KfK 4068 März 1986

Zur Physik intensiver, elektrostatisch beschleunigter Clusterionen-Strahlen

H. O. Moser Institut für Kernverfahrenstechnik

Kernforschungszentrum Karlsruhe

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Institut für Kernverfahrenstechnik

KfK 4068

Zur Physik intensiver, elektrostatisch beschleunigter Clusterionen-Strahlen

von

H. O. Moser

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

Von der Fakultät für Maschinenbau der Universität Karlsruhe (T.H.) genehmigte Habilitationsschrift.

Als Manuskript vervielfältigt Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH Postfach 3640, 7500 Karlsruhe 1

ISSN 0303-4003

<u>Zur Physik intensiver, elektrostatisch beschleunigter Clusterionen-</u> <u>Strahlen</u>

Zusammenfassung

Die an den Clusterionenbeschleunigern in Karlsruhe und Lyon durchgeführten Entwicklungsarbeiten haben zu Strahlströmen und -stromdichten in den Grö-Benordnungen von 10 Ao bzw. 1 Ao/cm² bei kinetischen Energien der Größenordnung 10 eV/Atom geführt. Neben der wohlbekannten Raumladungsgrenze manifestiert sich ein weiterer begrenzender Effekt, der auf den Stößen der Clusterionen untereinander und mit Untergrundgas beruht. Durch die dabei erfolgende teilweise Verdampfung der Clusterionen wird zusätzlich Untergrundgas gebildet und bei Überschreiten einer Grenzstromdichte eine Instabilität ausgelöst. Skalierungsrelationen, die aus den begrenzenden Prozessen abgeleitet werden, weisen darauf hin, daß durch die Verwendung von bandförmigen Strahlen im Karlsruher Beschleuniger etwa eine Größenordnung mehr Strom möglich sein sollte. Ein für die Steuerung der Energie pro Atom wichtiges Ergebnis ist, daß die Anzahl der Atome pro Ladung sowohl bei großen (105 Atome pro Ladung) als auch bei kleinen (100 Atome pro Ladung) Clusterionen umgekehrt proportional zum Elektronenstrom im Ionisator geht, was mit Mehrfach-Aufladung bei großen bzw. mit symmetrischer Fragmentierung bei kleinen Clusterionen erklärt wird.

<u>On the physics of intense, electrostatically accelerated cluster-ion beams</u> <u>Abstract</u>

The development work performed on the cluster-ion accelerators at Karlsruhe and Lyon has led to beam currents and flux densities of the order of 10 A_0 and 1 A_0/cm^2 , respectively, at kinetic energies of the order of 10 eV/atom. Besides the well-known space-charge limit, an additional limiting effect appears which is caused by collisions of cluster ions among themselves and with background gas. The ensuing partial evaporation of cluster ions leads to the production of additional background gas and may cause instability if a limiting flux density is exceeded. Scaling relations, derived from the limiting processes, suggest that by use of band-shaped beams it should be possible to increase the current by one order of magnitude in the Karlsruhe accelerator. Another result, which is important for the control of the energy per atom, is that both for large (105 atoms/charge) and for small (100 atoms/charge) cluster ions the number of atoms per charge is inversely proportional to the electron current in the ionizer. This effect is explained by multiple charging and symmetrical fractioning of large and small cluster ions, respectively.

<u>ln</u>	haltsverzeichnis	<u>Seite</u>
1.	Einleitung und Überblick	3
2.	Anlage zur Erzeugung und Beschleunigung der Clusterionen- Strahlen	7
	2.1 Clusterstrahlerzeugung	7
	2.2 Ionisation	<u>9</u>
	2.3 Beschleunigung	11
	2.4 Gesamtaufbau des Beschleunigers	13
3.	Einrichtungen zur Diagnostik der Clusterionen-Strahlen	18
	3.1 Flugzeitspektrometer zur Bestimmung der Geschwindig- keitsverteilung	19
	3.2 Kalorimeter-Pendel zur Messung des Impuls- und Energiestroms	22
	3.3 Drahtgitter-Profilmonitor und x-y-Schlitten zur Messung des Strahlprofils	24
4.	Experimentelle Ergebnisse und Vergleich mit theoretischen Abschätzungen	27
	4.1 Erreichte Ströme und Stromdichten	27
	4.2 Vergleich mit dem raumladungsbestimmten Strom	32
	4.3 Überstrichener Bereich der mittleren Anzahl an Atomen pro Ladung und Form der Verteilung	35
	4.4 Begrenzung des Stroms durch Wechselwirkung mit dem Untergrundgas	44
	4.4.1 Ableitung der Maximalwerte des Stroms und der Stromdichte	44
	4.4.2 Mittlerer Masseverlust pro Stoß eines Cluster- ions mit einem Untergrundgas-Teilchen	50
	4.4.3 Einfluß der Geschwindigkeitsverteilung der Clusterionen	.54
	4.5 Skalierungsrelationen	58
5.	Diskussion der Ergebnisse	61

- 1 -

Seite

Anhang	I:	Flugzeitspektrometer zur Bestimmung der		
		Geschwindigkeitsverteilung	A	1
Anhang	II:	Bestimmung des Impulsstroms mit einem physika- lischen Pendel	A	24
Anhang	III:	Zusammenhang zwischen Fragment- und Cluster- ionengröße	A	38
Anhang	IV:	Erzeugung von Untergrundgas bei der Elektronen- stoß-Ionisation	A	41
Anhang	V:	Einfluß der Stöße der Clusterionen unterein- ander und mit dem ruhenden Untergrundgas auf die Grenzstromdichte	A	45
Anhang	VI:	Berechnung des mittleren Masseverlustes pro Stoß eines Clusterions mit einem Untergrund- gas-Teilchen	A	47
Anhang	VII:	Mittelwert des Quadrates der Relativgeschwin- digkeit bei einer logarithmischen Normalver- teilung	A	51
Literat	turverzeid	chnis	A	53

1. Einleitung und Überblick

Vor mehr als 20 Jahren wurde von E.W. Becker und Mitarbeitern gezeigt, daß bei der Erzeugung von Molekularstrahlen mit Düsen eine teilweise Zusammenlagerung der Strahlteilchen auf Grund der van der Waals-Kräfte erreicht werden kann, die zu einer außerordentlichen Intensitätssteigerung der im Hochvakuum laufenden Strahlen führt /1.1, 1.2/. Die Arbeitsgruppe schlug vor, solche "kondensierten Molekularstrahlen", die später "Clusterstrahlen" genannt wurden, zur gerichteten Einführung des aus einem Deuterium-Tritium-Gemisch bestehenden Kernbrennstoffs bei Kernfusionsexperimenten zu verwenden /1.3/.

Die entsprechenden Möglichkeiten wurden wesentlich durch Arbeiten von W. Henkes erweitert, nach denen sich Clusterstrahlen durch Elektronenbeschuß ionisieren und anschließend elektrostatisch beschleunigen lassen /1.4, 1.5/. Dadurch wurde die Aussicht eröffnet, die Clusterionen mit einer für die Brennstoffeinführung günstigen höheren kinetischen Energie zu versehen. Die Verwendung von Clusterionen anstelle von Atomoder Molekülionen und der Einsatz entsprechend höherer Beschleunigungsspannungen entschärfen das sich bei der Erzeugung intensiver Ionenstrahlen mit relativ niedrigen Energien pro Nukleon stellende Raumladungsproblem.

Die Erzeugung und elektrostatische Beschleunigung von Clusterionenstrahlen wurde in der Folgezeit zu einem Hauptarbeitsgebiet des Institutes für Kernverfahrenstechnik /1.6, 1.7, 1.8/. Nach Vorexperimenten im Labormaßstab mit Beschleunigungsspannungen von einigen 10 kV konnten Versuche an den Hochspannungsanlagen des Instituts für Aerobiologie der Fraunhofergesellschaft in Grafschaft /1.9/ und des Institut de Physique Nucléaire der Universität Lyon /1.10/ durchgeführt werden. Gleichzeitig wurde in Karlsruhe mit dem Bau eines für maximal 1 MV und 120 mA ausgelegten Hochgradient-Clusterionenbeschleunigers begonnen /1.11/. Die Erzeugung, Beschleunigung und Diagnostik intensiver Clusterionen-Strahlen an den Anlagen in Karlsruhe und Lyon sind Gegenstand der vorliegenden Arbeit. Die durch Elektronenstoß-Ionisation gebildeten Clusterionen haben eine breite Verteilung der Anzahl an Atomen pro Ladung N/Z, so daß sich bei der elektrostatischen Beschleunigung eine ebenfalls breite Geschwindigkeitsverteilung ergibt. Hauptaufgabe der Strahldiagnostik ist die Bestimmung dieser Geschwindigkeitsverteilung, eines zu ihrer Normierung dienenden integralen Strahlparameters, wie z. B. des Impulsstroms, und des Strahlprofils. Der beschleunigte Strom an Atomen ergibt sich dann einfach als Verhältnis von Impulsstrom zu mittlerem Impuls pro Atom, wie er aus der Geschwindigkeitsverteilung folgt. Zur Bestimmung dieser Verteilung wurde im Rahmen dieser Arbeit ein Flugzeit-Verfahren entwikkelt, der Impulsstrom wird mit einem ballistischen Pendel gemessen, und Strahlprofile werden mit Drahtgitter-Monitoren oder durch Verschieben von Detektoren aufgenommen.

Bei Energien um 5 eV pro Atom werden Atomströme von ca. 10 A erreicht (1 $A_o = 6.25 \cdot 10^{18}$ Atome/s), wobei die Stromdichten typisch ca. 1 A_o/cm^2 betragen. Ein Vergleich der experimentellen Ergebnisse mit theoretischen Abschätzungen zeigt, daß neben die für Strahlen aus geladenen Teilchen wohlbekannte Begrenzung der Ströme und Stromdichten durch die elektrische Raumladung ein zusätzlicher Begrenzungseffekt tritt, der auf den Stößen der Clusterionen mit Untergrundgas beruht, das durch die Wechselwirkung der Clusterionen untereinander sowie mit dem im Strahl schon vorhandenen Untergrundgas zustandekommt.

Skalierungsrelationen, die unter Berücksichtigung der Raumladung und der Clusterionen-Stöße abgeleitet werden, führen zum Vorschlag, zur weiteren Steigerung der Stromstärke bandförmige Strahlen zu verwenden oder mehrere Einzelstrahlen parallel zu schalten.

Aus einer Untersuchung des für die Steuerung der Energie pro Atom wichtigen Zusammenhangs zwischen der Anzahl an Atomen pro Ladung N/Z und dem Elektronenstrom im Ionisator I_e wird geschlossen, daß die sowohl bei großen als auch bei kleinen Clustern, mit Ausnahme des Bereiches von etwa 10^3 bis 10^4 Atomen, gefundene Proportionalität zwischen N/Z und $1/I_e$ auf verschiedenen Prozessen, nämlich der Aufladung bei großen bzw. der symmetrischen Fragmentierung bei kleinen Clustern, beruht. Die bei etwa 10^4 Atomen pro Ladung liegende Stabilitätsschwelle für Mehrfach-Ladung von Wasserstoff-Clustern hat zur Folge, daß bei der Erzeugung intensiver Strahlen mit Masse-Ladungsverhältnissen kleiner als 10^4 auch die neutralen Cluster vor der Ionisation schon weniger als etwa 10^4 Atome haben sollten.

•

2. Anlage zur Erzeugung und Beschleunigung der Clusterionen-Strahlen

Da die Anlagen in Karlsruhe und Lyon ähnlich aufgebaut sind /1.10, 2.1, 2.2, 1.11/, wird die Erläuterung der wesentlichen, zur Erzeugung, Beschleunigung und Diagnostik intensiver Clusterionen-Strahlen benötigten Komponenten auf das Beispiel der neueren Anlage in Karlsruhe beschränkt.

2.1 <u>Clusterstrahlerzeugung</u>

Der neutrale Clusterstrahl kommt nach dem früher beschriebenen Verfahren /1.1, 1.2, 1.8/ durch Kondensation in einer aus einem Vorratsbehälter durch eine Düse ins Vakuum expandierenden Gasströmung zustande. Der Kern der so entstandenen Überschallströmung wird durch der Strömung angepaßte Blenden und differentielle Druckstufen ins Hochvakuum überführt. Dabei trennen sich die Cluster weitgehend vom unkondensierten Gas, das den überwiegenden Anteil des Durchsatzes ausmacht, ab.

Abb. 2.1 zeigt den Aufbau eines solchen Strahlerzeugungssystems mit den für den vorliegenden Fall typischen Abmessungen. Dieses System ist im Inneren eines LHe-Kryostaten aufgebaut, der die beiden Aufgaben erfüllt, das Gas vor der Expansion vorzukühlen und den nicht kondensierten Anteil auf Kryoflächen, die sich auf LHe-Temperatur befinden, auszufrieren (siehe Abb. 2.4). Zusätzlich wirkt er auch als Kryopumpe für das Beschleunigungsrohr und die übrige Vakuumkammer.

Der Kryostat umfaßt dementsprechend drei voneinander getrennte Volumina, die mit Kryoflüssigkeiten gefüllt werden, einen inneren Behälter für die Düsenkühlung, wahlweise mit flüssigem Neon oder Stickstoff gefüllt, darum herum einen Behälter für flüssiges Helium und dieser wieder umgeben von einem Flüssig-Stickstoff-Behälter als thermische Abschirmung.

Die Düse kann verschlossen werden durch ein unmittelbar strahlauf vom engsten Querschnitt angebrachtes schnelles Magnetventil. Dadurch können Clusterstrahlpulse erzeugt werden, deren minimale Dauer einige ms beträgt. Ein





1 8 1

gepulster Betrieb hat den Vorteil, daß die mittlere Gasbelastung des Vakuumsystems kleiner ist als beim stationären Betrieb und damit auch die Anforderungen an die Saugleistung reduziert werden. Andererseits sind die Einstellzeiten für die gasdynamischen Prozesse bei der Expansion kürzer als ms, so daß mit Pulsdauern von einigen ms ein quasistationärer Betrieb bezüglich der Clusterstrahlerzeugung gegeben ist. Im vorliegenden Fall betrug die Pulsdauer stets 35 ms, auf Abweichungen davon wird jeweils hingewiesen.

2.2 Ionisation

Die Ionisation der Cluster geschieht durch Elektronenstoß. Zwei verschiedene Ionisatortypen wurden eingesetzt, die sich jeweils besser für intensive Strahlen großer Cluster bzw. weniger intensive Strahlen kleiner Cluster eignen.

Beim letzteren wird der Clusterstrahl von vier bandförmigen Elektronenstrahlen mit dem Querschnitt 8 x 80 mm² so durchsetzt, daß die lange Richtung der Bandstrahlen in Clusterstrahlrichtung zeigt. Die Elektronen werden von vier ebenfalls bandförmigen Oxid-Kathoden emittiert, dann auf einen quaderförmigen Anodenkäfig, durch den der Clusterstrahl längs hindurchläuft, beschleunigt und fliegen schließlich durch die Schlitze des Käfigs in den Clusterstrahl hinein. Typische Werte des Elektronenstroms und der -energie sind bis zu 500 mA und 100 eV. Dies erlaubt die Erzeugung von Clusterionen mit relativ kleinem Masse-Ladungs-Verhältnis ab etwa 1000 aufwärts. Durch die enge Anordnung von Anodenkäfig und Bandkathoden um den Strahl herum ist der Leitwert für das Abströmen von Untergrundgas relativ klein, was zur Begrenzung des möglichen Teilchenstroms beiträgt. Die Eigenschaften dieses Ionisatortyps wurden in /2.3/ eingehend untersucht.

Der zweite Typ ist auf großen Leitwert hin ausgelegt (Abb. 2.2). Die von einem Wolfram-Band von 2 x 30 mm² Fläche emittierten Elektronen werden auf typisch 1 keV beschleunigt und treten durch einen Anodenschlitz in



Abb. 2.2: Ionisator für intensive Strahlen großer Cluster.

die Wechselwirkungszone mit dem Clusterstrahl ein. Ein parallel zur Flugrichtung der Elektronen verlaufendes Magnetfeld von ca. 0.05 T auf der Achse hält den bandförmigen Querschnitt des Elektronenstrahls weitgehend konstant, so daß der Durchschnitt zwischen Cluster- und Elektronenstrahl eine ca. 2 mm dicke Scheibe mit dem Clusterstrahldurchmesser von ca. 28 mm ist. Anfallendes Untergrundgas kann stromauf und stromab ziemlich ungehindert abströmen. Dieser Ionisator liefert bei Elektronenströmen von einigen 100 mA Clusterionen mit Masse-Ladungs-Verhältnissen von typisch $4 \cdot 10^4$ aufwärts. Weitere Details finden sich in /2.4/.

Der Unterschied zwischen den mit den beiden Ionisatoren jeweils zugänglichen Größenbereichen rührt hauptsächlich vom Einfluß des energieabhängigen Ionisationsquerschnitts sowie der Elektronenstoßzahl her.

2.3 Beschleunigung

Nach ihrer Ionisation gelangen die Clusterionen in das Beschleunigungsfeld. Abb. 2.3 zeigt eine typische Anordnung der Elektroden und Potentiale. Die Erdelektrode kann von außen in Strahlrichtung verschoben werden, um auch während des Betriebs die Länge der Beschleunigungsstrecke verändern zu können. Der innere Bereich der Extraktions- und Fokussierungselektrode ist aus hochtransparentem, weitmaschigem Edelstahlnetz gefertigt, um das Abströmen von Gas in unmittelbarer Strahlnähe zu begünstigen. Bezüglich der Einstellung der Potentiale der Elektroden wird stets angestrebt, die Extraktionsspannung U_x genügend hoch zu wählen, damit der angebotene Clusterionenstrahl möglichst vollständig abgesaugt werden kann. Die Beschleunigungsspannung U_a soll ebenfalls möglichst groß sein, damit die Anforderungen an die Energie pro Atom mit möglichst groß sein, damit die Schließlich wird die Fokussierungsspannung U_f so eingestellt, daß der Strahlverlauf möglichst günstig ist.

Das Beschleunigungsrohr und die darin angebrachten Elektroden sind vom Hochgradient-Typ, der aus bei CERN durchgeführten Entwicklungen hervor-



Abb. 2.3: Beschleunigungselektroden und ihre Potentiale.

ging /2.5/. Danach verwendet man relativ kurze Beschleunigungsrohre mit großem Durchmesser, im vorliegenden Fall 1.4 m Länge und 0.8 m Durchmesser, in die die Elektroden von den Enden her so weit hineinragen, daß die Beschleunigungsstrecke etwa in der Mitte des Rohres liegt und ca. 0.2 m lang ist. Dementsprechend tauchen auch die Clusterionen-Quelle hochspannungsseitig und Teile der Strahldiagnostik erdseitig in das Rohr hinein. Durch diese Bauweise erreicht man einen großen Leitwert und eine kurze Beschleunigungsstrecke, die sich beide günstig auf die Begrenzung des Strahlstroms durch die elektrische Raumladung und durch Stöße der Clusterionen mit anderen Teilchen auswirken.

Als weiteres Merkmal kommt hinzu, daß die Elektroden aus einer Titan-Legierung (TiAl6V4) gefertigt sind. Dadurch können nach einer gewissen Formierungszeit elektrische Feldstärken von ca. 100 kV/cm bei einer Spannung von 1 MV erreicht werden. Die typischen Werte während der zu beschreibenden Experimente waren 25 kV/cm in der Beschleunigungsstrecke und 3.5 kV/cm auf der Rohrwand.

2.4 Gesamtaufbau des Beschleunigers

Die hochspannungsführenden Teile der Anlage sind isoliert in Drucktanks aufgebaut, die mit dem Isoliergas SF₆ geflutet werden können. Die maximale Spannung von 1 MV kann mit einem SF₆-Druck von 4 bar gehalten werden. Abb. 2.4a zeigt einen Schnitt durch den Drucktank, der die Clusterionenquelle und das Beschleunigungsrohr enthält. In Abb. 2.4b ist ein Foto des geöffneten Strahltanks mit ausgebautem Kryostaten wiedergegeben.

Durch den gekapselten Aufbau des Beschleunigers entsteht das Problem, den Abdampf der Kryoflüssigkeiten während des Betriebs vom hohen Potential auf Erdpotential zu transportieren, ohne daß es zu einem elektrischen Durchschlag im Gas kommt. Dies geschieht durch zwei ca. 12 m lange, in ihrem Inneren durch eine Widerstandskette potentialgesteuerte Schläuche aus hochdruckvernetztem Polyäthylen, die den Raum zwischen Hochspannungselektrode und Drucktankwand schraubenförmig überbrücken. Ein auf Hoch-



Abb. 2.4a: Schnitt durch den die Clusterionenquelle enthaltenden Strahltank.



Abb. 2.4b: Blick in den offenen Strahltank. Im Vordergrund der ausgebaute Kryostat, rechts von der Bildmitte das Innere des Beschleunigungsrohrs.

.

spannungspotential befindlicher Membranbalg-Kompressor saugt das verdampfende Helium ab, so daß sich ein Dampfdruck von typisch 0.5 bar einstellt, und verdichtet es auf ca. 1-2 bar, bevor es durch den Polyäthylenschlauch strömt. Der Stickstoff strömt ohne zusätzliche Hilfsmittel bei Atmosphärendruck durch den zweiten Schlauch; die geringe Menge abdampfenden Neons wird ihm zugemischt.

Die Füllung der Kryobehälter ist zwar nicht bei anliegender Hochspannung, aber bei geschlossenem, mit SF₆ gefülltem Drucktank möglich. Dazu ist im Klöpperboden des Strahltanks eine Schleuse installiert, die es in eingefahrenem Zustand ermöglicht, die Kryoheber in die entsprechenden Füllstutzen des Kryostaten einzuführen. Auch der Strahlgas-Vorratsbehälter kann über die Schleuse nachgefüllt werden.

Abb. 2.5 gibt schließlich einen Überblick über die zentralen Teile der Anlage. Man erkennt, daß der Beschleuniger in drei getrennte Drucktanks untergliedert ist, die miteinander durch koaxiale, SF₆-isolierte Hochspannungsleitungen verbunden sind. Diese Unterteilung der Anlage ermöglicht es, den Aufbau des Beschleunigers örtlichen Gegebenheiten anzupassen. Die einzelnen Drucktanks enthalten die 1 MV-Hochspannungskaskade, die zum Betrieb der Clusterionen-Quelle nötigen Steuer- und Versorgungsgeräte bzw. die Clusterionen-Quelle und das Beschleunigungsrohr selbst.



<u>Abb. 2.5:</u> 1 MV-Clusterionen-Beschleuniger im Kernforschungszentrum Karlsruhe. Links im Bild der Strahltank mit der auf Hochspannung befindlichen Clusterionenquelle und dem Beschleunigungsrohr, in der Mitte der Versorgungstank und rechts die Hochspannungskaskade. Am Ende des Strahltanks zur Bildmitte hin erkennt man die Vakuumkammern mit den Einrichtungen zur Strahldiagnostik.

