

Messungen an Clusterstrahlen

G.Siller, H.B.Schilling, E.Buchelt

IPP O/27

Febr. 1975

MAX-PLANCK-INSTITUT FÜR PLASMAPHYSIK

GARCHING BEI MÜNCHEN

MAX-PLANCK-INSTITUT FÜR PLASMAPHYSIK
GARCHING BEI MÜNCHEN

Messungen an Clusterstrahlen

G.Siller, H.B.Schilling, E.Buchelt

IPP O/27

Febr. 1975

Die nachstehende Arbeit wurde im Rahmen des Vertrages zwischen dem Max-Planck-Institut für Plasmaphysik und der Europäischen Atomgemeinschaft über die Zusammenarbeit auf dem Gebiete der Plasmaphysik durchgeführt.

Abstract

Preliminary investigations of cluster beams prior to the development of an injection method of neutral particles into the electron ring accelerator have been conducted. This paper presents the design considerations and the results of high resolution density measurements and of measurements of the mean cluster size. Sharply confined cluster beams with particle densities ranging from $4 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ up to $6 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ have been produced by expanding CO_2 or Argon gas through a conical nozzle. With an Argon beam mean cluster sizes of up to several thousand atoms have been observed.

1. Einleitung

Ein Elektronenringbeschleuniger arbeitet nach folgendem Prinzip: Ein gepulster Strahl relativistischer Elektronen wird senkrecht zu einem Magnetfeld eingeschossen und bildet einen Elektronenring. Durch einen Anstieg der Magnetfeldstärke wird dieser Ring komprimiert unter gleichzeitiger Erhöhung der Energie der Elektronen. Am Ort des Ringes bildet sich eine stark negative elektrische Potentialmulde aus. In dieser können positive Ionen eingelagert werden. Wird nun der Elektronenring parallel zu den Magnetfeldlinien beschleunigt, so geschieht dasselbe mit den Ionen. Grundsätzliche lassen sich auf diese Weise die Ionen beliebiger Elemente beschleunigen. Zu diesem Zweck schießt man einen geeigneten Strahl von Neutralteilchen in den Elektronenring nach dessen Kompressionsphase ein. Die Atome bzw. Moleküle werden im Ring teilweise ionisiert und in der Potentialmulde eingefangen. In dieser Arbeit werden Vorversuche beschrieben, um einen Strahl von Neutralteilchen mit der notwendigen Intensität zu erzeugen und zu analysieren.

2. Betrachtungen zum Neutralteilchenstrom

Zur Vermeidung einer undefinierten Beladung des Elektronenringes durch Restgase wird im Beladungsraum ein Druck von 10^{-9} Torr angestrebt. Daher ist es günstig, für die Beladung einen räumlich scharf begrenzten Neutralteilchenstrahl zu verwenden. Wie später gezeigt wird, sind Clusterstrahlen aus kondensierten Atomen und Molekülen besonders geeignet, die erforderlichen Teilchendichten in Form eines scharf begrenzten Strahles zu liefern. Zur Abschätzung der erforderlichen Neutralteilchendichte wird eine Geometrie entsprechend Abb.1 zugrunde gelegt.

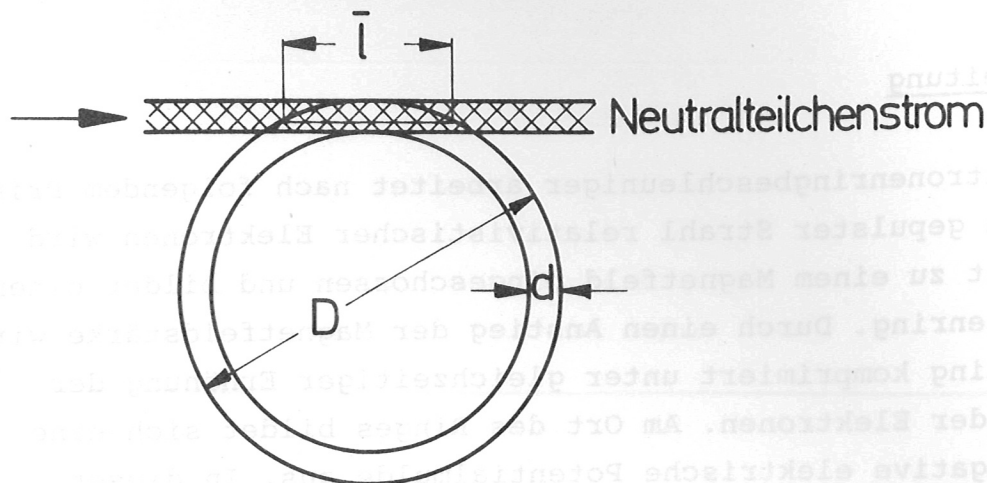


Abb.1: Abmessungen des Elektronenringes zum Beladungszeitpunkt

Zum Beladungszeitpunkt ist $D = 5 \text{ cm}$ und $d = 0,4 \text{ cm}$. Nach Messungen anderer Autoren /3/ liegt die Geschwindigkeit der Cluster bei etwa der doppelten Schallgeschwindigkeit (z.B. für CO_2 : $v = 6,5 \cdot 10^4 \text{ cm/s}$). Zum Durchlaufen der Strecke \bar{l} benötigt der Strahl $3 \cdot 10^{-5} \text{ s}$. Da andererseits die geplante Beladungszeit 10^{-6} s beträgt, kann der Clusterstrahl gegenüber dem Elektronenring als ruhend betrachtet werden.

Bei Wechselwirkung eines Elektronenstrahls mit einem Gas beträgt der Ionisierungsgrad

$$\frac{N_i}{N_0} = \sigma \cdot v_e \cdot n_e \cdot t$$

Es wird angenommen, daß dieselbe Beziehung auch bei der Wechselwirkung mit Clustern gültig ist, da der Zusammenhalt der Atome bzw. Moleküle im Cluster durch die van der Waals'schen Potentiale gegeben ist. Diese sind aber klein im Vergleich zu den Ionisierungspotentialen der Atome und Moleküle.

Bei einer Gesamtzahl von $6 \cdot 10^{12}$ Elektronen im Ring beträgt die Elektronendichte $n_e = 3 \cdot 10^{+12} \text{ cm}^{-3}$. Der Wirkungsquerschnitt für die Elektronenstoßionisierung von Argon im Ring ist

$\sigma = 8 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2$. Bei einer Beladungszeit von $t = 10^{-6} \text{ s}$ ergibt sich somit ein Ionisierungsgrad von etwa 7%. Für eine Ionenbeladung des Elektronenringes von 1% benötigt man daher $8,5 \cdot 10^{10}$ Neutralteilchen. Dies entspricht bei den angegebenen Dimensionen einer Neutralteilchendichte von $n_e \approx 8 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3}$.

3. Apparatur zur Erzeugung eines Clusterstrahles

Die Abb.2 zeigt das Prinzip der Apparatur zur Erzeugung eines Clusterstrahles. Das Gas expandiert aus einem Vorratsgefäß (Druck 1 bis 5 atü) durch eine konische Überschalldüse in eine Vakuumkammer (Druck $\approx 10^{-4}$ Torr). Die meisten Versuche wurden mit CO_2 und Argon durchgeführt. Mit beiden Gasen lassen sich bereits bei Zimmertemperatur Clusterstrahlen erzeugen. Durch zwei weitere Düsen (Abschäler und Kollimator) wird die gestörte Randzone ausgeblendet. Die Länge des Clusterimpulses ist bestimmt durch die Öffnungszeit des mechanischen Schnellverschlußventils und beträgt im Versuch 3,5 ms bei einem Stempelhub von 0,05 cm. Eine der Hauptschwierigkeiten beim Arbeiten mit Gasen, die bei Zimmertemperatur nicht clustern, liegt darin, daß der Gasvorratsbehälter mehr oder minder tief gekühlt werden muß. Spuren von Wasserdampf in den verwendeten Gasen führen dann zur Eisbildung und Verstopfung der engen Bohrung ($\varnothing = 0,01 \text{ cm}$) in der konischen Überschalldüse.

