KfK 4156 Dezember 1986

# Wechselwirkung eines Cäsiumatomstrahls mit Helium-3- und Helium-4-Clusterstrahlen

J. Gspann, R. Ries Institut für Kernverfahrenstechnik

Kernforschungszentrum Karlsruhe

#### KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

#### Institut für Kernverfahrenstechnik

KfK 4156

## WECHSELWIRKUNG EINES CÄSIUMATOMSTRAHLS MIT HELIUM-3- UND HELIUM-4-CLUSTERSTRAHLEN

J. Gspann, R. Ries\*)

# \*) von der Fakultät für Maschinenbau der Universität Karlsruhe (T.H.) genehmigte Dissertation

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH Postfach 3640, 7500 Karlsruhe 1

ISSN 0303-4003

•

#### WECHSELWIRKUNG EINES CÄSIUMATOMSTRAHLS MIT HELIUM-3- UND HELIUM-4-CLUSTER-STRAHLEN

#### Zusammenfassung

An <sup>3</sup>He- und <sup>4</sup>He-Clustern mit 10<sup>4</sup> bis 10<sup>7</sup> Atomen läßt sich das Verhalten sehr kleiner Mengen von Quantenflüssigkeiten untersuchen. Die Temperatur von <sup>4</sup>He-Clustern liegt unterhalb der λ-Temperatur, so daß Superflüssigkeit auftreten kann. Dagegen sind <sup>3</sup>He-Cluster mit Sicherheit nicht superflüssig. Absolutmessungen der totalen Streuung eines Cäsiumatomstrahls an <sup>3</sup>Heund <sup>4</sup>He-Clusterstrahlen ergeben für beide Isotope im Rahmen der Meßgenauigkeit eine Unabhängigkeit des totalen Streuquerschnitts von der Relativgeschwindigkeit. Die Ergebnisse lassen sich sowohl für <sup>3</sup>He- als auch für <sup>4</sup>He-Cluster unter der Annahme des geometrischen Querschnitts der Cluster und eines zusätzlichen van-der-Waals-Wechselwirkungssaums als totalem Streuquerschnitt sowie unter der Annahme eines Anteils unkondensierter Restgasatome im Clusterstrahl von einigen Promille erklären. Dies gilt auch für Relativgeschwindigkeiten unterhalb der Landauschen kritischen Geschwindigkeit, bei denen in makroskopisch ausgedehntem superfluiden <sup>4</sup>He keine elementaren Anregungen mehr erzeugt werden können. Messungen der differentiellen Streuung an <sup>4</sup>He-Clustern deuten darauf hin, daß zumindest ein Teil der auftreffenden Cäsiumatome von den Clustern mitgeführt wird.

#### INTERACTION OF A CESIUM ATOMIC BEAM WITH HELIUM-3 AND HELIUM-4 CLUSTER BEAMS

#### Abstract

<sup>3</sup>He and <sup>4</sup>He clusters with 10<sup>4</sup> to 10<sup>7</sup> atoms allow to study very small quantities of quantum fluids. The temperature of <sup>4</sup>He clusters is lower than the  $\lambda$ -temperature so that superfluidity can occur. <sup>3</sup>He clusters, however, are certainly not superfluid. Absolute measurements of the total scattering of a cesium atomic beam by <sup>3</sup>He and <sup>4</sup>He cluster beams show for both isotopes within the experimental error an independence of the total scattering cross section on the relative velocity. The results can be explained for <sup>3</sup>He clusters as well as for <sup>4</sup>He clusters by assuming the geometrical cross section of the clusters with an additional van-der-Waals interaction zone as the total scattering cross section and, additionally, a few per mille of uncondensed helium atoms inside the cluster beam. This holds even for relative velocities smaller than the Landau critical velocity below which the creation of elementary excitations in bulk superfluid <sup>4</sup>He is impossible. Differential scattering measurements indicate that at least part of the Cs atoms impinging on <sup>4</sup>He clusters is carried along with the clusters.

# <u>Inhaltsverzeichnis</u>

1.	Einleitung und Zusammenfassung			1
2.	Apparativer Aufbau			
	2.1 2.2 2.3	Cluster Cäsium Analys	rstrahlsystem nstrahlsystem atorsysteme	3 5 6
3.	Meß	Meßverfahren		
4.	Strahleigenschaften			16
	4.1 4.2	Helium Cäsium	nclusterstrahlen natomstrahl	16 19
5.	Experimentelle Ergebnisse und Auswertung			
	5.1	Totale 4He-Cli	Streuung von Cäsiumatomen an <sup>3</sup> He- und usterstrahlen	22
		5.1.1	Experimentelle Ergebnisse	22
		5.1.2	Auswertung	25
	5.2	Differe 4He-Cli	entielle Streuung von Cäsiumatomen an ustern	34
		5.2.1	Experimentelle Ergebnisse	34
		5.2.2	Auswertung	38
6.	Diskussion der Ergebnisse		43	
Anh	ang			
A1	Eichung der Messung der Clusterstrahlintensität			46
A2	Umrechnung der Cäsiumlaufzeitverteilung in die Cäsiumgeschwindigkeitsverteilung			48
A3	Verfahren zur Berechnung der Änderungssignale des Cäsiumstroms			49
Liter	atur			51

<u>Seite</u>

#### 1. Einleitung und Zusammenfassung

Bei der Expansion aus einer Düse tritt unter geeigneten Bedingungen eine teilweise Kondensation des Strahlgases auf. Durch Überführen des Kerns dieser Strömung ins Hochvakuum erhält man Strahlen aus Atom- oder Molekülagglomeraten, sogenannte Clusterstrahlen /1/. Diese zeichnen sich durch eine enge Geschwindigkeitsverteilung und infolgedessen durch eine räumlich scharfe Begrenzung sowie eine hohe Materiestromdichte aus. Auf diese Weise lassen sich auch Clusterstrahlen der beiden Heliumisotope erzeugen /2/, /3/.

Cluster der beiden Heliumisotope verdienen besonderes Interesse, weil sich an ihnen das Verhalten kleinster Mengen von Quantenflüssigkeiten untersuchen läßt. Die Temperatur von <sup>4</sup>He-Clustern liegt unterhalb der normalerweise für superflüssiges <sup>4</sup>He geltenden Höchsttemperatur. Dagegen sind <sup>3</sup>He-Cluster mit Sicherheit nicht superflüssig /4/.

Bei früheren Messungen der Impulsübertragung beim Stoß von Xenonatomen auf <sup>3</sup>He- und <sup>4</sup>He-Cluster wurde aus der Ablenkung der Clusterstrahlen für beide Isotope eine teilweise Transparenz für den auftreffenden Impuls festgestellt /5/. Dabei blieb die Frage offen, ob dies auf eine Transparenz für die Xenonatome selbst zurückzuführen ist. Transparenz für Atome würde jedoch bedeuten, daß der totale Streuquerschnitt der Heliumcluster für Atome kleiner wäre als ihr geometrischer Querschnitt.

Erste Messungen der Geschwindigkeitsabhängigkeit der totalen Streuung von Cäsiumatomen an 4He-Clusterstrahlen liegen vor /6/, /3/. Bei Streuexperimenten wird wegen der besseren Nachweisbarkeit statt Xenon das im Periodensystem benachbarte Cäsium verwendet. Es wurden jedoch keine Absolutwerte des totalen Streuquerschnitts bestimmt. Frühere Absolutmessungen des totalen Streuquerschnitts von Stickstoffclustern für Kaliumatome haben gezeigt, daß hierbei störende Einflüsse durch unkondensierte Restgasatome im Clusterstrahl eine wichtige Rolle spielen können /7/.

Ziel des ersten Teils der vorliegenden Arbeit ist die experimentelle Bestimmung von Absolutwerten des totalen Streuquerschnitts sowohl von <sup>3</sup>He- als auch von <sup>4</sup>He-Clustern für Cäsiumatome. Dazu ist es notwendig, den störenden Einfluß unkondensierter Restgasatome im Clusterstrahl weitestgehend zu verringern sowie den verbleibenden Einfluß quantitativ zu ermitteln. Hierbei ergibt sich für die Streuung von Cäsiumatomen sowohl an <sup>3</sup>He- als auch an <sup>4</sup>He-Clustern im Rahmen der Meßgenauigkeit eine weitgehende Unabhängigkeit des totalen Streuquerschnitts von der Relativgeschwindigkeit. Die experimentellen Ergebnisse lassen sich sowohl für <sup>3</sup>He- als auch für <sup>4</sup>He-Cluster unter der Annahme des geometrischen Querschnitts der Cluster mit van-der-Waals-Saum als Streuquerschnitt sowie unter der Annahme eines Anteils unkondensierter Restgasatome im Clusterstrahl von einigen Promillen befriedigend erklären.

Der zweite Teil der Arbeit umfaßt Messungen der differentiellen Streuung von Cäsiumatomen an 4He-Clustern. Dies beinhaltet die Bestimmung der Winkelablenkung der Cäsiumatome sowie des Energie- und Impulsverlustes. Hierbei läßt sich der Einfluß der Cluster auf die Streuung vom Anteil des Restgases separieren. Die Ergebnisse zeigen, daß zumindest ein Teil der auf die 4He-Cluster auftreffenden Cäsiumatome von den Clustern mitgeführt wird.

#### 2. <u>Apparativer Aufbau</u>

Die Versuchsanordnung zur Messung der Streuung von Cäsiumatomen an Heliumclusterstrahlen ist in Abb. 1 schematisch dargestellt. Sie besteht aus dem Clusterstrahlsystem, dem Cäsiumstrahlsystem sowie mehreren Analysatorsystemen. Neben einem Detektor zur Ermittlung der Clusterstrahlintensität können wahlweise entweder Detektoren zum Nachweis gestreuter Cäsiumatome oder - in Abb. 1 nicht gezeigt - zur Messung von Clustergröße und -geschwindigkeit eingebaut werden. Die wichtigsten Abmessungen sind aus den Tabellen 1 und 2 ersichtlich.

#### 2.1 Clusterstrahlsystem

Das System zur Erzeugung von <sup>3</sup>He- und <sup>4</sup>He-Clusterstrahlen entspricht weitgehend dem bereits früher verwendeten /2/,/3/. Das Strahlgas<sup>\*</sup>) wird über einen Wärmetauscher durch flüssiges natürliches Helium vorgekühlt. In der Regel werden die <sup>3</sup>He-Experimente bei einer Düsentemperatur von 3.2 K und die <sup>4</sup>He-Experimente bei 4.2 K durchgeführt, wobei die Temperatur durch den Druck im Kryostaten (1) eingestellt werden kann. Anschließend expandiert das Gas durch eine konvergent-divergente Düse (2) in die erste Druckstufe (p<sub>1</sub> ≈ 10<sup>-1</sup> mbar). Der Kern des bei der Expansion teilweise kondensierten Überschallstrahls wird vom Abschäler (3) ausgeblendet, durchläuft die zweite Druckstufe (p<sub>2</sub> ≈ 10<sup>-4</sup> mbar) und gelangt nach erneuter Ausblendung durch den ersten Kollimator (4) ins Hochvakuum (p<sub>k</sub> ≈ 10<sup>-6</sup> mbar). Ein zweiter Kollimator (5) definiert die endgültige Geometrie des Clusterstrahls. Das gesamte Clusterstrahlerzeugungssystem ist von einem mit flüssigem Stickstoff gekühlten Strahlungsschild (6) umgeben.