3. Einrichtungen zur Diagnostik der Clusterionen-Strahlen

Bedingt durch die Erzeugung durch Kondensation und nachfolgende Ionisation ist das Masse-Ladungs-Verhältnis von Clusterionen nicht einheitlich, sondern über einen Bereich verteilt. Die Messung dieser Verteilung ist die Hauptaufgabe der Clusterionen-Diagnostik. Die zweite wichtige Meßaufgabe im Rahmen dieser Arbeit ist die Bestimmung des Teilchenstroms und seines räumlichen Profils.

Der von realen Clusterionen-Strahlen insgesamt überstrichene Bereich des Masse-Ladungs-Verhältnisses erstreckt sich von Protonen bis zu ca. 10^{6} Atomen/Ladung, was bei typischen Beschleunigungsspannungen von einigen 100 kV kinetische Energien von ca. 1 eV bis einige 100 keV pro Atom und entsprechend Geschwindigkeiten von etwa 10^{4} m/s bis weit über 10^{6} m/s zur Folge hat. Ein geeignetes Spektrometer muß deshalb über einen dynamischen Bereich von 6 Größenordnungen in der Masse oder der Energie pro Atom oder von 3 Größenordnungen in der Geschwindigkeit verfügen. Außerdem soll es Ionen verarbeiten können, deren Energie bis zu 1 MeV reicht und deren Impuls bis zu 10^{3} mal so groß ist wie der eines MeV-Protons, oder gerade so groß wie der eines 45 GeV-Protons.

Von den herkömmlichen massenspektrometrischen Verfahren /3.1/ erscheint die Flugzeit-Methode am ehesten geeignet, diese Anforderungen mit tragbarem Aufwand zu erfüllen, so daß ein an diese Aufgabe angepaßtes Flugzeit-Spektrometer entwickelt wurde /3.2, 3.3/.

Ist der relative Verlauf der Verteilungsfunktion erst einmal bekannt, dann genügt eine weitere Messung, mit der ein Normierungsfaktor ermittelt wird, um alle interessierenden Größen, wie z. B. den Teilchenstrom, auszurechnen. In dieser Arbeit wird dazu der Impulsstrom benutzt. Im folgenden werden das Flugzeitspektrometer und die Einrichtungen zur Messung des Impulsstromes sowie des Strahlprofils kurz beschrieben.

3.1 Flugzeit-Spektrometer zur Bestimmung der Geschwindigkeitsverteilung

Der Aufbau des Flugzeit-Spektrometers ist in Abb. 3.1 schematisch dargestellt. Der Clusterionen-Strahl durchläuft ein Paar Ablenkplatten, an denen eine Spannung U_d liegt und deren Abstand d beträgt, und fliegt am Detektor, der auf der Achse des unabgelenkten Strahls steht, vorbei. Zum Zeitpunkt t = 0 werden die Platten durch Zünden des Wasserstoff-Thyratrons kurzgeschlossen, und die Spannung fällt innerhalb der Zeit t auf Null ab. Unter der idealisierenden Annahme, daß der Strahlquerschnitt und die Detektoröffnung sowie die Abfallzeit T verschwindend klein seien, und unter Vernachlässigung des Randfeldes würden alle Strahlteilchen, die sich bei t = O schon zwischen den Ablenkplatten oder noch weiter strahlab befanden, am Detektor vorbeifliegen, während diejenigen, die noch nicht ins Ablenkfeld eingetreten waren, auf den Detektor gelangen. In diesem Idealfall hat die Modulation der Intensität des Strahls, der den Detektor erreicht, die Form einer Kante. Durch das Geschwindigkeitsspektrum der Teilchen läuft diese Kante auf dem Flug zum Detektor auseinander und hat dort die Form einer von Null auf einen Sättigungswert ansteigenden S-Kurve. Die Flugzeit der Teilchen ist mit ihrer Geschwindigkeit durch t' = L_{\perp}/v verknüpft, und das Detektorsignal R(t') errechnet sich schließlich aus

$$R(t') = \int_{L/t'}^{\infty} f(v)r(v)dv,$$

worin f(v) die Geschwindigkeitsverteilung der Atomstromdichte und r(v) die Detektor-Antwortfunktion, d. h., das Detektorsignal pro einfallendem Atom multipliziert mit der Detektoröffnungsfläche sind.

Läßt man die oben gemachte Idealisierung wegfallen, dann erkennt man, daß auch Teilchen, deren Ablenkung eine Schwelle nicht überschreitet, in den Detektor gelangen (Abb. 3.2), d.h., eben auch Teilchen, die bei t = 0 schon ein Stück weit ins Ablenkfeld hineingeflogen waren und deren Geschwindigkeit dementsprechend kleiner ist als v = L_{+}/t' . Denkt man



Abb. 3.1: Schema des Flugzeit-Spektrometers.





sich den Strahl aus lauter Teilstrahlen zusammengesetzt, von denen jeder ein kleines Geschwindigkeitsintervall abdeckt, dann gibt es zu jedem Zeitpunkt t' einen Teilstrahl der Geschwindigkeit $v_f(t') = L_+/(t'-\tau)$, der gerade unabgelenkt am Detektor ankommt, und einen weiteren mit der Geschwindigkeit $v_i(t')$, dessen Rand gerade den Detektorrand berührt. Der Beitrag der Teilstrahlen in diesem Intervall $\{v_i, v_f\}$ muß noch in die Signalformel aufgenommen werden. Daher ergibt sich

$$R(t') = \int_{v_f}^{\infty} f(v)r(v)dv + \int_{v_i}^{v_f} f(v)r(v)k(t',v)dv,$$

worin die Funktion k(t',v) den relativen Durchschnitt des Teilstrahls der Geschwindigkeit v mit der Detektoröffnung beschreibt, d. h., $k(t',v_i) = 0$ und $k(t',v_f) = 1$.

Differentiation nach t' und Anwendung des Mittelwert-Satzes liefern schließlich die Geschwindigkeitsverteilung

$$f(v_m) = (dR/dt')/\{r(v_m)(v_f-v_i)\partial k(t',v_m)/\partial t'\}.$$

Für v_m gilt $v_i \leq v_m \leq v_f$ und als Näherung nimmt man den Mittelwert $v_m = (v_i + v_f)/2$. Um die für die quantitative Auswertung von $f(v_m)$ benötigten Ausdrücke v_i und $\partial k/\partial t'$ berechnen zu können, muß man die Bewegungsgleichung der Ionen im zeitlich und räumlich veränderlichen Ablenkfeld lösen. Details dieser Rechnung finden sich im Anhang I.

Die wichtigsten Apparate-Parameter des Flugzeit-Spektrometers sind in Tabelle 3.1 aufgeführt. Der Detektor beruht auf der Auslösung von Sekundärelektronen beim Aufprall der Clusterionen auf ein festes Target. Wie in Abb. 3.3 zu erkennen ist, fällt der Strahl auf geneigte CuBe-Flächen, die die Elektronenausbeute begünstigen. Die freigesetzten Elektronen werden mit einer entsprechenden Vorspannung zwischen Target und Schirm quer zum Strahl abgesaugt und nachgewiesen. Weitere Einzelheiten zur Funktion des Spektrometers sind im Anhang I enthalten. Tab. 3.1:

Länge der Ablenkplatten:	0.5 m
Breite der Ablenkplatten:	0.2 m
Abstand der Ablenkplatten:	11 cm
Flugstrecke ab Eintritt ins Ablenkfeld L ₊ :	2.5 m
Ablenkspannung U _d :	1-10 kV
Abfallzeit τ der Ablenkspannung:	50 ns

3.2 Kalorimeter-Pendel zur Messung des Impuls- und Energiestroms

Impuls und Energie des Strahls können mit einem kalorimetrischen Pendel simultan gemessen werden. Dieses ist eine kreisförmige Scheibe aus dünnem Aluminium-Blech (Dicke 0.2 mm, Durchmesser 0.16 m), die so an einem Spannband aufgehängt ist, daß sie um eine tangential zu ihrem Rand verlaufende Achse schwingen kann. Der gepulste Clusterionen-Strahl trifft senkrecht auf die Scheibe auf, versetzt sie in Schwingungen und heizt sie auf (Abb. 3.4). Aus der Temperaturänderung und dem maximalen Auslenkungswinkel werden die übertragene Energie und der Impuls berechnet. Einzelheiten zur Impulsstrommessung sind im Anhang II enthalten.

Der größte, in diese Messungen eingehende Einzelfehler rührt daher, daß der Energie- bzw. Impulsübertrag von Teilchen, insbesondere Clusterionen, auf feste Oberflächen für kinetische Energien kleiner als ca. 100 eV/Atom nicht bekannt ist. Das bedeutet, daß z. B. der Impulsübertrag irgendwo zwischen den Extremfällen voll inelastisch bzw. voll elastisch liegen kann, wodurch ein relativer Fehler von ± 33 % entsteht. Durch eine Untersuchung des Einflusses der Oberflächenrauhigkeit auf den Impulstransfer von Wasserstoff-Clusterionen im Bereich von 3.5 - 9 eV/Atom konnte dieser Fehlerbeitrag auf ± 23 % reduziert werden /3.4/. Da die übertragene Energie dagegen zwischen den Grenzen Null und volle Energie liegt, kann der sich daraus ergebende Fehlerbeitrag weitaus größer sein als im Falle des Impulsübertrags.







<u>Abb. 3.4:</u> Schematische Darstellung der Einrichtung zur Messung des Strahlimpulses.

Es ist daher zweckmäßig, den Atomstrom I aus dem Impulsstrom nach der Beziehung

$$I_{o} = L/(m_{H}R)$$

zu ermitteln, worin L der mit dem Pendel gemessene Drehimpulsstrom, $m_{H}^{}$ die Masse eines Atoms des Strahlgases, R der Pendelradius, der mittlere Impulsübertragskoeffizient und <v> die aus dem Flugzeitspektrum folgende mittlere Geschwindigkeit sind. In L geht außer der Pendelauslenkung noch die oszillographisch mit dem Flugzeitdetektor bestimmte Strahlpulsdauer T ein. Der Fehler des so ermittelten Teilchenstroms dürfte kleiner als ± 50 % sein.

3.3 <u>Drahtgitter-Profilmonitor und x-y-Schlitten zur Messung des Strahl-</u> profils

Zur Messung des Strahlprofils werden zwei Drahtgitter-Monitore benutzt, die in 0.1 m bzw. 2.16 m Entfernung von der Erdelektrode angebracht sind. Ein solcher Monitor besteht aus zwei orthogonalen Reihen zu je 16 dünnen, parallel ausgespannten Drähten. Trifft der Strahl auf die Drähte, so erzeugt er seiner lokalen Intensität proportionale Stromsignale. Diese 2x16 Stromsignale werden in der richtigen Reihenfolge auf einem Oszilloskop dargestellt und ergeben so zwei Profile in zueinander orthogonalen Richtungen /3.5/.

Eine schematische Übersicht über alle Einrichtungen zur Strahldiagnostik ist in Abb. 3.5a enthalten, Abb. 3.5b zeigt einige Ausschnitt-Fotos.



Abb. 3.5a: Schematische Übersicht über die Vorrichtungen zur Strahldiagnostik.



Abb. 3.5b:

- oben: Hinteres Profilgitter, Maschenweite 1 cm. Rechts im Bild der Schlittentisch von hinten gesehen.
- unten: Blick in Strahlrichtung in die Schlittenkammer. In der Bildmitte der in x-y-Richtung verschiebbare Schlitten, auf dem ein Kalorimeter (oben), das Pitot-Rohr (links unten) sowie der Flugzeit-Detektor (rechts unten) aufgebaut sind. Rechts von der Bildmitte im Hintergrund die schwarz erscheinende SOLAROX-Pendelscheibe. Der Clusterionenstrahl läuft von links unten nach rechts oben.

4.1 Erreichte Ströme und Stromdichten

Abb. 4.1 zeigt die maximalen, an den Beschleunigern in Karlsruhe bzw. Lyon erzielten Atomströme als Funktion der mittleren Anzahl an Atomen pro Ladung. Die Messungen wurden jeweils am Ende einer Driftstrecke von 2.8 m bzw. 1.6 m gemacht. Die zugehörigen Stromdichten ergeben sich zu 0.1 - 0.5 A_0/cm^2 bzw. 0.6 - 1.9 A_0/cm^2 . Die entsprechenden Bereiche der kinetischen Energie pro Atom sind 1.7 - 23 eV/Atom bzw. 50 - 500 eV/Atom. Die Beschleunigungsspannung beträgt jeweils 350 kV bzw. 500 kV. Eine detaillierte Übersicht über die Strahlparameter, die zu den Meßpunkten am Karlsruher Beschleuniger gehören, ist in Tabelle 4.1 enthalten.

Atomstrom I /A o	2.2	6	8.5	15
Anzahl der Atome pro Ladung (N/Z)/10 ⁴	1.7	4	6	20
Energie pro Atom E _a /eV	21	9	6	1.8
Atomstrom im neutralen Clusterstrahl I /A 00 0	5.5	13	22	40
Ausbeute I /I 00	0.39	0.46	0.39	0.38
Ruhedruck p _o /bar	1.5	3.2	5.6	10.3
Beschleunigungsspannung U _a 350 kV Strahlpulsdauer τ 0.035 s				

177			,	-4	
1'0	h		11	1	
ıа	υ.	•	-+-	-L	

Profilmessungen am Karlsruher Strahl zeigen (Abb. 4.2), daß sich die Halbwertsbreite des Strahlprofils von etwa 1 cm nahe der Erdelektrode auf etwa 7 cm am Ende der Driftstrecke aufweitet. Das Auftreten einer Strahlverengung nahe der Erdelektrode wird durch numerische Trajektorienrechnungen bestätigt (Abb. 4.3) /4.1/. Entsprechendes gilt auch für den Strahlverlauf in Lyon.



<u>Abb. 4.1:</u> Maximale Atomströme als Funktion der mittleren Anzahl von Atomen pro Ladung für die beiden Beschleuniger in Karlsruhe und Lyon. Die unter Berücksichtigung der Raumladungsbegrenzung erwarteten Werte sind durch Geraden dargestellt, im Karlsruher Fall sind Mindest- und Höchstwerte angegeben, die aus unterschiedlichen Annahmen über den Strahlquerschnitt am Detektor resultieren.



Abb. 4.2: Drahtgitter-Profilmonitor-Signale in verschiedenen Abständen von der Erdelektrode.





Äquipotentiallinien und Strahltrajektorien für einen Clusterionenstrahl von 20 $\rm A_{0}$ und 10^{5} Atomen pro Ladung in einem Vierelektrodensystem. Die Elektroden und ihre Potentiale sind: Plasmaelektrode (350 kV), Extraktionselektrode (330 kV), Zwischenelektrode (175 kV), Erdelektrode (0 kV).

Bezogen auf den engen Strahlquerschnitt liegen die Atomstromdichtewerte erheblich höher als am Ende der Driftstrecke, z. B. bei 7.6 A_o/cm^2 im Falle des 6 A_o -Strahls. Zieht man zusätzlich den in /4.2/ erwähnten Impulsstromverlust des Strahls beim Durchlaufen der Driftstrecke mit in Betracht, der bis zu einem Faktor 2 betragen kann, so erscheinen im engen Strahlquerschnitt Stromdichtewerte über 10 A_o/cm^2 möglich. Die in Tab. 4.1 angegebene Ausbeute, das Verhältnis des beschleunigten Atomstroms am Ende der Driftstrecke I_o zum Atomstrom im neutralen Clusterstrahl I_{oo}, beinhaltet diesen Verlust.

Diese Ergebnisse wurden alle, wie schon erwähnt, mit gepulsten Clusterionenstrahlen bei einer Pulsdauer von etwa 35 ms erzielt. Man kann jedoch davon ausgehen, daß sich diese Werte auch stationär erzielen lassen, wenn der Aufwand für das Abpumpen des beschleunigten Strahls vergrößert und die Strahlquelle mit einem Durchflußkühler für das Strahlgas ausgerüstet wird. Dies geht aus Abb. 4.4 hervor, in der das Ergebnis eines Vorversuchs mit Pulslängen bis zu 5 s dargestellt ist /4.3/.

Da die Anlage nicht für Pulse dieser Länge ausgelegt ist, müssen an den Meßwerten Korrekturen angebracht werden, die im einzelnen die Abnahme des Elektronenstroms im Ionisator und den Anstieg des Untergrunddrucks in der Vakuumkammer während des Pulses berücksichtigen. Außerdem trat bei den vorliegenden Meßwerten ein Abfall des Ruhedrucks vor der Düse von Strahlpuls zu Strahlpuls auf. Durch die entsprechenden Korrekturen kommen die gemessenen Werte dicht an die erwarteten heran, die auf der Basis des Meßwertes bei 33 ms unter ausschließlicher Benutzung der im Anhang II angegebenen Formel für den Pendelausschlag als Funktion der Pulsdauer berechnet wurden.

Die bedeutendste Einzelkorrektur ist die für den Untergrund-Einfluß. Zur Verbesserung der Saugleistung wurde bei diesem Versuch eine Kryopumpe mit 2.10⁴ 1/s für Wasserstoff in der Vakuumkammer installiert. Bedingt durch ihre Bauart muß der Clusterionenstrahl jedoch durch ein 0.5 m langes



Normierte Pulsdauer τ/T

<u>Abb. 4.4:</u> Normierter Pendelausschlag ϕ_m/ϕ_o als Funktion der auf die Schwingungsperiode normierten Strahlpulsdauer τ/T . Die unkorrigierten Meßwerte werden durch Δ , die auf das momentane Gastarget korrigierten Werte durch o dargestellt. Die Kurve gibt die theoretisch erwarteten Werte wieder (vgl. Anhang II). Die Kurve ist bei $\tau/T = 0.066$ an die Meßpunkte angepaßt worden. T = 0.5 s.
Rohr von 8 cm Durchmesser fliegen.¹⁾ Im Gleichgewicht zwischen Gaseinstrom durch den Strahl (6 A $\triangleq 3.6.25 \cdot 10^{18}$ H₂-Moleküle/s) und Saugleistung (2.10⁴ 1/s) stellt sich in der Vakuumkammer ein Untergrunddruck von etwa $3.5 \cdot 10^{-5}$ mbar ein. Im Rohr liegt der Druck noch höher, weil das dort gebildete Gas erst über den Strömungswiderstand zweier parallel geschalteter Rohrabschnitte in die Vakuumkammer abfließen muß. Unter Berücksichtigung der in Abb. 4.10 enthaltenen Ergebnisse findet man, daß die Pendelauslenkung durch die Strahlschwächung im Untergrund auf 60 % abnimmt. Der Einfluß des Rohres wurde dabei mit 10 % zusätzlicher Targetdicke angenommen. Falls durch geeignete technische Maßnahmen die Untergrundgasdichte vernachlässigbar klein gehalten würde, könnte man daher nach Einstellung stationärer Verhältnisse, d. h. nach etwa 0.5 s, erwarten, daß die Meßwerte sehr nahe an die aus dem ballistischen Fall abgeleiteten Werte herankommen.

Die Abnahme oberhalb des Maximums ist zurückzuführen auf einen Druckabfall vor der Düse von 3.62 auf 3.42 bar und einen Rückgang des Elektronenstroms im Ionisator von 19 auf 17 mA. Die Korrektur dieser beiden Einflüsse führt dazu, daß die Kurve oberhalb von 0.5 s praktisch waagerecht verläuft.

4.2 Vergleich mit dem raumladungsbestimmten Strom

Wenn sich die Clusterionen im Strahl ausschließlich durch ihre Coulomb-Wechselwirkung beeinflussen würden, dann müßte sich der Strahl nach der Beschleunigung, d. h. in der Driftstrecke, natürlich gemäß den bekannten Beziehungen der Raumladungstheorie /4.4/ ausbreiten. Da die Clusterionen jedoch mit Untergrundteilchen oder auch anderen Clusterionen zusammenstoßen und dabei zumindest teilweise zerstört werden können, ist die Frage berechtigt, wie nahe ein realer Clusterionenstrahl im vorliegenden Fall an die raumladungsbestimmten Werte des Atomstroms und der Atomstrom-

¹⁾ Rohr und Kryopumpe waren ursprünglich als Neutralisator gedacht, bei dem die Clusterionen durch Stoß mit Wasserstoffgas, das ins Rohr eingelassen werden konnte, zerlegt werden sollten.

dichte herankommt. Dies kann mit Hilfe eines von Hutter und Harrison /4.5/ angegebenen Diagramms abgeschätzt werden, aus dem u. a. der maximale Strom zu entnehmen ist, der von einer bestimmten Ionensorte definierter Energie durch zwei vorgegebene Blenden in einem ebenfalls vorgegebenen Abstand hindurchtransportiert werden kann.

Im vorliegenden Fall entsprechen die Blenden der Detektoröffnung am Ende bzw. dem Strahldurchmesser am Anfang der Driftstrecke. Beim Karlsruher Beschleuniger ist die Detektoröffnung durch das Pendel vorgegeben, das einen Radius $r_0 = 80$ mm hat. Der Strahlradius am Anfang der Driftstrecke ergibt sich aus Abb. 4.3 zu r_a = 5 mm. Das nahe der Erdelektrode allerdings unter etwas anderen Bedingungen gemessene Strahlprofil aus Abb. 4.2 läßt diesen Wert plausibel erscheinen. Mit einer Driftstreckenlänge von 2.8 m folgt ein raumladungsbestimmter Strom von 29 A_0 . Nimmt man für die anderen Stromwerte in erster Näherung dieselbe Strahlform an, so erhält man die in Abb. 4.1 eingezeichnete obere Gerade mit ihrer für Raumladungsströmung bei konstanter Geometrie typischen √ N/Z -Abhängigkeit. Setzt man alternativ als Strahlöffnung am Detektor die gemessene Halbwertsbreite von 70 mm an, so resultiert ein raumladungsbestimmter Strom von 10.3 A und damit die untere Gerade. Beim Lyoner Beschleuniger beträgt die Detektoröffnung r = 2.5 mm und der aus Bahnrechnungen entnommene Strahlradius am Anfang der Driftstrecke $r_{a} = 1 \text{ mm} / 4.6 / .$ Die daraus folgende Gerade ist ebenfalls eingezeichnet.

Man erkennt, daß innerhalb der Gesamtfehlerbreite, die etwa einen Faktor 4 beträgt und sich aus den Fehlern der Messung des Atomstroms bzw. der Anfangswerte von Strahldurchmesser und -divergenz bei der Berechnung des raumladungsbestimmten Stroms zusammensetzt, Übereinstimmung herrscht.