Das Strahlprofil des erzeugten Clusterstrahles wird am Ende der dritten Vakuumkammer (Druck $\approx 2 \cdot 10^{-7}$ Torr) durch einen Detektor (Ionisationsmanometerröhre) ausgemessen, der in den zwei zur Strahlrichtung senkrechten Koordinaten bewegt wird. Eine Abschätzung gibt Aufschluß über den Basisdruck, der in der Manometerröhre herrschen muß, damit man die geforderte Neutralteilchendichte messen kann. Für eine Fläche der Eintrittsöffnung von 10^{-2} cm^2 , einem Röhrenvolumen von 10 cm^3 , einer Ventilöffnungszeit von 3,5 ms und einer Neutralteilchendichte im Strahl von

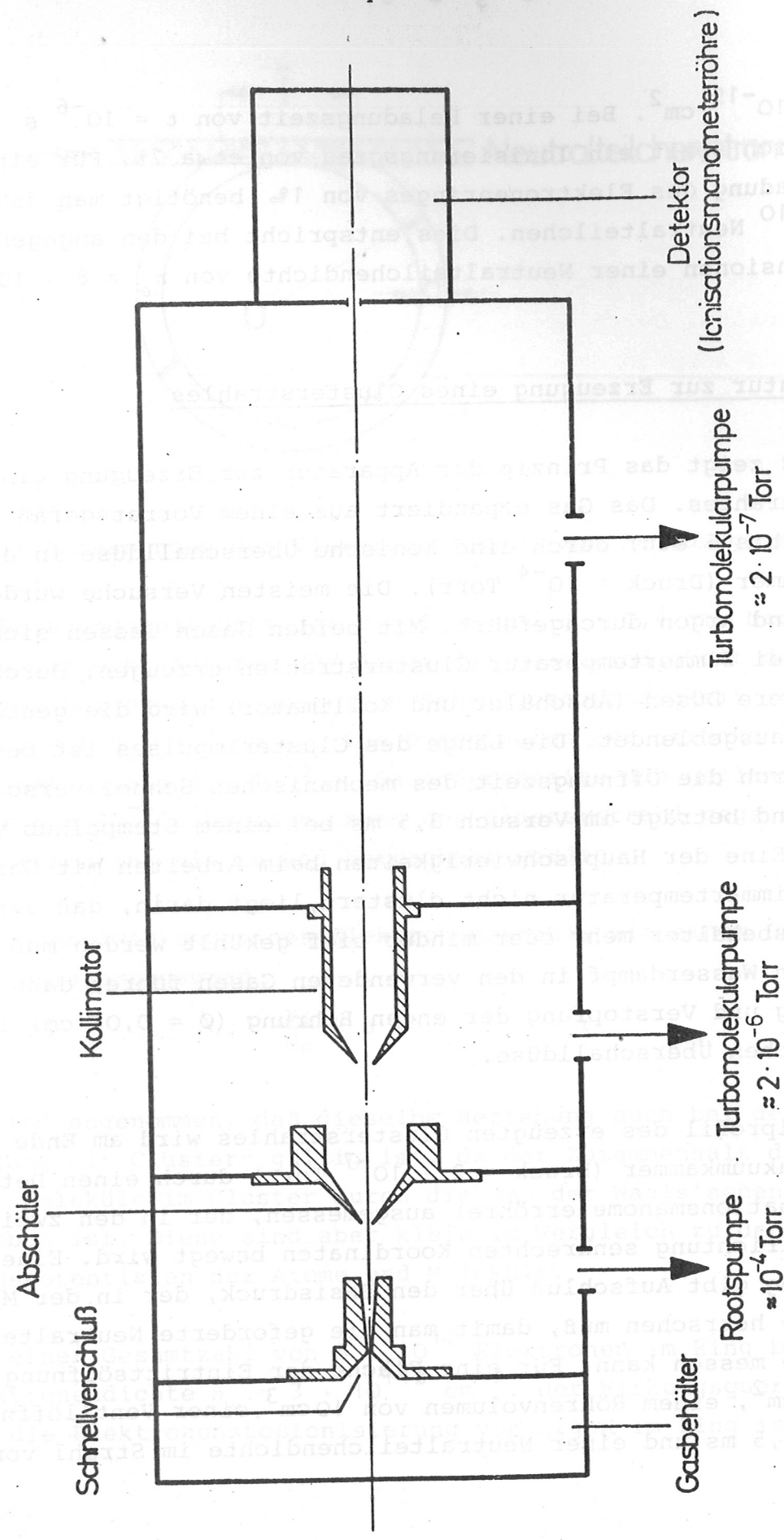


Abb.2: Apparatur zur Erzeugung eines Clusterstrahles

$3 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ wird die Neutralteilchendichte in der Röhre $4,5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$. Dies entspricht einem Druck von etwa $1,1 \cdot 10^{-6}$ Torr. Ein Basisdruck in der Röhre von etwa $2 \cdot 10^{-7}$ Torr, wie er in der rechten Meßkammer unserer Apparatur herrschte, (siehe Abb.2) ist daher ausreichend. Die Meßröhre wird nach jedem Impuls über eine große Öffnung wieder ausgepumpt. Der Druckanstieg in der Röhre wird direkt am Röhrensockel mit einem Oszillografen gemessen.

Die Meßergebnisse zeigt die Abb.3. Das Raster in der dreidimensionalen Darstellung entspricht einer Verschiebung von je 0,1 cm in beiden Koordinatenrichtungen. Der Maximalwert der Neutralgasdichte mit CO_2 bei Zimmertemperatur und einem Ausgangsdruck von 5 atü im Vorratsgefäß beträgt $6 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$. Durch Reduzierung des Druckes im Gasbehälter auf 0,3 atü sinkt dieser Wert um etwa eine Zehnerpotenz. Die Flankenbreite des Dichteprofiles in Abb.3 ist unter Berücksichtigung des Apparateprofils der Meßanordnung kleiner als $4 \cdot 10^{-2}$ cm. Man erhält also einen sehr scharf begrenzten Clusterstrahl, dessen Querschnitt praktisch ein Kastenprofil hat. Analoge Messungen mit fast identischen Ergebnissen wurden auch mit Argon durchgeführt.

Obwohl eigentlich nur die Neutralgasstromdichte gemessen wurde, sprechen die Ergebnisse für ein Clustern der beiden verwendeten Gase. Dies zeigen negativ verlaufene Versuche mit Wasserstoff, Helium, Stickstoff und Sauerstoff, von denen bekannt ist, daß eine Clusterbildung nur nach vorheriger Abkühlung der Gase im Behälter erfolgt. Da ein ungeclusterter Neutralgasstrahl erheblich geringere Neutralgasstromdichten liefert, war auch der Druckanstieg in der Ionisationsmanometerröhre in diesen Fällen praktisch nicht meßbar. Für Argon läßt sich der Übergang von einem Clusterstrahl in einem ungeclustertem Strahl anhand von Abb.4 verfolgen. Im Bereich zwischen 700 Torr und 350 Torr Ausgangsdruck nimmt die gemessene Teilchendichte abrupt ab. Gleichzeitig vergrößert sich die Strahldivergenz beträchtlich, da im Falle des ungeclusterten Strahles vermutlich keine Ausmittelung der Querkomponenten der Geschwindigkeit mehr erfolgt.