<sup>\*)</sup> Eine nach den <sup>3</sup>He-Experimenten durchgeführte Gasanalyse ergab einen <sup>4</sup>He-Anteil im <sup>3</sup>He von ca. 2.5 % sowie einen Luftanteil von ca. 0.5 %. Bei diesem Verunreinigungsgrad ist jedoch noch keine Beeinträchtigung der experimentellen Ergebnisse zu erwarten. Bei den <sup>4</sup>He-Experimenten wurde handelsübliches natürliches Helium (Reinheitsgrad 99.9999 %) verwendet. Darin ist etwa 1 ppm <sup>3</sup>He enthalten.



# <u>Abb. 1:</u> Schematische Darstellung der Versuchsanordnung (Erläuterung der Zahlen im Text).

Durch eine mit zwei gegenüberliegenden Stegen versehene, rotierende Scheibe (7) wird der Clusterstrahl in regelmäßigen Zeitabständen kurzzeitig unterbrochen. Zur Abschirmung der bei der Strahlunterbrechung freigesetzten Heliumuntergrundatome gegenüber dem Cäsiumstrahl ist die Unterbrecherscheibe von einem mit einer Blende versehenen Blechkasten (8) umgeben. Danach durchsetzt der Clusterstrahl im Streuzentrum (9) den Cäsiumstrahl und tritt anschließend in den differentiell gepumpten Strahlsumpf (10) ein.

Für die Experimente mit <sup>3</sup>He wird die Versuchsapparatur auf einen internen Strahlgaskreislauf umgestellt. Der in der ersten Druckstufe anfallende Hauptanteil des Strahlgases (ca. 98 %) wird wieder komprimiert, in einer Flüssigstickstoffkühlfalle gereinigt und anschließend wieder dem Vorratsbehälter vor der Düse zugeführt. Derjenige Anteil des Strahlgases, der durch den Abschäler in die zweite Druckstufe und in die Hochvakuumkammer gelangt, wird ebenfalls wieder komprimiert und im Anschluß an das Experiment in einer Flüssigheliumkühlfalle wiederaufgearbeitet.

## 2.2 Cäsiumstrahlsystem

Das Cäsiumstrahlsystem entspricht weitgehend dem bereits früher bei Kaliumstrahlen verwendeten /7/. Das metallische Cäsium wird in einem Ofen (11) verdampft und verläßt diesen durch einen schlitzförmigen Ofenspalt (12). Der Ofen besteht aus einer 5 g Cäsium fassenden Vorratspatrone, die von einem heizbaren Metallmantel umgeben ist. Die Temperatur des Ofens kann mit einem Thermoelement gemessen werden und liegt typischerweise zwischen 400 K und 450 K. Zur Kühlung und als Strahlungsschild umgibt den Cäsiumofen ein Kupfermantel (13), der durch kaltes Stickstoffgas auf ca. 200 K abgekühlt wird.

Ein ebenfalls schlitzförmiger Kollimator (14) legt die endgültige, bandförmige Strahlgeometrie fest. Der Cäsiumstrahl wird nach Durchsetzen des Clusterstrahls durch einen Langmuir-Taylor-Detektor, im folgenden mit I bezeichnet, nachgewiesen /8/. Dieser besteht aus einer mit einer schlitzförmigen Blende versehenen Saugkathode (15), durch die der Cäsiumstrahl auf ein glühendes Wolframband (16) trifft, an dem die Cäsiumatome ionisiert werden.

Der Langmuir-Taylor-Detektor I ist senkrecht zu der von Clusterstrahl und Cäsiumstrahl aufgespannten, als Streuebene bezeichneten Ebene hydraulisch verschiebbar und dadurch exakt auf den Cäsiumstrahl justierbar. Außerdem kann das gesamte Cäsiumstrahlsystem senkrecht zur Streuebene verschoben und dadurch exakt auf den Clusterstrahl justiert werden. Zur Einstellung verschiedener Relativgeschwindigkeiten zwischen Cäsiumatomen und Heliumclustern kann der Strahlkreuzungswinkel α zwischen beiden Strahlen durch Schwenken des gesamten Cäsiumstrahlsystems in der Streuebene zwischen 15° und 90° variiert werden. Eine in den Cäsiumstrahl fahrbare zweite Unterbrecherscheibe (17) ermöglicht die Bestimmung der Laufzeitverteilung der Cäsiumatome mit Hilfe des Langmuir-Taylor-Detektors I.

Aus den in Tab. 1 zusammengestellten geometrischen Daten des Cäsiumstrahlsystems läßt sich ein Auflösungswinkel der Meßanordnung von 0.53° ermitteln /9/. Dieser ist dadurch definiert, daß gerade die Hälfte aller um diesen Winkel abgelenkten Cäsiumatome auch als gestreut registriert werden.

#### 2.3 Analysatorsysteme

Zum Nachweis der durch Heliumcluster aus dem Cäsiumstrahl herausgestreuten Cäsiumatome dient ein weiterer Langmuir-Taylor-Detektor, im folgenden mit II bezeichnet. Dieser ist in Abb. 2 isometrisch dargestellt. Durch Schwenkung innerhalb der Streuebene um das Streuzentrum können sowohl die Bereiche um Cäsium- und Clusterstrahl als auch der Bereich zwischen beiden Strahlen erfaßt werden. Der Streuwinkel ß wird bezogen auf die Richtung des Cäsiumstrahls. Zusätzlich ist der Detektor senkrecht zur Streuebene verschiebbar. Durch eine schlitzförmige Eintrittsblende (18) sowie eine kreisförmige Blende in der Saugkathode (19) treffen die Cäsiumatome auf die glühende Wolframfolie (20), an der sie ionisiert werden. Die Saugspannung beträgt -120 V. Die Wolframfolie wird mit einer Spannung von 6 V und einem Strom von 8 A geheizt. Das Winkelauflösungsvermögen der Anordnung beträgt ca. 1°. Der gesamte Langmuir-Taylor-Detektor II ist zur Kühlung und zur Abschirmung gegen vagabundierende Cäsiumatome von einem Kupfergehäuse (21) umgeben, das durch kaltes Stickstoffgas auf ca. 200 K abgekühlt wird.

Clustergröße und -geschwindigkeit werden in einem gesonderten Experiment mit einem in Abb. 3 gezeigten Laufzeitmassenspektrometer gemessen. Eine ausführliche Beschreibung von Aufbau und Wirkungsweise findet sich in /10/. Die durch zwei Eintrittsblenden in den Detektor eindringenden Cluster werden durch einen gepulsten Elektronenstrahl ionisiert, durchlaufen eine feldfreie Driftstrecke und werden an deren Ende durch ein Gitternetz teilweise zerstört.



<u>Abb. 2:</u> Isometrische Darstellung des schwenkbaren Langmuir-Taylor-Detektors II.



Die Fragmentionen werden anschließend mit einer Spannung U<sub>H</sub> von 4.5 kV beschleunigt und lösen an der ersten Dynode eines 14stufigen Multipliers Sekundärelektronen aus. Aus der Laufzeit von der Ionisierung bis zum Sekundärelektronennachweis ergibt sich die Clustergeschwindigkeit. Durch eine zusätzliche Beschleunigung der Clusterionen vor Eintritt in die Driftstrecke durch die Spannung U<sub>B</sub> läßt sich außerdem deren Masse und daraus die Clustergröße ermitteln.

Die Messung der Clusterstrahlintensität erfolgt in üblicher Weise mit einem Staurohr (22). Aufgrund der durch die Eintrittsblende in das Staurohr gelangenden und dort verdampfenden Cluster stellt sich ein erhöhter Druck ein. Dieser wird mit einer IONIVAC-Ionisationsmanometerröhre gemessen. Der Detektor ist, je nach Experiment, entweder mit dem schwenkbaren Langmuir-Taylor-Detektor II oder mit dem Laufzeitmassenspektrometer zu einer gemeinsamen Einheit zusammengefaßt und kann bei Bedarf in den Clusterstrahl gefahren werden.

# Tabelle 1: Geometrie der Strahlsysteme

Clusterstrahlsystem	Lage auf der Clusterstrahlachse in mm	Abmessungen in mm
Düse (engster Querschnitt)	-328	⊘ 0.11
Kegellänge		15
Öffnungswinkel		10°
Abschäler	-309	Ø 0.23
1. Kollimator	-298	Ø 0.16
2. Kollimator	-273	⊘ 0.61
Unterbrecherscheibe I	-162	
Stegbreite		1
Blende in Abschirmung	-157	∅ 3.4
Streuzentrum	0	
Strahlsumpföffnung	340	⊘ 20

Cäsiumstrahlsystem	Lage auf der Cäsiumstrahlachse in mm	Abmessungen (Höhe x Breite) in mm
Ofenschlitz	-148	10 x 0.2
Kühlmantelschlitz	-138	15 x 3
Kollimatorschlitz	-93	10 x 0.3
Unterbrecherscheibe II	-39	
Stegbreite		1
Streuzentrum	0	
Langmuir-Taylor-Detektor I		
Kathodenblende	206	10 x 3
Wolframband	211	30 x 1

Tabelle 2:	Geometrie der	Detektorsysteme
and the second se		

Langmuir-Taylor-Detektor II und Intensitätsmeßröhre	Lage auf der Detektorachse in mm	Abmessungen (Länge x Breite) in mm
Streuzentrum	0	
Langmuir-Taylor-Detektor II		
Eintrittsblende	128	16 x 3
Kathodenblende	139	Ø 3
Wolframfolie	144	16 x 4
Intensitätsmeßröhre		
Eintrittsöffnung (um 22° in Schwenkrichtung gegen Langmuir-Taylor- Detektor II versetzt)	130	⊘ 1

Laufzeitmassenspektrometer und Intensitätsmeßröhre	Lage auf der Detektorachse in mm	Abmessungen in mm
Streuzentrum	0	
Laufzeitmassenspektrometer		
Eintrittsblende	49	Ø 0.5
lonisierungszone	84	
Beschleunigungsstrecke	von 102 bis 104	⊘ 3
Feldfreie Driftstrecke	bis 240	⊘ 20
Eintritt in Multiplier	250	
Intensitätsmeßröhre		
Eintrittsöffnung (um 30 mm horizontal gegen Laufzeitmassenspektrometer versetzt)	64	⊘ 1

#### 3. <u>Meßverfahren</u>

Aus Abb. 4 ist das Blockschaltbild der Anordnung sowohl zur Messung der totalen als auch der differentiellen Streuung ersichtlich. Die auf die beiden glühenden Wolframfolien auftreffenden Cäsiumatome werden dort ionisiert und anschliessend zur zugehörigen Saugkathode hin beschleunigt. Der dort zur Neutralisierung der Cäsiumionen erforderliche Elektronenstrom, der dem Cäsiumionenstrom und damit dem Cäsiumstrom entspricht, wird gemessen. Der Einfluß der Streuung der Cäsiumatome durch Heliumcluster läßt sich aus dem Vergleich der gemessenen Cäsiumströme mit nicht unterbrochenem bzw. mit unterbrochenem Heliumclusterstrahl ermitteln.

Der Clusterstrahl wird durch die rotierende Unterbrecherscheibe mit einer Frequenz von ca. 100 Hz jeweils für die Dauer von ca. 100  $\mu$ s unterbrochen. Gleichzeitig wird bei jeder Strahlunterbrechung durch eine Photozelle das Triggersignal der Meßanordnung erzeugt. Die so erzeugten, trapezförmigen Clusterstrahllücken wandern mit der Geschwindigkeit der Heliumcluster durch den Cäsiumstrahl und erzeugen dadurch im Streuzentrum aufgrund der engen Geschwindigkeitsverteilung der Heliumcluster positive, trapezförmige Cäsiumstrompulse mit derselben Pulsdauer von ca. 100  $\mu$ s (Abb. 5a zeigt ein typisches, mit dem Laufzeitmassenspektrometer gemessenes Clusterlaufzeitsignal). Diese Pulse sind dem stationären, durch den Clusterstrahl geschwächten Cäsiumsstrom überlagert.

