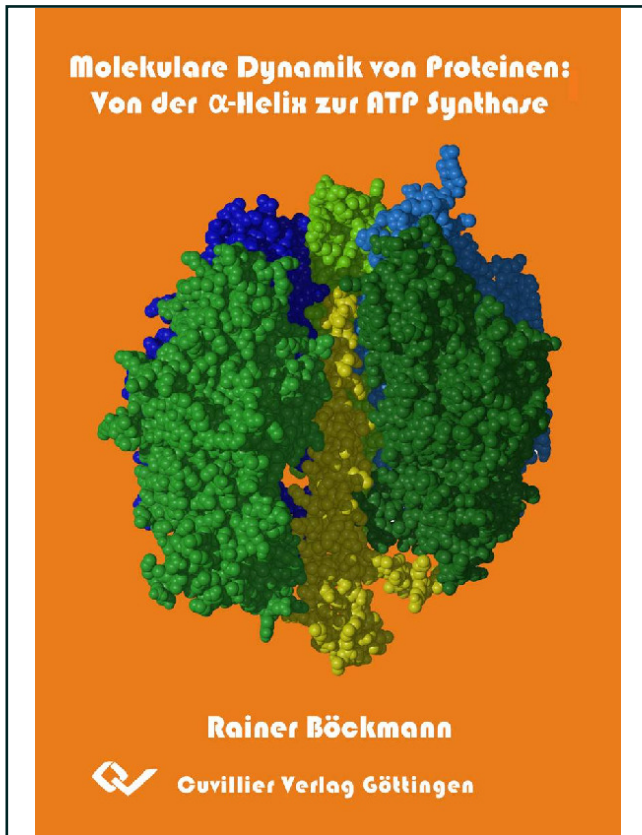




Rolf Bobbenkamp (Autor)

**Entwicklung und erprobung eines neuartigen zeit-
und ortssensitiven Detektors zur Laserdiagnostik
von chemischen Reaktionen und Analyse von
Fluoreszenzlebensdauern, 3D-Teilchspuren und
Entfernungen**



<https://cuvillier.de/de/shop/publications/3492>

Copyright:

Cuvillier Verlag, Inhaberin Annette Jentzsch-Cuvillier, Nonnenstieg 8, 37075 Göttingen,
Germany

Telefon: +49 (0)551 54724-0, E-Mail: info@cuvillier.de, Website: <https://cuvillier.de>

Kapitel 1

Einleitung

Meßsysteme zur zweidimensionalen Ortsbestimmung und gleichzeitigen Zeitmessung finden vielfältigen Einsatz in der experimentellen Physik. Derartige Detektoren werden z.B. zur Untersuchung der Dynamik molekularer Reaktionen eingesetzt, um die dabei zugrundeliegenden physikalischen Prozesse durch simultane Bestimmung der Auftrefforte der Reaktionsprodukte in der 2D-Detektorebene und deren Ankunftszeiten studieren zu können. Anwendungsgebiete sind z.B. die Erkennung molekularer Strukturen [1] oder die Beobachtung der Dynamik zahlreicher molekularer Dissoziationsprozesse wie Photodissoziation [2], dissoziative Rekombination [3] oder durch Atom-Molekülstöße induzierte Dissoziation [4]. In diesen Anwendungen erhält man in der Regel Informationen über den Zustand eines Moleküls vor einem Dissoziationsprozeß und über die entstehenden Fragmente, wobei Winkelabhängigkeiten, kinetische Energien der Fragmente usw. Informationen über die Dynamik liefern. Die Anforderungen an die Auflösung des Detektors liegen dabei typischerweise bei $\sim 100 \mu\text{m}$ für die Position und $\sim 1 \text{ ns} - 100 \text{ ps}$ für die Zeitbestimmung. Eine wichtige Eigenschaft ist somit eine hohe Auflösung für Ort- und Zeitmessung und dies möglichst ohne eine Detektor-Totzeit nach dem Auftreffen eines Teilchens. Üblicherweise bestehen derartige Detektoren aus Mikrokanalplatten (MCP), die von einer Anodenanordnung (z.B. Gitternetz [5] [6] [7]) zum Abgreifen der Orts- und Zeitinformation abgeschlossen werden. Im Zuge der Entwicklung kostengünstiger elektronischer CCD-Kameras (charge-coupled device) werden heute Phosphorschirme als Anode für die MCPs verwendet, so daß am Auftreffort eines Teilchens eine Leuchtemission entsteht, deren Position mit einer CCD-Kamera leicht gemessen werden kann. Die hohe Ortsauflösung solcher CCD-Kameras erlaubt

die Position vieler an unterschiedlichen Positionen des Detektors auftretender Teilchen simultan zu messen (multi-particle imaging). Dabei geht jedoch die Zeitinformation verloren, sofern nicht zusätzliche spezielle zeitsensitive Bauelemente wie optisch gekoppelte Photomultiplier als Anodensegmente [2] [8] [9] oder zwischen MCP und Phosphorschirm angebrachte Anodengitter verwendet werden. Dies bedeutet, daß mit bisherigen Detektoren zwar sehr gute Zeitaufösungen erreicht werden (~ 60 ps sind möglich [8]), aber die Anzahl der Teilchen, die auf diese Weise simultan detektiert werden können, ist durch die Anodenanordnung begrenzt. Die simultane Bestimmung der Position und der zugehörigen Zeitinformation für viele Ereignisse mit hoher Auflösung stellt für die bislang verfügbaren Meßsysteme eine essentielle Schwierigkeit dar.