Wenn der Strahl raumladungsbestimmt ist, dann erwartet man, daß der maximale Pendelausschlag ϕ , der proportional zum Produkt aus Atomstrom und Geschwindigkeit ist, mit dem Quadrat der Beschleunigungsspannung geht, d. h., $\phi \propto U_a^{3/2} \cdot U_a^{1/2}$, falls es Fälle gibt, in denen die Strahlform am Eingang zur Driftstrecke nur schwach von U_a abhängt. Abb. 4.5 zeigt, daß neben anderen Kurvenformen für eine bestimmte Extraktionsspannung U_x tatsächlich die U_a^2 -Abhängigkeit von ϕ gefunden wird, und zwar für den größten U_x -Wert, da in diesem Falle die Beschleunigungsspannung U_a sich relativ am wenigsten auf die Fokussierung auswirkt.



<u>Abb. 4.5</u>: Pendelausschlag ϕ als Funktion der Beschleunigungsspannung U_a. Kurvenparameter ist die Extraktionsspannung U_x. Für U_x = 40 kV ergibt sich die bei raumladungsbestimmter Strömung konstanter Geometrie erwartete U²_a-Abhängigkeit des Ausschlags.

4.3 Überstrichener Bereich der mittleren Anzahl an Atomen pro Ladung und Form der Verteilung

Will man Atomströme im Bereich von 10 - 100 A_0 in neutralen Wasserstoff-Clusterstrahlen erzeugen, so bedeutet das nach dem Stand der Technik, daß dann die Cluster relativ groß sind, d. h., etwa zwischen 10⁵ und 10^6 Atomen/Cluster liegen /4.7, 4.8/. Auch hier muß, wie schon in anderen Fällen festgestellt wurde /2.3/, die mittlere Anzahl an Atomen pro Ladung <N/Z> so gesteuert werden, daß nach der Beschleunigung die gewünschte Energie pro Atom, d. h. mindestens einige eV, resultiert.

Diese Einstellbarkeit der Energie pro Atom über die Steuerung des N/Z-Spektrums ist eine wesentliche Vorbedingung für Anwendungen von beschleunigten Clusterionen-Strahlen, wie z.B. bei der Erzeugung von H⁻-Ionen durch Wechselwirkung beschleunigter Wasserstoff-Clusterionen mit einer Cs-bedeckten W-Einkristall-Oberfläche /4.9, 4.10/.

Wie sich im folgenden zeigen wird, muß der Mechanismus der N/Z-Steuerung bei den großen Clustern verschieden sein von dem für kleinere Cluster angenommenen /2.3/. Dieser Unterschied war der Anlaß dafür, die N/Z-Steuerung im gesamten Größenbereich zu untersuchen, nachdem mit dem Flugzeit-Spektrometer auch das entsprechende Hilfsmittel zur Verfügung stand.

Abb. 4.6 zeigt für den Fall großer Cluster einige typische N/Z-Spektren, die durch Ionisation desselben neutralen Strahls mit verschiedenen Elektronenströmen aufgenommen wurden. Man erkennt, daß sich die gesamte Verteilung mit steigendem Elektronenstrom zu kleineren N/Z-Werten hin verschiebt. Die maximal erreichte Veränderung von N/Z in diesem Fall ist in Abb. 4.7 dargestellt. Die zum Halbwert des integralen Spektrums gehörige Größe $(N/Z)_{1/2}$ nimmt über eine Größenordnung hinweg proportional zu $1/I_e$ ab. Wie eine einfache Abschätzung zeigt (Anhang III), kann dieses Verhalten nicht mehr wie in /2.3/ als Fragmentierung von Clusterionen unter der Wirkung der Coulombkraft gedeutet, sondern muß im Gegenteil als Aufladung bei etwa konstanter Clustergröße angesehen werden.



<u>Abb. 4.6:</u> Atomstromdichte pro Intervall von N/Z in einem Wasserstoff-Clusterionen-Strahl im Karlsruher Beschleuniger. Erhöhen des Elektronenstroms I_e verschiebt die Verteilung zu kleineren Clusterionen hin. Die Pfeile zeigen die Mittelwerte von N/Z an.



Elektronenstrom I_e/mA

<u>Abb. 4.7:</u> Anzahl von Atomen pro Ladung (N/Z)_{1/2} als Funktion des Elektronenstroms I_e für Clusterionen im Bereich von einigen 10⁴ bis einigen 10⁵ Atomen pro Ladung. Wie im Inset dargestellt, wird (N/Z)_{1/2} aus der Zeit t_{1/2} ermittelt, in der das Signal auf die Hälfte seines Sättigungswertes ansteigt.

Abb. 4.8 enthält eine Synopse aller an den beiden Beschleunigern gemessenen Kurven sowie /2.3/ entnommenen Daten. Die wesentliche Aussage dieser Synopse ist, daß sich N/Z bei großen und in der Tendenz bei kleinen Clustern mit $1/I_e$ verändert, während es im Zwischenbereich erheblich schwächer mit I_abfällt.

Dieses Ergebnis wird anhand der schematischen Kurven in Abb. 4.9 gedeutet: Läßt man einen großen Cluster durch das Ionisierungsgebiet laufen und fährt die Elektronen-Stromdichte sukzessive von Null aus höher, so wird er sich mehr und mehr aufladen, d. h., die Anzahl seiner Ladungen Z wird mit I_e zunehmen, so daß N/Z mit $1/I_e$ abnimmt (Abb. 4.8a) und obere Kurve in c)). Im weiteren Verlauf wird er eine Stabilitätsgrenze erreichen, bei der das weitere Hinzufügen eines Ions bewirkt, daß die Coulombkräfte genügend groß werden, verglichen mit den intermolekularen Anziehungskräften, um ein geladenes Bruchstück abzustoßen. Dadurch nimmt Z nicht mehr weiter zu, während N leicht abnimmt, was zu einem schwachen Abfall von N/Z mit I_e führt (Abb. 4.8b)). Durch die Abnahme von N bedingt wird die Reduktion von N/Z mit weiter steigendem I_e immer stärker, bis schließlich der Grenzfall der symmetrischen Fragmentierung bei kleinen Clustern erreicht wird (Abb. 4.8c, untere Kurve). Im folgenden wird diese Deutung weiter konkretisiert und durch experimentelles Material erhärtet.

Zumächst bringt Abb. 4.10 einen direkten, experimentellen Hinweis auf die Konstanz von N bei Veränderung von Z durch den Elektronenstrom. Dabei wird der beschleunigte Clusterionenstrahl durch ein Gastarget geschickt und die Abnahme des Impulsstromes aufs Pendel als Funktion des Gasdrucks gemessen. Parameter ist der Elektronenstrom und damit die mittlere Anzahl an Atomen pro Ladung. Man erkennt, daß trotz einer Verdopplung des Elektronenstroms, die ja nach Abb. 4.7 und 4.8 eine Halbierung der Anzahl an Atomen pro Ladung zur Folge hat, die Schwächung des Strahls als Funktion des Untergrunddrucks sich praktisch nicht ändert. Im Vorgriff auf das Ergebnis von Abschnitt 4.4.2, das besagt, daß der Impulsverlust des Clusterionenstrahls als Masseverlust der einzelnen Clusterionen auf Grund ihrer Zusammenstöße mit dem Untergrundgas erklärt werden kann und somit proportional zum geometrischen Wirkungsquerschnitt ist,



Atome pro Ladung (N/Z) 1/2

Elektronenstrom I, /mA

- <u>Abb. 4.8:</u> Halbwert des integralen Spektrums (N/Z)_{1/2} (wie in Abb. 4.7 definiert) als Funktion des Elektronenstroms im Ionisator I für verschiedene Versuchsbedingungen
 - a) Magnetfeld-Ionisator: □ Kegeldüse, Bohrung 0.16 mm, Länge 40 mm, voller Kegelwinkel 17°, Ruhedruck und -temperatur 2.9 bar, 77.3 K; ◇ Düse wie in Abb. 2.1, 3.9 bar, 34 K.
 - b) Käfig-Ionisator: □ Strahlquelle wie in Abb. 2.1, 0.5 bar, 34 K; ◇ Kegeldüse, Bohrung 0.17 mm, Länge 25 mm, voller Kegelwinkel 10⁰, Abschäleröffnung bzw. -abstand vom Düsenende 1 mm bzw. 15 mm, 0.23 bar, 30 K (Lyon)
 - c) Käfig-Ionisator: □ Strahlquelle wie in Abb. 2.1, 2.0 bar, 34 K; ◇ aus /2.3/: anstelle von (N/Z)_{1/2} ist hier ein Mittelwert von N/Z angegeben, der als Verhältnis Atomstrom zu Ionenstrom definiert ist. Wegen der verschiedenen Ionisatoren sind die I₂-Skalen nicht direkt vergleichbar.

- 39 -



<u>Abb. 4.9:</u> Schematischer Verlauf der mittleren Anzahl von Atomen pro Ladung <N/Z> als Funktion des Elektronenstroms I_e im Ionisator für verschiedene Ausgangscluster.



<u>Abb. 4.10:</u> Abnahme der normierten Pendelauslenkung ϕ/ϕ_0 als Funktion des Untergrunddrucks p an Wasserstoff. Bei 40 mA ist $(N/Z)_{1/2} =$ $1.5 \cdot 10^5$ (vgl. Abb. 4.13) und bei 19 mA ca. $3 \cdot 10^5$ (vgl. Abb. 4.8). Die Kurve folgt aus Gleichung (AVI.6) nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate.

kann man folgern, daß dieser unverändert geblieben ist und damit auch die Anzahl an Atomen pro Cluster.

Sodann kann aus Meßdaten an mehrfach geladenen Clusterionen ein Zahlenwert für die Stabilitätsgrenze abgeleitet werden. Gspann und Körting /4.11/ berichten über Wasserstoff-Clusterionen mit $6.5 \cdot 10^4$ Molekülen und 4 elektrischen Ladungen. Unter der Annahme, daß das Clusterion kugelförmig ist und die 4 Ladungen an den Ecken eines regulären, der Kugel einbeschriebenen Tetraeders trägt, errechnet sich aus ihren Daten eine elektrische Feldstärke von 19.4 MV/m. Wendet man diese Feldstärke auf ein doppelt geladenes Clusterion mit den zwei Ladungen an den Enden eines Durchmessers an, so findet man, daß ein Clusterion mit $1.85 \cdot 10^4$ Atomen zwei Ladungen stabil tragen kann. Bei einem dreifach geladenen, bei dem man annimmt, daß sich die Ladungen an den Ecken eines gleichseitigen, einem Großkreis einbeschriebenen Dreiecks befinden, erhält man einen Wert von $6.5 \cdot 10^4$ Atomen. Die Stabilitätsgrenze liegt also tiefer als 9250 Atome pro Ladung beim zweifach geladenen Clusterion. Beim vierfach geladenen errechnet man aus den angegebenen Daten 32500 Atome pro Ladung.

Die so berechnete maximale Ladungszahl ist in Abb. 4.11 als Funktion der normierten Anzahl an Atomen N_0/N_4 eines Clusters aufgetragen, worin N_4 die Mindestanzahl an Atomen eines vierfach geladenen Clusterions bedeutet. Zum Vergleich damit enthält Abb. 4.11 auch die von Echt et al. /4.12/ an CO₂ gemessenen Werte, die auf die gleiche Weise normiert wurden. Aus der guten Übereinstimmung der Werte kann man schließen, daß im Falle weniger, diskreter Ladungen die oben gemachte Annahme, nämlich Anordnung der Ladungen an den Ecken eines regulären, einer Kugel einbeschriebenen Vielecks und Vergleich der Normalkomponente der resultierenden Feldstärke mit einer von N₀ unabhängigen, kritischen Feldstärke, gut zutrifft.

Bei einer größeren Anzahl von Ladungen pro Cluster ist der Trend zu einer höheren Stabilitätsgrenze für größere Cluster qualitativ auch mit Hilfe des Gaußschen Satzes verstehbar. Danach ist die elektrische Feldstärke auf der Clusteroberfläche E $\propto Z/N_o^{2/3}$, wenn man sich die Ladungen



 <u>Abb. 4.11:</u> Maximale Ladungszahl Z_{max} eines mehrfach geladenen Clusterions als Funktion der normierten Anzahl an Atomen N₀/N₄, wobei N₄ die Mindestatomzahl eines vierfach geladenen Clusterions ist. Die berechneten Werte folgen aus der Annahme, daß die Ladungen an den Ecken eines regulären, einer Kugel einbeschriebenen Vielecks sitzen, dessen Kantenlänge sich durch Gleichsetzen der Normalkomponente der elektrischen Feldstärke mit der beim vierfach geladenen Clusterion ergibt. Die Meßwerte wurden aus /4.12/ entnommen. gleichmäßig auf der Oberfläche verschmiert denkt. Nimmt man wieder wie oben an, daß die kritische Feldstärke E_{krit}, bei der die Emission von Fragmentionen einsetzt, von der Anzahl der Atome eines Clusterions in erster Näherung unabhängig ist, dann folgt

$$(N/Z)_{min} = const \cdot \sqrt{Z'} / E_{krit}^{3/2}$$

Legt man den schon erwähnten Wert von 32500 Atomen pro Ladung bei vier Ladungen zugrunde, dann erhält man die Skalierungsrelation $(N/Z)_{min} = 16250 \cdot Z^{1/2} (Z \ge 4).$

Mit denselben einfachen Relationen leitet man auch ab, daß die Stabilitätsgrenze mit $N_0^{1/3}$ geht, d. h., $(N/Z)_{min} \propto N_0^{1/3}$. Dadurch gelten, wie in Abb. 4.9 angedeutet, für verschiedene Ausgangsclustergrößen verschiedene N/Z-Kurven.

Die Annahmen, daß die maximale Ladungszahl proportional zur Oberfläche und die mittlere Ladungszahl proportional zur Elektronenstromdichte und zum Querschnitt eines Clusters sind, haben zur Folge, daß Cluster unterschiedlicher Größe ihre jeweilige Stabilitätsschwelle beim gleichen Elektronenstrom erreichen, wenn man über die Verteilung der Ladungszustände von Clustern gleicher Größe mittelt. Daraus ergibt sich, daß dann der Übergang von der 1/I_e-Abhängigkeit zur Stabilitätsgrenze selbst bei einer breiten Clustergrößen-Verteilung in einem engen Intervall des Elektronenstroms stattfinden sollte. Ein Beispiel dafür, allerdings das einzige, ist die obere Kurve in Abb. 4.8c).

Der Verlauf der schematischen Kurven in Abb. 4.9 läßt es im Prinzip denkbar erscheinen, durch Variation von I_e jeden gewünschten Wert der Anzahl von Atomen pro Ladung einzustellen. In praxi ist jedoch die Ausnutzbarkeit dieser Methode begrenzt, speziell im Fall intensiver Strahlen, weil bei jedem Elektronenstoß ein Bruchteil der kinetischen Energie im Cluster deponiert wird und zur Verdampfung von Clustermaterial und damit Bildung von Untergrundgas führt (s. Anhang IV). Während dieser Effekt die Steuerung des Masse-Ladungs-Verhältnisses nur geringfügig modifiziert, so daß die schematische Kurve in Abb. 4.9 etwas steiler abfällt, kann er den Strahltransport entscheidend beeinflussen, wie im folgenden Abschnitt ausgeführt wird.

4.4 Begrenzung des Stroms durch Wechselwirkung mit dem Untergrundgas

4.4.1 Ableitung der Maximalwerte des Stroms und der Stromdichte

Wenn ein beschleunigtes Clusterion mit einem Untergrundgasteilchen zusammenstößt, so führt der Übertrag an Energie dazu, daß das Clusterion einen Teil seiner Masse verliert. Auf die Größe dieses Anteils wird im nächsten Abschnitt eingegangen. Auf diese Weise werden im Strahl neue Untergrundteilchen gebildet, die zwar auch wieder aus dem Strahl herauslaufen und verloren gehen können, aber eine Erhöhung der Untergrunddichte bewirken.

Der Strahlverlust durch Stoß mit Untergrundteilchen wird minimiert durch Reduktion der Untergrunddichte auf einen möglichst niedrigen Wert. Eine untere Grenze wird dann erreicht sein, wenn ein Teilchen, das aus dem Strahl herausgelaufen ist, weggepumpt wird und nicht wieder zurückkehren kann. Solche Bedingungen können angenähert werden durch Installation von Kryopumpflächen um den Strahl herum und durch einen Strahlabsorber, der die Strahlteilchen am Ende der Driftstrecke wegfängt, bevor sie auf Wände stoßen und sich gleichmäßig in der Vakuumkammer verteilen können.

Im Grenzfall wird die Untergrunddichte im Strahl durch die Konkurrenz der Erzeugungs- und Verlustterme bestimmt, und es ist qualitativ klar, daß es eine bestimmte Stromdichte geben wird, bei der gerade soviele Teilchen erzeugt werden wie verloren gehen. Erhöht man die Stromdichte darüber hinaus, so wächst der Untergrund in instabiler Weise solange an, bis der Strahl zerstört wird. Im folgenden wird eine Ratengleichung für den Aufbau des Untergrundes aufgestellt und daraus eine Beziehung für die Grenzstromdichte bzw. den Grenzstrom abgeleitet. Dabei wird angenommen, daß das Untergrundgas in zwei Komponenten aufgeteilt werden kann, eine, die als ganzes im Laborsystem ruht, und eine, die durch die teilweise Verdampfung der Clusterionen entsteht und deshalb bevorzugt in Strahlrichtung fliegt (Abb. 4.12). Die zweite Komponente verursacht die Instabilität, während die erste, die den Untergrund in Abwesenheit des Strahls wiedergibt, nur als Auslöser wirkt. Hier ist anzumerken, daß es noch andere Auslöser geben kann, wie z. B. das im Ionisator durch Elektronenstoß erzeugte Gas, das mit dem neutralen Clusterstrahl mitfliegende unkondensierte Restgas und nicht zuletzt das bei Zusammenstößen von Clusterionen untereinander erzeugte Gas. Auf letzteres wird im übernächsten Abschnitt noch eingegangen.

Die drei Teilchensorten, Clusterionen und zwei Untergrundgaskomponenten, werden durch ihre Geschwindigkeitsverteilungen charakterisiert. Im einzelnen sind $f_c(v_c)$ bzw. $f_o(v_o)$ die Teilchenstromdichte pro Geschwindigkeitsintervall der Clusterionen bzw. des strömenden Untergrundes, $g_{\omega}(v_{\omega})$ die Teilchendichte pro Geschwindigkeitsintervall des ruhenden Untergrundes und v_{cr} , v_{or} , $v_{\omega r}$ die Relativgeschwindigkeiten zwischen Clusterionen untereinander und bezüglich der Untergrundteilchen. Nach elementaren gaskinetischen Beziehungen /4.13/ ist die Stoßfrequenz der Clusterionen und der beiden Untergrundarten, dZ_{cu}, dann bestimmt durch

$$dZ_{cu} = \langle \sigma \rangle (f_c(v_c)dv_c/v_c) (4v_{cr}f_c(v_c))dv_c/v_c + v_{or}f_o(v_o)dv_o/v_o + v_{\infty r}g_{\infty}(v_{\infty})dv_o)$$

worin $\langle \sigma \rangle$ der mittlere gaskinetische Stoßquerschnitt der Clusterionen ist. Diese Mittelung ist erforderlich, weil durch Wahl der Geschwindigkeit v_c zwar die Anzahl von Atomen pro Ladung N/Z festgelegt ist, nicht aber N alleine, worauf es für den Stoßquerschnitt aber ankommt. Unter



Abb. 4.12: Untergrundgas in einem Clusterionenstrahl. Die großen Kreise stellen die Clusterionen dar, die kleinen die Untergrundgas-Teilchen. Die Pfeile bedeuten die Geschwindigkeitsvektoren. Die strömende Untergrundgas-Komponente ist durch die langen, in Strahlrichtung weisenden Pfeile zu unterscheiden von der im Laborsystem ruhenden, deren Geschwindigkeitsvektoren kurz sind und in alle Richtungen zeigen. Berücksichtigung von $\text{Nm}_{\text{H}} \text{v}_{\text{c}}^2/2 = \text{ZeU}_{\text{a}}$ und $\sigma(\text{N}) = 8.7 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2 \cdot \text{N}^{2/3}$ errechnet man

$$<\sigma> = 8.7 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2 (2eU_a/m_H v_c^2)^{2/3} \sum_{Z=1}^{Z_{max}} g(Z,\overline{Z}) Z^{2/3},$$

worin $g(Z,\overline{Z})$ die Verteilungsfunktion des Ladungszustandes eines Clusterions ist und

$$\sum_{Z=1}^{Z} g(Z,\overline{Z}) = 1$$

erfüllt. Z ist die mittlere Ladung eines Clusterions und ist durch die Größe und Geschwindigkeit der neutralen Cluster sowie durch die Elektronenstromdichte bestimmt, Z_{max} ist die maximal mögliche Ladungszahl und ergibt sich aus der Größe der neutralen Cluster und aus der Stabilitätsgrenze für N/Z.

Die Terme in der Stoßfrequenzgleichung gehören der Reihe nach zu den Stößen der Clusterionen untereinander, mit den Teilchen des strömenden und mit denen des ruhenden Untergrundgases. Multipliziert man in die Stoßfrequenzgleichung die Anzahl der pro Stoß erzeugten Untergrundteilchen, q_{cc} , $q(v_{or})$ und $q(v_{or})$, integriert über die Geschwindigkeiten und fügt den Verlustterm hinzu, so erhält man die Ratengleichung

$$\dot{n}_{o} = \iint 4 < \sigma > q_{cc} (v_{cr} / v_{c} v_{c}) f_{c} f_{c} , dv_{c} dv_{c} +$$

$$\iint < \sigma > q(v_{or}) (v_{or} / v_{c} v_{o}) f_{c} f_{o} dv_{o} dv_{c} +$$

$$\iint < \sigma > q(v_{or}) (v_{or} / v_{c}) f_{c} g_{\omega} dv_{\omega} dv_{c} - n_{o} < |v_{\perp}| > F/4V$$

mit den Bezeichnungen

no

Dichte des strömenden Untergrundes

<|v_|> mittlerer Betrag der Geschwindigkeit quer zum Strahl der Teilchen des strömenden Untergrundes

F, V Oberfläche bzw. Volumen eines (zylindrischen) Strahlabschnittes.

Der erste und der dritte Term in der Ratengleichung hängen nicht von den Parametern des strömenden Untergrundgases ab. Unter den Annahmen, daß die Stromdichte der Clusterionen klein ist und der ruhende Untergrund verschwindet, vernachlässigen wir vorläufig beide Terme. Sodann wird für $q(v_{or})$ der plausible Ansatz gemacht, daß die Anzahl der pro Stoß freigesetzten Untergrundteilchen proportional zur Energie der Relativbewegung ist, d. h.,

$$q(v_{or}) = q'(m_{H_2}/2)v_{or}^2/(E_s+E^*).$$

Die Bezeichnungen sind

- q' ein konstanter Faktor 0 ≤ q' ≤ 1, der angibt, welcher Bruchteil der verfügbaren Energie umgesetzt wird,
- E_s Sublimationsenergie, bezogen auf ein Atom,
- E^{*} sonstige Energieformen, die die verdampften Untergrundteilchen besitzen, wie z. B. kinetische Energie.