In Richtung des Cäsiumstrahls breiten sich diese Cäsiumstrompulse gemäß der breiten Geschwindigkeitsverteilung \*) der Cäsiumatome aus (Abb. 5b zeigt eine typische, unter Verwendung der Cäsiumstrahlunterbrecherscheibe gemessene Cäsiumlaufzeitverteilung) und erzeugen im Langmuir-Taylor-Detektor I entsprechend breit verteilte **positive** Änderungssignale des Cäsiumstroms. Diese

\*) Hierbei handelt es sich um die für Ofenstrahlen geltende modifizierte Maxwell-Verteilung:

 $f(v_{_{CS}}) \cdot dv_{_{CS}} ~~ v_{_{CS}}^{_3} \cdot exp(-v_{_{CS}}^{_2}/v_{_{W,CS}}^{_2}) \cdot dv_{_{CS}} ~.$ 

Im Ofen selbst gilt für die Cäsiumatome die Maxwell-Verteilung:

 $f(v_{c_s}) \cdot dv_{c_s} \sim v_{c_s}^2 \cdot exp(-v_{c_s}^2/v_{w_c_s}^2) \cdot dv_{c_s}$ .

 $v_{_{Cs}}$  ist die Geschwindigkeit im Intervall d $v_{_{Cs}}$  ,  $v_{_{w,Cs}}$  die wahrscheinlichste Geschwindigkeit (vgl. z. B. /11/).



<u>Abb. 4:</u> Blockschaltbild der Anordnung zur Messung der totalen und differentiellen Streuung von Cäsiumatomen an Heliumclusterstrahlen ( $U_s$ : Saugspannung;  $U_{wl}$ ,  $U_{wll}$ : Heizspannungen).

-13 - Signale werden üblicherweise um den Faktor 10<sup>4</sup> verstärkt, durchlaufen anschließend einen 100-Kanal-Analogsignalmittler (PAR Waveform Eductor) und werden sowohl über einen Oszillographen als auch einen X-Y-Schreiber ausgegeben. Abb. 5c zeigt ein typisches gemessenes, positives Änderungssignal. Die Integration dieser Signale liefert unter Berücksichtigung der Pulsdauer die entsprechenden trapezförmigen Signale im Streuzentrum. Parallel zur Messung der Änderungssignale wird der stationäre Cäsiumstrom gemessen und über einen Y-T-Schreiber ausgegeben.

Aus dem Cäsiumstrahl werden durch den Clusterstrahl Cäsiumatome herausgestreut. Infolge der durch den Cäsiumstrahl wandernden Clusterstrahllücken ergeben sich somit in Richtung der Streuung der Cäsiumatome die entsprechenden negativen Änderungssignale des Cäsiumstroms. Diese werden mit dem zweiten, in der Streuebene schwenkbaren Langmuir-Taylor-Detektor II in gleicher Weise wie bereits beschrieben gemessen. Abb. 5d zeigt ein typisches, in Richtung des Clusterstrahls gemessenes, negatives Änderungssignal.

Die Intensität des Cäsiumstrahles ist während eines Experiments in der Regel zeitlich nicht konstant. Bei der Auswertung werden deshalb die gemessenen Änderungssignale des Cäsiumstroms auf den jeweiligen stationären Cäsiumstrom bezogen. Das Verhältnis der durch den Clusterstrahl im Streuzentrum verursachten **Stromschwächung**  $\Delta i_{Cs}$  des Cäsiumstrahls zum **ungeschwächten** Cäsiumstrom i<sub>Cs</sub> wird üblicherweise als Cäsiumextinktion bezeichnet. Mit dem vorhandenen Versuchsaufbau werden jedoch durch Clusterstrahll**ücken** im Streuzentrum verursachte **Stromerhöhungen**  $\Delta i_{Cs}$  des Cäsiumstrahls sowie ein stationärer, durch den Clusterstrahl **geschwächter** Cäsiumstrom i<sub>Cs</sub>- $\Delta i_{Cs}$  gemessen. Da  $\Delta i_{Cs} << i_{Cs}$ , ergibt sich die gemessene Cäsiumextinktion aus dem Verhältnis der beiden Meßgrößen  $\Delta i_{Cs}/(i_{Cs} - \Delta i_{Cs})$ .



- Typische Laufzeitsignale und Dauer der den Zeitnullpunkt <u>Abb. 5:</u> definierenden Pulse. a) 4He-Cluster-Laufzeitverteilung: Pulsdauer 2 μs

  - b) Cs-Atom-Laufzeitverteilung: Pulsdauer 80  $\mu$ s c) Cs-Änderungssignal,  $\beta = 0^{\circ}$ : Pulsdauer 100  $\mu$ s d) Cs-Änderungssignal,  $\beta = \alpha$ : Pulsdauer hier 500  $\mu$ s, sonst 100  $\mu$ s.

#### 4. <u>Strahleigenschaften</u>

#### 4.1 Heliumclusterstrahlen

Die Messung der Clusterstrahlintensität erfolgt mittels Staudruckmessung unter Verwendung einer IONIVAC-Ionisationsmanometerröhre. Abb. 6 zeigt als typisches Beispiel das bei einem Düsenvordruck von 330 mbar und einer Düsentemperatur von 4.2 K gemessene Intensitätsprofil eines <sup>4</sup>He-Clusterstrahls. Die Breite des Anstiegs der beiden Strahlflanken entspricht genau der Breite der Detektoröffnung. Daraus ergibt sich das für Clusterstrahlen charakteristische Strahlprofil mit nahezu vertikalen Strahlflanken.

Aus Abb. 7 ist für 4He-Cluster der Verlauf der Strahlintensität in Abhängigkeit vom Düsenvordruck bei verschiedenen Düsentemperaturen ersichtlich. Die einzelnen Kurven brechen infolge der vollständigen Kondensation des Strahlgases vor und in der Düse jeweils dann ab, wenn der Düsenvordruck den zur entsprechenden Düsentemperatur gehörigen Sattdampfdruck erreicht. Neben der für Heliumclusterstrahlen typischen, durch mehrere scharfe Maxima ausgeprägten Abhängigkeit der Strahlintensität vom Düsenvordruck und den bei höheren Vordrucken auftretenden Schwankungen ist zum einen festzustellen, daß sich mit abnehmender Düsentemperatur die einzelnen Intensitätsmaxima zu kleineren Düsenvordrucken hin verschieben. Dies weist auf die bei tieferen Temperaturen früher einsetzende Clusterbildung in der Düse hin. Zum zweiten erkennt man eine Abnahme der Strahlintensität in den einzelnen Maxima bei abnehmender Düsentemperatur. Dies dürfte im wesentlichen auf die entsprechende Abnahme von Clustergröße und -geschwindigkeit zurückzuführen sein.

Der mit der IONIVAC-Ionisationsmanometerröhre gemessene Staudruck ist wegen der verschiedenen Ionisierungsquerschnitte prinzipiell von der Gasart abhängig. Durch den Einsatz der Röhre innerhalb des Hochvakuums ist außerdem eine Abweichung von den üblicherweise bei diesem Röhrentyp vorliegenden Betriebsbedingungen zu erwarten. Für die Absolutwertbestimmung der Clusterstrahlintensität wurde deshalb eine Eichung der Meßanordnung mittels eines Helium-Ofenstrahls durchgeführt. Diese Eichung wird im Abhang A1 näher beschrieben.



<u>Abb. 6:</u> Intensitätsprofil eines <sup>4</sup>He-Clusterstrahls bei einer Düsentemperatur von 4.2 K und einem Düsenvordruck von 330 mbar. Der horizontale Balken gibt die Detektorweite an.



<u>Abb. 7:</u> Clusterstrahlintensität in Abhängigkeit vom Düsenvordruck für <sup>4</sup>He-Cluster bei verschiedenen Düsentemperaturen T<sub>o</sub>. Die Zahlen geben die Clustergrößen N in 10<sup>5</sup> Heliumatomen pro Cluster an.

Einige der mit dem Laufzeitmassenspektrometer gemessenen Clustergrößen sind ebenfalls aus Abb. 7 ersichtlich. Die Messungen der totalen Streuung von Cäsiumatomen an 4He-Clustern werden bei einer Düsentemperatur von 4.2 K und einem Düsenvordruck von 330 mbar im zugehörigen Intensitätsmaximum des Clusterstrahls durchgeführt. Bei diesen Bedingungen ergibt sich eine mittlere Größe der 4He-Cluster von 2.65 x 10<sup>6</sup> Atomen pro Cluster und eine mittlere Geschwindigkeit von 190 m/s.

Die Messungen der totalen Streuung von Cäsiumatomen an <sup>3</sup>He-Clustern werden bei einer Düsentemperatur von 3.2 K und einem Düsenvordruck von 320 mbar durchgeführt. Größe und Geschwindigkeit der <sup>3</sup>He-Cluster sind abhängig von den Kondensationsbedingungen, die sich mit der Isotopenzusammensetzung des Strahlgases ändern. Wegen des bereits erwähnten, langsam ansteigenden <sup>4</sup>He-Anteils im <sup>3</sup>He können Clustergröße und -geschwindigkeit deshalb nur abgeschätzt werden. Aus früheren Messungen ist bekannt, daß <sup>3</sup>He-Cluster im Mittel ungefähr eine Größenordnung mehr Atome enthalten als <sup>4</sup>He-Cluster /3/. Im folgenden werden deshalb für die Größe der <sup>3</sup>He-Cluster als untere Grenze 1 x 107 Atome pro Cluster und als obere Grenze 4 x107 Atome pro Cluster angenommen. Die mittlere Geschwindigkeit der <sup>3</sup>He-Cluster wird auf 193 m/s geschätzt. Für diesen Wert ergibt sich die beste Übereinstimmung zwischen gemessenen und berechneten Änderungssignalen des Cäsiumstroms (vgl. Kapitel 5.1.2).

#### 4.2 Cäsiumatomstrahl

Aus den in Tab. 1 zusammengestellten Daten des Cäsiumstrahlsystems ergibt sich eine Strahldivergenz in der Streuebene von 20.5° und senkrecht zur Streuebene von 0.5°. Eine vereinfachende Darstellung der geometrischen Verhältnisse zeigt Abb. 8. Die Strahldivergenz quer zur Streuebene ist hierbei vernachlässigt. Das in der Streuebene in  $\phi$ -Richtung gemessene Intensitätsprofil des Cäsiumstrahls wird mit Hilfe des um das Streuzentrum schwenkbaren Langmuir-Taylor-Detektors II, das Intensitätsprofil senkrecht dazu in x-Richtung mit Hilfe des verschiebbaren Langmuir-Taylor-Detektors I ermittelt. Abb. 9 zeigt die gemessenen Intensitätsprofile. Die Intensität des stationären Cäsiumstrahls liegt im Streuzentrum typischerweise bei 4 x 10<sup>14</sup> Cäsiumatomen/(cm<sup>2</sup>·s). Die Umrechnung der gemessenen Cäsiumlaufzeitverteilung (vgl. Abb. 5b) in die entsprechende Cäsiumgeschwindigkeitsverteilung wird im Anhang A2 näher beschrieben. Typischerweise ergeben sich mittlere Cäsiumgeschwindigkeiten zwischen 300 m/s und 350 m/s.