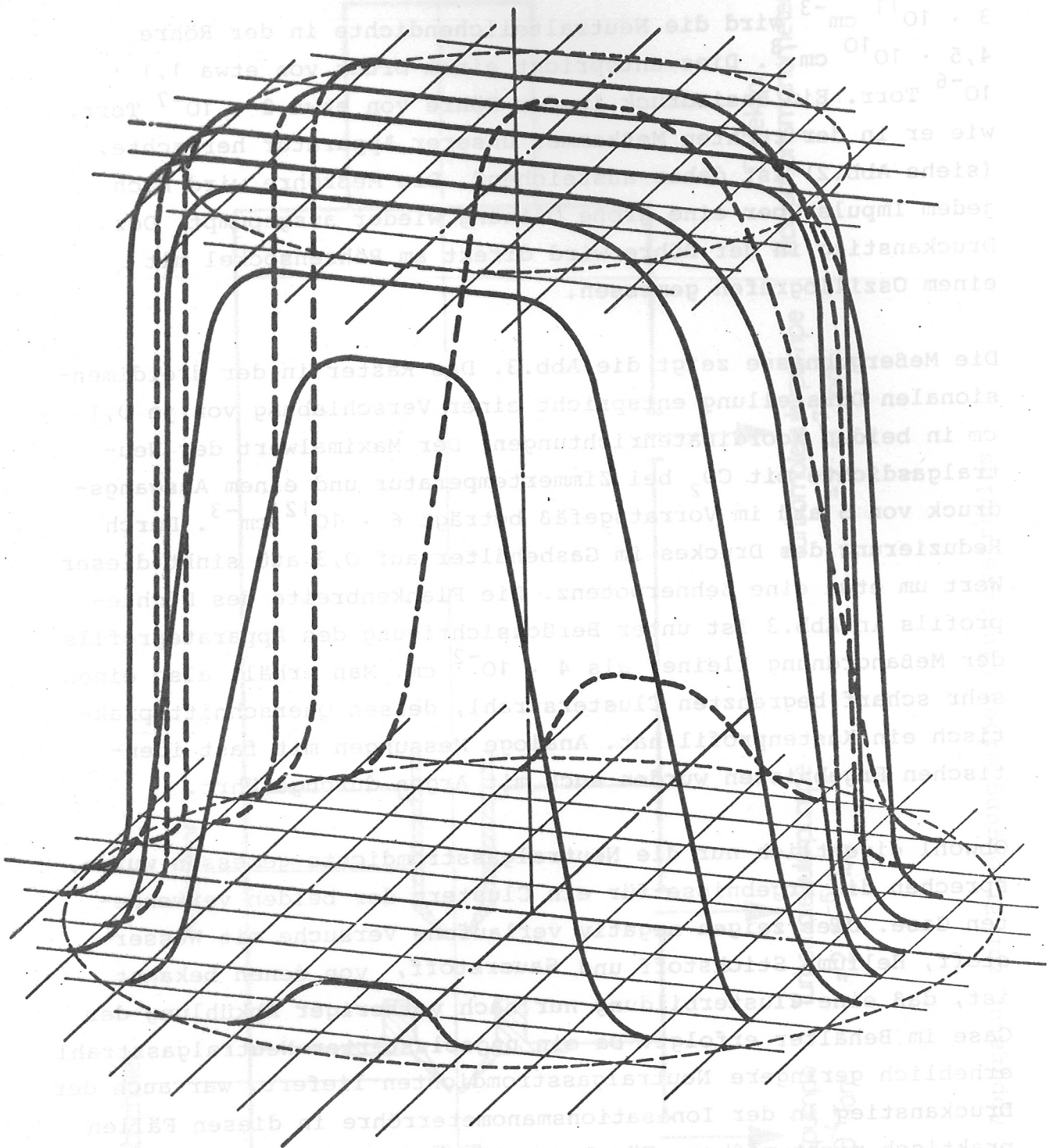


Abb.3: Dichteprofil eines CO₂-Clusterstrahles

Einlaßdruck: 5 atü

Maßstab in x- und z-Richtung: 0,1 mm/Teilung

Dichte im Maximum: $6 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$

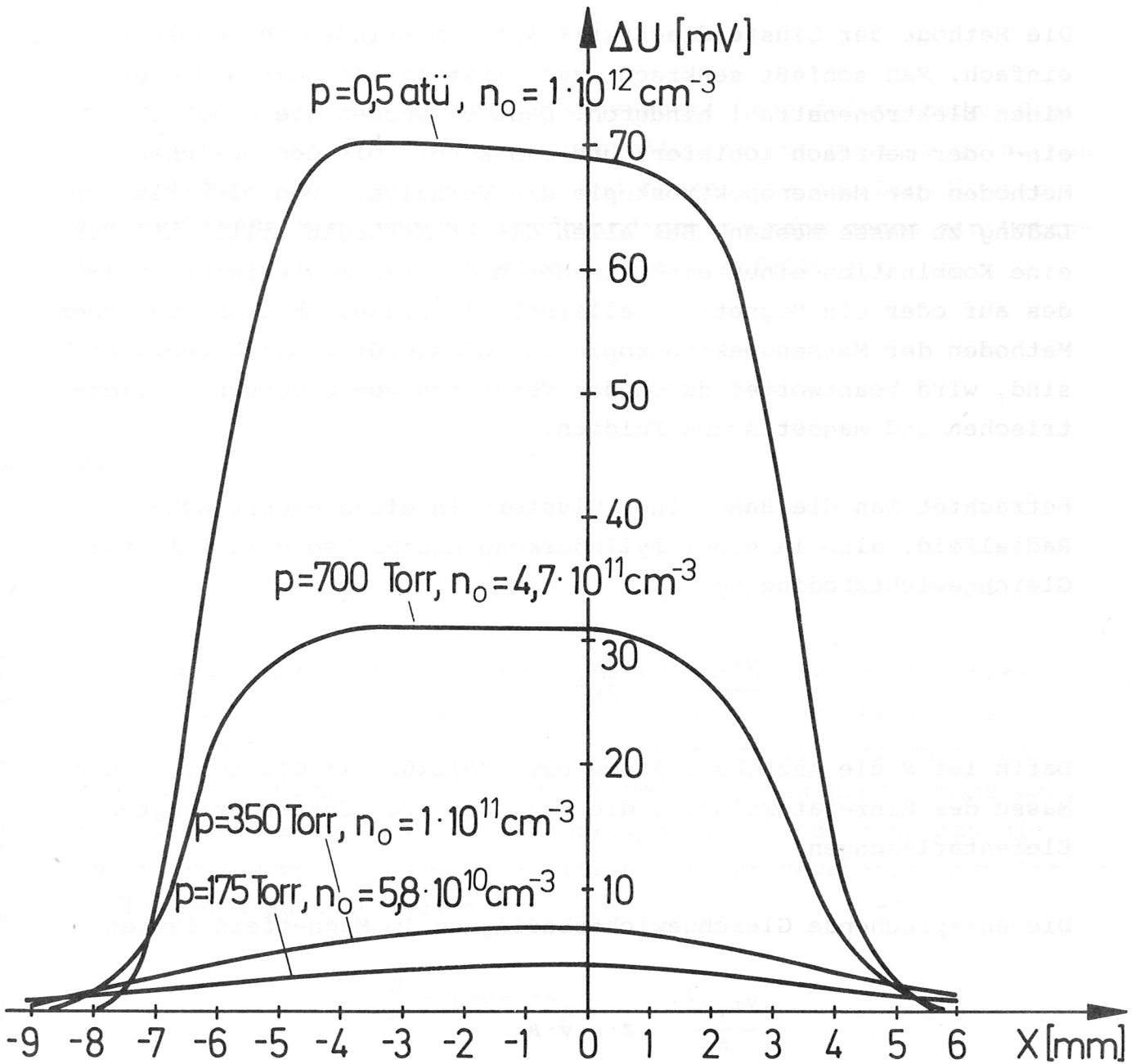


Abb.4: Dichteprofil eines Argon-Clusterstrahles bei verschiedenen Einlaßdrücken

4. Diagnostik am Clusterstrahl

Die Methode der Clusterdiagnostik ist vom Prinzip her denkbar einfach. Man schießt senkrecht zum Clusterstrahl durch diesen einen Elektronenstrahl hindurch. Dadurch werden die Cluster ein- oder mehrfach ionisiert und man könnte mit den üblichen Methoden der Massenspektroskopie das Verhältnis von elektrischer Ladung zu Masse messen. Bei allen diesen Methoden tritt entweder eine Kombination eines elektrischen und eines magnetischen Feldes auf oder ein Magnetfeld alleine. Die Frage, ob diese üblichen Methoden der Massenspektroskopie zur Clusterdiagnostik geeignet sind, wird beantwortet durch das Verhalten von Clustern in elektrischen und magnetischen Feldern.

