porter, J. E. Sadleir, G. M. Seidel, S. J. Smith und T. R. Stevenson, Characterization and Performance of Magnetic Calorimeters for Applications in X-ray Spectroscopy, J. Low Temp. Phys., 176, 617–623, 2014.
- [Pow74] R. Powers, P. Martin, G. Miller, R. Welsh und D. Jenkins, Muonic 197Au: A test of the weak-coupling model, Nucl. Phys. A, 230(3), 413–444, 1974.

- [Ran11] P. C. Ranitzsch, S. Kempf, A. Pabinger, C. Pies, J.-P. Porst, S. Schäfer, A. Fleischmann, L. Gastaldo, C. Enss, Y. S. Jang, I. H. Kim, M. S. Kim, Y. H. Kim, J. S. Lee, K. B. Lee, M. K. Lee, S. J. Lee, W. S. Yoon und Y. N. Yuryev, Development of cryogenic alpha spectrometers using metallic magnetic calorimeters, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, 652, 299– 301, 2011.
- [Rei17] A. Reifenberger, Spezifische Wärme von supraleitenden metallischen Gläsern bei tiefen Temperaturen, Dissertation, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2017.
- [Rin17] T. Rinke und C. Koch, Fotolithografie: Grundlagen der Mikrostrukturierung, MicroChemicals GmbH, 2017.
- [Rob63] M. T. Robinson und O. S. Oen, The Channeling of Energetic Atoms in Crystal Lattices, Appl. Phys. Lett., 2, 30–32, 1963.
- [Rob70] M. T. Robinson, THE ENERGY DEPENDENCE OF NEUTRON RADIA-TION DAMAGE IN SOLIDS, 364–378, British Nuclear Energy Society, 1970.
- [Rog83] C. Rogers und R. Buhrman, Conductance fluctuations and low frequency noise in josephson junctions, *IEEE Trans. Magn.*, 19(3), 453–457, 1983.
- [Rot08] H. Rotzinger, J. Adams, S. R. Bandler, J. Beyer, H. Eguchi, E. Figueroa-Feliciano, W. Hsieh, G. M. Seidel und T. Stevenson, Performance of Microfabricated Magnetic Calorimeter Arrays for X-ray Spectroscopy, J. Low Temp. Phys., 151(1/2), 351–356, 2008.
- [Rot13] D. S. Rothfuß, Thermische Eigenschaften von supraleitenden massiven metallischen Gläsern bei ultratiefen Temperaturen, Dissertation, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2013.
- [Rud54] M. A. Ruderman und C. Kittel, Indirect exchange coupling of nuclear magnetic moments by conduction electrons, *Phys. Rev.*, 96, 99–102, 1954.
- [Sar06] P. J. Sarre, The diffuse interstellar bands: A major problem in astronomical spectroscopy, J. Mol. Spectrosc., 238(1), 1 – 10, 2006.
- [Sau95] J. E. Sauvageau, C. J. Burroughs, P. A. A. Booi, M. W. Cromar, S. P. Benz und J. A. Koch, Superconducting Integrated Circuit Fabrication With Low Temperature ECR-Based PECVD SiO₂ Dielectric Films, *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, 5(2), 2303–2309, 1995.

- [Sch00] J. Schönefeld, Entwicklung eines mikrostrukturierten magnetischen Tieftemperatur-Kalorimeters zum hochauflösenden Nachweis von einzelnen Röntgenquanten, Dissertation, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2000.
- [Sch12] S. Schäfer, Entwicklung einer Detektorzeile aus metallischen magnetischen Kalorimetern zur hochauflösenden Röntgenspektroskopie an hochgeladenen Ionen, Dissertation, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2012.
- [Sch13] H. T. Schmidt, R. D. Thomas, M. Gatchell, S. Rosén, P. Reinhed, P. Löfgren, L. Brännholm, M. Blom, M. Björkhage, E. Bäckström, J. D. Alexander, S. Leontein, D. Hanstorp, H. Zettergren, L. Liljeby, A. Källberg, A. Simonsson, F. Hellberg, S. Mannervik, M. Larsson, W. D. Geppert, K. G. Rensfelt, H. Danared, A. Paál, M. Masuda, P. Halldén, G. Andler, M. H. Stockett, T. Chen, G. Källersjö, J. Weimer, K. Hansen, H. Hartman und H. Cederquist, First storage of ion beams in the Double Electrostatic Ion-Ring Experiment: DESIREE, *Rev. Sci. Instrum.*, 84(5), 055115, 2013.
- [Sch19] C. D. Schötz, PolarmaXs: hochauflösendes, polarisationssensitives Röntgenspektrometer basierend auf magnetischen Mikrokalorimetern, Dissertation, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2019.
- [Sho09] A. Shornikov, D. A. Orlov, M. Grieser, K. Blaum und A. Wolf, ULTRA-LOW ENERGY ELECTRON COOLER FOR THE HEIDELBERG CSR, *Proceedings of COOL09, Lanzhou, China*, THM2MCCO03, 2009.
- [Sjö75] M. E. Sjöstrand und G. Seidel, Hyperfine resonance properties of Er^{3+} in Au, *Phys. Rev. B*, **11**(9), 3292–3297, 1975.
- [Smi09] S. J. Smith, S. R. Bandler, R. P. Brekosky, A. Brown, J. A. Chervenak, M. E. Eckart, E. Figueroa-Feliciano, F. M. Finkbeiner, R. L. Kelley, C. A. Kilbourne, F. S. Porter und J. E. Sadleir, Development of Position-Sensitive Transition-Edge Sensor X-Ray Detectors, *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, 19(3), 451–455, 2009.
- [Smi12] S. J. Smith, J. S. Adams, C. N. Bailey, S. R. Bandler, J. A. Chervenak, M. E. Eckart, F. M. Finkbeiner, R. L. Kelley, C. A. Kilbourne, F. S. Porter und J. E. Sadleir, Small Pitch Transition-Edge Sensors with Broadband High Spectral Resolution for Solar Physics, J. Low Temp. Phys., 167(3/4), 168–175, 2012.