Abb. 9: Normierte Intensitätsprofile des stationären Cäsiumstrahls (links: in der Streuebene; rechts: senkrecht zur Streuebene). Die horizontalen Balken geben die jeweiligen Detektorweiten, 3 mm links bzw. 1 mm rechts, an.

#### 5. Experimentelle Ergebnisse und Auswertung

Die Messung der totalen Streuung von Cäsiumatomen an <sup>3</sup>He- und <sup>4</sup>He-Clusterstrahlen umfaßt die Bestimmung desjenigen Anteils von Cäsiumatomen, der durch die Wechselwirkung mit dem Clusterstrahl aus dem Cäsiumstrahl herausgestreut wird. Daraus läßt sich der die Wechselwirkung beschreibende totale Streuquerschnitt ermitteln. Läge dieser unterhalb des geometrischen Querschnitts der Heliumcluster, so wäre dies ein Hinweis auf die Transparenz der Cluster für Cäsiumatome. Die Messung der differentiellen Streuung von Cäsiumatomen an Heliumclustern umfaßt die Bestimmung der Winkelablenkung sowie des Energieund Impulsverlustes der an den Clustern gestreuten Cäsiumatome. Mit der Kenntnis dieser, den Streuprozeß beschreibenden Größen läßt sich ebenfalls die Frage nach einer möglichen Transparenz der Cluster beantworten.

#### 5.1 Totale Streuung von Cäsiumatomen an He-3- und He-4-Clusterstrahlen

#### 5.1.1 Experimentelle Ergebnisse

Abb. 10 zeigt sowohl für den <sup>3</sup>He- als auch für den <sup>4</sup>He-Clusterstrahl das Ergebnis einer Verschiebung des gesamten Cäsiumstrahlsystems senkrecht zur Streuebene quer durch den Clusterstrahl. Man stellt fest, daß auch außerhalb des Clusterstrahls eine Extinktion des Cäsiumstrahls gemessen wird. Dies ist auf einen zusätzlichen, aus der zweiten Druckstufe stammenden Gasstrahl mit wesentlich größerer Strahldivergenz als der des Clusterstrahls zurückzuführen. Die Intensität dieses Gasstrahls ist nicht mit der IONIVAC-Ionisationsmanometerröhre meßbar und deshalb gegenüber der Intensität des Clusterstrahls zu vernachlässigen. Bei Streumessungen kann dieser Gasstrahl aufgrund des vergleichsweise großen Einflusses von unkondensiertem Restgas auf die Streuung von Atomen jedoch vom Einfluß der Cluster separiert werden /7/. Der Beitrag dieses Gasstrahls zur Gesamtextinktion beträgt auf der Clusterstrahlachse bei <sup>3</sup>He ca. 40 % und bei <sup>4</sup>He ca. 25 %. Im folgenden ist dieser Gasanteil von den gemessenen Cäsiumextinktionen bzw. -änderungssignalen bereits abgezogen.

In Abb. 11 sind als Histogramme die auf den stationären Cäsiumstrom normierten **gemessenen** Änderungssignale des Cäsiumstroms bei der Streuung an <sup>3</sup>He- bzw. <sup>4</sup>He-Clusterstrahlen in Abhängigkeit von der Laufzeit für verschiedene Strahlkreuzungswinkel zwischen 15° und 90° dargestellt. Von  $\alpha = 90°$  ausgehend, ist zunächst zu mittleren Strahlkreuzungswinkeln hin eine leichte Abnahme der



<u>Abb. 10:</u> Extinktionsprofile für <sup>3</sup>He- und <sup>4</sup>He-Clusterstrahlen bei Verschiebung des Cäsiumstrahlsystems. Die gestrichelten Kurven ergeben sich durch Interpolation und beschreiben jeweils den Einfluß des dem Clusterstrahl überlagerten Gasstrahls. Die horizontalen Balken geben die jeweiligen Clusterstrahldurchmesser im Streuzentrum an.

- 23



Abb. 11: Auf den stationären Cäsiumstrom normierte Änderungssignale des Cäsiumstroms für <sup>3</sup>He und <sup>4</sup>He bei verschiedenen Strahlkreuzungswinkeln α in Abhängigkeit von der Laufzeit: gemessen (Histogramme) und berechnet (Kurven). Zusätzlich sind Relativgeschwindigkeiten zwischen Cäsiumatomen und Heliumclustern in m/s angegeben.

Amplituden der Änderungssignale festzustellen. Ab  $\alpha = 61^{\circ}$  steigen die Amplituden zu kleineren Strahlkreuzungswinkeln hin kontinuierlich an. Außerdem sind die zugehörigen **berechneten** Kurven der Änderungssignale sowie einige den jeweiligen Cäsiumlaufzeiten entsprechende Relativgeschwindigkeiten zwischen Cäsiumatomen und Heliumclustern eingetragen. Auf die Berechnung dieser Signale und auf den Vergleich zwischen gemessenen und berechneten Signalen wird in Kap. 5.1.2 näher eingegangen.

Die in Abb. 11 gezeigten, am Langmuir-Taylor-Detektor I gemessenen Änderungssignale lassen sich durch Integration und unter Berücksichtigung der Dauer der Cäsiumstrompulse von ca. 100  $\mu$ s auf die zugehörigen Cäsiumextinktionen im Streuzentrum zurückführen. Die somit an <sup>3</sup>He- und <sup>4</sup>He-Clusterstrahlen gemessenen Cäsiumextinktionen sind für die verschiedenen Strahlkreuzungswinkel zwischen 15° und 90° als Meßpunkte aus Abb. 12 ersichtlich. Dabei ergibt sich entsprechend den Amplituden der Änderungssignale (vgl. Abb. 11) ein Minimum der Cäsiumextinktion jeweils bei  $\alpha = 61^{\circ}$ . Zusätzlich sind auch hier die zugehörigen berechneten Kurven, auf deren Ermittlung in Kap. 5.1.2 näher eingegangen wird, dargestellt.

#### 5.1.2 Auswertung

Für die Berechnung der Cäsiumextinktion durch Heliumcluster gilt folgende Beziehung:

$$\Delta i_{Cs}/i_{Cs} = -\sigma_N \cdot n_{Cl} \cdot (b_{Cl}/\sin \alpha) \cdot (v_{rel}/v_{Cs})$$
(1)

Dabei ist  $\sigma_N$  der totale Streuquerschnitt eines Heliumclusters mit N Atomen, n<sub>Cl</sub> die Anzahl der Heliumcluster pro Volumeneinheit im Streuzentrum, b<sub>Cl</sub> der Durchmesser des Clusterstrahls im Streuzentrum sowie v<sub>rel</sub> die Relativgeschwindigkeit zwischen Cäsiumatomen und Heliumclustern. Die übrigen Größen wurden bereits definiert. (v<sub>rel</sub>/v<sub>Cs</sub>) beschreibt die Transformation der Streulänge (b<sub>Cl</sub>/sin  $\alpha$ ) vom Laborsystem in das sich mit der Geschwindigkeit der Heliumcluster fortbewegende Schwerpunktsystem. Glg. (1) gilt in dieser Form nur für eine einheitliche Cäsiumgeschwindigkeit und deshalb jeweils nur für einzelne Geschwindigkeits-intervalle der Maxwell-Verteilung der Cäsiumatome.



Abb. 12: Cäsiumextinktionen für <sup>3</sup>He und <sup>4</sup>He in Abhängigkeit vom Strahlkreuzungswinkel bzw. von der mittleren Relativgeschwindigkeit: gemessen (o) und berechnet (vgl. Kap. 5.1.2) für Cluster mit N Atomen (durchgezogene Kurven) und für Cluster mit zusätzlichem Restgas (gestrichelte Kurven). Die schraffierte Fläche beschreibt die möglichen Extinktionswerte bei <sup>3</sup>He-Clustern unter Annahme einer unteren Grenze für die Clustergröße von 1 x 10<sup>7</sup> Atomen pro Cluster und einer oberen Grenze von 4 x 10<sup>7</sup> Atomen pro Cluster. Bei der Berechnung der Cäsiumextinktion wird zunächst angenommen, daß sich <sup>3</sup>He- und <sup>4</sup>He-Cluster als kleinste Mengen von Quantenflüssigkeiten bei der Wechselwirkung mit Streuatomen qualitativ so verhalten wie Cluster, die keine Quantenflüssigkeitseigenschaften besitzen. Für einen Cluster mit N Atomen läßt sich dann der totale Streuquerschnitt  $\sigma_N$  näherungsweise angeben /7/:

$$\sigma_{\rm N} = \pi R^2 \left( N \right) + N^{1/3} \cdot \sigma_1 \tag{2}$$

Hierin beschreibt  $\sigma_1$  näherungsweise den totalen Streuquerschnitt eines freien, unkondensierten Atoms. In  $\sigma_1$  geht das Auflösungsvermögen der Meßanordnung sowie die Relativgeschwindigkeit zwischen Cäsiumatomen und Heliumatomen ein /12/. R(N) beschreibt den Clusterradius und läßt sich folgendermaßen ermitteln:

$$R(N) = ((3/4 \pi) \cdot M/(\rho \cdot L))^{1/3} \cdot N^{1/3}$$
(3)

M ist die Molmasse von <sup>3</sup>He bzw. <sup>4</sup>He,  $\rho$  die Dichte von flüssigem <sup>3</sup>He bzw. <sup>4</sup>He bei der entsprechenden Clustertemperatur sowie L die Avogadro-Konstante.

Der erste Summand in Glg. (2) entspricht dem geometrischen Querschnitt eines Clusters mit N Atomen. Der zweite Summand entspricht einem van-der-Waals-Saum, der den Einfluß der attraktiven Wechselwirkung zwischen den Heliumatomen eines Clusters und einem Cäsiumatom beschreibt. Der Anteil des van-der-Waals-Saumes am totalen Streuquerschnitt beträgt bei Clustern mit 2.65 x 10<sup>6</sup> <sup>4</sup>He-Atomen und einem Durchmesser von ca. 600 Å bzw. 1 x 10<sup>7</sup> <sup>3</sup>He-Atomen und einem Durchmesser von ca. 1050 Å selbst bei den kleinsten vorkommenden Relativgeschwindigkeiten maximal 10 %.