Für Wasserstoff-Clusterionen mit weniger als 10⁴ Atomen ist dieser Ansatz von Henkes und Pfeiffer /4.14/ experimentell verifiziert worden. Unter Benutzung von

$$j_{c} = (2eU_{a}/m_{H}) (\sum_{Z=1}^{Z_{max}} g(Z,\overline{Z})Z) \int f_{c}(v_{c}) dv_{c}/v_{c}^{2}$$

für die Atomstromdichte im Clusterionenstrahl und

$$n_{o} = \int f_{o}(v_{o}) dv_{o}/v_{o}$$

läßt sich dann die Ratengleichung vereinfachen mit dem Ergebnis

$$\frac{1}{n_0}/n_0 = K << v_0^3 > \frac{1/3}{f_0}/v_0 < \frac{1/3}{f_0} > \frac{1}{c} - < |v_{\perp}| > F/4V,$$

woraus sich für den stationären Zustand $n_0 = 0$ und damit für die Grenzstromdichte ergibt

$$j_{c} = \frac{1}{4K} \cdot \frac{\langle |v_{\perp}| \rangle}{\langle \langle v_{o}^{3} \rangle_{f_{o}} / v_{o}^{1/3} \rangle_{f_{c}} / v_{c}^{2}} \cdot \frac{F}{V}$$

und für den Grenzstrom

$$I_{c} = \frac{1}{4K} \cdot \frac{\langle |v_{\perp}| \rangle}{\langle \langle v_{o}^{3} \rangle_{f_{o}} / v_{o}^{1/3} \rangle_{f_{c}} / v_{c}^{2}} \cdot P$$

P und I_c sind der Strahlumfang bzw. der durch den Untergrund begrenzte Atomstrom. Die Konstante K ist gegeben durch

$$K = 8.7 \cdot 10^{-20} \frac{{}_{\rm H}^{4/3}}{(2eU_{\rm a})^{1/3}} \cdot (\langle z^{2/3} \rangle / \overline{z})q' / (E_{\rm s} + E^{*}).$$

Für eine Abschätzung der Größenordnung werden $E^* = 0$, $\langle Z^{2/3} \rangle / \overline{Z} = 1$, $E_s = 3.8 \text{ meV}/\text{Atom}$, q' = 0.5 und $U_a = 350 \text{ kV}$ gesetzt. Damit folgt

$$K = 2.9 \cdot 10^{-30} s^{8/3} m^{-2/3}$$
.

Mit den Werten $\langle v_c \rangle = 1.86 \cdot 10^4$ m/s, entsprechend der letzten Spalte von Tab. 4.1, $v_{or} = \langle v_c \rangle / 2$, $\langle |v_{\perp}| \rangle = 2000$ m/s und einem Strahldurchmesser von 1 cm ergibt sich

$$I_{c} = 28 A_{o}$$
.

Offensichtlich ist der unter diesen Bedingungen erzielte Strahlstrom von 15 A_o von derselben Größenordnung wie der Grenzstrom.

Hebt man die Vernachlässigung der Stöße von Clusterionen untereinander sowie mit ruhendem Untergrundgas auf, so wird der Grenzstrom kleiner (s. Anhang V). Es ist im übrigen erforderlich, diese Vernachlässigung aufzuheben, damit in der Ratengleichung zur Zeit t = 0, zu der n und f verschwinden, überhaupt ein Quellterm vorhanden ist, der zum Anstieg von n führt. Berücksichtigt man darüber hinaus, daß die Voraussetzung, daß kein aus dem Strahl entwichenes Teilchen mehr dorthin zurückkehrt, hier nicht erfüllt ist, dann kann man davon ausgehen, daß der erreichte Strahlstrom und die Untergrundgas-Grenze nahe beieinanderliegen.

4.4.2 <u>Experimentelle Untersuchung des mittleren Masseverlustes pro Stoß</u> eines Clusterions mit einem Untergrundgas-Teilchen

Eine der wesentlichen Größen, die die Strahlstrom-Begrenzung durch Stöße mit dem Untergrundgas bestimmen, ist die Anzahl der pro Stoß freigesetzten Untergrundgas-Teilchen. Wenn ein Cluster als Folge eines Stoßes Teilchen emittiert, dann vermindert sich sein Impuls entsprechend. Falls diese Teilchen genügend Querimpuls haben und den Akzeptanzkegel des Pendels verlassen können, wirkt sich dieser Impulsverlust als Rückgang der Pendelauslenkung aus.

Demzufolge wurde die Schwächung des Pendelausschlags beim Durchgang eines Clusterionen-Strahls durch ein Wasserstoff-Gastarget untersucht. Abb. 4.13 zeigt das Geschwindigkeitsspektrum des verwendeten Clusterionen-Strahls.

Der gemessene Impulsverlust muß mit einem Masseverlust gekoppelt sein, da die Anzahl der Zusammenstöße zwischen einem Clusterion und den Untergrundgas-Teilchen nicht groß genug ist, um das Clusterion als ganzes abzubremsen, selbst wenn man ausschließlich zentrale Stöße annähme. Im einzelnen erfährt ein Clusterion mit $1.5 \cdot 10^5$ Atomen bei einer Targetdicke von $6 \cdot 10^{14}$ cm⁻², was einem Druck von 10^{-4} mbar bei 20 °C entspricht, im Mittel etwa 1500 Stöße. Die maximal mögliche relative Impulsänderung beträgt daher 4 %. Dies ist nur ein kleiner Bruchteil des gemessenen Impulsverlustes. Mit demselben Argument kann man dann ebenfalls belegen, daß auch der Bruchteil der Clusterionen, die durch die Stöße als ganze aus dem Akzeptanzkegel des Pendels herausgestreut werden, vernachlässigbar ist.



<u>Abb. 4.13:</u> Spektrum des beim Schwächungsexperiment (vgl. Abb. 4.10) verwendeten Clusterionenstrahls.

Der Impulsverlust wird also verursacht durch einen Masseverlust der Clusterionen, zu dessen Berechnung das in Abb. 4.14 skizzierte Modell benutzt wird. Ein Clusterion erfährt im Abstand 1-x vom Pendel einen Stoß und emittiert als Folge davon q Atome. Diese nehmen bei der Emission zu ihrem bisherigen Impuls in Strahlrichtung auch Querimpuls auf und laufen deshalb in einen in Strahlrichtung weisenden Kegel mit dem Öffnungswinkel α hinein. Ein gewisser Anteil der Atome, der bestimmt wird durch das Verhältnis der Fläche des Kreisrings $r_p \leq r \leq r(1)$ zur gesamten Kreisfläche,fliegt am Pendel vorbei. Ihr Impuls geht verloren.

Die Durchrechnung dieses Modells, die im Anhang VI wiedergegeben wird, führt unter Zugrundelegung des gemessenen Impulsverlustes zu einer Beziehung zwischen der Anzahl emittierter Atome und dem Öffnungswinkel. Das Ergebnis ist in Abb. 4.15 in Form eines Teilchenverlustkoeffizienten q' dargestellt, wobei q' die Anzahl emittierter Atome, normiert auf die maximale, energetisch mögliche Anzahl, bedeutet. Erwartungsgemäß kann ein Mindestöffnungswinkel, der mit der Emission der maximalen Anzahl an Atomen verknüpft ist, nicht unterschritten werden. Analog dazu, wenn auch nicht so scharf ausgeprägt, gibt es eine Mindestanzahl zu emittierender Atome, nämlich dann, wenn der Öffnungswinkel so groß ist, daß der aufs Pendel entfallende Anteil vernachlässigt werden kann.

Eine Einschränkung der q' und tana zugänglichen Intervalle erhält man durch die Anwendung des Energiesatzes. Die für die Emission von Atomen verfügbare Energie kommt aus der kinetischen Energie, die zur Relativbewegung zwischen Clusterion und Untergrundgas-Teilchen gehört, und entspricht in guter Näherung der kinetischen Energie pro Teilchen im Clusterion, da die thermische Geschwindigkeit der Untergrundteilchen etwa eine Größenordnung kleiner ist als die Geschwindigkeit der Clusterionen, alles aufs Laborsystem bezogen. Es ist unmittelbar anschaulich, daß der Öffnungswinkel klein sein wird, wenn die verfügbare Energie auf viele Teilchen verteilt wird, und umgekehrt. Dieser Zusammenhang wird in Abb. 4.15 durch die Kurve q_e' dargestellt, wobei q_e' die ebenso wie q' normierte, energetisch zulässige Anzahl emittierter Atome ist. Nur im Intervall zwischen



<u>Abb. 4.14</u>: Ein Clusterion emittiert nach einem Stoß mit einem Untergrundteilchen q Atome in einen vorwärts gerichteten Kegel mit dem Öffnungswinkel α. In der Pendelebene (x=1) hat sich der Kegelquerschnitt auf eine Kreisfläche mit Radius r(1) = (1-x)tanα aufgeweitet. Ist r(1)>r, dann geht der Impuls der durch den Kreisring r_p ≤ r ≤ r(1) fliegenden Atome verloren.



Abb. 4.15: Teilchenverlustkoeffizienten q' und q'als Funktion des Tangens des Öffnungswinkels. q'e wurde unter der Annahme berechnet, daß der Impuls der emittierten Teilchen im Cluster-Ruhsystem rein transversal und die Verteilung des Impulsbetrags rechteckförmig ist. Der mit + gekennzeichnete Punkt gibt das der Kurve in Abb. 4.10 entsprechende Wertepaar tanα, q' wieder.

den Schnittpunkten der beiden Kurven ist die energetisch zulässige Anzahl genügend groß, um den gemessenen Impulsverlust zu erklären. Daraus ergibt sich, daß der Masseverlust pro Stoß zwischen 10 % und 50 % des energetisch möglichen liegt, d. h., 0.1 < q' < 0.5, und daß der Öffnungswinkel bis zu 8[°] betragen kann /4.15/.

Zu einem einzigen Wertepaar tan α und q' kann man schließlich gelangen, indem man die theoretische Kurve $\phi/\phi_0 = f(n)$, die sich durch entsprechendes Auflösen der Gleichung (A VI.6) ergibt, durch Variation der Parameter tan α und q' an die Meßpunkte anpaßt. Die resultierende Kurve ist in Abb. 4.10 eingezeichnet. Die zugehörigen Werte tan $\alpha = 0.11$, d. h. $\alpha = 6.3^{\circ}$, und q' = 195/1278 = 0.15 sind in Abb. 4.15 als Kreuz dargestellt. Im Mittel werden also pro Stoß 15 % der energetisch zulässigen Teilchen emittiert und laufen in einen Kegel mit einem Öffnungswinkel von 6[°].

4.4.3 Einfluß der Geschwindigkeitsverteilung der Clusterionen

Ein Einfluß der Geschwindigkeitsverteilung der Clusterionen auf den Strahltransport in intensiven Strahlen, insbesondere durch Stöße der Clusterionen untereinander, wurde seit den Anfängen der Clusterionenbeschleunigung erwartet.

Die nachstehend beschriebenen Versuche sind eine experimentelle Demonstration dieses Effektes und ermöglichen eine quantitative Abschätzung seines Einflusses. Sie beruhen darauf, daß man die Auswirkung der Relativgeschwindigkeit zwischen Strahlteilchen dadurch untersuchen kann, daß man ein Gemisch aus einem neutralen und einem ionisierten Strahl herstellt, indem man den Elektronenstrom im Ionisator genügend klein wählt. Beschleunigt man diesen Zwei-Komponenten-Strahl, eliminiert danach die geladene Komponente mit Hilfe von elektrostatischen Ablenkplatten und mißt die Stromdichte des neutralen Anteils, z. B. mit einem Pitot-Rohr, so stellt man fest, daß der neutrale Anteil mit wachsender Beschleunigungsspannung zunehmend geschwächt wird. Wie Abb. 4.16 im Detail zeigt, nimmt die Intensität der neutralen Strahlkomponente als Funktion des Elektronenstroms im Ionisator exponentiell ab. Der zugehörige Schwächungskoeffizient wächst mit der Beschleunigungsspannung an. Die auch bei verschwindender Beschleunigungsspannung vorhandene Schwächung der neutralen Komponente spiegelt einfach den trivialen Sachverhalt wieder, daß bei zunehmender Ionisierung des Strahls die Anzahl neutraler Cluster abnimmt. Zerlegt man den Schwächungskoeffizienten in einen konstanten und einen hochspannungsabhängigen Teil, so daß die Schwächungskurven durch U/U_o = $exp(-(b_o+b(U_a))(I_e/mA))$ dargestellt werden, so erhält man aus Abb. 4.16 den in Abb. 4.17 gezeigten Verlauf von $b(U_a)$.

Faßt man nun den vollionisierten Clusterionenstrahl als Superposition zweier Strahlen auf, die sich mit der aus der Geschwindigkeitsverteilung berechneten mittleren Relativgeschwindigkeit gegeneinander bewegen, so findet man für den im Anhang VII behandelten Fall eine fiktive Beschleunigungsspannung von 32 kV. Extrapolation des Schwächungskoeffizienten liefert b(32 kV) = 0.083. Mit dem zu diesem Fall gehörigen Elektronenstrom im Ionisator von 18 mA errechnet man eine Schwächung von $\exp(-0.083 \cdot 18) = 0.22$. Damit ist auch experimentell nachgewiesen, daß dieser auf der Geschwindigkeitsverteilung der Clusterionen beruhende Effekt, der durch die ersten zwei Integrale in Gl. (4.4.1.1) ausgedrückt wird, die wesentliche Rolle bei der Strombegrenzung durch Stöße spielt.

Darüber hinaus kann man mit diesen Ergebnissen auch zeigen, daß, wie in Gl. (4.4.1.1) zum Ausdruck kommt, die Stöße zwischen Clusterionen und strömendem Untergrundgas die Instabilität verursachen und daß die Stöße der Clusterionen untereinander nur die Rolle eines Auslösers spielen, aber die Strahlschwächung nicht quantitativ erklären können.

Zunächst ergibt eine Abschätzung der Stoßzahl mit der Beziehung

 $C = 4I_n \sigma 1(v_r/v)/(evF)$







Beschleunigungsspannung U_a / kV

<u>Abb. 4.17:</u> Der aus Abb. 4.16 resultierende Schwächungskoeffizient b als Funktion der Beschleunigungsspannung U_a . b ist definiert durch $U/U_o = \exp(-(b_o+b(U_a))(I_e/mA))$.

unter den vorliegenden Bedingungen den Wert C = 0.02, der zu klein ist, um die gemessenen Ausbeuten zu erklären. Die Größen und ihre Werte sind dabei

- I_n Clusterionenstrom 15 $A_0/2 \cdot 10^5$,
- σ geometrischer Querschnitt eines Clusterions, $3 \cdot 10^{-12}$ cm² für $2 \cdot 10^5$ Atome pro Cluster bei Wasserstoff,
- 1 Länge der Wechselwirkungszone, 2.6 m,
- v mittlere Relativgeschwindigkeit der Clusterionen, 30 % ihrer mittleren Geschwindigkeit im Laborsystem,
- v mittlere Geschwindigkeit der Clusterionen im Laborsystem, 19 km/s,
- F mittlerer Strahlquerschnitt in der Wechselwirkungszone, $(\pi/4)16 \text{ cm}^2$, e Elementarladung.

Des weiteren zeigt auch die Abhängigkeit des Schwächungskoeffizienten von der Beschleunigungsspannung (Abb. 4.17), daß die Schwächung nicht durch binäre Stöße von Clusterionen mit Clustern erklärt werden kann, weil deren Stoßzahl in erster Näherung von der Beschleunigungsspannung unabhängig ist. Schließlich enthält Abb. 4.16 noch eine Bestätigung für den im dritten Term der Ratengleichung (4.4.1.1) ausgedrückten Einfluß von extern vorgegebenem Untergrundgas. Für höheren Untergrundgas-Druck ist die Schwächung stärker, weil in der Anfahrphase nahe I_e = 0 zu den Stößen der Clusterionen mit den neutralen Clustern noch die mit dem Untergrundgas hinzukommen.

4.5 Skalierungsrelationen

Für die Skalierung des Stromes im Rahmen der am Karlsruher Beschleuniger gegebenen Möglichkeiten sind die Parameter Strahlumfang P am Eintritt in die Driftstrecke, Beschleunigungsspannung U_a sowie die Anzahl an Atomen pro Ladung N/Z verfügbar. Die Zielöffnung am Ende der Driftstrecke, die durch die Pendelscheibe mit ihrem Durchmesser von 0.16 m gegeben ist, wird dabei konstant gehalten.

Vernachlässigt man den Einfluß der Stöße der Clusterionen untereinander und mit dem ruhenden Untergrundgas auf die Strombegrenzung, dann ergeben sich die in Abb. 4.18 dargestellten Skalierungen des Teilchenstroms bezüglich Raumladung und Untergrundgas. Der nicht eingezeichnete Zusammenhang zwischen dem raumladungsbestimmten Strom und dem Strahlumfang P am Eintritt in die Driftstrecke ist durch die Beziehung

$$I/I = 0.3 + 4.25 P/P_{o}$$

gegeben, worin $\hat{I} = 0.0243 (P_0/2\pi L)^2 (U_a/kV)^{3/2} (NZ)^{1/2} A_0$ und P_0 der Umfang der Zielöffnung sind /4.5/.

Man erkennt, daß der erreichbare Strom am stärksten mit dem Strahlumfang wächst, während die Beschleunigungsspannung bei konstanter Energie pro Atom nur einen schwachen Anstieg und bei konstanten Clusterionen sogar nur einen optimalen Wert zuläßt.



Abb. 4.18: Skalierung des Atomstroms I mit den Parametern Strahlumfang P, Anzahl von Atomen pro Ladung N/Z und Beschleunigungsspannung U_a. Die Kurven sind gekennzeichnet mit UG für Untergrundgas und RL für Raumladung, die Zahlen geben die Steigung bzw. den Exponenten des Potenzgesetzes an.

5. Diskussion der Ergebnisse

Die in die Clusterionen gesetzten Erwartungen bezüglich der Entschärfung des Raumladungsproblems werden im Rahmen der Meßgenauigkeit und innerhalb des überstrichenen Bereichs erfüllt. Zu der bei Strahlen aus geladenen Teilchen wohlbekannten Raumladungsbegrenzung tritt ein weiterer begrenzender Effekt hinzu, der auf den Stößen der Clusterionen mit Untergrundgas beruht. Wie der Vergleich mit theoretischen Abschätzungen zeigt, liegt diese Begrenzung in derselben Größenordnung wie die gemessenen Ströme.

Die in die Theorie eingehenden Prozesse konnten experimentell verifiziert werden. Im einzelnen sind dies die Stöße der Clusterionen untereinander sowie mit dem im Laborsystem ruhenden Untergrundgas und dem durch die genannten Vorgänge erzeugten, mit dem Strahl mitfliegenden Untergrundgas.

So zeigt ein Simulationsexperiment, bei dem ein teilweise ionisierter Strahl beschleunigt und die Schwächung der neutralen Strahlkomponente gemessen wird, daß der wesentliche Teil der Schwächung verursacht wird durch das mitfliegende Untergrundgas, das nach der Theorie auch für das Zustandekommen der Instabilität sorgt. Die Stöße der Clusterionen untereinander, d. h. beim Simulationsexperiment auch mit den neutralen Clustern, sowie mit dem ruhenden Untergrundgas übernehmen dabei die Rolle eines Auslösers für die Erzeugung des mitfliegenden Untergrundgases.

Bezüglich der Ausbeute an pro Stoß erzeugten Untergrundgas-Teilchen kann man für den Fall der Stöße von Clusterionen untereinander in erster Näherung annehmen, daß die Stoßpartner bei zentralen Stößen vollständig zerlegt werden, weil die zur Relativbewegung gehörende kinetische Energie weit größer ist als die gesamte Sublimationsenergie. Im Falle der Stöße von Clusterionen mit Teilchen des ruhenden Untergrundgases sind die Verhältnisse gerade umgekehrt, die kinetische Energie macht nur einen kleinen Bruchteil der gesamten Sublimationsenergie aus.

Zur Physik intensiver, elektrostatisch beschleunigter Clusterionen-Strahlen

Zusammenfassung

Die an den Clusterionenbeschleunigern in Karlsruhe und Lyon durchgeführten Entwicklungsarbeiten haben zu Strahlströmen und -stromdichten in den Grö-Benordnungen von 10 Ao bzw. 1 Ao/cm² bei kinetischen Energien der Größenordnung 10 eV/Atom geführt. Neben der wohlbekannten Raumladungsgrenze manifestiert sich ein weiterer begrenzender Effekt, der auf den Stößen der Clusterionen untereinander und mit Untergrundgas beruht. Durch die dabei erfolgende teilweise Verdampfung der Clusterionen wird zusätzlich Untergrundgas gebildet und bei Überschreiten einer Grenzstromdichte eine Instabilität ausgelöst. Skalierungsrelationen, die aus den begrenzenden Prozessen abgeleitet werden, weisen darauf hin, daß durch die Verwendung von bandförmigen Strahlen im Karlsruher Beschleuniger etwa eine Größenordnung mehr Strom möglich sein sollte. Ein für die Steuerung der Energie pro Atom wichtiges Ergebnis ist, daß die Anzahl der Atome pro Ladung sowohl bei großen (105 Atome pro Ladung) als auch bei kleinen (100 Atome pro Ladung) Clusterionen umgekehrt proportional zum Elektronenstrom im Ionisator geht, was mit Mehrfach-Aufladung bei großen bzw. mit symmetrischer Fragmentierung bei kleinen Clusterionen erklärt wird.

<u>On the physics of intense, electrostatically accelerated cluster-ion beams</u> Abstract

The development work performed on the cluster-ion accelerators at Karlsruhe and Lyon has led to beam currents and flux densities of the order of 10 A_0 and 1 A_0 /cm², respectively, at kinetic energies of the order of 10 eV/atom. Besides the well-known space-charge limit, an additional limiting effect appears which is caused by collisions of cluster ions among themselves and with background gas. The ensuing partial evaporation of cluster ions leads to the production of additional background gas and may cause instability if a limiting flux density is exceeded. Scaling relations, derived from the limiting processes, suggest that by use of band-shaped beams it should be possible to increase the current by one order of magnitude in the Karlsruhe accelerator. Another result, which is important for the control of the energy per atom, is that both for large (105 atoms/charge) and for small (100 atoms/charge) cluster ions the number of atoms per charge is inversely proportional to the electron current in the ionizer. This effect is explained by multiple charging and symmetrical fractioning of large and small cluster ions, respectively.

grundgas-Begrenzung gelte. Daraus würde noch ein Faktor $(1/0.35)^{1/3} = 1.4$ resultieren, so daß insgesamt mehr als eine Größenordnung an Stromsteigerung zu erwarten wäre. Damit würde der Atomstrom Größenordnungen erreichen, die interessant wären für Experimente wie z. B. zur Nachfüllung in Plasmen /5.1/ oder zur Erzeugung intensiver Strahlen von H⁻-Ionen durch Wechselwirkung von Clusterionen mit cäsiumbedeckten Oberflächen /4.10/.