Betrachtet man die Bahn eines Clusters in einem elektrischen Radialfeld, also in einem Zylinderkondensator, so gilt folgende Gleichgewichtsbedingung

$$\frac{N \cdot m_i v^2}{R} = ZeE$$

Darin ist N die Anzahl der Atome bzw. Moleküle im Cluster, m_i die Masse des Einzelatoms und z die Zahl der pro Cluster erzeugten Elementarladungen.

Die entsprechende Gleichgewichtsbedingung im Magnetfeld lautet

$$\frac{Nm_i v^2}{R} = Z \cdot e \cdot v \cdot B$$

Aus diesen Gleichungen werden die Werte der erforderlichen elektrischen Feldstärke bzw. der magnetischen Induktion errechnet. Hat man beispielsweise einfach geladene CO_2 -Cluster (Molekulargewicht 44), die aus $3 \cdot 10^3$ Molekülen bestehen, so ergibt sich bei einem angenommenen Bahnradius von $R = 30 \text{ cm}$

$$E \approx 20 \text{ V/cm und}$$

$$B \approx 3 \text{ Vs/m}^2 = 30 \text{ kG}$$

Wegen des großen Wertes der Induktion sind die üblichen Methoden der Massenspektroskopie offensichtlich zur Clusterdiagnostik nicht geeignet.

Als Ausweg wählt man daher die sogenannte Gegenfeldmethode. Hierbei läßt man die durch Elektronenstoßionisation positiv geladenen Cluster gegen ein Feld anlaufen und bremst sie ab. Ein Cluster mit der Masse $N \cdot m_i$ und der Geschwindigkeit v kann gegen ein Potential U_G anlaufen, wenn folgende Relation erfüllt ist

$$\frac{Nm_i v^2}{2} = zeU_G$$

oder

$$\frac{N}{z} = \frac{2e}{m_i v^2} \cdot U_G$$

Messungen anderer Autoren haben nun ergeben, daß trotz unterschiedlicher N -Werte der einzelnen Cluster in einem Impuls alle Cluster praktisch mit derselben Geschwindigkeit v fliegen. Da aber die Elementarladung e und die Masse m_i des Einzelatoms bzw. Einzelmoleküls auch für alle Cluster gleich sind, kann man die obige Beziehung für ein bestimmtes Gas unter gegebenen Austrittsbedingungen auch schreiben

$$\frac{N}{z} = \text{const} \cdot U_G$$

d.h. die Spannung U_G , gegen die ein Cluster anlaufen kann, ist proportional dem Verhältnis $\frac{N}{z}$. Im folgenden Abschnitt wird nun das Konzept eines derartigen Gegenfelddetektors entwickelt. Dabei wird es sich zeigen, daß man experimentelle Bedingungen herstellen kann, unter denen man auf $z \rightarrow 1$ extrapolieren kann, d.h. daß bei der Elektronenstoßionisation jedes Cluster unabhängig von N nur einfach geladen ist. Damit geht $\frac{N}{z} \rightarrow N \approx U_G$.

5. Konzept des Gegenfelddetektors

Bei dem Gegenfelddetektor handelt es sich um eine Anordnung, wie sie im Prinzip von Hagen und seinen Mitarbeitern /1/ entwickelt wurde.

Ein sehr wesentlicher Punkt ist die genaue Kenntnis der Gegenfeldspannung U_G , gegen die das geladene Cluster anluft. Daher ist es wichtig, das Potential an jenem Ort zu kennen, an dem das neutrale Cluster ionisiert wird und das Potential, an dem das geladene Cluster auf die Geschwindigkeit Null abgebremst ist. Aus der Potentialdifferenz dieser beiden Orte ergibt sich die fur die $\frac{N}{Z}$ - Messungen wichtige Gegenfeldspannung U_G . Hagen hat den Potentialverlauf im Detektor in einem Modellversuch im elektrolytischen Trog ausgemessen. Uns schien diese Methode zu ungenau. Wir haben daher die Laplacegleichung durch ein Computerprogramm numerisch ausgewertet und den Potentialverlauf im Detektor bei verschiedenen Spannungen an den einzelnen Platten ermittelt. Diese Ergebnisse werden spater ausfuhrlich diskutiert.

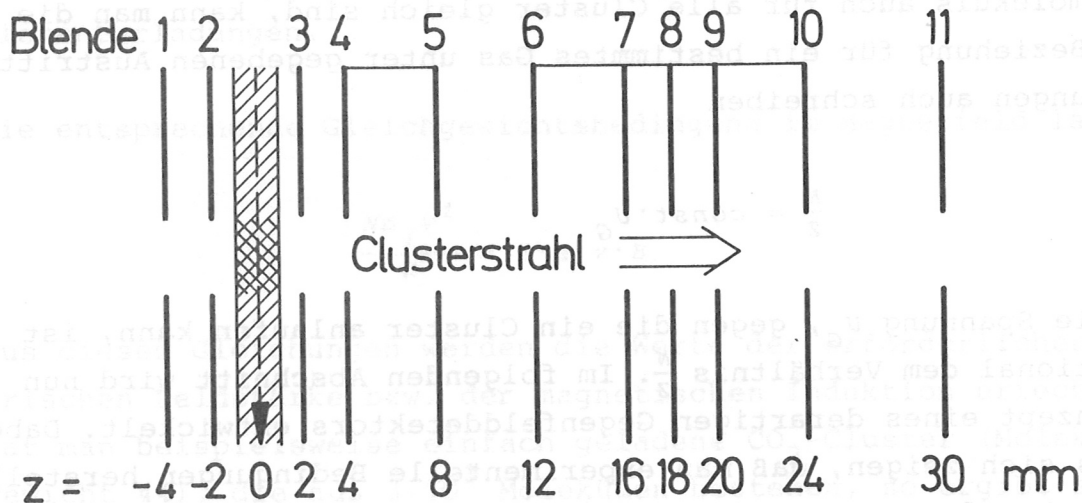


Abb.5: Position der Detektorblenden

Die Abb.5 zeigt die Lage der 11 Blenden des Detektors. Diese sind am oberen Bildrand von 1 bis 11 durchnummeriert. Die Zahlen am unteren Bildrand geben die z-Position der Blenden in Millimetern bezüglich des Pfeiles bei 0 an. Der Clusterstrahl tritt von links kommend durch die Blende 1 ein und verläßt den Detektor durch die rechte Blende 11. Der gestrichelte Pfeil bei 0 markiert den senkrecht zum Clusterstrahl eingeschossenen Elektronenstrahl, der durch ein paralleles Magnetfeld geführt wird. Letzterer hat eine Dicke von etwa 2 mm (schraffierter Bereich) und liegt deshalb zwischen -1 und +1 in der Zählung am unteren Bildrand. Senkrecht zur Papierebene hat der Elektronenstrahl eine Abmessung von 10 mm. Dies ist auch gleichzeitig der Durchmesser der kreisförmigen Öffnungen in den Blenden 1 bis 11. Im doppelt schraffierten Bereich um 0 findet die Elektronenstoßionisation der Cluster statt. Die einzelnen Blenden hatten bei den meisten Messungen folgende Potentiale:

- Blende 1: +20 V
- Blende 2: +10 V
- Blende 3: -10 V
- Blende 4: -20 V
- Blende 5: -20 V

Durch die Potentiale an den Blenden 1 bis 4 wird zweierlei erreicht: Bezüglich der Mitte des Elektronenstrahles bei $z = 0$ wird an diesem Ort das Potential 0 erzwungen. Damit kennt man das Potential am Ort der Clusterionisation. Die Potentialunschärfe $\pm \Delta U$ wegen der endlichen Dicke des Elektronenstrahles ergibt sich aus dem Potentiallinienverlauf des Computerprogrammes. Durch das Vorzeichen der Potentiale an den Blenden 1 bis 4 wird ferner erreicht, daß die bei der Ionisation erzeugten Elektronen nach links, die positiven Clusterionen nach rechts abgesaugt werden. Die gleichen Potentiale an den Blenden 4 und 5 ergeben einen nahezu feldfreien Laufraum zwischen diesen Blenden und außerdem schirmt die Blende 5 den Ionisationsbereich um $z = 0$ gegen die hier störenden hohen Potentiale der Blenden 6 bis 11 ab.