Die Anzahl der Heliumcluster pro Volumeneinheit im Streuzentrum läßt sich ebenso wie der Durchmesser des Clusterstrahls im Streuzentrum aus dem gemessenen Intensitätsprofil des Clusterstrahles unter Berücksichtigung der Clusterstrahlgeometrie ermitteln. Der Strahldurchmesser beträgt sowohl bei <sup>3</sup>He- als auch bei <sup>4</sup>He-Clusterstrahlen ca. 3.5 mm. Die Anzahl der Heliumcluster pro Volumeneinheit ergibt sich unter Berücksichtigung von Clustergröße und -geschwindigkeit für <sup>3</sup>He typischerweise zu 1.3 x 10<sup>6</sup> Clustern pro cm<sup>3</sup> (N = 1 x 10<sup>7</sup> Atome /Cluster) bzw. zu 3.2 x 10<sup>5</sup> Clustern pro cm<sup>3</sup> (N = 4 x 10<sup>7</sup> Atome/Cluster) und für <sup>4</sup>He typischerweise zu 6.9 x 10<sup>6</sup> Clustern pro cm<sup>3</sup> (N = 2.65 x 10<sup>6</sup> Atome/Cluster). Aufbauend auf ein bereits früher verwendetes Verfahren, können die durch Clusterstrahllücken erzeugten positiven Änderungssignale des Cäsiumstroms in Abhängigkeit von der Laufzeit berechnet werden /13/. Das benutzte Berechnungsverfahren wird im Anhang A3 näher beschrieben. Unter der Annahme eines totalen Streuquerschnitts  $\sigma_N$  nach Glg. (2) ergeben sich aus Glg. (A3.1) des Anhangs für die entsprechenden Clustergrößen die in Abb. 13 dargestellten **berechneten** Änderungsignale für <sup>3</sup>He und <sup>4</sup>He bei einem Strahlkreuzungswinkel von 90°. Zusätzlich sind die zugehörigen, vom Langmuir-Taylor-Detektor I **gemessenen** Änderungssignale eingezeichnet. Der Anteil des berechneten, von Clustern hervorgerufenen Änderungssignals am gemessenen Änderungssignal beträgt bei <sup>3</sup>He-Clustern mit 1 x 10<sup>7</sup> Atomen pro Cluster 21 %, bei <sup>3</sup>He-Clustern mit 4 x 10<sup>7</sup> Atomen pro Cluster 13 % und bei <sup>4</sup>He-Clustern mit 2.65 x 10<sup>6</sup> Atomen pro Cluster 38 %.

Diese Diskrepanz kann sowohl bei <sup>3</sup>He- als auch bei <sup>4</sup>He-Clusterstrahlen auf einen zusätzlichen Anteil von unkondensiertem Restgas zurückgeführt werden. Es erscheint jedoch bei Heliumclustern nicht möglich, diesen Restgasanteil, im Gegensatz zu dem aus Abb. 10 ersichtlichen Gasanteil, experimentell vom Clusteranteil zu separieren, da er diesselbe Strahldivergenz wie der Clusteranteil besitzt<sup>\*)</sup>.

<sup>\*)</sup> Messungen des entsprechenden Restgasanteils in Stickstoffclusterstrahlen konnten durch Verwendung einer Streukammer, d. h. durch das Herausfiltern des Restgases aus dem Clusterstrahl mittels Streugas, durchgeführt werden /7/. Dabei ergab sich für die maximal erreichbare Clustergröße von 6500 Stickstoffatomen pro Cluster ein Restgasanteil von ca. 1.5 ‰. Die Anwendung dieses Verfahrens erscheint jedoch bei Heliumclusterstrahlen nicht sinnvoll, da die Heliumcluster aufgrund der wesentlich geringeren Verdampfungswärme vermutlich durch das Streugas zerstört würden.



Abb. 13: Gemessene Änderungssignale des Cäsiumstroms für <sup>3</sup>He und <sup>4</sup>He bei einem Strahlkreuzungswinkel α von 90° in Abhängigkeit von der Laufzeit (Histogramme) sowie die entsprechenden, nach Glg. (A3.1) des Anhangs berechneten Änderungssignale für Cluster mit N Atomen (Kurven) und für Cluster mit einem zusätzlichen, angepaßten Restgasanteil (Kurven). Die schraffierte Fläche beschreibt den möglichen Verlauf der Änderungssignale bei <sup>3</sup>He-Clustern unter Annahme einer unteren Grenze für die Clustergröße von 1 x 10<sup>7</sup> Atomen pro Cluster und einer oberen Grenze von 4 x 10<sup>7</sup> Atomen pro Cluster. Aus der Differenz der Höhen der **gemessenen** und unter der Annahme eines totalen Streuquerschnitts  $\sigma_N$  berechneten Änderungssignale des Cäsiumstroms läßt sich der jeweilige Restgasanteil quantitativ bestimmen. Dazu wird zunächst der totale Streuquerschnitt  $\sigma_{1e}$  eines freien, unkondensierten Heliumatoms exakt berechnet /14/. Dieser Streuquerschnitt berücksichtigt im Gegensatz zu  $\sigma_1$  in Glg. (2) das vom Strahlkreuzungswinkel abhängige Auflösungsvermögen der Meßanordnung für die Streuung von Cäsiumatomen an Heliumatomen. Der totale Streuquerschnitt  $\sigma_{N,m}$  für einen Cluster mit einer zusätzlichen Anzahl von m unkondensierten Atomen pro Cluster ergibt sich zu

$$\sigma_{N,m} = \sigma_N + m \cdot \sigma_{1e} \tag{4}$$

Unter der Verwendung dieses totalen Streuquerschnitts  $\sigma_{N,m}$  werden die nach Glg. (A3.1) des Anhangs für die entsprechenden Clustergrößen **berechneten** Höhen der Änderungssignale für <sup>3</sup>He und <sup>4</sup>He bei einem Strahlkreuzungswinkel von 90° an die zugehörigen Höhen der **gemessenen** Änderungssignale angepaßt. Die Anzahl m von unkondensierten Atomen pro Cluster ist hierbei der freie Parameter.

Für <sup>3</sup>He-Clusterstrahlen ergeben sich dabei ca. 27 800 unkondensierte <sup>3</sup>He-Atome pro Cluster mit 1 x 10<sup>7</sup> Atomen bzw. ca. 120 300 unkondensierte <sup>3</sup>He-Atome pro Cluster mit 4 x 10<sup>7</sup> Atomen. Dies entspricht einem Restgasanteil von 2.8 ‰ bzw. 3.0 ‰. Für <sup>4</sup>He-Clusterstrahlen ergeben sich ca. 4 050 unkondensierte <sup>4</sup>He-Atome pro Cluster mit 2.65 x 10<sup>6</sup> Atomen. Dies entspricht einem Restgasanteil von 1.5 ‰.

Die mit diesem Verfahren an die gemessenen Änderungssignale angepaßten berechneten Änderungssignale sind ebenfalls aus Abb. 13 ersichtlich. Es ergibt sich sowohl für <sup>3</sup>He als auch für <sup>4</sup>He eine gute Übereinstimmung im gesamten Laufzeitbereich der Signale. Der trotz des vergleichsweise geringen Restgasanteils von einigen Promille dabei festzustellende sehr große Einfluß des Restgases auf das Änderungssignal des Cäsiumstroms erklärt sich aus dem mit zunehmender Clustergröße abnehmenden totalen Streuquerschnitt pro kondensiertem Atom, d. h. durch die gegenseitige Abschattung der Atome im Cluster /7/.

Aus Abb. 11 sind für Strahlkreuzungswinkel zwischen 15° und 90° neben den gemessenen, auf den stationären Cäsiumstrom normierten Änderungssignalen des Cäsiumstroms in Abhängigkeit von der Laufzeit die zugehörigen berechneten

Änderungsignale ersichtlich. Diese berücksichtigen neben dem Clusteranteil auch den für  $\alpha = 90^{\circ}$  ermittelten Restgasanteil. Im Rahmen der Meßgenauigkeit ist für alle Strahlkreuzungswinkel eine gute Übereinstimmung zwischen gemessenen und berechneten Signalen festzustellen. Die in Abb. 11 eingetragenen Relativgeschwindigkeiten zwischen Cäsiumatomen und Heliumclustern, die sich aus den jeweiligen Cäsiumlaufzeiten ergeben, nehmen generell zu kleineren Strahlkreuzungswinkeln hin ab und erreichen für  $\alpha = 15^{\circ}$  teilweise Werte, die unterhalb der normalerweise in superflüssigem 4He geltenden Mindestgeschwindigkeit zur Erzeugung von Rotonen durch sich bewegende Cäsiumatome von ca. 60 m/s liegen. Auch in diesem Relativgeschwindigkeitsbereich lassen sich die gemessenen Änderungssignale für <sup>4</sup>He unter der Annahme eines totalen Streuquerschnitts nach Glg. (2), der im wesentlichen durch den geometrischen Querschnitt bestimmt ist, sowie unter der Annahme eines Anteils unkondensierter Restgasatome im Clusterstrahl befriedigend erklären. Insbesondere gibt es keinen Hinweis auf einen totalen Streuquerschnitt der Cluster, der kleiner wäre als ihr geometrischer Querschnitt

Abb. 12 zeigt für <sup>3</sup>He und <sup>4</sup>He neben den **gemessenen** Cäsiumextinktionen in Abhängigkeit vom Strahlkreuzungswinkel bzw. von der mittleren Relativgeschwindigkeit die entsprechenden **berechneten** Cäsiumextinktionen sowohl für Cluster mit N Atomen als auch für Cluster mit zusätzlichem Restgas. Die berechneten Extinktionen lassen sich aus den berechneten, auf den stationären Cäsiumstrom normierten Änderungssignalen ebenfalls durch Integration und unter Berücksichtigung der Dauer der Cäsiumstrompulse von 100 µs ermitteln. Die gemessenen Cäsiumextinktionen variieren im wesentlichen nur entsprechend der jeweiligen Streulänge im Schwerpunktsystem. Sie lassen sich unter der Annahme des weitgehend geschwindigkeitsunabhängigen totalen Streuquerschnitts der Cluster nach Glg. (2) sowie unter Berücksichtigung eines Restgasanteils im Clusterstrahl für alle Strahlkreuzungswinkel befriedigend erklären.

Aus den gemessenen Cäsiumextinktionen lassen sich mit Hilfe von Glg. (1) unter Verwendung der mittleren Cäsiumgeschwindigkeit die effektiven totalen Streuquerschnitte ermitteln. Für die Streuung von Cäsiumatomen an <sup>4</sup>He-Clusterstrahlen sind diese in Abhängigkeit von der Clustergröße N für verschiedene Strahlkreuzungswinkel in Abb. 14 dargestellt. Zusätzlich ist der geometrische Querschnitt  $\pi R^2(N)$  der <sup>4</sup>He-Cluster eingezeichnet. Nach Glg. (3) ergibt sich eine Proportionalität des geometrischen Querschnitts zu N<sup>2/3</sup>. Über einen Bereich der Clustergrößen hinweg, der mehr als zwei Größenordnungen umfaßt, ist im



<u>Abb. 14:</u> Experimenteller totaler Streuquerschnitt von <sup>4</sup>He-Clusterstrahlen, bezogen auf einen Cluster, für die Streuung von Cäsiumatomen in Abhängigkeit von der Clustergröße N bei verschiedenen Strahlkreuzungswinkeln  $\alpha$ . Die Gerade mit der Steigung 2/3 beschreibt den geometrischen Querschnitt  $\pi R^2(N)$  eines <sup>4</sup>He-Clusters mit N Atomen.

Rahmen der Meßgenauigkeit eine Proportionalität des effektiven totalen Streuquerschnitts zum geometrischen Querschnitt der Cluster festzustellen.

Die Abweichungen vom geometrischen Querschnitt sind auf den in der Intensität vernachlässigbaren Restgasanteil zurückzuführen (vgl. Glg. (4)), dessen Beitrag zum effektiven totalen Streuquerschnitt jedoch mit dem Beitrag der Cluster selbst quantitativ vergleichbar ist. Es ergibt sich ein geringerer Beitrag des Restgases als der aus den bisherigen Abschätzungen ermittelte (vgl. Abb. 13), da die Messungen der Cäsiumextinktionen bei unterschiedlichen Clustergrößen mit dem Langmuir-Taylor-Detektor II durchgeführt wurden, dessen Auflösungsvermögen für die Streuung von Cäsiumatomen an Heliumatomen geringer ist als das Auflösungsvermögen des Langmuir-Taylor-Detektors I.