- [Spa18] S. Spaniol, Electron Transport System for Fast-Timing-Readout at a Micro-Calorimeter Particle Detector, Bachelorarbeit, Max-Planck-Institut für Kernphysik (MPIK), Heidelberg, 2018.
- [Stä18] C. Ständer, Aufbau und Vergleich von zwei kreuzkorrelierten, stromsensitiven Rauschthermometern für tiefe Temperaturen, Bachelorarbeit, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2018.
- [Sta93] K. G. Stawiasz und M. B. Ketchen, Noise measurements of series SQUID arrays, *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, 3, 1808 – 1811, 1993.
- [Ste79] J. Stefan, Über die Beziehung zwischen der Wärmestrahlung und der Temperatur, Sitzungsberichte der mathematisch-naturwissenschaftlichen Classe der kaiserlichen Akademie der Wissenschaften, Wien, 79, 391–428, 1879.
- [Ste68] W. C. Stewart, Current-Voltage Characteristics of Josephson Junctions, Appl. Phys. Lett., 12(8), 277–280, 1968.
- [Swa89] E. T. Swartz und R. O. Pohl, Thermal boundary resistance, *Rev. Mod. Phys.*, **61**(3), 605–668, 1989.
- [Tao71] L. J. Tao, D. Davidov, R. Orbach und E. P. Chock, Hyperfine Splitting of Er and Yb Resonance in Au: A Separation between the Atomic and Covalent Contributions to the Exchange Integral, *Phys. Rev. B*, 4(1), 5–9, 1971.
- [Tes77] C. D. Tesche und J. Clarke, dc SQUID: Noise and Optimization, J. Low Temp. Phys., 29(3/4), 301–331, 1977.
- [Tho11] R. D. Thomas, H. T. Schmidt, G. Andler, M. Björkhage, M. Blom, L. Brännholm, E. Bäckström, H. Danared, S. Das, N. Haag, P. Halldén, F. Hellberg, A. I. S. Holm, H. A. B. Johansson, A. Källberg, G. Källersjö, M. Larsson, S. Leontein, L. Liljeby, P. Löfgren, B. Malm, S. Mannervik, M. Masuda, D. Misra, A. Orbán, A. Paál, P. Reinhed, K.-G. Rensfelt, S. Rosén, K. Schmidt, F. Seitz, A. Simonsson, J. Weimer, H. Zettergren und H. Cederquist, The double electrostatic ion ring experiment: A unique cryogenic electrostatic storage ring for merged ion-beams studies, *Rev. Sci. Instrum.*, 82(6), 065112, 2011.
- [Tie05] A. G. G. M. Tielens, The Physics and Chemistry of the Interstellar Medium, Cambridge University Press, 2005.
- [Tor72] I. M. Torrens und M. T. Robinson, Computer Simulation of Atomic Displacement Cascades in Solids, in P. C. Gehlen, J. R. Beeler und R. I. Jaffee

(Ed.), Interatomic Potentials and Simulation of Lattice Defects, 423–436, Springer US, Boston, MA, 1972.