Die Blenden 6 bis 10 sind miteinander verbunden und liegen auf dem gleichen Potential. In diesem Bereich wird das Gegenfeld erzeugt, gegen das die positiv geladenen Cluster anlaufen. Das Potential dieser Blenden liegt bei Gegenfeldmessungen zwischen 0 und etwa +400 V. Man hätte die Blenden 6 bis 10 auch durch ein in diesem Bereich angebrachtes und auf gleichem Potential liegendes Rohr ersetzen können. Es wird aber nur ein sehr geringer Bruchteil der in den Detektor geschossenen Cluster ionisiert, und daher ist der Neutralgasdruck relativ hoch. Dieses Neutralgas kann aber im Bereich des Detektors bei der oben skizzierten Anordnung radial zwischen den Einzelblenden abgesaugt werden; man vermeidet dadurch störende Nebeneffekte.

Wie oben bereits angeführt, ist der kreisförmige Lochdurchmesser in den Blenden 10 mm. Man kann ihn nicht sehr viel kleiner machen, da sonst der Clusterionenstrom zu klein wird. Dies bedingt aber, daß wegen der relativ großen Öffnung das Potential des Gegenfeldes über den Lochquerschnitt variiert. Clusterionen, die dicht an den Blenden vorbeifliegen, müssen gegen ein höheres Potential anlaufen als Ionen, die sich im achsennahen Bereich bewegen. Diese Ungenauigkeit im Potential läßt sich wieder aus dem Potentiallinienverlauf des Computerprogrammes ermitteln. Bei der Auswertung der Meßkurven im folgenden Abschnitt wurde diese Unsicherheit bei der Potentialbestimmung durch die Angabe eines schraffierten Unschärfebereiches berücksichtigt.

Die Blende 11 von Abb.5 schließlich stellt den eigentlichen Ionenauffänger dar. Ihr Potential lag meist im Bereich von etwa -300 V. Der hier gemessene Strom wird in den Meßkurven mit I_a bezeichnet. Bezüglich des Einflusses einer Variation der Spannungen an den verschiedenen Elektroden auf den gemessenen Ionenstrom verweisen wir auf die in der Literatur /1/ angegebenen sehr gründlichen und ausführlichen Messungen. Unsere Meßergebnisse sind in Übereinstimmung mit diesen Resultaten, wenngleich wir nicht alle Möglichkeiten durchgespielt haben. Unsere Prioritäten lagen im Bau einer geeigneten Neutralgasquelle zur Beladung des Elektronenringes.

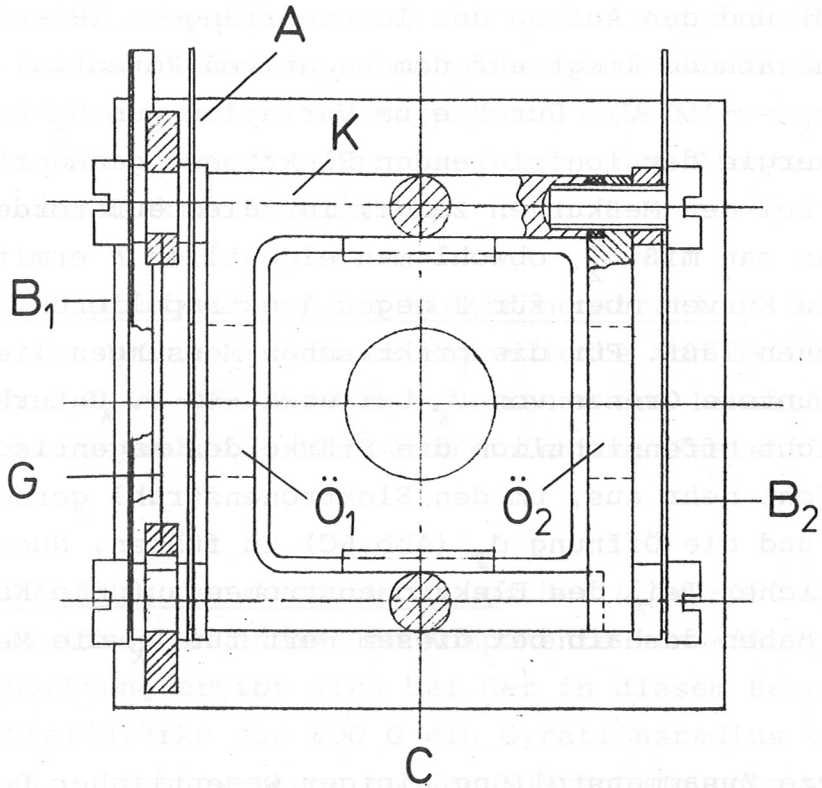
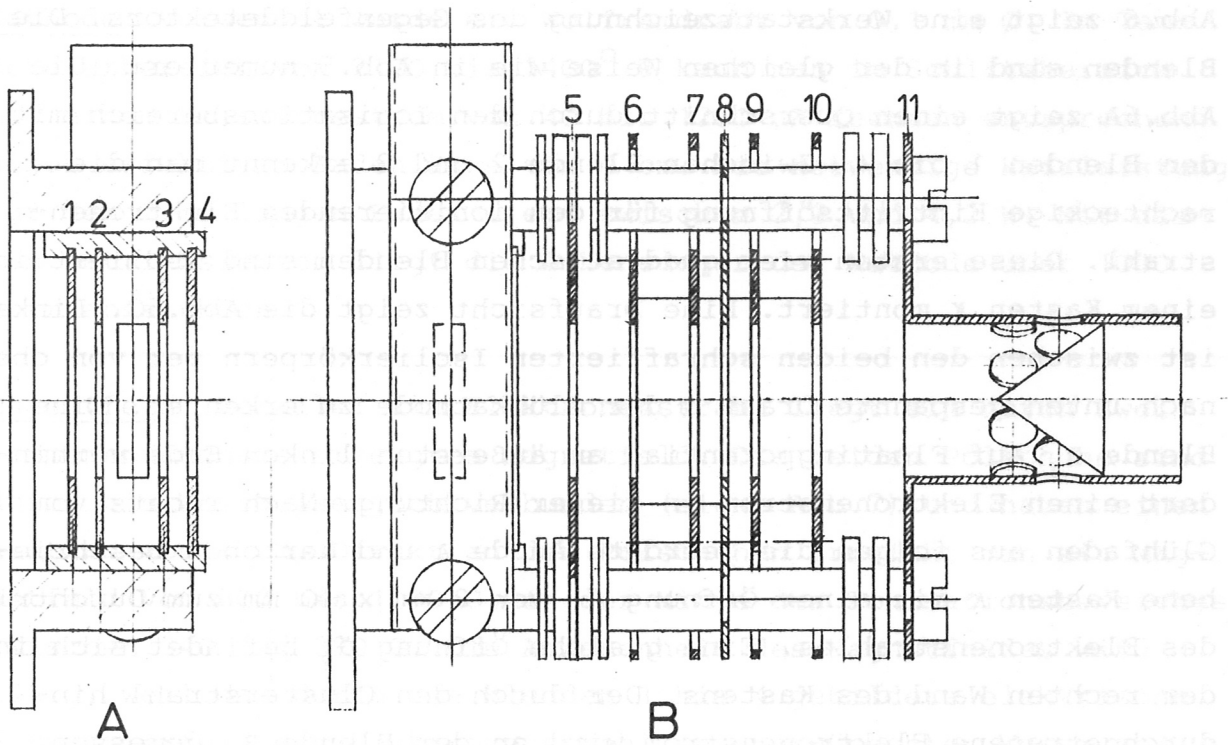