Eine quantitative Aussage über den totalen Streuquerschnitt der Heliumcluster für Cäsiumatome erscheint jedoch schwierig, da der Einfluß des unkondensierten Restgases im Clusterstrahl auf die totale Streuung größer ist als der Einfluß der Heliumcluster selbst. Heliumatome verursachen aufgrund des Massen- und Geschwindigkeitsverhältnisses jedoch ausschließlich Kleinwinkelstreuung der Cäsiumatome. Bei der Messung der differentiellen Streuung ist deshalb eine bessere Separation der Einflüsse von Clusteranteil und Restgasanteil zu erwarten.

### 5.2 Differentielle Streuung von Cäsiumatomen an He-4-Clustern

#### 5.2.1 Experimentelle Ergebnisse

Das Ergebnis der Messung der Streuverteilung der Cäsiumatome durch Schwenkung des Langmuir-Taylor-Detektors II in der Streuebene durch die Bereiche von Cäsium- und Clusterstrahl sowie durch den Bereich zwischen beiden Strahlen hindurch ist für einen Strahlkreuzungswinkel von 90° und eine mittlere Clustergröße von 2.65 x 106 Atomen pro Cluster aus Abb. 15 ersichtlich. Dargestellt ist die am Detektor gemessene und auf den stationären Cäsiumstrom normierte Amplitude des Änderungssignals des Cäsiumstroms. Das negative Streusignal um 0° Streuwinkel, d. h. im Bereich des Cäsiumstrahls, entspricht hierbei den durch den Clusterstrahl aus dem Cäsiumstrahl gemäß der totalen Streuung (vgl. Kap. 5.1) herausgestreuten Cäsiumatomen. Im Bereich zwischen Cäsiumstrahl und Clusterstrahl werden im Rahmen der Meßgenauigkeit keine gestreuten Cäsiumatome gefunden. Dagegen werden gestreute Cäsiumatome ausschließlich um 90° Streuwinkel, also in Richtung des Clusterstrahls registriert, wobei die Halbwertsbreite des gemessenen Streusignals der Clusterstrahlbreite entspricht.

Zur Klärung der Frage, ob die in Richtung des Clusterstrahls gestreuten Cäsiumatome von den Clustern selbst mitgeführt werden, dient eine Streumessung bei verschiedenen Geschwindigkeiten der <sup>4</sup>He-Cluster. Die Clustergeschwindigkeit ist abhängig von der eingestellten Düsentemperatur. Abb. 16 zeigt den Verlauf der mit dem Laufzeitmassenspektrometer gemessenen Clustergeschwindigkeiten. Zusätzlich sind die zugehörigen, aus der Laufzeit bis zum Langmuir-Taylor-Detektor II ermittelten Geschwindigkeiten der Cäsiumatome in Richtung des Clusterstrahls eingezeichnet. Zur Orientierung ist die Wurzelabhängigkeit der Clustergeschwindigkeit von der Düsentemperatur, die bei der gasdynamischen Expansion eines idealen Gases zu erwarten ist, ebenfalls eingetragen. Aus der Übereinstimmung der beiden unterschiedlichen Geschwindigkeitsmessungen kann geschlossen werden, daß die gestreuten Cäsiumatome tatsächlich von den <sup>4</sup>He-Clustern mitgeführt werden.

Abb. 17 zeigt das Ergebnis einer Verschiebung des Langmuir-Taylor-Detektors II bei einem Streuwinkel von 90° senkrecht zur Streuebene durch den <sup>4</sup>He-Clusterstrahl. Der Strahlkreuzungswinkel betrug hierbei 90°, die mittlere Clustergröße 2.65 x 106 Atome pro Cluster. Unter Berücksichtigung des Durchmessers der Detektoröffnung ist festzustellen, daß eine Mitführung von Cäsiumatomen nicht



<u>Abb. 15:</u> Auf den stationären Cäsiumstrom normierte Amplitude des gemessenen Cäsiumänderungssignals in Abhängigkeit vom Streuwinkel bei einem Strahlkreuzungswinkel α von 90° und einer mittleren Clustergröße N von 2.65 x 106 Atomen pro Cluster. Die horizontalen Balken geben die Halbwertsbreiten von Cäsium- und Clusterstrahl an.



<u>Abb. 16:</u> Mit dem Laufzeitmassenspektrometer gemessene Clustergeschwindigkeiten sowie mit dem Langmuir-Taylor-Detektor II gemessene Cäsiumgeschwindigkeiten in Richtung des Clusterstrahls in Abhängigkeit von der Düsentemperatur. Die gestrichelte Kurve beschreibt die Wurzelabhängigkeit der Geschwindigkeit von der Düsentemperatur.



<u>Abb. 17:</u> Auf den stationären Cäsiumstrom normierte Mitführung von Cäsiumatomen durch <sup>4</sup>He-Cluster bei einer Verschiebung des Langmuir-Taylor-Detektors II senkrecht zur Streuebene durch den Clusterstrahl (Streuwinkel  $\beta = 90^{\circ}$ ). Die Clustergröße N beträgt 2.65 x 106 Atome pro Cluster und der Strahlkreuzungswinkel  $\alpha$  90°. Zusätzlich sind der Clusterstrahldurchmesser und der Durchmesser der Detektoröffnung angegeben.

über den gesamten Durchmesser des Clusterstrahls hinweg stattfindet. Dies erklärt sich dadurch, daß der Clusterstrahl im Streuzentrum aufgrund der vorliegenden geometrischen Verhältnisse nicht über seinen gesamten Durchmesser hinweg vom Cäsiumstrahl durchsetzt wird. Diese geometrischen Verhältnisse bilden sich unter Berücksichtigung der Divergenz des Clusterstrahls auf das in Abb. 17 gezeigte Profil ab. Dies ist auch ein Hinweis darauf, daß die Eigenschaften des 4He-Clusterstrahls durch das Auftreffen von Cäsiumatomen auf Cluster und die anschließende Mitführung der Cäsiumatome durch Cluster nicht wesentlich beeinflußt werden.

Die Abhängigkeit der Mitführung der Cäsiumatome durch 4He-Cluster im Streuzentrum bei verschiedenen Clustergrößen vom Strahlkreuzungswinkel bzw. von der mittleren Relativgeschwindigkeit ist in Abb. 18 dargestellt. Die zu kleineren Strahlkreuzungswinkeln hin zunehmende Cäsiummitführung läßt sich mit der entsprechend zunehmenden Streulänge für die Cäsiumatome erklären. Im Gegensatz zum vergleichbaren Kurvenverlauf für die Cäsiumextinktion (vgl. Abb. 12) liegt das Minimum der Cäsiummitführung jedoch für alle gemessenen Clustergrößen beim größten Strahlkreuzungswinkel von 90°. Eine Zunahme der Clustergröße bewirkt ebenfalls eine Zunahme der Cäsiummitführung.

#### 5.2.2 Auswertung

Zur Beurteilung des Stoßprozesses zwischen Cäsiumatomen und <sup>4</sup>He-Clustern soll zunächst abgeschätzt werden, wieviele Cäsiumatome auf einen Cluster treffen können und welche Energien dabei umgesetzt werden. Die Anzahl Z von Cäsiumatomen, die im Mittel auf einen Cluster bei dessen Durchfliegen des Cäsiumstrahls treffen, ergibt sich analog zu Glg. (1) aus

$$Z = \pi R^{2}(N) \cdot n_{Cs} \cdot (h_{Cs}/\sin \alpha) \cdot (v_{rel}/v_{Cl})$$
(5)

Hierbei entspricht  $\pi$  R<sup>2</sup> (N) dem geometrischen Querschnitt der Cluster, n<sub>Cs</sub> der mittleren Anzahl von Cäsiumatomen pro Volumeneinheit längs der Streustrecke, h<sub>Cs</sub> der Höhe des Cäsiumstrahls im Streuzentrum und v<sub>cl</sub> der Clustergeschwindigkeit.



mittlere Relativgeschwindigkeit (m/s)

<u>Abb. 18:</u> Auf den stationären Cäsiumstrom normierte Mitführung von Cäsiumatomen durch 4He-Cluster im Streuzentrum in Abhängigkeit vom Strahlkreuzungswinkel bzw. von der mittleren Relativgeschwindigkeit für verschiedene Clustergrößen N.

Bei einer mittleren Geschwindigkeit der Cäsiumatome von 350 m/s ergibt sich n<sub>Cs</sub> typischerweise zu 8 x10<sup>9</sup> Cäsiumatomen pro cm<sup>3</sup>. h<sub>Cs</sub> läßt sich aus dem Strahlprofil in der Streuebene (siehe Abb. 9) ermitteln und beträgt als Halbwertshöhe ca. 2 cm. Bei einer Clustergröße von 2.65 x 10<sup>6</sup> Atomen pro Cluster und einem Strahlkreuzungswinkel von 90° trifft somit im Mittel etwa ein Cäsiumatom auf einen <sup>4</sup>He-Cluster. Maximal können bei der mit der verwendeten Düse maximal erreichbaren Clustergröße von 9.7 x 10<sup>6</sup> Atomen pro Cluster und einem Strahl-kreuzungswinkel von 15° im Mittel etwa 4 Cäsiumatome auf einen <sup>4</sup>He-Cluster treffen.

Eine Abschätzung der beim Auftreffen der Cäsiumatome auf einen Heliumcluster und anschließendem Mittransport mit dem Cluster umgesetzten Energien ergibt, daß die kinetische Relativenergie sowie die Bindungsenergie der Cäsiumatome an den Cluster maximal zur Verdampfung von ca. 400 <sup>4</sup>He-Atomen - bei einer Clustergröße von 9.7 x 10<sup>6</sup> Atomen pro Cluster - ausreicht. Der Massenverlust der Cluster liegt damit deutlich unter einem Promille. Dies bedeutet, daß die Eigenschaften der <sup>4</sup>He-Cluster durch das Auftreffen von Cäsiumatomen und die anschließende Mitführung der Cäsiumatome durch die Cluster nicht wesentlich beeinflußt werden können.

Analog zum experimentellen totalen Streuquerschnitt (vgl. Abb. 14) läßt sich der experimentelle Mitführungswirkungsquerschnitt ermitteln, wenn dieser anstelle des geometrischen Querschnitts in Glg. (5) eingesetzt wird. Die somit unter Verwendung der mittleren Cäsiumgeschwindigkeit aus den am Langmuir-Taylor-Detektor II gemessenen Cäsiummitführungssignalen erhaltenen Mitführungswirkungsquerschnitte sind in Abhängigkeit von der Clustergröße N für verschiedene Strahlkreuzungswinkel in Abb. 19 dargestellt. Zusätzlich ist wiederum der geometrische Querschnitt  $\pi R^2(N)$  der Cluster eingezeichnet.

Dabei ist festzustellen, daß der gemessene effektive Mitführungswirkungsquerschnitt ungefähr eine Größenordnung unterhalb des geometrischen Querschnitts der Cluster liegt. Da jedoch außerhalb des Clusterstrahls im Rahmen der Meßgenauigkeit keine gestreuten Cäsiumatome gefunden werden, ist zu vermuten, daß durch den Langmuir-Taylor-Detektor II nur ca. 10 % der von den 4He-Clustern mitgeführten Cäsiumatome nachgewiesen werden können. Möglicherweise verhindert die vergleichsweise große Anzahl von kondensierten 4He-Atomen pro mitgeführtem Cäsiumatom (ca. 10<sup>6</sup> 4He-Atome/Cs-Atom), daß jedes mitgeführte Cäsiumatom auf die glühende Wolframfolie gelangen und dort ionisiert werden kann. Mitführungswirkungsquerschnitt (cm<sup>2</sup>)



Abb. 19: Experimenteller Mitführungswirkungsquerschnitt von 4He-Clustern für die Streuung von Cäsiumatomen in Abhängigkeit von der Clustergröße N bei verschiedenen Strahlkreuzungswinkeln α. Die durchgezogene Gerade mit der Steigung 2/3 beschreibt den geometrischen Querschnitt πR<sup>2</sup>(N) eines 4He-Clusters mit N Atomen. Die gestrichelte Gerade beschreibt die Proportionalität zum Clusterquerschnitt.