Bandstrahlen haben einen weiteren, prinzipiellen Vorteil verglichen mit zylindrischen Strahlen bei der Autoneutralisation des Strahls. Unter Autoneutralisation soll verstanden werden, daß die Clusterionen in dem vom Strahl selbst erzeugten Untergrund durch Stöße in ihre einzelnen Moleküle zerlegt werden. Eine Neutralisierung ist insbesondere erforderlich bei der Injektion in magnetisch eingeschlossene Plasmen /5.1/ und soll üblicherweise durch eine Gaszelle oder einen Querstrahl erfolgen. Da nun Bandstrahlen verschwindender Emittanz trotz der elektrischen Raumladung im Prinzip auf eine Linie fokussiert werden können, ist es unabhängig vom Gesamtstrom möglich, die Stromdichte so zu erhöhen, daß die Stoßfrequenz groß genug wird, um die Clusterionen vollständig zu zerlegen. Da zylindrische Strahlen, auch bei verschwindender Emittanz, nur auf ein Kreisscheibchen, aber nicht einen Punkt, fokussiert werden können, besteht für sie die Möglichkeit der Autoneutralisierung nicht in derselben, prinzipiellen Weise, sondern nur dann, wenn der Gesamtstrom ausreichend groß ist.

Der Einsatz von Bandstrahlen für die Clusterionenbeschleunigung erfordert, obwohl Vorarbeiten existieren /5.2, 5.3, 5.4/ noch Entwicklungsaufwand. Ähnliches gilt für die Verwendung von nebeneinander angeordneten Einzelstrahlen, bei denen erst die gegenseitige Interferenz untersucht werden muß.

Bei der Diagnostik scheint eine Steigerung der Genauigkeit erzielbar durch Nutzung einer neuen Mikrofertigungstechnik. Dabei handelt es sich um das sogenannte LIGA-Verfahren, eine Kombination von Röntgen-Tiefenlithografie, Galvanoplastik und Abformung /5.5/, mit dem Strukturen von wenigen µm Ausdehnung und einer Höhe von etwa 0.5 mm gefertigt wurden. Mit diesem Verfahren sollte es möglich sein, sehr leichte und dadurch empfindliche Pendel, die in wabenförmig angeordneten Vertiefungen mit großem Verhältnis von Tiefe zu Durchmesser den Teilchenimpuls praktisch vollständig absorbieren, herzustellen. Dadurch könnte der relative Fehler der Atomstrommessung auf etwa ± 25 % gesenkt werden. Anhang I: Flugzeitspektrometer zur Bestimmung der Geschwindigkeitsverteilung

AI.1 Mathematische Beschreibung des Spektrometers

AI.1.1 Integrale Flugzeitspektren

Zur Berechnung der Geschwindigkeitsverteilung aus der in 3.1 abgeleiteten Formel

$$f(v_{m}) = (dR/dt')/\{r(v_{m})(v_{f}-v_{i})\partial k(t',v_{m})/dt'\}$$
(AI.1)

müssen die Funktionen v_i(t'), v_f(t') und k(t',v) bekannt sein. Dazu ist es erforderlich, die Trajektorien der Clusterionen zu berechnen, die sich während des Zusammenbrechens der Ablenkspannung zwischen den Ablenkplatten befinden. Dies kann mit der Bewegungsgleichung

$$\ddot{y}(s,t) = (Ze/Nm_{\mu})E_{d}(s,t)$$

ausgeführt werden, in der

y(s,t)	die Ablenkung des Strahls als Funktion der Zeit t und der Weglänge s längs des Strahls,
E _d (s,t)	die elektrische Feldstärke zwischen den Ablenkplatten,
е	die Elementarladung und
^m H	die Masse des Wasserstoffatoms

bedeuten.

Die Anfangsbedingungen für die Integration der Bewegungsgleichung hängen von der Teilchengeschwindigkeit ab und werden bestimmt durch die Position des Teilchens am Beginn (t = 0) und am Ende des Kurzschlußvorganges (t = τ). Wie Abb. AI.1 zeigt, muß man dabei vier verschiedene Fälle unterscheiden. Der im Zeitintervall 0 < t < τ durchlaufene Bahnabschnitt ist fett ausgezeichnet. Trotz der vier möglichen Anfangsbedingungen ist der



Abb. AI.1: Schematische Darstellung der vier verschiedenen Anfangsbedingungen für die Lösung der Bewegungsgleichung.

Zusammenhang zwischen Strahlgeschwindigkeit und Ablenkung in der Detektorebene eindeutig. Zum Beweis nimmt man an, daß der Teilstrahl mit der Geschwindigkeit v(t') zum Zeitpunkt t' um die Strecke y ($0 < y < y_{max}$) abgelenkt sei. Wenn ein anderer Teilstrahl mit einer größeren Geschwindigkeit v' > v zur selben Zeit am selben Ort ankommt, dann müssen seine Teilchen auf der gesamten Bahn stromauf vom Detektor hinter den Teilchen des ersten Strahls zurückgelegen haben. Insbesondere müssen sie das Ablenkgebiet später durchlaufen haben, so daß das Ablenkfeld schon weiter abgefallen war. Ihre Ablenkung muß daher kleiner sein, sie können also nicht denselben Ort in der Detektorebene erreichen, im Widerspruch zur Annahme. Ebenso muß ein langsamerer Teilstrahl dem Vergleichsstrahl vorgeeilt und deswegen stärker abgelenkt sein, was zum selben Widerspruch führt.

Zum Zeitpunkt t' berührt also genau ein Teilstrahl den Rand der Detektoröffnung. Seine Geschwindigkeit wird mit v_i(t') bezeichnet und kann aus der Gleichung

$$y(L_{+},t') = (d_{s}+d_{d})/2$$
 (AI.2)

berechnet werden, wobei $v_i(t')$ in $y(L_+,t')$ enthalten ist und d_s bzw. d_d der Strahldurchmesser bzw. die Weite des Detektorspaltes sind. Gleichung (AI.2) ist ebensogut auf andere Kombinationen der Form der Detektoröffnung und des Strahlquerschnitts anwendbar, wenn d_s und d_d analog interpretiert werden.

Die Integration der Bewegungsgleichung wird mit dem Fall ii begonnen, weil er den Grenzfall verschwindender Teilchengeschwindigkeit umfaßt und typischerweise für Clusterionen mit mehr als 1000 Atomen pro Ladung bei einer kinetischen Energie unterhalb 1 MeV gilt. Am Eingang zum Ablenkgebiet seien sowohl die Ablenkung als auch die Quergeschwindigkeit Null. Wie aus Abb. AI.l ersichtlich, folgen dann die Bahnabschnitte I, II und III aus den Lösungen mit konstantem bzw. zeitabhängigem bzw. verschwindendem Feld. Die Anfangsbedingungen für die Lösungen II und III folgen aus den Lösungen I bzw. II. Wenn die Anfangsbedingungen nicht als Funktion von
t und t', sondern von s vorliegen, können sie mit der Beziehung $s(t) = L_+ + v(t-t')$, die für ein Teilchen gilt, das zur Zeit t' in der Detektorebene s = L_ ankommt, umgeformt werden. Mit den Abkürzungen

$$b = (Ze/Nm_{H})(U_{d}/d)$$
 $\eta(t',t) = y(t',t)/b$ $t_{1} = L_{1}/v$

und unter der Annahme einer linearen Zeitabhängigkeit des Ablenkfeldes während des Kurzschlußvorgangs $h(t,\tau) = 1-t/\tau$ ergibt sich die Ablenkung in der Detektorebene (t = t') als

$$\eta_{TTT}(t',t') = (\tau t' - t'^2 + t_+^2 - \tau^2/3)/2 \equiv \eta^{ii}(t')$$

Die Bedingung $\eta_{III}(t',t')\cdot b = y^{*}$ gestattet die Berechnung der Geschwindigkeit v(t',y^{*}) desjenigen Teilstrahls, dessen Ablenkung in der Detektorebene zum Zeitpunkt t' y^{*} beträgt. Insbesondere folgt v_i(t') = v(t',(d_s+d_d)/2). Mit der Relation ZeU_a = Nm_Hv²/2 und der Abkürzung Λ^{2} = 2y^{*}d·U_a/U_d, wobei U_a die Beschleunigungsspannung ist, erhält man im Falle ii

$$v^{ii}(t',y^*) = (L_{+}/t')\sqrt{(1-2\Lambda^2/L_{+}^2)/(1-\tau/t'+\tau^2/3t'^2)}$$

Setzt man $y^* = (d_s + d_d)/2$ in Λ^2 und benutzt zusätzlich die Abkürzungen $\alpha = \tau/t'$ und $\rho = 1-2 \Lambda^2/L_+^2$, so findet man

$$v_{i}^{ii}(\alpha) = v_{i}^{ii}(\alpha, (d_{s}+d_{d})/2) = (L_{+}/\tau) \cdot \alpha \cdot \sqrt{\rho/(1-\alpha+\alpha^{2}/3)}$$
.

Die Geschwindigkeit $v_f(t')$ kann unmittelbar hingeschrieben werden, denn sie gehört zu den Teilchen, die bei $t = \tau$ in das Ablenkgebiet eintreten und bei t = t' in der Detektorebene ankommen, so daß $v_f(t') = L_{+}/(t'-\tau)$.

Die anderen Fälle werden analog berechnet. Dabei erhält man in den Fällen ai und ia kubische Gleichungen für v_i. Von ihren drei Wurzeln wird aus physikalischen Gründen die kleinste positive Lösung ausgewählt. Weiterhin wird im Falle ia die Lösung durch die Bedingung $\Lambda^2 < (L_+^2 - L_-^2)/2$ eingeschränkt, die in praxi fast immer erfüllt ist, da eine gute Auflösung angestrebt wird. Die Ergebnisse sind in Tab. AI.l zusammengefaßt.

	ii	ai	ia	аа
η	(τt'-t' ² +t ² ₊ -τ ² /3)/2	$\frac{t'^{3}}{6\tau} - \frac{t'^{2}}{2} + t'(\frac{\tau}{2} - \frac{t_{+}^{2}}{2\tau}) + \frac{t_{+}^{3}}{3\tau} + \frac{t_{+}^{2}}{2} - \frac{\tau^{2}}{6}$	$-\frac{t'^{3}}{6\tau} + \frac{t't^{2}}{2\tau} - \frac{t^{3}}{3\tau} + \frac{t^{2}_{+}-t^{2}_{-}}{2}$	$\frac{t_{+}^{2}-t_{-}^{2}}{2}(1-\frac{t_{-}^{\prime}}{\tau})+\frac{t_{+}^{3}-t_{-}^{3}}{3\tau}$
vi	$\frac{L_{+}\alpha}{\tau} \sqrt{\rho/(1-\alpha+\alpha^2/3)}$	$2\frac{L_{+}^{\alpha}}{\tau(1-\alpha)} \sqrt{u^{\prime}} \cdot \cos(\phi/3)$	$2\frac{L_{\alpha}}{\tau}\sqrt{u'}\cdot\cos(\phi/3)$	$\frac{L_{+}\alpha}{\tau} \frac{2(1-\lambda^{3})}{3\lambda^{2}(1/\lambda^{2}-u)}$
u	-	(1-αρ)/(1-α)	1-(1-ρ/λ ²)α	1-(1-ρ/λ ²)α
φ	-	π +arccos(u ^{-3/2})	π +arccos(u ^{-3/2})	-
<u>ðk/ðt'</u> b·k _o	τ/2-τ'	$\frac{t'^2 - t_+^2}{2\tau} + \frac{\tau}{2} - t'$	$\frac{t_{-t'}^2}{2\tau}$	$\frac{t_{-}^{2}-t_{+}^{2}}{2\tau}$
A	$\sqrt{\rho(1-\alpha)^2/(1-\alpha+\alpha^2/3)}$	$2\sqrt{u} \cos(\phi/3)$	$2\lambda \sqrt{u^{\prime}} \cos(\phi/3)$	$2(1-\lambda^3)(1-\alpha)/(3\lambda^2(1/\lambda^2-u))$
ti	$\frac{\tau}{2} + \sqrt{\rho t_{+}^{2} - \tau^{2}/12}$	τ+2t ₊ cos{ $\frac{1}{3}$ [π +arccos(1-1.5(1-ρ)τ/t ₊)]}	$2t_\cos\left\{\frac{1}{3}\left[\pi\right] - \arccos(1-1.5(\rho/\lambda^2-1)\tau/t_)\right\}$	$\tau + \frac{2}{1-\lambda^2} (\tau_+ (1-\lambda^3)/3 - \tau \Lambda^2/L_+^2)$
в	t ⁱⁱ /t ₊	t ^{ai} /t ₊	t ^{ia} /t ₊	t ^{aa} /t ₊
k ₀ =	$\frac{1}{F_{o}} \begin{cases} -\sqrt{d_{s}^{2} - (d_{d}^{2} - 2y)^{2}} \\ -\sqrt{d_{s}^{2} - (d_{d}^{2} - 2y)^{2}} \end{cases}$	$y \ge (d_{s} - d_{d})/2$ + $\sqrt{d_{s}^{2} - (d_{d} + 2y)^{2}}$ y < $(d_{s} - d_{d})/2$	$F_{o} = \frac{1}{2} (d_{d} \sqrt{d_{s}^{2} - d_{d}^{2}} + d_{s}^{2} \operatorname{arcsin}(d_{s})$	d/d _s))
i α = 7	τ/t' $\lambda = L_/L$	$\rho = 1 - 2\Lambda^2 / L_+^2$	$\Lambda^2 = (d_d + d_s) \cdot d \cdot U_a$	/U _d
η = τ	y/b b = (Ze/	$(Nm_p)(U_d/d)$ $t_+ = L_+/v$	t_ = L_/v	

<u>Tab. AI.1</u>

Abb. AI.2 zeigt die Geschwindigkeiten $v_{-} = L_{-}/(t'-\tau)$, v_{i}^{ii} , v_{i}^{ai} und v_{i}^{aa} , normiert auf $v_{+} = L_{+}/t'$, als Funktion von t'/ τ . Man erkennt die Übergänge zwischen den Fällen ii und ai, wo v_{i}^{ii}/v_{+} größer als Eins wird, und den Fällen ai und aa, wo v_{i}^{ai}/v_{+} kleiner wird als v_{-}/v_{+} .

Es muß nun geklärt werden, welcher der vier Fälle bei der Berechnung der Geschwindigkeitsverteilung f(v) für eine bestimmte Geschwindigkeit v gilt. Offensichtlich gehört ein Teilchen mit einer hinreichend kleinen Geschwindigkeit, das zum Signal R(t') nur bei großen Werten von t' beiträgt, zum Fall ii, d. h., $v_i(t') = v_i^{ii}(t')$. Ein Teilchen mit der Geschwindigkeit $v_f(t')$ liegt dagegen definitionsgemäß am Rand des Falles ai. Das Intervall $\{v_i^{ii}, v_f\}$ schließt daher für genügend große Werte von t' die Fälle ii und ai ein, d. h., der Auflösungsterm im Signal R(t') umfaßt Beiträge von Teilchen, die zum Fall ii, und solchen, die zu ai gehören. Beim Übergang zu größeren Teilchengeschwindigkeiten und dementsprechend zu kleineren Werten von t' ändern sich sowohl das Intervall $\{v_i, v_f\}$ als auch die Fälle, die es einschließt.

Eine schematische Darstellung ist in Abb. AI.3 zu sehen, wo die zur Unterscheidung der Fälle herangezogenen Bahnstücke zwischen t = 0 und t = τ über der Geschwindigkeit aufgetragen sind für die Teilchen, die ins Intervall $\{v_i, v_f\}$ fallen. Die schraffierten Flächen gehören zu vier verschiedenen Zeitpunkten t'. Die sie begrenzenden Geraden findet man wie folgt: man wählt zunächst einen Wert der Geschwindigkeit und berechnet den entsprechenden Wert von t' aus der Gleichung für v_i^{xy} , wo xy für einen der vier Fälle steht. Mit diesem t' können v_f und $v_f \cdot \tau$ berechnet werden, wodurch die rechte Kante des schraffierten Trapezes festgelegt wird. Von den Endpunkten dieser Kante werden dann die Geraden t'·v und $(t'-\tau)v$ gezogen bis zu ihrem Schnittpunkt mit $v = v_i^{xy}$. Die Schnittpunkte, deren Abstand $\tau \cdot v_i^{xy}$ beträgt, liegen auf den Kurven

 $s_1 = L_+ - v_i^{xy}(t') \cdot (t' - \tau) \text{ und } s_2 = L_+ - v_i^{xy}(t') \cdot t'.$

Für v = 0 schneiden beide Kurven die Ordinate im Punkt s = $s_m = L_+(1-\sqrt{\rho})$, der gerade der Eindringtiefe ins Ablenkfeld entspricht, die ein langsames Teilchen für eine Ablenkung um $(d_s+d_d)/2$ benötigt. In der Nachbarschaft von v = 0 und s = s_m sind die Kurven Geraden.

- A 6 -



t'/ τ

<u>Abb. AI.2</u>: Verlauf der Geschwindigkeiten v_i^{ii} , v_i^{ai} , v_i^{aa} und v_j , alle normiert auf $v_1=L_1/t'$, als Funktion der normierten Zeit t'/ τ . Die Übergänge zwischen den Lösungstypen sind mit Pfeilen markiert.



<u>Abb. AI.3</u>: Schematische Darstellung der zum Signal beitragenden Geschwindigkeitsintervalle an vier verschiedenen Zeitpunkten. Die schraffierten Trapeze zeigen die zu einem bestimmten Zeitpunkt in Betracht kommenden Lösungstypen an. Ausführliche Erklärung im Text.

Im ersten Trapez von links gehören v_i und v_m beide zum Fall ii, während das zweite durch v_i^{ii} und v_m^{ai} gekennzeichnet ist. Das dritte Beispiel ist analog zum zweiten, falls die Länge des Ablenkgebietes l_2 beträgt; wenn das Ablenkgebiet dagegen die Länge l_1 hat, dann gehört v_i zum Fall ia. Das vierte Beispiel zeigt schließlich, daß v_i und v_m dem Fall ai zuzuordnen sind, falls die Länge l_2 gilt, bzw. daß v_i zu aa und v_m zu ai gehören, wenn die Länge den Wert l_1 hat.

Zur Berechnung von f(v) aus G1. (AI.1) müssen die auf v_i und v_m zutreffenden Fälle definiert werden. Die Ableitung $\partial k/\partial t'$ wird dann gemäß dem für v_m gültigen Fall berechnet. Zur Auffindung des zutreffenden Falles wird geprüft, ob v_i bzw. v_m größer oder kleiner als v₊ = L₊/t' oder v₋ = L₋/(t'-T) sind. Dies geschieht anhand des Fließbildes in Abb. AI.4.

Mit den nun verfügbaren Formeln können die Funktion k(t',v) und ihre Zeitableitung $\partial k/\partial t'$ berechnet werden. Da k(t',v) definiert ist als Durchschnitt des Teilstrahls der Geschwindigkeit v mit dem Detektor zum Zeitpunkt t', müssen nun die Querschnittsformen des Strahls und der Detektoröffnung festgelegt werden. Wir wählen einen kreisförmigen Querschnitt mit Durchmesser d_s für den Strahl und einen Spalt der Weite d_d für den Detektor.

Nach Abb. AI.5 gilt

$$k(t',v) = \int_{y_0}^{d_d/2} \sqrt{\frac{d_s^2}{4 - (y^* - y(t',v))^2}} dy^* / \int_{-d_d/2}^{d_d/2} \sqrt{\frac{d_s^2}{4 - y^{*2}}} dy^*$$

mit

 $y_{o} = \begin{cases} y(t',v)-d_{s}/2 & \text{für } y \ge (d_{s}-d_{d})/2 \\ -d_{d}/2 & \text{für } y < (d_{s}-d_{d})/2. \end{cases}$

Die Ergebnisse der Integration und der partiellen Differentiation nach t' gemäß (dk/dy)(∂y/∂t') sind ebenfalls in Tab. AI.1 aufgeführt.





Abb. AI.4: Fließbild zur Bestimmung des Lösungstyps.



<u>Abb. AI.5:</u>

Die Funktion k(t',v) ist definiert als Verhältnis des momentanen Durchschnitts zwischen dem kreisförmigen Strahlquerschnitt und dem Detektorspalt zum Durchschnitt bei Ablenkung Null. Die Spaltweite und der Strahldurchmesser werden mit d_d bzw. d_s bezeichnet, y(t',v) ist die Ablenkung des Teilstrahls mit der Geschwindigkeit v zum Zeitpunkt t' in der Detektorebene.

AI.1.1.1 Auflösungsvermögen

Das Auflösungsvermögen kann definiert werden bezüglich der Flugzeit von Teilchen mit einer vorgegebenen Anzahl von Atomen pro Ladung N/Z oder bezüglich N/Z oder der Geschwindigkeit derjeniger Teilchen, die zum Auflösungsterm des Signals beitragen, d. h.,

$$R_{t} = (1/2)(t_{i}(v)+t_{f}(v))/(t_{i}(v)-t_{f}(v)),$$

$$R_{v} = (1/2)(v_{f}(t)+v_{i}(t))/(v_{f}(t)-v_{i}(t)),$$

$$R_{N'} = (1/2)(N'(v_{i})+N'(v_{f}))/(N'(v_{i})-N'(v_{f}))$$

wobei N' = N/Z.

Zu den Zeitpunkten t_i bzw. t_f beginnen Teilchen mit der Geschwindigkeit v gerade, zum Detektorsignal beizutragen, bzw. haben gerade ihren Sättigungsbeitrag erreicht. R_t ist der Messung am leichtesten zugänglich, z. B. durch Verwendung von Atom- und Molekülionen bekannter Masse und Ladung. R_N, ist vorzuziehen bei der Beurteilung einer Clusterionen-Verteilung und R_v schließlich folgt unmittelbar aus der Theorie.

Im einzelnen erhält man $R_v = (1/2)(1+A_x)/(1-A_x)$, worin x für einen der Fälle ii, ai, ia und aa steht. Die Größen $A_x = v_i^X/v_f$ sind aus Tab. AI.1 zu entnehmen. Für R_N , folgt aus den Definitionen $R_N = R_v/2 + 1/8R_v$. Schließlich ergibt sich R_t als $R_t = (1/2)(1+T/t_++B_x)/(1+T/t_+-B_x)$ mit den ebenfalls in Tab. AI.1 aufgeführten Größen B_x . Damit sind die zur Berechnung von f(v) und der Auflösung im Falle integraler Flugzeitspektren erforderlichen Formeln vollständig (Tab. AI.1).