Abb.6: Werkstattzeichnung des Gegenfelddetektors

Abb.6 zeigt eine Werkstattzeichnung des Gegenfelddetektors. Die Blenden sind in der gleichen Weise wie in Abb.5 numeriert. Die Abb.6A zeigt einen Querschnitt durch den Ionisationsbereich mit den Blenden 1 bis 4. Zwischen Blende 2 und 3 erkennt man die rechteckige Eintrittsöffnung für den ionisierenden Elektronenstrahl. Diese ersten vier quadratischen Blenden sind isoliert in einem Kasten K montiert. Eine Draufsicht zeigt die Abb.6C. Links ist zwischen den beiden schraffierten Isolierkörpern der von oben nach unten gespannte Draht G der Glühkathode zu erkennen. Eine Blende B_1 auf Floatingpotential am äußersten linken Ende verhindert einen Elektronenstrom in dieser Richtung. Nach rechts vom Glühfaden aus folgen die geerdete Anode A und der oben beschriebene Kasten K mit einer Öffnung δ_1 von 2 mm x 10 mm zum Durchtritt des Elektronenstrahles. Eine gleiche Öffnung δ_2 befindet sich in der rechten Wand des Kastens. Der durch den Clusterstrahl hindurchgetretene Elektronenstrom wird an der Blende B_2 gemessen, die auf einem Potential von etwa +100 V liegt. Aus Abb.6B erkennt man schließlich noch die Lage der Blende 5, des Gegenfeldes (Blenden 6 bis 10) und den Aufbau des Ionenauffängers (Blende 11). Der Faden der Glühkathode liegt auf dem negativen Potential U_K (typischer Wert $U_K = -150$ V). Durch eine Variation von U_K kann die kinetische Energie der ionisierenden Elektronen geändert werden. Wie sich bei den Meßkurven zeigt, ist dies außerordentlich wichtig, denn man mißt $\frac{N}{z}$, obwohl man eigentlich N ermitteln will. Man kann die Kurven aber für z gegen 1 extrapolieren, wenn man U_K gegen 0 gehen läßt. Für die praktischen Messungen liegt eine vernünftige untere Grenze von U_K bei etwa -40 V. Unterhalb dieses Wertes reicht offensichtlich die Stärke des magnetischen Führungsfeldes nicht mehr aus, um den Elektronenstrahl gerade durch den Kasten und die Öffnung δ_2 (Abb.6C) zu führen. Nunmehr fließt ein erheblicher Teil des Elektronenstromes auf die Kastenvand bei δ_2 . Wir haben deshalb bei diesem Wert für U_K die Messung abgebrochen.

Nun noch eine kurze Zusammenstellung einiger wesentlicher Details und Abschätzungen, die dem Bau des Detektors vorausgingen. Diese Rechnungen waren notwendig, da uns vom Detektor nur eine Strichzeichnung vorlag /1/.

Kathode: Verwendet wurde ein Wolframdraht von 0,1 mm \emptyset . Im Temperaturbereich von 2100 bis 2400^o K kann man im Schlitzbereich mit einem Emissionsstrom von 40 bis 1200 μ A rechnen entsprechend einer effektiven Fadenlänge von 1 cm. Die notwendige Heizleistung für den 2 cm langen Faden liegt zwischen 2,2 und 4,2 W. Mit diesen Betriebswerten liegt die Lebensdauer der Kathode über 1000 Betriebsstunden.

Magnetfeld: Parallel zum Elektronenstrahl liegt ein durch zwei Permanentmagnete erzeugtes Magnetfeld. Die beiden Polschuhe sind durch ein Weicheisenjoch verbunden (siehe Abb.7) und haben einen Abstand von 4 cm. Direkt an den Polschuhen erreicht man ein Magnetfeld von 800 bis 1000 G, in der Mitte des Ionisationsbereiches zwischen 340 und 390 G. Die Anwesenheit des Magnetfeldes wird nötig, weil das durch die Blenden 1 bis 4 gebildete elektrische Symmetrierfeld den Elektronenstrahl in unerwünschter Weise ablenkt.

Als Nebeneffekt ergibt sich durch das Magnetfeld zunächst eine $E \times B$ -Drift in Richtung der großen Lineardimension des Elektronenstrahlbandes um $\pm 0,5$ mm je nach Polarität des Magnetfeldes. Dies ergibt einen Verlust von 5% des den Clusterstrahl durchsetzenden Elektronenstromes.

Raumladungsaufweitung des Elektronenstrahles: Bei einem Emissionsstrom von 100 μ A und einer Stromdichte von $5 \cdot 10^{-4}$ A cm⁻² ergibt sich bei $U_K = -150$ V eine Aufweitung der Lineardimensionen des Elektronenstrahles beim Durchlaufen des Kastens um den Faktor 1,06.

Linsenwirkung der Anodenöffnung: Bei $U_K = -150$ V und einer sehr pessimistisch angenommenen Komponente von -30 V parallel zur Anodenöffnung ergibt sich bei der in diesem Bereich ermittelten Magnetfeldstärke von 600 G ein Gyrationradius von etwa 0,3 mm. Durch die Linsenwirkung an den Kastenöffnungen wird die $E \times B$ -Drift verkleinert, da E und B nicht mehr senkrecht aufeinander stehen.