Wie Abb. 19 zeigt, nimmt der gemessene effektive Mitführungswirkungsquerschnitt im Verhältnis zum geometrischen Clusterquerschnitt mit zunehmender Clustergröße ab. Zur Orientierung ist die gestrichelte Gerade mit dem zum Clusterquerschnitt proportionalen Verlauf eingezeichnet. Mit zunehmender Clustergröße steigt das Verhältnis von kondensierten <sup>4</sup>He-Atomen pro mitgeführtem Cäsiumatom gemäß N<sup>1/3</sup> an. Demnach nimmt auch die Nachweiseffektivität des Langmuir-Taylor-Detektors II mit zunehmender Clustergröße ab.

Der Einfluß der mittleren Relativgeschwindigkeit zwischen Cäsiumatomen und 4He-Clustern, die sich jeweils aus dem Strahlkreuzungswinkel ergibt, auf den effektiven Mitführungswirkungsquerschnitt nimmt, wie aus Abb. 19 ersichtlich, zu kleineren Clustergrößen hin zu. Der relativ größte Mitführungswirkungsquerschnitt ist bei den kleinsten Clustern und den kleinsten Relativgeschwindigkeiten festzustellen. Die mittlere Relativgeschwindigkeit sollte, im Gegensatz zur Clustergröße, keinen direkten Einfluß auf die Nachweiseffektivität des Langmuir-Taylor-Detektors II haben. Möglicherweise hat jedoch die Eindringtiefe der Cäsiumatome in die 4He-Cluster, die von der Relativgeschwindigkeit abhängig und bei den größten Relativgeschwindigkeiten am größten ist, einen Einfluß auf die Abnahme der Nachweiseffektivität zu größeren Relativgeschwindigkeiten hin.

#### 6. Diskussion der Ergebnisse

Die Messungen zur totalen Streuung von Cäsiumatomen an Heliumclusterstrahlen beider Isotope zeigen, daß der beobachtete totale Streuquerschnitt von der Relativgeschwindigkeit praktisch unabhängig ist. Die Extinktion des Cäsiumstrahls verhält sich so wie die Stoßwahrscheinlichkeit, die mit dem Strahlkreuzungswinkel aufgrund der Änderung von Strahldurchsetzungslänge und Relativgeschwindigkeit variiert.

Transparenz von Clustern für auftreffende Teilchen würde bedeuten, daß der totale Streuquerschnitt kleiner wäre als der geometrische Querschnitt der Cluster. Die beobachteten Absolutwerte der Cäsiumstrahlextinktion sind jedoch größer als aufgrund der gemessenen Intensität des Clusterstrahls unter der Annahme eines totalen Streuquerschnitts, der sich aus dem geometrischen Querschnitt und einem van-der-Waals-Wechselwirkungssaum zusammensetzt, zu erwarten wäre. Daher läßt sich aus den absoluten Werten der Streuung kein Hinweis auf eine Transparenz der Cluster ablesen.

Vielmehr muß auf eine zusätzliche Streuung durch im Strahl noch vorhandenes unkondensiertes Restgas geschlossen werden. Der totale Streuquerschnitt für die Streuung von Cäsiumatomen an Heliumatomen beider Isotope erweist sich in entsprechenden Rechnungen als praktisch geschwindigkeitsunabhängig, da die im Schwerpunktsystem auftretende Zunahme der Streuung bei abnehmender Relativgeschwindigkeit durch ein im Laborsystem dann geringeres Auflösungsvermögen der vorliegenden Meßanordnung gerade kompensiert wird.

Die Extinktionsrechnungen ergeben daher für beide Anteile, Cluster und Restgas, fast identische Abhängigkeiten von der Relativgeschwindigkeit, so daß sich aus der Anpassung an die Meßergebnisse kein eindeutiges Verhältnis der beiden Anteile ergibt. Transparenz der Cluster aufgrund dieser Ergebnisse kann also auch nicht ausgeschlossen werden. Diese müßte allerdings geschwindigkeitsunabhängig sein.

Die im Hochvakuum erreichte Clusterbinnentemperatur läßt sich zu etwa 0.4 K bei <sup>4</sup>He-Clustern und zu etwa 0.15 K bei <sup>3</sup>He-Clustern abschätzen /4/. Da der Übergang in die superflüssige Phase von <sup>4</sup>He bei Unterschreiten von T<sub> $\lambda$ </sub> = 2.17 K erfolgt, sollten also <sup>4</sup>He-Cluster superflüssig sein. Die Binnentemperatur der <sup>3</sup>He-Cluster liegt dagegen um etwa zwei Größenordnungen über der entsprechenden Übergangstemperatur in die superflüssige Phase von etwa 2 mK, so daß <sup>3</sup>He-Cluster mit Sicherheit nicht superflüssig sind. In superflüssigem <sup>4</sup>He ist reibungsfreie Bewegung von Cäsiumatomen allerdings nur unterhalb der sogenannten Landau'schen kritischen Geschwindigkeit von etwa 60 m/s möglich, da bei höherer Geschwindigkeit Energiedissipation durch Rotonenanregung auftritt. Die laufzeitmäßig aufgelösten Extinktionssignale in Abb. 11 zeigen jedoch auch im Bereich der kleinsten Relativgeschwindigkeiten, bei 15° und 19° Strahlkreuzungswinkel, kein Anzeichen von besonders kleiner Extinktion.

Quantenmechanischen Rechnungen zufolge haben Cäsiumatome in superflüssigem <sup>4</sup>He eine positive, zur Abstoßung führende Bindungsenergie von etwa 260 K /15/. Auftreffende Cäsiumatome besitzen eine größere kinetische Energie erst oberhalb einer Relativgeschwindigkeit von 180 m/s, so daß unterkritische Geschwindigkeiten innerhalb eines Clusters im Relativgeschwindigkeitsbereich zwischen 180 m/s und 240 m/s auftreten sollten. Auch in diesem Bereich ist keine Lücke in den gemessenen Laufzeitsignalen zu erkennen. Vielmehr stimmen nach Festlegung des Restgasanteils die gemessenen und die berechneten Signale im gesamten untersuchten Relativgeschwindigkeitsbereich gut überein. Eine Transparenz der 4He-Cluster liegt also sicher nicht in dem Sinne vor, daß Cäsiumatome eines bestimmten Geschwindigkeitsbereichs die Cluster ohne Änderung von Geschwindigkeit und Richtung passieren könnten. In den Messungen zur differentiellen Streuung sollten Cäsiumatome, die die Cluster unter Änderung von Richtung oder Geschwindigkeit durchdringen, im Winkelbereich zwischen Cäsiumund Clusterstrahl erscheinen. Mit dem Langmuir-Taylor-Detektor II konnten jedoch auch solche Atome nicht nachgewiesen werden.

Das Nichtauftreten einer Transparenz von 4He-Clustern für Cäsiumatome im unterkritischen Geschwindigkeitsbereich ist möglicherweise auf die kürzlich diskutierte Erzeugung von quantisierten Wirbelringen in Form von Wirbelstraßen zurückzuführen, die eine neue Art der Energiedissipation in superflüssigem 4He darstellen soll /16/. Es kann außerdem nicht ausgeschlossen werden, daß Cäsiumatome aufgrund von bisher ungeklärten Energieverlustmechanismen an der Clusteroberfläche festgehalten werden. Ein Hinweis darauf könnten spektroskopische Untersuchungen der Wechselwirkung von Natriumatomstrahlen mit superflüssigem 4He sein, bei denen es nicht möglich war, Natriumatome im Innern der Heliumflüssigkeit nachzuweisen /17/.

Die vorliegenden Resultate zur differentiellen Streuung zeigen jedoch deutlich, daß gestreute Cäsiumatome von 4He-Clustern mitgeführt werden. Dies ergibt sich daraus, daß gestreute Cäsiumatome ausschließlich im Bereich des vom Cäsiumstrahl durchsetzten Clusterstrahls gefunden werden und außerdem die gleiche Geschwindigkeit wie die 4He-Cluster haben. Obwohl der im Clusterstrahl nachgewiesene Cäsiumstrom etwa eine Größenordnung unter dem zu erwartenden liegt, läßt das Fehlen jeglichen Cäsiumstreusignals außerhalb des cäsiumdurchsetzten Clusterstrahlbereichs doch vermuten, daß praktisch alle gestreuten Cäsiumatome mitgeführt werden.

An oder in Heliumclustern gebundene Cäsiumatome dürften mit dem in der vorliegenden Arbeit erstmals zu diesem Zweck eingesetzten Langmuir-Taylor-Detektor mit geringerer Wahrscheinlichkeit nachgewiesen werden als freie Cäsiumatome, weil der für die Oberflächenionisation erforderliche Kontakt der Cäsiumatome mit dem glühenden Wolframband durch das umgebende Helium verhindert werden kann. In diese Richtung deutet auch, daß mit zunehmender Clustergröße ebenso wie mit wachsender Relativgeschwindigkeit der nachgewiesene Cäsiumstrom relativ zum erwarteten abfällt. In künftigen Arbeiten sollte untersucht werden, ob sich durch eine geeignete Gestaltung der ionisierenden Wolframfolie, etwa becher- oder wabenförmig, ein höherer Cäsiumstrom nachweisen läßt.

Messungen der differentiellen Streuung von Cäsiumatomen an <sup>3</sup>He-Clustern könnten weiteren Aufschluß über die Vorgänge beim Stoß von Cäsiumatomen auf Heliumcluster beider Isotope liefern, da aufgrund der geringeren Dichte von flüssigem <sup>3</sup>He ein quantitativ anderes Verhalten der <sup>3</sup>He-Cluster zu erwarten ist. Besonders interessant für die Quantenflüssigkeitseigenschaften von Heliumclustern erscheint jedoch die möglicherweise mit spektroskopischen Mitteln zu klärende Frage, ob Cäsiumatome von thermischer Energie in Heliumcluster eindringen können oder an deren Oberfläche gebunden werden.

### Anhang

#### A1 Eichung der Messung der Clusterstrahlintensität

Dazu wurde in einer gesonderten Meßanordnung eine molekulare Ofenausströmung von gasförmigem 4He aus einer Blende mit einem Durchmesser d von 0.52 mm erzeugt. Im axialen Abstand I von 7.1 mm befand sich die Öffnung des Staurohrs mit der IONIVAC-Ionisationsmanometerröhre. Für eine molekulare Ofenausströmung kann die Intensität berechnet werden (siehe z. B. /11/). An der Staurohröffnung gilt für die Intensität j<sub>D</sub> des molekularen 4He-Gasstrahls unabhängig von den Betriebsbedingungen der IONIVAC-Meßröhre:

$$j_D = (d^2 / (4 | ^2)) \cdot (L / (2 \pi \cdot R \cdot M \cdot T_5)^{1/2}) \cdot p_5$$
 (A1.1)

Hierbei bedeuten L die Avogadro-Konstante, R die Gaskonstante und M die Molmasse von <sup>4</sup>He. Für die Temperatur T<sub>S</sub> des Gases vor der Blende kann Raumtemperatur angenommen werden. Als Referenzdruck dient der mit einem BAROCEL-Druckmeßgerät gemessene Druck p<sub>S</sub> vor der Blende.