AI.1.1.2 Grenzfälle

Durch die Betrachtung der Grenzübergänge $\tau \rightarrow 0$ und $\Lambda^2/L_+^2 \rightarrow 0$ tritt die physikalische Bedeutung der oben abgeleiteten Formeln deutlicher hervor. Der Grenzübergang $\tau \rightarrow 0$ impliziert eine Beschränkung auf den Fall ii, da in den Fällen ia und ai das im Zeitintervall {0, τ } überstrichene Bahnstück auf den Ein- oder Ausgang des Ablenkgebietes schrumpft, woraus sich ergibt, daß diese Teilchen in der Detektorebene entweder überhaupt nicht oder vollständig abgelenkt wären. Im Falle aa würde die Teilchengeschwindigkeit sogar unendlich werden. Es folgt $R_v(\tau=0) = R_t(\tau=0) = (1+\sqrt{\rho})/(2(1-\sqrt{\rho}))$.

Führt man mit $s(t=0)|_{\tau=0} = L_{+}(1-\sqrt{\rho})$ die Eindringtiefe ins Ablenkfeld von den Teilchen ein, die zur Zeit t' in der Detektorebene um die Strecke $(d_{e}+d_{d})/2$ abgelenkt sind, so folgt aus der doppelten Ungleichung

$$L_{+}-L_{+}(1-\sqrt{\rho}) = L_{+}\sqrt{\rho} < L_{+}(1+\sqrt{\rho})/2 < L_{+},$$

daß R $_{\rm V}(\tau=0)$ gegeben ist durch das Verhältnis zwischen einer Strecke, deren Länge zwischen L $_+$ und (L $_+$ minus der Eindringtiefe) liegt, und der Eindringtiefe selbst.

Setzt man $\rho = 1-2\Lambda^2/L_+^2$ in $R_v(\tau=0)$ ein, entwickelt die Quadratwurzel und bricht nach dem linearen Glied ab, so erhält man den einfacheren Ausdruck

$$R_{v}(\tau=0) \approx (1-\Lambda^{2}/2L_{+}^{2})/(\Lambda^{2}/L_{+}^{2})$$

und den Grenzwert

$$1 \text{ im } R_v(\tau=0) = L_+^2/\Lambda^2$$
$$(\Lambda/L_+)^2 \rightarrow 0$$

Berücksichtigt man die oben angegebene Definition von Λ^2 , so erkennt man, daß das Auflösungsvermögen bei vorgegebener kinetischer Energie ZeU_a proportional zum Ablenkfeld U_d/d und umgekehrt proportional zur Summe aus dem Strahldurchmesser und der Detektor-Spaltweite ist. Die Entfernung L₊ erscheint quadratisch, weil sie sowohl in die Flugzeit als auch in die Ablenkung eingeht. Abb. AI.6 gibt einen Überblick über die Abhängigkeit des Auflösungsvermögens R_N, von N' für verschiedene Parameter.





<u>Abb. AI.6:</u> Auflösungsvermögen bezüglich der Anzahl an Atomen pro Ladung R_N, als Funktion von N' = N/Z für verschiedene Werte der Abfallzeit τ und des im Text erklärten Auflösungsparameters Λ^2/L_+^2 .

AI.1.2 Differentielle Flugzeitspektren

Wenn der Detektor zwischen die beiden Positionen des unabgelenkten und des vollständig abgelenkten Strahls gestellt wird (Abb. AI.7), so werden die Teilstrahlen über ihn hinwegschwenken, wenn die Ablenkspannung kurzgeschlossen wird. Das Detektorsignal stellt daher ein differentielles Flugzeitspektrum dar.

Der Zusammenhang zwischen dem Detektorsignal R(t') und der Stromdichteverteilung f(v) ist dann gegeben durch

$$R(t') = \int_{v_e(t')}^{v_a(t')} k(t',v)f(v)r(v)dv,$$

worin $v_a(t')$ und $v_e(t')$ die Geschwindigkeiten derjenigen Teilstrahlen sind, deren Ränder die Detektoröffnung auf der Seite kleiner bzw. großer Ablenkung gerade berühren (Abb. AI.7). Die v_e und v_a bestimmenden Gleichungen sind

$$y(t',L_{+}) = d_{y} \pm (d_{d} + d_{s})/2$$

mit dem positiven Vorzeichen für v $_{\rm e}$ und dem negativen für v $_{\rm a}$. Mit dem $\dot{}_{\rm H}$

$$R(t') = k(t', \overline{v})f(\overline{v})r(\overline{v})(v_a - v_e)$$
(AI.3)

mit $v_e \leq \overline{v} \leq v_a$. Die durch den Mittelwertsatz definierte Geschwindigkeit \overline{v} wird angenähert durch die aus $y(t',L_+) = d_v$ folgende Geschwindigkeit \tilde{v} , die für den Teilstrahl gilt, der zur Zeit t' gerade die Ablenkung d_v hat. Daraus folgt $k(t',\tilde{v}) = 1$. Die Differenz $v_a - v_e$ wird ersetzt durch den Ausdruck $\Delta v = (\partial \tilde{v} / \partial d_v) d_d$. Umordnung von Gleichung (AI.3) liefert

$$f(\tilde{v}) = R(t')/(r(\tilde{v})\Delta v).$$



<u>Abb. AI.7</u>: Schematische Darstellung der verschiedenen Strahllagen bezüglich des Detektorspalts für den Fall der Messung differentieller Spektren. Strahldurchmesser und Detektorspaltweite sind wie üblich mit d_s bzw. d_d bezeichnet, d_v ist die Verschiebung des Detektors bezüglich der Lage des unabgelenkten Strahls. Die Geschwindigkeiten v_e und v_a gehören zu den Teilstrahlen, die zur Zeit t' den jenseitigen bzw. diesseitigen Rand des Detektorspaltes gerade berühren. Die zu den vier Fällen ii, ai, ia, aa gehörenden Geschwindigkeiten ergeben sich aus den entsprechenden Geschwindigkeiten in Tab. AI.1 durch Einsetzen von $\Lambda^2 = 2d_v d \cdot (U_a/U_d)$. Mit dem oben angegebenen Ausdruck für Δv ist man dann unmittelbar in der Lage, das Auflösungsvermögen R_v = $v/\Delta v$ zu berechnen. Den gültigen der vier Fälle bestimmt man dann schließlich durch Vergleich von \tilde{v} mit v₊ und v₋. Zur Berechnung von R_t gibt man eine Teilchengeschwindigkeit vor und fragt dann nach dem Zeitintervall $(t',t'+\Delta t')$, in dem Teilchen dieser Geschwindigkeit zum Signal beitragen. Dabei folgt t' aus $\eta(t',t') = d_v/b$ und $\Delta t'$ aus $\Delta t' = (\partial t'/\partial d_v)d_d$. Alle benötigten Ausdrücke sind in Tab. AI.2 aufgeführt.

AI.2 Meßergebnisse und Diskussion

AI.2.1 Clusterionen-Spektren

Abb. AI.8 zeigt typische integrale Flugzeitspektren von Wasserstoff-Clusterionen, die im Lyoner Beschleuniger auf 625 keV beschleunigt wurden. Drei Schüsse wurden fotografiert, die Zeitskala ist 2 µs/Kästchen. Man erkennt zwei Hauptbeiträge zum Signal, einen, der den Anstieg zwischen 2 und 8 µs verursacht und von Clusterionen im Bereich von 200 bis 3200 Atomen pro Ladung stammt, und einen weiteren, der praktisch prompt einsetzt, etwa 0.6 µs lang dauert und von Atom- bzw. Molekülionen ebenso wie von Fragmentionen mit bis zu etwa 20 Atomen pro Ladung, wie sie seit jeher bei der Clusterionisierung beobachtet werden /A.1/, herrührt.

Abb. AI.9 zeigt ein differentielles Flugzeitspektrum von Wasserstoff-Clusterionen, das mit dem Lyoner Beschleuniger bei einer Spannung von 500 kV gemessen wurde. Die Zeitskala beträgt ebenfalls 2 µs/Kästchen, der durch dieses Spektrum überstrichene Größenbereich erstreckt sich etwa von 600 bis 4000 Atomen pro Ladung.

Diese Spektren geben die Clusterionen-Verteilung wieder, nachdem die Clusterionen alle mit der Ionisation und Beschleunigung verbundenen Masseverlust-Prozesse durchlaufen haben. Ihre Auswertung erfolgt numerisch und liefert Verteilungsfunktionen, wie sie z. B. in Abb. 4.6 und 4.13 dargestellt sind.

	ii	ai	ia	aa
.	$\frac{L_{+\alpha}}{\tau} \sqrt{\rho/(1-\alpha+\alpha^2/3)}$	$2 \frac{L_{+}\alpha}{\tau(1-\alpha)} \sqrt{u} \cos(\phi/3)$	$2 \frac{L_{\alpha}}{\tau} \sqrt{u'} \cos(\phi/3)$	$\frac{L_{+}^{\alpha}}{\tau} \frac{2(1-\lambda^{3})}{3(1-\lambda^{2}u)}$
φ	-	π -arccos(u ^{-3/2})	π -arccos(u ^{-3/2})	-
u		(1-αρ)/(1-α)	1-(1-ρ/λ ²)α	$1-(1-\rho/\lambda^2)\alpha$
Δv	$-\overline{v} \frac{1}{\rho} \frac{\Lambda^2}{\frac{L^2}{L^2_+}} \frac{d_d}{d_v}$	$\frac{\overline{v}}{v} \frac{\Lambda^2}{L_+^2} \frac{d_d}{d_v} \frac{\alpha}{1 - \alpha \rho} \left[1 - \frac{\tan(\phi/3)}{\sqrt{u^3 - 1}} \right]$	$\frac{\overline{v}}{v} \frac{\Lambda^2}{L_{+}^2} \frac{d_d}{d_v} \frac{\alpha}{\lambda^2 u} \left[\frac{\tan(\phi/3)}{\sqrt{u^3 - 1}} - 1 \right]$	$-\frac{1}{v} \frac{\Lambda^2}{L_+^2} \frac{d_d}{d_v} \frac{2\alpha}{1-\lambda^2 u}$
R _v	$\rho \frac{L_{+}^{2}}{\Lambda^{2}} \frac{d_{v}}{d_{d}}$	$\frac{L_{+}^{2}}{\Lambda^{2}} \frac{d_{v}}{d_{d}} \frac{1-\alpha\rho}{\alpha} \left[1 - \frac{\tan(\phi/3)}{\sqrt{u^{3}-1}} \right]^{-1}$	$\frac{L_{+}^{2}}{\Lambda^{2}} \frac{d_{v}}{d_{d}} \frac{\lambda^{2}_{u}}{\alpha} \left[\frac{\tan(\phi/3)}{\sqrt{u^{3}-1}} - 1 \right]^{-1}$	$\frac{L_{+}^{2}}{\Lambda^{2}} \frac{d_{v}}{d_{d}} \frac{1-\lambda^{2}u}{2\alpha}$
t'	$\frac{\tau}{2}(1+\sqrt{\frac{2\rho L_{+}^{2} d_{v}}{\Lambda^{2} d_{d}}} - \frac{1}{3})$	$\tau + 2t_{\pm}\cos \left\{\frac{1}{3}\right[\pi - \arccos(1 - \tau_{\pm})^{2}\right\}$	$2t_{\cos}\left\{\frac{1}{3}\right]\pi-\arccos(1-\frac{d}{3})$	$\tau + \frac{\frac{2}{3}(d_{t_{+}} \cdot t_{+} - d_{t_{-}} \cdot t_{-}) - d_{v} \cdot \tau}{d_{t_{+}} - d_{t_{-}}}$
At	$\frac{\tau \rho(L_{+}^{2}/\Lambda^{2})(d_{d}/d_{\tau})}{2}$	$3 \frac{t}{t_{+}} \frac{v}{d_{t_{+}}} \Big] \Big\}$	$\frac{J}{2} \frac{t}{t} \left(\frac{1}{\lambda^2} - 1 - \frac{v}{d} \right) \right) \right\}$	
	$2\sqrt{2\rho(L_{+}^{2}/\Lambda^{2})(d_{v}/d_{\tau})-1/3}$	$2\tau d_{d}/(b((t'-\tau)^2-t_{+}^2))$	$-2\tau d_{d}/(b(t'^{2}-t_{2}))$	$-\tau d_d/(d_t - d_t)$
Rt	$\frac{2\rho \frac{L_{+}^{2}}{\Lambda^{2}} \frac{d_{v}}{d_{\tau}} - \frac{1}{3}}{\rho \frac{L_{+}^{2}}{\Lambda^{2}} \frac{d_{v}}{d_{\tau}} - \frac{1}{3}}}{\rho \frac{L_{+}^{2}}{\Lambda^{2}} \frac{d_{d}}{d_{\tau}}}$	$\left \frac{\frac{d_{t_{+}}}{d_{d} \cdot \alpha}}{\frac{d_{t_{+}}}{d_{t_{+}}^{2} \cdot \alpha^{2}}} - 1 \right $	$\frac{\frac{d_{t_{-}}}{d_{d} \cdot \alpha}}{\frac{1}{\alpha^{2} t_{-}^{2}}} - 1$	$\frac{d_{t_{+}} - d_{t_{-}} - d_{v} + \frac{2}{3\tau}(d_{t_{+}} \cdot t_{+} - d_{t_{-}} \cdot t_{-})}{d_{d}}$
	$d_{\tau} = b \cdot \tau^2 / 2$	$d_{t_+} = b \cdot t_+^2 / 2$	$d_{t_{t_{t_{t_{t_{t_{t_{t_{t_{t_{t_{t_{t_$	$\alpha = \tau/t'$



- A 16

ı.

1

- A 17 -



<u>Abb. AI.8:</u> Integrale Flugzeitspektren von Wasserstoff-Clusterionen nach Beschleunigung mit einer Spannung von 625 kV (Zeitskala 2 µs/Einheit).



<u>Abb. AI.9</u>: Differentielles Flugzeitspektrum von Wasserstoff-Clusterionen nach Beschleunigung mit einer Spannung von 500 kV (Zeitskala 2 µs/Einheit).

Selbstverständlich ist das Spektrometer nicht auf Wasserstoff-Clusterionen beschränkt, sondern kann auch auf Clusterionen aus anderen Stoffen angewandt werden. Eine Erweiterung der Anwendung auf verschiedene Teilchenarten, wie z. B. große organische Moleküle oder ultra-feine Aerosolteilchen, erscheint ohne weiteres denkbar.

AI.2.2 Funktionsprüfung

Das Spektrometer wurde mit Strahlen aus verschiedenen Atom- oder Molekülionen bekannter Masse und Ladung betrieben. Abb. AI.10 zeigt, daß das Verhältnis der gemessenen zur berechneten Flugzeit erwartungsgemäß nahezu Eins wird für verschiedene Masse-zu-Ladungsverhältnisse im Bereich von 1 bis 131. Die Tendenz, daß die gemessene Flugzeit etwas länger ist als die berechnete, ist wegen der Vernachlässigung des Randfeldes zu erwarten. Diese Vernachlässigung bringt es weiterhin mit sich, daß das gemessene Auflösungsvermögen kleiner ist als das berechnete. Dies kann durch Eichung berücksichtigt werden. Dazu wird das Auflösungsvermögen $R_{t} = t/\Delta t$ für ein Ion mit bekanntem Masse-zu-Ladungsverhältnis, wie z. B. für Argon (Abb. AI.11), gemessen. Die theoretische Kurve für R_t als Funktion von N/Z wird dann so verschoben, daß sie den Meßpunkt wiedergibt (Abb. AI.12). Die erzielte Auflösung mag zwar klein erscheinen, sie ist jedoch für die Bedürfnisse der Clusterionen-Strahlentwicklung völlig ausreichend, insbesondere da die Verteilung meist nur dazu benutzt wird zu beurteilen, ob ein Mittelwert repräsentativ ist oder nicht.

AI.2.3 Antwortfunktion des Detektors

Die Funktionsprüfung des Spektrometers hängt praktisch nicht von der Detektor-Antwortfunktion r(v) ab. Wenn dagegen wirkliche Verteilungsfunktionen bestimmt werden sollen, dann muß die Antwortfunktion berücksichtigt werden.

Offensichtlich ist nur der relative Zusammenhang zwischen r(v) und v von Belang, da die Verteilungsfunktion f(v) auch nur relativ benötigt wird. Da sich f(v) in praxi nur über einen begrenzten Bereich erstreckt, ist es darüber hinaus ausreichend, r(v) innerhalb dieses Bereiches relativ anzugeben.



Nukleonen pro Ladung



Abb. AI.10: Verhältnis der gemessenen zu den berechneten Flugzeiten für verschiedene Ionen.

Abb. AI.11: Integrale Flugzeitspektren von Argon-Ionen mit einer kinetischen Energie von 340 keV (Zeitskala 2 μs/Einheit). Am rechten Bildrand ist gerade noch der Einsatz des Argon-Clusterionen-Signals zu erkennen.



Atome pro Ladung N/Z

Abb. AI.12: Auflösungsvermögen R_t als Funktion der Anzahl an Atomen pro Ladung N/Z. Die mit t gekennzeichnete, berechnete Kurve und der Meßpunkt beziehen sich auf den in Abb. AI.11 dargestellten Fall. Die mit x bezeichnete, experimentelle Auflösungskurve ergibt sich durch Verschieben der Kurve t in den Meßpunkt.

Für den verwendeten Detektor bedeutet das, daß die Anzahl der pro Atom erzeugten Ladungen innerhalb eines gewissen Bereiches bekannt sein muß. Direkte Messungen der Sekundärelektronen-Ausbeute von Wasserstoff-Clusterionen sind nur in den Massen- und Energiebereichen von 1-25 u und 25-700 keV pro Clusterion verfügbar /A.2/. Sie zeigen eine leichte Reduktion der Ausbeute pro Atom innerhalb eines Clusterions verglichen mit einem freien Atom bei gleicher Geschwindigkeit. Für den restlichen, überwiegenden Teil des Energiebereichs ist man auf Literaturdaten über atomaren oder molekularen Wasserstoff angewiesen.

Da das Detektorsignal durch Umpolen der Targetvorspannung von 20 V weitgehend invertiert werden kann, wird angenommen, daß die erzeugten Ladungen hauptsächlich Sekundärelektronen niedriger Energie sind. Die resultierende Antwortfunktion lautet dann $\overline{r}(E) = \gamma(E) + 1/(N/Z)$ mit $E = eU_a/(N/Z)$ und der Ausbeute pro Atom $\gamma(E)$. Dabei wird zusätzlich angenommen, daß die Atome eines Clusterions sich bezüglich der Sekundärelektronen-Auslösung wie freie Atome verhalten. Die neuesten Ausbeute-Messungen stammen von Ray, Barnett und Van Zyl /A.3/; zusammen mit Daten von Dettmann /A.4/ überdecken sie den Energiebereich von 30 eV bis zu einigen MeV. Abb. AI.13 zeigt diese Daten und eine zur Erleichterung der numerischen Weiterverarbeitung an sie angepäßte Spline-Funktion.

Wenn die kinetische Energie pro Atom auf wenige eV abfällt, dann erwartet man, daß die Sekundärelektronen-Ausbeute freier Atome verschwindet. Dennoch lösen Clusterionen bei entsprechenden Energien elektrische Ladungen aus, wenn sie auf ein festes Target fallen. Dies wird als kollektiver Effekt erklärt, wie er von Makro-Teilchen, z. B. Mikrometeoriten, die auf eine feste Wand treffen, bekannt ist /A.5/. Dabei wurde beobachtet, daß beim Aufschlag ein Plasma aus Target- und Projektilmaterial gebildet wird und daß die erzeugte Ladung ungefähr proportional zur dritten Potenz der Geschwindigkeit ist. Es wird daher $\overline{r}(E) = 1.56 \cdot 10^{-4} (E/eV)^{3/2} + 1/(N/Z)$ angenommen. Der Vorfaktor ergibt sich aus der Anpassung der beiden Formeln bei 30 eV.







Die hier gemachten Annahmen beeinflussen die Mittelwerte, wie z. B. den Atomstrom oder die mittlere Geschwindigkeit, nicht sehr stark. Für eine typische Verteilungsfunktion ergab sich nur eine Änderung der mittleren Geschwindigkeit um 10 %, wenn \overline{r} = const anstatt $\overline{r} \propto E^{3/2}$ angenommen wurde. Außerdem gehören die an den beiden Beschleunigern in Lyon und Karlsruhe gemessenen Daten entweder zum Bereich E > 30 eV oder E < 30 eV, so daß in allen Fällen nur jeweils ein Typ der Antwortfunktion benutzt wird.

Abschließend ist anzumerken, daß die diskutierte Antwortfunktion nicht die einzige denkbare ist, sondern wegen der unschwierigen Detektorkonstruktion gewählt wurde. Eine einfachere, flachere Detektorfunktion mag durch den Einsatz von pyroelektrischen Materialien zur schnellen Kalorimetrie erzielbar sein.

Anhang II: Bestimmung des Impulsstroms mit einem physikalischen Pendel

Eine kreisförmige Aluminium-Scheibe von 0.16 m Durchmesser und 0.2 mm Dicke ist an einem waagerechten, tangential zu ihrem Rand verlaufenden Spannband aufgehängt. Wird die Scheibe angestoßen, z. B. durch einen auftreffenden Strahlpuls, so schwingt sie um die durch das Spannband definierte Achse. Die Auslenkung wird mit einem Lichtzeigersystem gemessen. Dabei wird der Lichtstrahl eines He-Ne-Lasers an einem kleinen, auf der Achse angebrachten Spiegel reflektiert und trifft auf eine ortsauflösende Schottky-Barrier-Diode (Posicon), durch die die Schwingung des Lichtflecks in einen zur Auslenkung proportionalen Strom umgewandelt wird (Abb. 3.4).

Zur mathematischen Behandlung der Schwingung wird angenommen, daß das Pendel zur Zeit t < $-\tau$ in Ruhe sei, daß im Intervall $-\tau \leq t \leq 0$ der als zeitlich rechteckförmig angenommene Strahlpuls auftreffe und das Pendel auslenke, und daß dieses für t > 0 ohne eingeprägtes Drehmoment frei und gedämpft schwinge. Gesucht wird der Zusammenhang zwischen der maximalen Auslenkung und dem vom Strahl übertragenen Drehimpuls.

Die Schwingungsgleichung lautet bekanntlich

$$\Theta \dot{\phi} + \beta \dot{\phi} + (MgR + \gamma) \phi = \begin{cases} \dot{L} & -\tau \leq t \leq 0\\ 0 & \text{sonst} \end{cases}$$

mit den Bezeichnungen:

- Auslenkwinkel in Radian
- θ Trägheitsmoment des Pendels
- β Dämpfungskonstante
- M Pendelmasse
- g Erdbeschleunigung

R Abstand des Schwerpunktes von der Achse

- γ zusätzliches Rückstell-Drehmoment (berücksichtigt z. B. das Spannband)
- L vom Strahl ausgeübtes Drehmoment.