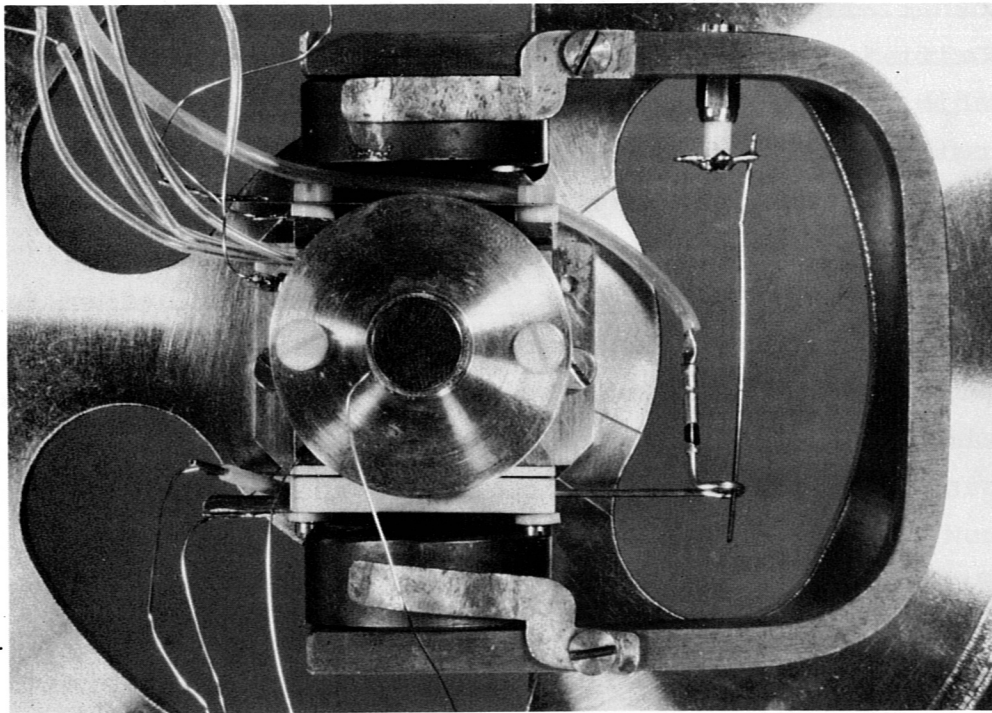
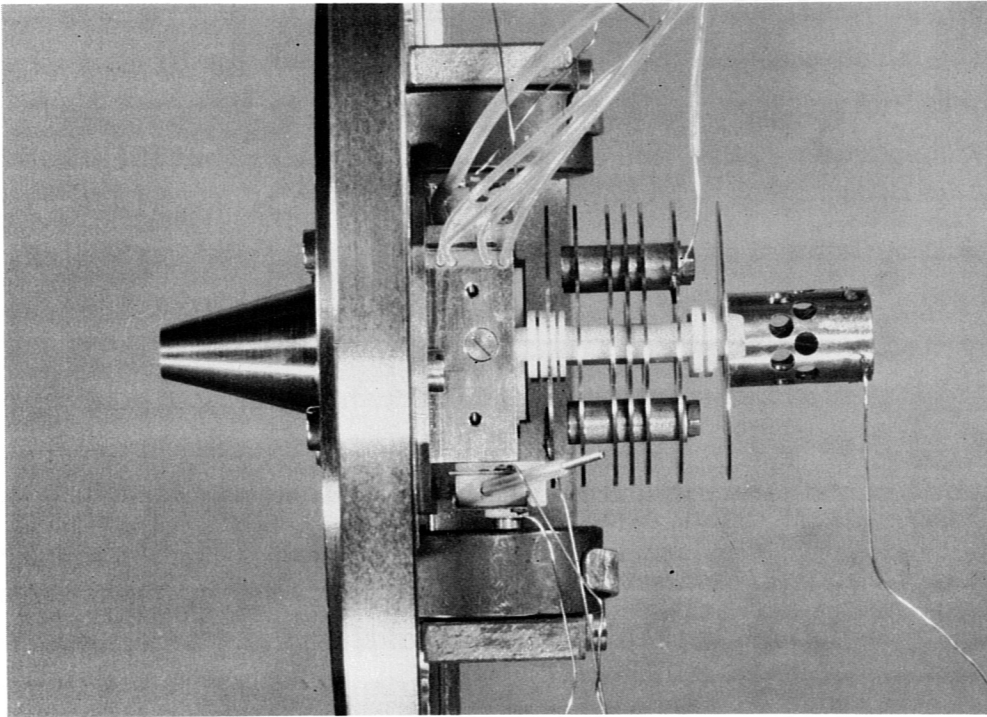


Abb.7: Ausgeführter Gegenfelddetektor

Aus der Summe dieser Einflüsse kann man die Verminderung des Elektronenstromes ermitteln, den dieser auf dem Weg von Eintrittsöffnung \varnothing_1 bis zur Blende B_2 (siehe Abb.6C) erleidet. Sondenmessungen am Detektor haben ergeben, daß dieser Verlust nur wenige Prozent betragen kann, und die obigen Abschätzungen zu pessimistisch sind. (Aussage gültig für $U_K \leq -40$ V)

Charakteristische Zeiten: Bei einer Clustergeschwindigkeit von $6,5 \cdot 10^4$ cm s^{-1} und einer Breite der Ionisationszone von $2 \cdot 10^{-1}$ cm beträgt die Verweilzeit der Cluster im Ionisationsbereich etwa $3 \cdot 10^{-6}$ s. Die Laufzeit der Elektronen im Clusterstrahl ergibt sich bei $U_K = -150$ V und 1 cm Strahldurchmesser zu etwa $1,4 \cdot 10^{-9}$ s. Dies bedeutet, daß die Cluster für die ionisierenden Elektronen während deren Laufzeit im Strahl praktisch ortsfest sind.

Strahlaufweitung des Cluster-Ionenstrahles Die maximalen Ionenströme der positiv geladenen Cluster liegen im Bereich von 10^{-7} A. Bei einem durch die Blendenöffnungen gegebenen Strahldurchmesser von 1 cm und einer Laufstrecke von 3 cm durch das Blendensystem des Detektors ist die radiale Strahlaufweitung durch Raumladungseffekte praktisch 0.

Strahlaufweitung des neutralen Clusterstrahles durch eine Geschwindigkeitskomponente $v_{\text{thermisch}}$ quer zum Strahl: Die Abschätzung der Größenordnung einer derartigen Komponente ist relativ schwierig. Wir sind hier folgendem - sicherlich in einigen Punkten angreifbaren - Weg gegangen: Wir haben die ideale Gaszustandsgleichung benutzt und angenommen, daß sich das Gas beim Durchströmen der konischen Austrittsdüse adiabatisch abkühlt. Ausgangsdruck und Ausgangstemperatur wurden zu 5 atü bzw. 300° K angenommen. Als Enddruck wurde ein Vorvakuumdruck von $5 \cdot 10^{-2}$ Torr eingesetzt. Dies liefert ein

$$\frac{v_{\text{cluster}}}{v_{\text{thermisch}}} \approx 3 \cdot 10^2$$

In der Literatur ist uns nur ein Versuch bekannt, der es gestattet, den obigen Wert zu prüfen /9/. Bei diesem Experiment wurde in einem kegelförmigen Clusterstrahl ein kreisförmiges Hindernis angebracht und dahinter das Strahlprofil mit einer Ionisationsmanometerröhre als Detektor ausgemessen. Man erhält unter Berücksichtigung des Apparateprofils eine endliche Flankensteilheit, die der Autor durch ein $v_{thermisch}$ quer zum Strahl erklärt. Setzt man die entsprechenden Werte - also den Abstand des Hindernisses vom Detektor (= 136 mm) und die endliche Flankensteilheit (= 1,5 mm) - ein, so erhält man

$$\frac{v_{cluster}}{v_{thermisch}} = \frac{136}{1,5} \approx 0,9 \cdot 10^2$$

Betrachtet man bei unseren Messungen der Flankensteilheit den Rand der Kollimatoröffnung als Hindernis und deutet die Ergebnisse in gleicher Weise, so erhält man die Zahlenwerte 200 mm bzw. 0,4 mm, also

$$\frac{v_{cluster}}{v_{thermisch}} = \frac{200}{0,4} = 5 \cdot 10^2$$

Für unseren Detektor bedeutet dies, daß praktisch keine Cluster auf unser Blendensystem auftreffen.

Berechnung des Potentialverlaufes im Detektor: Wie eingangs bereits erwähnt, haben wir den Potentialverlauf im Detektor berechnet durch die numerische Lösung der Laplacegleichung mit einem Computerprogramm. Dabei haben wir eine Maschenweite von 0,5 mm in radialer und achsialer Richtung angenommen. Das Verfahren war beendet, wenn die relative Änderung des Potentials bei einem neuen Durchlauf kleiner als 10^{-4} war. Das gesamte Programm war beendet, wenn das Potential in weniger als 5 Raumpunkten korrigiert wurde. Damit wir geeignete Randbedingungen erhalten, wurde angenommen, daß der Detektor von einem Becher nach außen begrenzt wird (Abb.8).