Die mit der IONIVAC-Meßröhre in Abhängigkeit vom Referenzdruck ps für <sup>4</sup>He sowie zur Kontrolle auch jeweils für N<sub>2</sub> und CO<sub>2</sub> gemessenen Druckwerte p<sub>1</sub> sind aus Abb. 20 ersichtlich. Deutlich sind hier auch die für die verschiedenen Gase bei verschiedenen Einlaßdrucken, d. h. verschiedenen mittleren freien Weglängen, einsetzenden Abweichungen vom linearen Verlauf zu erkennen, der für molekulare Strömungsverhältnisse charakteristisch ist. Bei CO<sub>2</sub> wird der molekulare Strömungsbereich bereits bei Einlaßdrucken um 0.025 mbar verlassen, bei N<sub>2</sub> um 0.055 mbar und bei <sup>4</sup>He erst ab 0.14 mbar.



<u>Abb. 20:</u> Eichkurven der IONIVAC-Ionisationsmanometerröhre für CO<sub>2</sub>, N<sub>2</sub> und <sup>4</sup>He: Gemessener Druck p<sub>1</sub> in der Röhre in Abhängigkeit vom Referenzdruck p<sub>5</sub> vor der Blende

Aus dem für molekulare Gasstrahlen geltenden, experimentell ermittelten Zusammenhang zwischen p<sub>1</sub> und p<sub>5</sub> (siehe Abb. 20) sowie dem theoretischen Zusammenhang zwischen j<sub>D</sub> und p<sub>5</sub> (siehe Glg. (A1.1)) läßt sich somit auch die Abhängigkeit der Clusterstrahlintensität j<sub>D</sub> vom gemessenen Druck p<sub>1</sub> der IONIVAC-Ionisationsmanometerröhre unabhängig von den Betriebsbedingungen der Meßröhre selbst ermitteln\*).

## A2 Umrechnung der Cäsiumlaufzeitverteilung in die Cäsiumgeschwindigkeitsverteilung

Die Umrechnung der gemessenen Cäsiumlaufzeitverteilung  $g(t_{Cs})$  in die entsprechende Cäsiumgeschwindigkeitsverteilung  $f(v_{Cs})$  erfolgt über die Beziehungen

$$f(v_{Cs}) \cdot dv_{Cs} = -g(t_{Cs}) \cdot dt_{Cs}$$
 (A2.1)

und

$$v_{Cs} = I_{UD}/t_{Cs}$$
 bzw.  $dv_{Cs}/dt_{Cs} = -I_{UD}/t_{Cs}^2$  (A2.2)

Das Minuszeichen in Glg. (A2.1) ergibt sich aus den unterschiedlichen Vorzeichen von  $dv_{Cs}$  und  $dt_{Cs}$ .  $I_{UD}$  beschreibt die Laufstrecke von der Cäsiumstrahlunterbrecherscheibe zum Langmuir-Taylor-Detektor I. Daraus ergibt sich für die Cäsiumgeschwindigkeitsverteilung

$$f(v_{Cs}) = g(t_{Cs}) \cdot t_{Cs}^2/I_{UD}$$
 (A2.3)

<sup>\*)</sup> Messungen der Wandtemperatur der IONIVAC-Meßröhre ergaben einen Wert von ca. 400 K. Damit kann mit Hilfe von Glg. (A1.1) der tatsächliche Druck p<sub>D</sub> im Staurohr in Abhängigkeit vom Referenzdruck ermittelt werden. Unter Berücksichtigung der Abhängigkeit des gemessenen Druckes p<sub>1</sub> im Staurohr vom Referenzdruck ergibt sich für Helium ein Korrekturfaktor p<sub>D</sub>/p<sub>1</sub> von 8.7. In der Literatur wird ein Wert von 7.1 angegeben /18/. Vermutlich ist diese Diskrepanz auf nicht vergleichbare Betriebsbedingungen in den jeweiligen Meßröhren zurückzuführen.

Zugrundegelegt wird die gemessene Laufzeitverteilung g(j) der Cäsiumatome (vgl. Abb. 5b) für  $1 \leq j \leq J$ . J ist die Gesamtzahl der Kanäle der gemessenen und vom 100-Kanal-Analogsignalmittler ausgegebenen Laufzeitverteilung.

Mit Hilfe von Glg. (1) ergibt sich die Änderung des Cäsiumstroms ∆i<sub>Cs</sub>(j) im j-ten Kanal zu

$$\Delta i_{Cs}(j) = -\sigma(j) \cdot n_{Cl} \cdot (b_{Cl}/\sin \alpha) \cdot (v_{rel}(j) / v_{Cs}(j)) \cdot i_{Cs}(j)$$
(A3.1)

 $\sigma$ (j) ist der totale Streuquerschnitt im j-ten Kanal. i<sub>Cs</sub>(j) stellt den dem j-ten Kanal zugehörigen stationären Cäsiumstrom dar und läßt sich aus der gemessenen Cäsiumlaufzeitverteilung folgendermaßen ermitteln:

$$i_{Cs}(j) = i_{Cs, \text{ tot}} \cdot (g(j) / \Sigma g(j)) \cdot (I_{UD}/I_{SD}) \cdot (\tau/\delta T_{Cs})$$
(A.3.2)

 $i_{Cs, tot}$  beschreibt den stationären Gesamtstrom an Cäsiumatomen,  $I_{UD}$  bzw.  $I_{SD}$  die Laufstrecken von der Cäsiumstrahlunterbrecherscheibe bzw. vom Streuzentrum zum Langmuir-Taylor-Detektor I,  $\tau$  die Dauer des durch die Clusterstrahllücke erzeugten Cäsiumstrompulses und  $\delta T_{Cs}$  die Pulsdauer eines einzelnen Kanals in der gemessenen Cäsiumlaufzeitverteilung.

 $g(j)/\Sigma g(j)$  beschreibt den Anteil des dem j-ten Kanal zugehörigen stationären Cäsiumstroms am Gesamtstrom.  $I_{UD}/I_{SD}$  beschreibt die Umrechnung der nach der Laufstrecke  $I_{UD}$  gemessenen Cäsiumlaufzeitverteilung auf die im Streuzentrum durch eine Clusterstrahllücke erzeugte und nach der Laufstrecke  $I_{SD}$  gemessenen Änderung des Cäsiumstromes.  $\tau/\delta T_{CS}$  beschreibt die Umrechnung der Pulsdauer eines einzelnen Kanals auf die Dauer des durch eine Clusterstrahllücke erzeugten Cäsiumstrompulses.

Der Zeitnullpunkt des berechneten Änderungssignals des Cäsiumstroms wird festgelegt durch den Zeitpunkt der Unterbrechung des Heliumclusterstrahls. Das Signal wandert mit der Geschwindigkeit der Heliumcluster bis zum Streuzentrum und anschließend mit der dem jeweils betrachteten Kanal j zugehörigen Cäsiumgeschwindigkeit v<sub>Cs</sub>(j) zum Langmuir-Taylor-Detektor I. Die Gesamtlaufzeit t(j) der durch eine Clusterstrahllücke im j-ten Kanal erzeugten Änderung  $\Delta i_{Cs}(j)$  des Cäsiumstroms ergibt sich somit zu

$$t(j) = I_{HS}/v_{CI} + I_{SD}/v_{Cs}(j)$$
 (A.3.3)

•

 $I_{HS}$  ist die Laufstrecke von der Clusterstrahlunterbrecherscheibe bis zum Streuzentrum,  $v_{Cl}$  die Clustergeschwindigkeit. Die übrigen Größen wurden bereits definiert.

#### <u>Literatur</u>

- /1/ E.W. Becker, K. Bier, W. Henkes
   Strahlen aus kondensierten Atomen und Molekeln im Hochvakuum
   Z. Physik 146 (1956) 333
- /2/ E.W. Becker, R. Klingelhöfer, P. Lohse
   Strahlen aus kondensiertem Helium im Hochvakuum
   Z. Naturforschung 16a (1961) 1259
- /3/ J. Gspann, G. Krieg, H. Vollmar
   Atomic Interaction with Quantum Fluid Clusters:
   <sup>3</sup>He-Cluster Beam Generation and Cs-Scattering by <sup>4</sup>He-Clusters
   J. Physique 38 (1977) C2-171
- /4/ J. Gspann
   Electronic and Atomic Impacts on Large Clusters
   in: Physics of Electronic and Atomic Collisions
   S. Datz ed., North-Holland Publ. (1982) 79
- /5/ J. Gspann, H. Vollmar
   Momentum Transfer to Helium-3- and Helium-4-Microdroplets in Heavy
   Atom Collisions
   J. Physique 39 (1978) C6-330
- /6/ E.W. Becker, J. Gspann, G. Krieg
   Scattering of Cesium Atoms by <sup>4</sup>He-Clusters
   Proc. 14th Int. Conf. Low Temperature Physics, Otaniemi 1975
   M. Krusius ed., North-Holland Publ. (1975) 426
- H. Burghoff, J. Gspann
   Bestimmung der mittleren Agglomeratgröße und des Restgasanteils kondensierter Molekularstrahlen durch Streuung eines Kaliumatomstrahls
   Z. Naturforschung 22a (1967) 684
- /8/ J.B. Taylor
   Eine Methode zur direkten Messung der Intensitätsverteilung in Molekularstrahlen
   Z. Physik 57 (1929) 242

- /9/ P. KuschNotes on Resolution in Scattering MeasurementsJ. Chem. Phys. 40 (1964) 1
- /10/ J. Gspann, H. Vollmar
   Metastable excitations of large clusters of <sup>3</sup>He, <sup>4</sup>He, or Ne atoms
   J. Chem. Phys. 73 (1980) 1657
- /11/ N.F. RamseyMolecular BeamsOxford University Press (1963)
- /12/ J. Gspann
   Streuung eines Kaliumatomstrahls an kondensierten Stickstoffmolekularstrahlen
   Dissertation, Universität Karlsruhe (1966)
- /13/ J. Gspann, G. Krieg
   Laufzeitanalyse eines an einem CO<sub>2</sub>-Molekularstrahl gestreuten K-Atomstrahls
   Z. Naturforschung 23a (1968) 726
- /14/ J. Gspann Unveröffentlichte Ergebnisse
- /15/ K.E. Kürten, M.L. RistigAtomic impurities in liquid heliumPhys. Rev. B 27 (1983) 5479
- /16/ G.G. Nancolas, T. Ellis, P.V.E. McClintock, R.M. Bowley
   A new form of energy dissipation by a moving object in He II
   Nature 316 (1985) 797
- /17/ A. Lézama
   Atomes alcalins dans l'hélium liquide Approches théorique et expérimentale
   Dissertation, Université de Paris (1981)
- M. Wutz
   Theorie und Praxis der Vakuumtechnik
   Vieweg-Verlag, 2. Aufl. (1982)

· .

Die vorliegende Arbeit entstand im Rahmen eines vom Kernforschungszentrum Karlsruhe gewährten Doktorandenstipendiums und wurde am Institut für Kernverfahrenstechnik der Universität und des Kernforschungszentrums Karlsruhe durchgeführt.

Wir danken Herrn Prof. Dr. E.W. Becker für viele wertvolle Diskussionen und Hinweise.