In dieser Arbeit wird ein neuartiger Detektor vorgestellt, der es erlaubt, simultan und ohne Totzeit für eine praktisch unbegrenzte Zahl von Ereignissen deren 2D-Position und Zeitinformation zu messen, solange unterschiedliche Ereignisse räumlich getrennt auf den Detektor treffen. Die zu untersuchende Detektoreingangsverteilung (z.B. Reaktionsprodukte) trifft bei dieser Methode ebenfalls auf eine Kombination aus Verstärkereinheit (z.B. MCP) und einem nachgeschalteten Phosphorschirm. Die Phosphoreszenz wird aber nicht wie bisher in einem einzigen Kamerabild aufintegriert, wodurch die Zeitinformation verloren geht, sondern auf zwei 2D-Bilder, die unabhängig voneinander integrieren und unterschiedliche Anteile der Phosphoreszenz erfassen, aufgeteilt. Aus dem Verhältnis der Signalstärken dieser beiden Kamerabilder (Integrationsintervalle) kann die Zeitinformation für jedes Ereignis innerhalb der Detektorebene ermittelt werden, also eine (x,y,t)-Messung. Das grundlegend neuartige Prinzip dieses Meßsystems, die Aufteilung der Phosphoreszenz auf zwei Zeitbereiche, wurde erstmals von Zajfman et al. [10] präsentiert und seine Funktionsweise experimentell gezeigt. Davon ausgehend wurde in dieser Arbeit mit speziellen CCD-Kamerasystemen ein universell einsetzbarer orts- und zeitauflösender Detektor in unterschiedlichen technischen Ausführungen entwickelt, charakterisiert und in experimentellen Anwendungen eingesetzt und erprobt. Der wesentliche Vorteil besteht darin, daß die Zeitbestimmung simultan für jede einzelne Einheit (Pixel) der Sensorfläche des CCD-Kamerasystems durchgeführt werden kann. Somit begrenzt die Anzahl der Pixel auf der Sensorfläche die Zahl der simultan analysierbaren Ereignisse und kann bei den heute verfügbaren CCD-Chips als praktisch unbegrenzt angesehen werden. Ortsauflösungen liegen für dieses Meßsystem im Bereich

der Pixelgröße ($9 \times 9 \mu\text{m}$) und Zeitauflösungen im ns-Bereich und besser, bis zu 200 ps für Einzelereignisse, wurden mit den hier verwendeten Apparaturen erreicht.

Das in dieser Arbeit entwickelte Detektorsystem besitzt vielseitige Anwendungsmöglichkeiten. Anstelle von einzelnen Teilchen, kann das Meßverfahren genauso gut genutzt werden, um flächenhafte Eingangsverteilungen orts- und zeitaufgelöst zu analysieren. Das Detektoreingangssignal ist auch nicht auf Teilchen beschränkt. Durch den Einsatz von Photokathoden kann einfallende Strahlung (z.B. Licht) analysiert werden. Dies ermöglicht den Einsatz des Detektors zur Abstandsmessung (Laser-Radar, **LADAR**). Die Anwendung in der Teilchenspür-Analyse liefert neben dem räumlichen Spurverlauf zudem die lokale Geschwindigkeit bzw. Beschleunigung (**Particle Tracking**). Außer der Ankunftszeit für Teilchen und nahezu instantane Lichtpulse kann die hier vorgestellte Meßmethode auch auf zeitlich ausgedehnte Eingangsverteilungen (z.B. Fluoreszenzsignale) zur Ermittlung von Lebensdauern im ns-Bereich angewandt werden und u.a. zur Identifikation von fluoreszierenden Substanzen (Fluorescence Lifetime Imaging, **FLIM**), z.B. in der Biomedizin, genutzt werden.

Zwei unterschiedliche Verfahren hinsichtlich der Aufteilung der Phosphoreszenz kamen in dieser Arbeit zum Einsatz. In der ersten Variante wird die Aufteilung durch **eine** einzige CCD-Kamera, die im sogenannten Doppelbild-Modus mit einem einzigen CCD-Chip zwei Vollbilder sehr schnell nacheinander, also innerhalb des Phosphorabklingens, aufnehmen kann, zur Realisierung des Detektors verwendet. In einer aufbautechnisch aufwendigeren Variante wurde das neuartige Meßprinzip mit **zwei** separaten Einzelbild-Kameras zur Aufteilung der Phosphoreszenz verwendet. Im anschließenden Kapitel 2 wird das grundlegende Prinzip dieses neuartigen Detektors näher erläutert. Theoretische Grundlagen zur Lumineszenz, soweit hier erforderlich, sind in Kapitel 3 zusammengefaßt. Dort findet sich zudem eine theoretische Abschätzung über die Bedeutung der mit diesem Detektor meßbaren Zeitinformationen für unterschiedliche Eingangssignale. Kapitel 4 beschreibt den experimentellen Aufbau des Detektors und die Funktionsweise der dazu verwendeten Komponenten. Eine ausführliche Charakterisierung der Detektoreigenschaften, die zum universellen Einsatz des Detektorsystems bekannt sein müssen, folgt in Kapitel 5. Die mit den Detektorsystemen erreichten Zeitauflösungen sind in Kapitel 6 gegenübergestellt. Um die vielfältigen Einsatzmöglichkeiten des Detektors und die damit verbundenen Vorteile gegen-

über bestehenden Meßsystemen zu demonstrieren, wurde das Meßsystem in zahlreichen Experimenten eingesetzt und getestet, vorwiegend in der Ein-Kamera-Variante. Die wichtigsten dieser Messungen sind in Kapitel 7 dargestellt.