Mit den Abkürzungen

$$\kappa = \beta/\Theta$$

$$\omega_{o}^{2} = (MgR + \gamma)/\Theta$$

$$\omega^{2} = \omega_{o}^{2} - \kappa^{2}$$

$$\phi_{o} = L/\Theta\omega_{o}^{2}$$

lauten die Lösungen

.

$$\phi_{1}(t) = \phi_{0} \left[1 - e^{-\kappa(t+\tau)} \{ \cos \omega(t+\tau) + (\kappa/\omega) \sin \omega(t+\tau) \} \right]$$

für $-\tau \leq t \leq 0$ und

$$\phi_{2}(t) = \phi_{0} e^{-\kappa t} \left[\cos \omega t + (\kappa/\omega) \sin \omega t - e^{-\kappa \tau} \left\{ \cos \omega (t+\tau) + (\kappa/\omega) \sin \omega (t+\tau) \right\} \right]$$

für t > 0. Sie sind in Abb. AII.1 dargestellt für den ballistischen Fall $\tau << 2\pi/\omega = T$ und für den quasistationären Fall $\tau >> T$. Die maximale Auslenkung beträgt

$$\phi_{1m} = \phi_0 (1 + e^{-\pi \kappa / \omega})$$

im quasistationären Fall und

$$\phi_{2m} = \phi_2(t_o)$$

mit

$$t_{o} = \frac{1}{\omega} \arctan \frac{\sin \omega \tau}{e^{\kappa \tau} - \cos \omega \tau}$$

im ballistischen Fall (Hauptwert des arctan). Für τ < T/2 gilt $\phi_{\rm 2m}^{},$ sonst $\phi_{\rm 1m}^{}.$



<u>Abb. AII.1:</u> Normierte Pendelauslenkung ϕ/ϕ als Funktion der auf die Schwingungsperiode T normierten Zeit t/T für drei verschiedene Pulsdauern τ .

Abb. AII.2 zeigt den Verlauf der maximalen Auslenkung als Funktion der Pulsdauer τ . Der gerade Anstieg ist kennzeichnend für den ballistischen Fall. Abweichungen über 5 % treten ab $\tau/T > 0.17$ auf. Zum Vergleich sind Meßergebnisse eingezeichnet, die ebenfalls zunächst den linearen Anstieg zeigen, aber schon bei kleineren Werten von τ/T davon abweichen, was zwanglos durch die Strahlschwächung bei steigendem Druck des Untergrundgases erklärt werden kann (siehe Abschnitt 4.4 und Abb. 4.10).

Da das Pendel, wie schon erwähnt, einen Drehimpuls mißt, kommt es bei der Ermittlung des linearen Impulses auf die räumliche Verteilung an, mit der der Strahl auf die Pendelscheibe trifft. Als Beispiel dafür zeigt Abb. AII.3, wie sich der Pendelausschlag ändert, wenn der Strahl sukzessive durch Anlegen einer Ablenkspannung über das Pendel hinweggeschoben wird. Man erkennt, wie empfindlich der Ausschlag von der Position abhängt.

Der mathematische Zusammenhang zwischen dem Drehimpulsstrom und der Atomstromdichte-Verteilung auf dem Pendel lautet

$$L = m_H \int x p(v) v f_2(v, x, y) dv dx dy$$

mit den Bezeichnungen

- f₂(v,x,y) ortsabhängige Geschwindigkeitsverteilung der Atomstromdichte und
- p(v) Impulsübertragskoeffizient (1 ≤ p(v) ≤ 2). p ist definiert als Quotient aus dem Impuls, den ein Teilchen senkrecht zur Oberfläche überträgt, und dem Impuls, den es beim Einfall senkrecht zur Oberfläche hat.

Das Koordinatensystem ist in Abb. AII.4a) skizziert. Die y-Abhängigkeit kann sofort ausintegriert werden, was zu einer nur noch von x abhängigen Geschwindigkeitsverteilung $f_1(v,x) = \int f_2(v,x,y) dy$ führt. Mit dem durch

$$\dot{\mathbf{m}}(\mathbf{x}) = \mathbf{m}_{\mathrm{H}} \int \mathbf{p}(\mathbf{v}) \mathbf{v} \, \mathbf{f}_{1}(\mathbf{v}, \mathbf{x}) \mathrm{d}\mathbf{v}$$

definierten Impulsstrom pro Länge m(x) und der Definition





Maximale Pendelauslenkung pm/mrad



<u>Abb. AII.3:</u> Maximale Pendelauslenkung ϕ_m als Funktion der Strahlablenkung A, senkrecht zur Schwingungsachse und bezogen auf den Pendelmittelpunkt. Die Ränder des Gitters geben den oberen (links) bzw. den unteren (rechts) Pendelrand an.





a) Koordinatensystem für die Behandlung der Impulsstromverteilung auf dem Pendel.

b) Zur Messung eines Abdeckprofils wird eine Platte, deren Rand parallel zur Schwingungsachse verläuft, sukzessive in x-Richtung verschoben und schirmt so verschieden große Pendelabschnitte gegen den einfallenden Strahl ab.

- A 30 -

$$I_0 = \iint f_1(v,x) dvdx$$

erhält man schließlich den Atomstrom

$$I_{o} = \frac{\dot{L}}{m_{H} < x > \dot{m} < pv > f_{1}}$$
,

wobei die Mittelwerte mit den jeweils als Index angegebenen Funktionen gebildet werden.

Den zur Auswertung der rechten Seite dieser Beziehung zunächst benötigten Drehimpulsstrom errechnet man mit den oben abgeleiteten Formeln aus dem Pendelausschlag. Die Impulsstromverteilung $\dot{m}(x)$ erhält man aus einem Abdeckprofil. Dabei wird die Pendelscheibe, wie in Abb. AII.4b) skizziert, sukzessive abgedeckt, wodurch sich $\dot{m}(x) \propto (\phi_m(x+dx)-\phi_m(x))/xdx$ ergibt. Die Geschwindigkeitsverteilung f₁ wird, wie an anderer Stelle erläutert, aus Flugzeitspektren berechnet. Ist die Impulsstromverteilung symmetrisch zur Pendelmitte, d. h., ist $\dot{m}(x)$ eine gerade Funktion in x-R, dann gilt $\langle x \rangle_{\dot{m}} = R$, so daß

$$I_{O} = L/(m_{H}R < pv >).$$

In praxi wird der Strahl möglichst gut auf die Pendelmitte eingerichtet und gelegentlich durch Messung eines Ablenkprofils überwacht.

Für Teilchen im interessierenden Energiebereich von etwa 1-100 eV/Atom ist der Impulsübertrag im allgemeinen nicht a priori bekannt /A.6/, so daß man mindestens einen Fehler von ± 33 % zu I₀ beiträgt, wenn man p = 1.5 setzt. Dieser Fehlerbeitrag wurde auf ± 23 % reduziert durch eine Untersuchung der Abhängigkeit des Impulstransfers von der Rauhigkeit der Oberfläche, auf die die Clusterionen einfallen /3.4/.

Der Grundgedanke ist dabei der folgende: wenn man mehrere Pendel verschiedener Oberflächenrauhigkeit mit demselben Clusterionenstrahl beschießt und dabei Unterschiede im Impulsübertrag findet, dann kann man dadurch den Variationsbereich von p für ein Pendel einschränken, denn das Pendel mit dem kleinsten Impulsübertrag kann schon nicht mehr p = 2haben und entsprechend das mit dem größten Impulsübertrag nicht mehr p = 1. Je größer also der Unterschied zwischen den Pendeln ist, desto enger kann der Variationsbereich von p für ein Pendel eingegrenzt werden.

Die Versuche wurden mit vier auf einem Drehtisch im Vakuum angebrachten Pendeln durchgeführt (Abb. AII.5). Der Tisch wird von außen so eingestellt, daß jeweils ein Pendel vom Strahl getroffen wird. Die vier Oberflächen wurden durch verschiedene Behandlungen der ursprünglichen Aluminium-Scheibe hergestellt. Abb. AII.6 zeigt rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen a) der unbehandelten Oberfläche des gewalzten Aluminium-Bleches, b) einer aufgedampften Goldschicht, c) einer von Siemens hergestellten, durch Beschuß mit Quarz-Kügelchen aufgerauhten Aluminiumoberfläche und schließlich d) einer von Dornier System gefertigten Solarabsorber-Schicht (SOLAROX).

Ein mit dem Drahtgitter-Monitor gemessenes Profil sowie ein typisches Größenspektrum des verwendeten Strahls sind in Abb. AII.7 dargestellt. Die Versuchsergebnisse, der Pendelausschlag als Funktion des Elektronenstroms im Ionisator mit den verschiedenen Oberflächen als Parameter, sind in Abb. AII.8 aufgetragen. Der Pendelausschlag ist auf die Größe T/MT normiert, um kleine Unterschiede zwischen den Massen und Schwingungsdauern der verschiedenen Pendel und Schwankungen der Strahlpulsdauer zu korrigieren. Der Variationsbereich des Elektronenstroms entspricht einer Änderung der mittleren Anzahl an Atomen pro Ladung von $4 \cdot 10^4$ auf $1 \cdot 10^5$ und der mittleren kinetischen Energie pro Atom von 3.5 auf 9 eV bei einer Beschleunigungsspannung von 350 keV, wie sie bei diesen Versuchen eingestellt war.

Man erkennt deutliche Unterschiede im Impulsübertrag. Die SOLAROX-Schichten absorbieren den Impuls am besten, wogegen ihn die Goldschicht und die unbehandelte Aluminiumoberfläche am besten reflektieren. Das maximale Verhältnis der Impulsüberträge ist 1.23.



<u>Abb. AII.5:</u> Vier Pendel sind an einem Drehtisch, der mit einem Rechteckrahmen in der Vakuumkammer befestigt wird, aufgehängt.





- a) gewalztes Aluminium unbehandelt,
- b) goldbedampft,
- c) durch Beschuß mit Quarz-Kügelchen aufgerauht (Siemens),
- d) mit Solarabsorberschicht SOLAROX bedeckt (Dornier System).

Bei den Bildern a)-c) entspricht die Strichmarke l μ m, bei d) ist der mittlere Abstand zwischen benachbarten Erhebungen etwa 80 nm.



Abb. AII.7: Profil und typisches Größenspektrum des bei den Versuchen zum Einfluß der Oberflächenrauhigkeit verwendeten Strahls.





Elektronenstrom I_e/mA

Abb. AII.8:

Maximale, normierte Pendelauslenkung $\phi_m/(\tau/MT)$ als Funktion des Elektronenstroms I_e im Ionisator für verschiedene Oberflächen. Die Normierung eliminiert kleine Schwankungen der Pendelmassen und -schwingungsperioden sowie der Strahlpulsdauer.

- A 36 -

Die folgende Tabelle AII enthält die unteren und oberen Grenzen der Impulsübertragskoeffizienten, wie sie sich ergeben aus der Annahme, daß entweder SOLAROX II vollständig absorbiert (p_{min}) oder Gold bzw. Aluminium vollkommen elastisch reflektieren (p_{max}).

<u>Tab. AII:</u> Obere und untere Grenzen für den Impulsübertragskoeffizienten, ermittelt aus den Extremfällen einer vollkommen elastischen Reflexion an der Goldoberfläche bzw. einer vollständigen Absorption durch die SOLAROX II-Oberfläche.

	P _{min}	P _{max}	;
Δ11	1 2 3	2 0	, 111, 111, 12, 12, 15, 17 , 1
Ad	1.23	2.0	
A1	1.23	2.0	
Siemens	1.16	1.89	
SOLAROX II	1.0	1.62	

Der mittlere Impulsübertragskoeffizient für z. B. SOLAROX II beträgt also 1.31 ± 0.31 , was dem schon erwähnten relativen Fehler von ± 23 % entspricht.

Anhang III Zusammenhang zwischen Fragment- und Clusterionengröße

Daß bei großen Wasserstoff-Clusterionen die symmetrische Fragmentierung durch Coulomb-Abstoßung keine wesentliche Rolle spielt, wird durch einen Vergleich zwischen den intermolekularen Bindungskräften und der abstoßenden Coulomb-Kraft nahegelegt, der zeigt, daß die Coulomb-Kraft nicht ausreicht, um die zahlreichen intermolekularen Bindungen aufzubrechen, die bei einer symmetrischen Fragmentierung getrennt werden müssen. Auch für große Stickstoff-Clusterionen wurde die Fragmentierung in ähnlich große Bruchstücke von Henkes und Isenberg /A.7/ als unwahrscheinlich angesehen, und auch die Ergebnisse von Enjoji und Mitarbeitern /A.8/ widersprechen dieser Annahme nicht, obwohl die Autoren der Hypothese der symmetrischen Fragmentierung den Vorzug zu geben scheinen.

Die Anzahl n der aufbrechbaren intermolekularen Paar-Bindungen wird bestimmt aus dem Gleichgewicht zwischen Coulomb-Kraft und maximaler Bindungskraft. Die Coulomb-Energie und die intermolekulare Wechselwirkungsenergie, für die hier das wohlbekannte (12.6)-Lennard-Jones-Potential eingesetzt wird, sind gegeben durch

$$E_{C} = (1/4\pi\epsilon\epsilon_{o})e^{2}/(r_{r_{o}}+r(N_{m}))$$

und

$$E_{LJ} = 4\varepsilon_{LJ} ((\sigma/r)^{12} - (\sigma/r)^6)$$

worin

r	den Abstand zweier Moleküle an der Bruchfläche,
ro	den Gleichgewichtsabstand im Lennard-Jones-Potential $r_0 = 2^{1/6}\sigma$,
r(N _m)	den Radius eines Clusters aus N _m H ₂ -Molekülen,
ε _{LJ}	die Tiefe des Potentialtopfes,
σ	den intermolekularen Abstand bei $E_{LJ} = 0$ und
ε ₀ ,ε	die Dielektrizitätskonstante des Vakuums und die relative Di- elektrizitätskonstante von festem Wasserstoff

bedeuten. Darin ist die vereinfachende Annahme enthalten, daß der Abstand der beiden Ladungen des Clusterions typischerweise r(N_m) beträgt. Feinere Effekte, wie z. B. ein Auseinanderlaufen der Ionen in diametrale Positionen, bleiben dabei unberücksichtigt.

Die maximale Bindungskraft wird am Wendepunkt des Lennard-Jones-Potentials erreicht, der bei r = $(26/7)^{1/6}\sigma$ liegt. Die Anzahl n aufbrechbarer Bindungen ist dann bestimmt durch

$$n(N_m) = (dE_C/dr)/(dE_{LJ}/dr) |_r = (26/7)^{1/6} \sigma.$$

Den Radius $r(N_m)$ eines kugelförmigen Clusters errechnet man mit der für verschwindenden Druck geltenden Anzahldichte $n_H = 2.60 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ /A.9/ zu $r(N_m)/A = 2.094 N_m^{1/3}$. Mit den ebenfalls /A.9/ entnommenen Werten $\varepsilon_{I,I} = 3.16$ meV und $\sigma = 2.96$ Å erhält man

$$n(N_m) = 493/(0.122+0.707 N_m^{1/3})^2$$

Daraus ergibt sich z. B., daß auf einem doppelt-geladenen Clusterion mit 10⁵ Atomen nicht einmal eine Bindung aufgebrochen werden kann, während es bei 1000 Atomen und zwei Ladungen erst 15 sind.

Um Mißverständnissen vorzubeugen soll bemerkt werden, daß selbst bei den größten Clusterionen die Emission kleiner Fragmentionen nicht unmöglich erscheint, wenn zufällig der Abstand zweier Ladungen klein genug ist. Die Vorstellung von einem stabilen Clusterion muß daher im statistischen Sinne verstanden werden, d. h., daß in den meisten Fällen der Abstand der beiden Ionen so groß ist, daß keine Emission aufgrund der Coulomb-Abstoßung möglich ist.

Wie von Clampitt /A.10/ für den Fall dünner Wasserstoff-Schichten berichtet wurde, können kleine Fragmentionen auch ohne Einwirkung der Coulomb-Abstoßung emittiert werden. Danach kann ein durch dissoziative Ionisation entstandenes Proton mit umgebenden Wasserstoff-Molekülen zu
H_3^{\dagger} reagieren, dann durch induzierte Dipol-Wechselwirkung weitere Wasserstoff-Moleküle anlagern und schließlich unter Ausnutzung seiner kinetischen Energie von einigen eV, die es beim Ionisationsakt erhält, die feste Wasserstoff-Schicht verlassen. Allerdings ist der Prozeß der dissoziativen Ionisation zumindest beim freien H_2 -Molekül sehr selten im Vergleich zur Bildung von H_2^{\dagger} -Ionen, die bei der Ionisation keine nennenswerte kinetische Energie aufnehmen, so daß die oben erwähnte Vorstellung von einem stabilen Clusterion im großen und ganzen erhalten bleibt.

Anhang IV Erzeugung von Untergrundgas bei der Elektronenstoß-Ionisation

Unter der Annahme, daß für die Erzeugung einer positiven Ladung ein Cluster von mindestens einem Primärelektron durchquert werden und mindestens ein Sekundärelektron verlieren muß, ergibt sich der Energieübertrag aus dem Durchgang eines Primär- und eines Sekundärelektrons.

Der beim Durchgang eines Elektrons durch festen Wasserstoff auftretende Energieverlust kann abgeschätzt werden durch Multiplikation der Bremskraft, die durch die elektrische Polarisation des Mediums erzeugt wird /A.11/, mit einer typischen Weglänge, z. B. dem Clusterradius. Das Ergebnis ist in Tab. AIV.1 dargestellt. Eine weitere Abschätzung des Energieverlustes auf der Basis einer von Green und Mitarbeitern /A.12/ angegebenen Verlustfunktion für den Durchgang von Elektronen durch ein Gas führt zu etwas niedrigeren Werten derselben Größenordnung (Tab. AIV.1). Experimentelle Daten sind von Schmidt angegeben worden /A.13/, der über Energieverlustspektren von 37 keV-Elektronen beim Durchgang durch eine Schicht aus festem Wasserstoff berichtet. Da er die Dicke der Schicht nicht kennt, kann der häufigste Energieverlust von 14 eV nur als grober Hinweis gewertet werden.

Tab. ALV.	Tab	•	AIV	. 1
-----------	-----	---	-----	-----

E _e /eV	N/Atome	E _e /eV (Polarisation)	E _e /eV (Verlustfunktion)
10	10^4	-	0.13
10	10^5	-	0.28
10^{2}	10^4	73	33
10^{3}	10^5	36	26

Nach Ergebnissen von Gspann und Körting /4.11/ treten diese Energieverluste höchstens zu einem geringen Teil als Wärme mit nachfolgender Verdampfung von Clustermaterial in Erscheinung. Dies wird verständlich, wenn man bedenkt, daß die übertragene Energie zunächst im Elektronensystem des Clusters vorhanden ist und von da auch in Kanäle gelangen mag, durch die sie den Cluster wieder verlassen kann, z. B. Abstrahlung von elektromagnetischer Strahlung, oder durch die sie im Cluster gespeichert werden kann, z. B. Anregung von Molekülschwingungen oder -rotation. Es muß daher eine plausible Einschränkung gemacht werden, die ausschließlich die zur Verdampfung führenden Prozesse zuläßt.

Unter den verschiedenen Energieverlust-Prozessen wie Ionisation, Dissoziation, Anregung usw. erscheinen diejenigen am geeignetsten, den Cluster aufzuheizen, die schnelle Wasserstoff-Atome oder -Molekülionen als Reaktionsprodukte haben. Dazu zählen hauptsächlich

- 1. die Bildung von H_3^+ aus der exothermen Reaktion $H_2^+ + H_2 \rightarrow H_3^+ + H$, wie sie in /A.1/ vorgeschlagen wurde, um die überwiegende Ungeradzahligkeit von Wasserstoff-Clusterionen zu erklären,
- 2. die dissoziative Ionisation,
- 3. die dissoziative Anregung und
- die normale Dissoziation über den niedrigsten Triplett-Zustand des Moleküls.

Die zugehörigen Werte der Wirkungsquerschnitte, Reaktionsraten etc. sind in Tab. AIV.2 angegeben. Nur das Primärelektron wird genügend Energie haben, um die Prozesse 2-4 einzuleiten. Für den Prozeß 4 wird es zuviel Energie besitzen. Die Sekundärelektronen werden im Mittel für keinen der Prozesse ausreichend Energie haben. Sowohl Primär- als auch Sekundärelektronen haben einen weiteren Energieverlust aus elastischen Stößen von der Größenordnung 0.1 eV. All diese Prozesse führen zu einem Energieübertrag pro Durchgang eines Primärelektrons von

 $E/eV = n_{H_2} r(N_m)((\sigma_{itot} - \sigma_{id}) 1.2 + \sigma_{id} \cdot 5 + \sigma_{xd} \cdot 2 \cdot 6.5) + 0.1$

Nr.	Prozeß	Wirkungsquerschnitt	Einsatz Energie	kinet. Energie der Reaktions- produkte [*]	Lit.
		cm ²	eV	eV	
1.	$H_2^{\dagger} + H_2 \rightarrow H_3^{\dagger} + H_3$	1.5·10 ⁻⁹ cm ³ /s (Ratenkoeffizient)	-	1.2	/A.14/ /A.15/
2. ^o id	H ₂ +e → H+H ⁺ +2e	6·10 ⁻¹⁸ (10 ² eV) 8·10 ⁻¹⁹ (10 ³ eV)	28	5	/A.16/
3. ^O xd	H ₂ +e → H+H+e	1.5·10 ⁻¹⁷ (10 ² eV) 4·10 ⁻¹⁸ (10 ³ eV)	11.8	2.6.5	/A.12/ /A.17/
4.	H ₂ +e → H+H+e	7.85·10 ⁻¹⁷ (17 eV) 1.96·10 ⁻¹⁷ (10 eV) 0 (10 ² eV)	8.8	4-10	/A.18/
* ausgenommen Protonen					

Durch Einsetzen der entsprechenden Werte aus Tab. AIV.2 erhält man

$$E(100 \text{ eV}) = 8.7 \text{ eV}$$

und

$$E(1000 eV) = 2.2 eV$$

für einen Cluster mit 2.10⁵ Atomen.

Der totale Ionisationsquerschnitt σ_{itot} wurde als $1.0 \cdot 10^{-16}$ cm² bei 100 eV und als $2.2 \cdot 10^{-17}$ cm² bei 1000 eV angenommen. Nimmt man für die Sublimationsenergie den Wert von 7.6 meV/Molekül /A.9/, so erhält man aus den obigen Energieverlusten eine Verdampfung von 2300 bzw. 570 Atomen, was mit /4.11/ verträglich ist. Die Erzeugung von Untergrundgas im Ionisator kann deswegen einen Bruchteil von bis zu einigen Prozent des Strahlstromes ausmachen.