- [Trä15] H. Tränkler und L. Reindl, Sensortechnik: Handbuch für Praxis und Wissenschaft, VDI-Buch, Springer Berlin Heidelberg, 2015.
- [Twe96] D. Twerenbold, Biopolymer mass spectrometer with cryogenic particle detectors, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, 370(1), 253 – 255, 1996.
- [Ull15] J. N. Ullom und D. A. Bennett, Review of superconducting transition-edge sensors for x-ray and gamma-ray spectroscopy, *Superconductor Science and Technology*, 28(8), 084003, 2015.
- [vH16] R. von Hahn, A. Becker, F. Berg, K. Blaum, C. Breitenfeldt, H. Fadil, F. Fellenberger, M. Froese, S. George, J. Göck, M. Grieser, F. Grussie, E. A. Guerin, O. Heber, P. Herwig, J. Karthein, C. Krantz, H. Kreckel, M. Lange, F. Laux, S. Lohmann, S. Menk, C. Meyer, P. M. Mishra, O. Novotný, A. P. O' Connor, D. A. Orlov, M. L. Rappaport, R. Repnow, S. Saurabh, S. Schippers, C. D. Schröter, D. Schwalm, L. Schweikhard, T. Sieber, A. Shornikov, K. Spruck, S. Sunil Kumar, J. Ullrich, X. Urbain, S. Vogel, P. Wilhelm, A. Wolf und D. Zajfman, The cryogenic storage ring CSR, *Rev. Sci. Instrum.*, 87(6), 063115, 2016.
- [Vog74] G. Vogl, Radiation Damage and Structural Lattice Defects, J. Phys. Colloques, 35, C6–165–C6–180, 1974.
- [Wak86] R. Wakai und D. V. Harlingen, Low-frequency noise and discrete charge trapping in small-area tunnel junction dc SQUID's, Appl. Phys. Lett., 49, 593–595, 1986.
- [Wal94] D. J. Wales und J. Uppenbrink, Rearrangements in model face-centeredcubic solids, *Phys. Rev. B*, 50, 12342–12361, 1994.
- [Wal15] G. A. H. Walker, D. A. Bohlender, J. P. Maier und E. K. Campbell, Identification of More Interstellar C_{60}^+ Bands, ApJL, **812**, L8, 2015.
- [Wel87] F. C. Wellstood, C. Urbina und J. Clarke, Low-frequency noise in dc superconducting quantum interference devices below 1 K, Appl. Phys. Lett., 50(12), 772–774, 1987.
- [Wel91] R. P. Welty und J. M. Martinis, A series array of DC SQUIDs, IEEE Trans. Magn., 27, 2924 – 2926, 1991.
- [Wel94] F. Wellstood, C. Urbina und J. Clarke, Hot electron effect in metals, Phys. Rev. B, 49, 5942–5955, 1994.

- [Wel04] F. C. Wellstood, C. Urbina und J. Clarke, Flicker (1/f) noise in the critical current of Josephson junctions at 0.09-4.2K, Appl. Phys. Lett., 85(22), 5296-5298, 2004.
- [Wiß13] V. Wißdorf, Magnetisches 1/f-Rauschen und Imaginärteil der magnetischen Suszeptibilität von Erbium dotiertem Gold bei Millikelvin Temperaturen, Bachelorarbeit, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2013.
- [Wil69] G. Williams und L. L. Hirst, Crystal-Field Effects in Solid Solutions of Rare Earths in Noble Metals, Phys. Rev., 185(2), 407–414, 1969.
- [Wiz79] J. L. Wiza, Microchannel plate detectors, Nucl. Instrum. Methods, 162(1), 587 - 601, 1979.
- [Wu11] A. Wu, S. Jin, X. Y. Lu, R. A. Rimmer und K. Zhao, EFFECTS OF THE THICKNESS OF NIOBIUM SURFACE OXIDE LAYERS ON FIELD EMISSION*, Proceedings of IPAC2011, San Sebastián, Spain, 355–357, 2011.
- [Yin14] L. Ying, X. Kang, L. Zhang, G. Zhang, H. Wang, W. Peng, X. Kong, X. Xie und Z. Wang, Investigation of profile characteristics and interface of anodized niobium superconducting films, *Physica C*, 499, 50–53, 2014.
- [Yoo15] W. Yoon, C. Kang, S. Kim, G. Kim, H. Lee, M. Lee, J. Lee, J. So und Y. Kim, Development of a high resolution alpha spectrometer using a magnetic calorimeter, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, **784**, 143– 146, 2015, Symposium on Radiation Measurements and Applications 2014 (SORMA XV).
- [Yos57] K. Yosida, Magnetic Properties of Cu-Mn Alloys, Phys. Rev., 106, 893–898, 1957.
- [Zie10] J. F. Ziegler, M. D. Ziegler und J. P. Biersack, SRIM The stopping and range of ions in matter (2010), Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B, 268(11), 1818–1823, 2010.
- [Zie15] J. F. Ziegler, J. P. Biersack und M. D. Ziegler, SRIM, the Stopping and Range of Ions in Matter, SRIM Co., Chester, Maryland, 2015.
- [Zub08] R. A. Zubarev, A. R. Zubarev und M. M. Savitski, Electron capture/transfer versus collisionally activated/induced dissociations: Solo or duet?, Journal of the American Society for Mass Spectrometry, 19(6), 753-761, 2008.

Ich erkläre hiermit, dass ich die vorgelegte Dissertation selbst verfasst und mich dabei keiner anderen als der von mir ausdrücklich bezeichneten Quellen und Hilfen bedient habe.

Heidelberg, den

.....

(Lisa Elena Gamer)