Die Verdampfung von Clustermaterial nach einem Ionisationsakt ist neuerdings auch für Edelgas-Cluster von Haberland /A.19/ diskutiert worden, der, in Analogie zum oben erwähnten Prozeß 1.), die Bildung eines Dimerions mit einer Bindungsenergie von etwa 1 eV als Energiequelle heranzieht. Anhang V Einfluß der Stöße der Clusterionen untereinander und mit dem ruhenden Untergrundgas auf die Grenzstromdichte

Die Ratengleichung (4.4.1.1) für den Anstieg der Dichte des strömenden Untergrundgases kann man in der Form schreiben

$$\hat{n}_{o} = n_{o} \{ K < /v_{o}^{1/3} > f_{c} / v_{c}^{2} \cdot j_{c} - <|v_{\perp}| > F/4V \} + n_{\infty} <<\sigma > q(v_{c}) > f_{c} \cdot j_{ci} + I_{cc} \cdot f_{c} / v_{c}^{2} \cdot j_{c} - <|v_{\perp}| > F/4V \} + n_{\infty} <<\sigma > q(v_{c}) > f_{c} \cdot j_{ci} + I_{cc} \cdot f_{c} / v_{c}^{2} \cdot j_{c} - <|v_{\perp}| > F/4V \} + n_{\infty} <<\sigma > q(v_{c}) > f_{c} \cdot j_{ci} + I_{cc} \cdot f_{c} / v_{c}^{2} \cdot j_{c} - <|v_{\perp}| > F/4V \} + n_{\infty} <<\sigma > q(v_{c}) > f_{c} \cdot j_{ci} + I_{cc} \cdot j_{ci} + J_{cc} \cdot j$$

Hierin bedeuten

n_∞ die Dichte des ruhenden Untergrundgases, j_{ci} die Stromdichte der Clusterionen und I_{cc}, die Anzahl der durch Stöße von Clusterionen miteinander erzeugten Atome pro Volumen- und Zeiteinheit.

Wenn für t = 0 n = 0 angenommen wird, dann verschwindet der erste Term in der Ratengleichung, und der zweite und dritte Term sorgen für einen linearen Anstieg von n mit t. Ist der Ausdruck in der geschweiften Klammer größer oder gleich Null, d. h., wird die in 4.4.1 vereinfacht berechnete Grenzstromdichte überschritten oder auch gerade erreicht, dann wächst $n_{
m o}^{
m ~iiber}$ alle Grenzen. Dies bedeutet offensichtlich, daß die vereinfachte Grenzstromdichte realiter nicht erreicht werden kann. Wird nun die geschweifte Klammer negativ, dann gibt es für jeden beliebigen Wert der Summe des zweiten und dritten Terms einen Wert n, oberhalb dessen n negativ wird. Dies bedeutet wiederum, daß auf der Basis der obigen Ratengleichung eine neue Grenzstromdichte existiert, die nur beliebig wenig unterhalb der vereinfachten liegt. Natürlich kommt auch dieses wunderliche Verhalten in praxi nicht vor, weil dabei eine stillschweigende Voraussetzung für die obige Ratengleichung verletzt würde, nämlich, daß die Verteilungsfunktion für die Clusterionen nicht von der Zeit abhängt, d. h. insbesondere nicht durch einen exzessiven Anstieg von n verarmt wird.

Aus dieser Diskussion wird klar, daß die obige Ratengleichung den Anstieg von n_ in Richtung auf einen Sättigungswert oder auf eine Instabilität hin beschreibt, aber nicht gestattet, diesen Sättigungswert und die dann sich einstellende Grenzstromdichte zu berechnen. Für den vorliegenden Fall ist jedoch die Aussage der Ratengleichung über die obere Grenze der Grenzstromdichte durchaus genügend, da man stets versuchen wird, die Stoßfrequenz der Clusterionen untereinander und mit dem ruhenden Untergrundgas klein zu halten.

Anhang VI Berechnung des mittleren Masseverlustes pro Stoß eines Clusterions mit einem Untergrundgas-Teilchen

Der differentielle axiale Impulsverlust eines Clusterions im Strahl ist gegeben durch

$$dp = -n\sigma dx \sum_{i=1}^{q} p_i$$
 (AVI.1)

mit n Anzahldichte der Untergrundteilchen,

σ geometrischer Wirkungsquerschnitt eines Clusterions,

х Ortskoordinate längs der Strahlachse,

axialer Impuls des i-ten verlorengegangenen Atoms und Pi

Gesamtzahl der pro Stoß emittierten Atome. q

Die Änderung des Pendelausschlags ø, die mit dem Impulsverlust verknüpft ist, beträgt

$$d\phi/dx = RI_{o} \tau v(x,r)(dp/dx)/(\Theta \omega_{o} N_{o})$$
 (AVI.2)

mit v(x,r)die aus dem Akzeptanzkegel des Pendels hinauslaufende Fraktion der von Clusterionen emittierten Teilchen,

Abstand zwischen Pendelachse und Schwerpunkt,
Atomstrom im Strahl,
Strahlpulsdauer,
Trägheitsmoment des Pendels,
Kreisfrequenz der Pendelschwingung und
ursprüngliche Anzahl von Atomen pro Cluster.

Setzt man in (AVI.1) den totalen mittleren axialen Impulsverlust p $_{o} \cdot q$ ein, so erhält man

$$dp = -n\sigma dx \{ \sum_{i=1}^{q} (p_i - p_o) + q \cdot p_o \}.$$
 (AVI.3)

Der zweite Term beschreibt den Impulsverlust, der durch den reinen Masseverlust verursacht wird, wobei die emittierten Teilchen keine Relativge-

schwindigkeit bezüglich des Clusterions haben. Der erste Term steht für den Rückstoßanteil an der Impulsänderung. Es wird nun zuerst gezeigt, daß der Rückstoßanteil verglichen mit dem Anteil aus dem Masseverlust vernachlässigbar ist. Zur Abschätzung einer oberen Grenze des Rückstoßimpulses p_r wird angenommen, daß die Impulse aller emittierter Teilchen in Strahlrichtung zeigen. Dann folgt aus dem Energiesatz, formuliert im Ruhesystem des Clusterions,

$$E - q \varepsilon = (1/2m) \sum_{i=1}^{q} \Delta p_i^2 .$$

 $\Delta p_i = p_i p_o$, ϵ ist die Sublimationsenergie pro Atom. Wird weiter angenommen, daß alle Δp_i gleich sind, d. h., $\Delta p_i = \Delta p_i$, so folgt

$$\Delta p_i = \sqrt{2m(E-q\varepsilon)/q}$$
.

Der gesamte Rückstoßimpuls beträgt dann $p_r = q \Delta p_i$ und erreicht bei $q = E/2\varepsilon$ seinen Maximalwert von

$$p_{r_{max}} = p_0 \sqrt{E/4\varepsilon}$$
.

Er macht einen Bruchteil von $\sqrt{\varepsilon/\varepsilon}$ der mit dem Masseverlust verknüpften Impulsänderung aus und beträgt im vorliegenden Fall etwa 4 %.

Dieses Ergebnis gilt, wenn alle emittierten Teilchen dieselbe, nämlich die mittlere, kinetische Energie haben. Im allgemeinen wird der tatsächliche Energieanteil, den ein Teilchen erhalten hat, vom Mittelwert abweichen. In diesem Falle wird der Rückstoßimpuls noch kleiner, wie durch die folgende, einfache Betrachtung gezeigt werden kann. Modifiziert man den Fall gleicher Energie für alle Teilchen so, daß ein Teilchen die doppelte und ein weiteres dafür gar keine kinetische Energie mehr besitzt, während der Rest unverändert bleibt, dann nimmt der gesamte Rückstoßimpuls ab. Abweichungen von der Verteilung der Energie in gleichen Anteilen führen daher zur Abnahme des Rückstoßimpulses, der folglich gegenüber dem mit dem Masseverlust gekoppelten Impulsverlust vernachlässigt werden kann. Gleichung (AVI.3) vereinfacht sich daher zu

$$dp = -n\sigma qp_dx$$
.

Einsetzen der Beziehung $\sigma = \sigma_0 N^{2/3}$ mit $\sigma_0 = 8.68 \text{ Å}^2$ für Wasserstoff in Gleichung (AVI.2) ergibt

$$d\phi/dx = -RI_{o}\tau_{P_{o}}n\sigma_{o}N^{2/3}v(x,r)q/(\Theta\omega_{o}N_{o}). \qquad (AVI.4)$$

Zur Integration dieser Gleichung benötigt man die Abhängigkeit N(x), die sich aus dem Ansatz

$$dN = -n\sigma q dx$$

als

$$N(x) = N_0 (1 - x/1_0)^3$$

mit $1_0 = 3N_0^{1/3}/(qn\sigma_0)$ ergibt. Hierin ist 1_0 die Weglänge, nach der ein Cluster vollständig zerfallen ist, und es wird angenommen, daß q weder von der Position x noch von der lokalen Clustergröße N(x), sondern nur von der Relativgeschwindigkeit zwischen Cluster und Untergrundteilchen abhängt. Damit wird aus Gleichung (AVI.4)

$$d\phi/dx = -3\phi_0(1-x/1_0)^2 v(x,r)/1_0$$
 (AVI.5)

mit der Abkürzung

$$\phi_{o} = RI_{o}\tau p_{o}/\Theta \omega_{o}$$
.

Für Strahlen, die, wie im vorliegenden Fall, schlank sind im Verhältnis zum Pendeldurchmesser, kann die radiale Abhängigkeit von v(x,r) vernachlässigt und einfacher v(x,r) = $v^{*}(x)$ geschrieben werden. Dann erhält man mit der Targetlänge]

$$\mathbf{v}^{*}(\mathbf{x}) = \begin{cases} 1 - (r_{p}/(1-\mathbf{x})\tan\alpha)^{2} & \mathbf{x} < 1 - r_{p}/\tan\alpha \\ 0 & \text{sonst} \end{cases}$$

(siehe Abb. 4.14).

Einsetzen von $v^{*}(x)$ in Gleichung (AVI.5) und Integration über x in den Grenzen x = 0 und x = $1-r_{p}/tan\alpha = 1-1^{*}$ führt zu einer kubischen Gleichung für 1_{o}

$$1_{o}^{3}(1-\phi(1-1^{*})/\phi(o))/3 + 1_{o}^{2}(21^{*}-1-1^{*2}/1) +$$

$$1_{o}(1^{2}-411^{*}+1^{*2}(3+21n(1/1^{*})))-1^{3}/3+41^{*3}/3 - (AVI.6)$$

$$11^{*2}(1-21n(1/1^{*})) = 0$$

Löst man diese Gleichung für verschiedene Parameter 1^{*} , so erhält man eine Relation $1_0 = 1_0(\tan \alpha)$, aus der man wiederum die gesuchte Beziehung $q = q(\tan \alpha)$ ableiten kann. Die numerisch ermittelte Lösung ist in Abb. 4.15 als q' = q/q_{max} aufgetragen.

Zu einem einzigen Wertepaar tan α und q' kann man schließlich gelangen, wenn man die theoretische Kurve $\phi/\phi_0 = f(n)$, die sich durch entsprechendes Auflösen der Gleichung (AVI.6) ergibt, durch Variation der Parameter tan α und q' an die Meßpunkte anpaßt. Die resultierende Kurve ist in Abb. 4.10 eingezeichnet. Die zugehörigen Werte tan $\alpha = 0.11$, d. h. $\alpha = 6.3^{\circ}$, und q' = 195/1278 = 0.15 sind in Abb. 4.15 als Kreuz dargestellt. Im Mittel werden also pro Stoß 15 % der energetisch zulässigen Teilchen emittiert und laufen in einen Kegel mit einem Öffnungswinkel von 6[°]. Anhang VII Mittelwert des Quadrates der Relativgeschwindigkeit bei einer logarithmischen Normalverteilung

Die in Abb. AVII.l dargestellte Geschwindigkeitsverteilung wird angenähert durch die logarithmische Normalverteilung

$$p(v) = exp(-(1nv-1nv_m)^2/(2\sigma_g^2))/(\sqrt{2\pi} \sigma_g v)$$

mit $\ln v_m = -0.045$ und $\sigma_g = 0.2$. Dabei sind $\ln v_m$ und σ_g der Mittelwert bzw. die Standardabweichung von $\ln v$, v und v_m werden in Einheiten der mittleren Geschwindigkeit <v> angegeben. Der Mittelwert des Quadrats der Relativgeschwindigkeit ist gegeben durch

$$\langle v_r^2 \rangle = 2 \{ \exp(\sigma_g^2) - 1 \} \langle v \rangle^2.$$

Damit findet man

$$\langle v_r^2 \rangle = 0.082 \langle v \rangle^2 = 5.89 \cdot 10^7 (m/s)^2$$

und erhält als fiktive Beschleunigungsspannung

$$U_a = Nm_H < v_r^2 > /2Ze = 32 kV.$$





Literaturverzeichnis

- /1.1/ E.W. Becker, K. Bier, W. Henkes, Z. Phys. 146, 333-338 (1956).
- /1.2/ E.W. Becker, R. Klingelhöfer, P. Lohse, Z. Naturforsch. 15a, 644-645 (1960).
- /1.3/ E.W. Becker, R. Klingelhöfer, P. Lohse, Z. Naturforsch. 17a, 432-438 (1962).
- /1.4/ W. Henkes, Z. Naturforsch. 16a, 842 (1961).
- /1.5/ W. Henkes, Z. Naturforsch. 17a, 786-789 (1962).
- /1.6/ R. Klingelhöfer, Beiträge aus der Plasmaphysik 6, 253-273 (1966).
- /1.7/ W. Henkes, KfK-Nachrichten 3, 16-20 (1972).
- /1.8/ O.F. Hagena, Cluster Beams from Nozzle Sources, in "Molecular Beams and Low Density Gas Dynamics", P.P. Wegener (Herausgeber), Marcel Dekker, Inc., New York, 1974, pp. 93-181.
- /1.9/ O.F. Hagena, W. Henkes, U. Pfeiffer, Progress in Astronautics and Aeronautics 51 (2), 1123-1135 (1977).
- /1.10/ H.O. Moser, J. Martin, R. Salin, Proc. 3rd Int. Meeting on the Theoretical and Experimental Aspects of Heating of Toroidal Plasmas, CEA, Grenoble, France, June 28 - July 2, 1976, pp. 57-64.
- /1.11/ E.W. Becker, H.D. Falter, O.F. Hagena, P.R.W. Henkes, R. Klingelhöfer, H.O. Moser, W. Obert, I. Poth, 10th Symp.on Fusion Technology, Padova, Sept. 4-8, 1978, Pergamon Press, Oxford, 1979, p. 331.
- /2.1/ H.O. Moser, J. Martin, R. Salin, J. de Physique 38, C2-215 (1977).

- H.O. Moser, J. Martin, R. Salin, 10th Symp. on Fusion Technology, Padova, Sept. 4-8, 1978, Pergamon Press, Oxford, 1979, p. 289.
- /2.3/ W. Henkes, V. Hoffmann, F. Mikosch, Rev. Sci. Instrum. 48, 675-681 (1977).
- /2.4/ H.D. Falter, H.O. Moser, Verhandl. DPG(VI)15, 801 (1980) undH.D. Falter, unveröffentlicht.
- /2.5/ J. Huguenin, G. Visconti, R. Salin, B. Desforges, R. Dubois, R.
 El-Bez, J. Knott, Proc. 4th Int. Symp. Discharges and Electrical Insulation in Vacuum, Waterloo, Canada, 1970.
- /3.1/ Siehe z. B. W. Raith, Adv. in Atomic and Molecular Physics 12, 281 (1976) und speziell für Clusterionen /1.8/.
- /3.2/ H.O. Moser, Verhandl. DPG(VI) 13, 638 (1978).
- /3.3/ H.O. Moser, Rev. Sci. Instrum. 55, 1914-23 (1984).
- /3.4/ W. Keller, R. Klingelhöfer, B. Krevet, H.O. Moser, R. Ries, Rev. Sci. Instrum. 55, 468-471 (1984).
- /3.5/ Hersteller: Ingenieurbüro Strehl-Kraus, Darmstadt, 1980.
- /4.1/ O. Graf, Diplomarbeit, Universität Karlsruhe, 1981.
- /4.2/ H.O. Moser, H.D. Falter, O.F. Hagena, P.R.W. Henkes,R. Klingelhöfer, Surface Science 106, 569-575 (1980).
- /4.3/ B. Krevet, H.O. Moser, unveröffentlicht.
- /4.4/ Siehe z. B. P.T. Kirstein, G.S. Kino, W.E. Waters, Space-Charge Flow, McGraw-Hill, New York, 1967.

- /4.5/ R.G.E. Hutter, S. Harrison, Sylvania Technologist, p. 2, Jan. 1949, zitiert in H.F. Ivey, Space-Charge Limited Currents, in Adv. in Electronics and Electron Physics VI, 1954, p. 254 (135).
- /4.6/ P.R.W. Henkes, private Mitteilung.
- /4.7/ W. Obert, Proc. 6th Int. Cryog. Eng. Conf., K. Mendelssohn (Herausgeber), Grenoble, pp. 219-222 (1976).
- /4.8/ K.W. Ensslen, Diplomarbeit, Universität Karlsruhe, 1977.
- /4.9/ B. Krevet, H.O. Moser, Verhand1. DPG(VI) 19, 1240 (1984).
- /4.10/ B. Krevet, H.O. Moser, Proc. 3rd Int. Symp. Small Particles and Inorganic Clusters, Berlin, 1984, Surface Science 156, 1020-1026 (1985); S.H. Be, K. Yano, Rev. Sci. Instrum. 55, 1928-1930 (1984).
- /4.11/ J. Gspann, K. Körting, J. Chem. Phys. 59, 4726-4734 (1973).
- /4.12/ O. Echt, K. Sattler, E. Recknagel, Physics Lett. 90A, 185-189 (1982).
- /4.13/ Siehe z. B. W. Kauzmann, Kinetic Theory of Gases, W.A. Benjamin, Inc., New York, Amsterdam, 1966.
- /4.14/ P.R.W. Henkes, U. Pfeiffer, Int. J. Mass Spectrom. Ion Phys. 52, 43-57 (1983).
- /4.15/ H.O. Moser, B. Krevet, in Rarefied Gas Dynamics, Vol. II, Hakuro Oguchi (Herausgeber), University of Tokyo Press, 1984, pp. 847-855.
- /4.16/ H.O. Moser, B. Krevet, J. Appl. Phys. 58, 642-645 (1985).

- /5.1/ G. Haas, W. Henkes, M. Keilhacker, R. Klingelhöfer, A. Stäbler,
 Proc. 3rd Symp. on Plasma Heating in Toroidal Devices, Int. School of Plasma Physics, Varenna, Italien, E. Sindoni (Herausgeber),
 Bologna Ed. Compositori, 1976, p. 303.
- /5.2/ E.W. Becker, H. Burghoff, R. Klingelhöfer, Z. Naturforsch. 22a, 589 (1967).
- /5.3/ E.W. Becker, J. Gspann, K. Körting, Z. Naturforsch. 27a, 1410-12 (1972).
- /5.4/ S.H. Be, K. Yano, S. Kawai, Jap. J. Appl. Phys. 21, 1755-58 (1982).
- /5.5/ E.W. Becker, H. Betz, W. Ehrfeld, W. Glashauser, A. Heuberger,
 H.J. Michel, D. Münchmeyer, S. Pongratz, R. von Siemens, Natur wissenschaften 69, 520-523 (1982).

- /A.1/ K. Buchheit, W. Henkes, Z. angew. Phys. 24, 191-196 (1968).
- /A.2/ Y. Chanut, J. Martin, R. Salin, H.O. Moser, Surface Science 106, 563-568 (1981) und unveröffentlicht.
- /A.3/ J.A. Ray, C.F. Barnett, B. Van Zyl, J. Appl. Phys. 50, 6516-6519 (1979).
- /A.4/ K. Dettmann, in "Interaction of Energetic Charged Particles with Solids", BNL 50336, Brookhaven National Laboratory, 1971.
- /A.5/ D. Smith, N.G. Adams, J. Phys. D: Appl. Phys. 6, 700-719 (1973).
- /A.6/ Siehe z. B. E.S. Mashkova, Radiat. Eff. 54, 1 (1981).
- /A.7/ W. Henkes, G. Isenberg, Int. J. Mass Spectrom. Ion Phys. 5, 249-254 (1970).
- /A.8/ H. Enjoji, S.H. Be, K. Yano, Jap. J. Appl. Phys. 17, 1633-1641
 (1978); H. Enjoji, Jap. J. Appl. Phys. 19, 783-791 (1980);
 H. Enjoji, Jap. J. Appl. Phys. 19, 1217-1233 (1980).
- /A.9/ I.F. Silvera, Rev. Mod. Phys. 52, 393-452 (1980).
- /A.10/ R. Clampitt, Vacuum 34, 113-117 (1984); R. Clampitt, L. Gowland, Nature 223, 815 (1969).
- /A.11/ N. Bohr, Kg1. Danske Vid. Selsk. Mat.-fys. Medd. 18, 1-144 (1948).
- /A.12/ W.T. Miles, R. Thompson, A.E.S. Green, J. Appl. Phys. 43, 678-686 (1972).

- /A.13/ L. Schmidt, Phys. Lett. 36A, 87 (1971).
- /A.14/ H.S.W. Massey, E.H.S. Burhop, H.B. Gilbody, Electronic and Ionic Impact Phenomena, Vol. III, Clarendon, Oxford 1971, p. 2034.
- /A.15/ E.M. Jones, Culham Laboratory Report CLM-R 175.
- /A.16/ H.S.W. Massey, E.H.S. Burhop, H.B. Gilbody, Electronic and Ionic Impact Phenomena, Vol. II, Clarendon, Oxford 1969, p. 919.
- /A.17/ B.L. Carnahan, E.C. Zipf, Phys. Rev. A16, 991-1002 (1977).
- /A.18/ Siehe p. 888 von /A.16/.
- /A.19/ H. Haberland, Proc. 3rd Int. Symp. Small Particles and Inorganic Clusters, Berlin, 1984, Surface Science 156, 305-312 (1985).

Danksagung

Für die stete Förderung dieser Arbeit danke ich Herrn Prof. Dr. E. W. Becker und Herrn Prof. Dr. R. Klingelhöfer. Zum Zustandekommen der beiden Beschleuniger in Lyon und Karlsruhe und den daran ausgeführten Experimenten haben zahlreiche Kollegen und Mitarbeiter beigetragen. Namentlich hervorheben möchte ich G. Dietzel, S. Dürr, H.D. Falter, O.F. Hagena, P.R.W. Henkes, G. Isringhaus, W. Kaboth, D. Kausch, W. Keller, K. Körting, B. Krevet, J. Martin, K.-H. Muth, A. Neugebauer, W. Obert, I. Poth, W. Ruf, R. Salin und G. Stern. Ihnen allen sei an dieser Stelle sehr herzlich gedankt. Für die Mitwirkung bei der technischen Herstellung des Manuskripts habe ich R. Preising, W. Schuardt, R. Wittemann und vor allem Frau B. Schindler zu danken. Einen nicht zu unterschätzenden Anteil an der Entstehung dieser Arbeit hat schließlich meine Familie, für deren Geduld und Verständnis ich sehr dankbar bin.