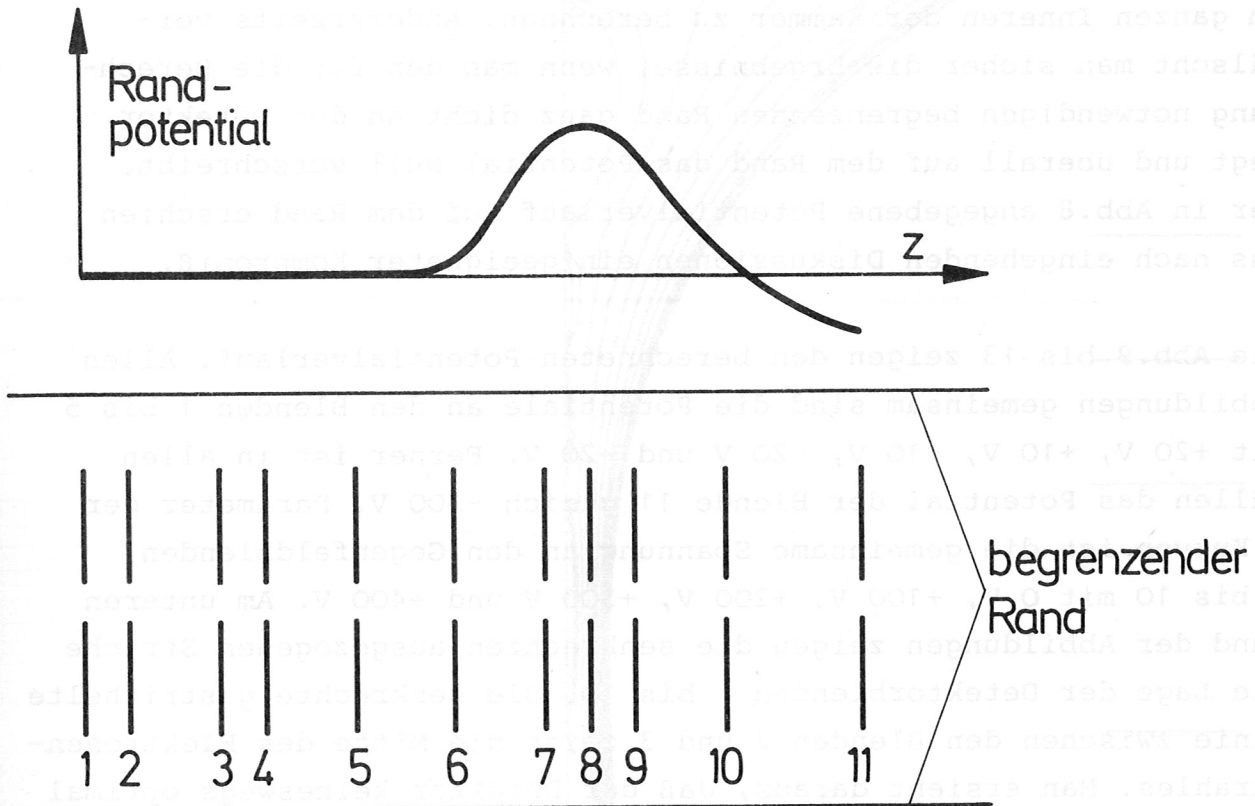


Abb.8: Randbedingungen für die Berechnung des Potentialverlaufes im Detektor

Dabei wurde das Potential des begrenzenden Randes aber nicht überall gleich gewählt, sondern, wie die Abb.8 zeigt, nur im Bereich der Blenden 1 bis 5 zu Null. Im Bereich der Gegenfeldblenden 6 bis 10 wurde es positiv angenommen mit einem Maximalwert von $\frac{3}{5}$ des jeweiligen Gegenfeldpotentials. Das Potential ging dann durch Null, wurde negativ und zwar bis zu einem Maximalwert von $\frac{1}{5}$ der jeweiligen negativen Auffängerspannung am Ort der Blende 11. Die Rechnungen wurden zwischen Blende 10 und 11 abgebrochen, da hier der Potentialverlauf nicht mehr interessiert. Diese Annahme war aus mehreren Gründen notwendig. Der Detektor befindet sich in einer metallischen Kammer, deren Wände aber sehr weit weg sind und das Potential Null haben. Es würde aber einen

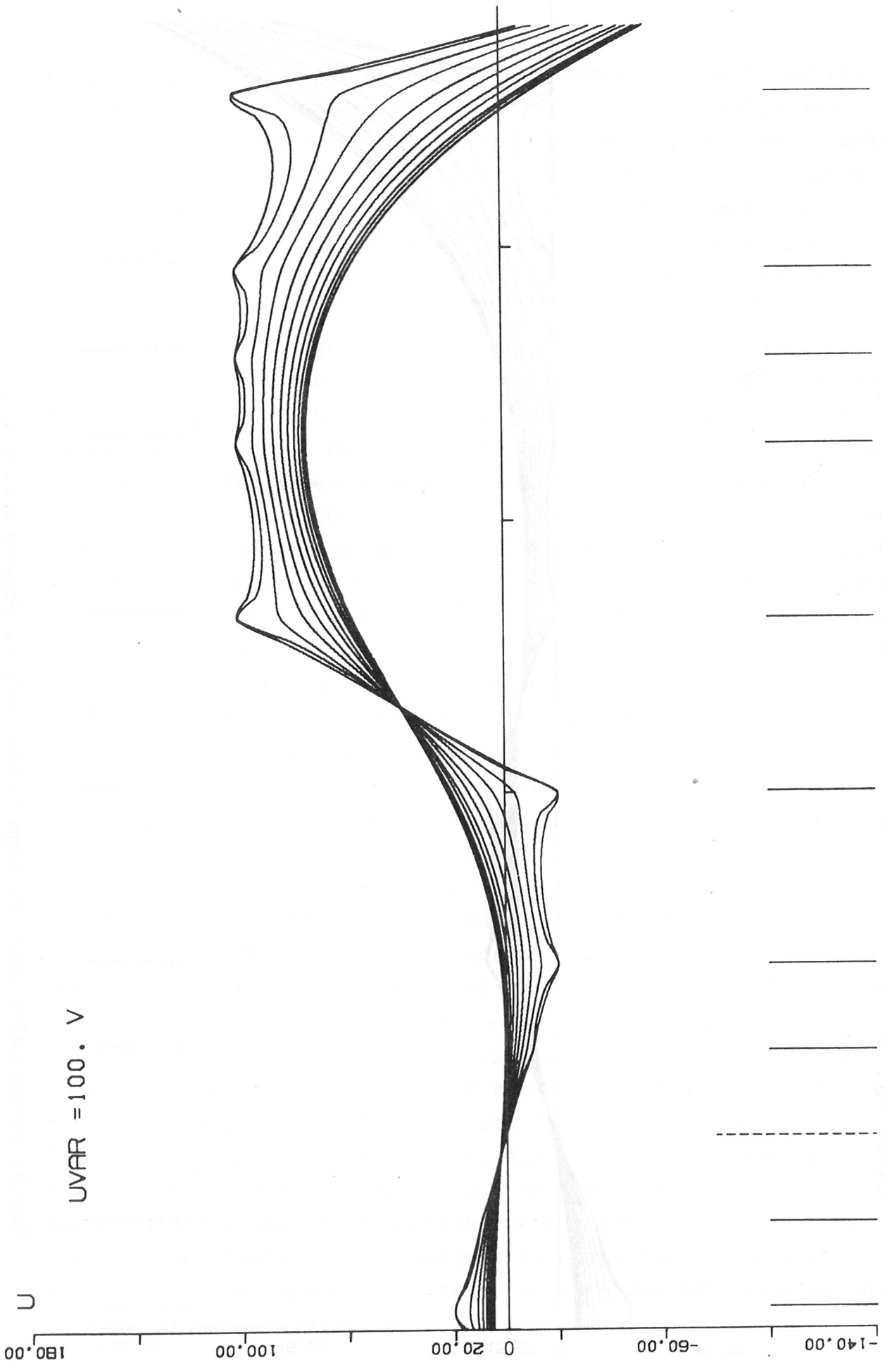
unverantwortlich großen Rechenaufwand bedeuten, das Potential im ganzen Inneren der Kammer zu berechnen. Andererseits verfälscht man sicher die Ergebnisse, wenn man den für die Berechnung notwendigen begrenzenden Rand ganz dicht an den Detektor legt und überall auf dem Rand das Potential Null vorschreibt. Der in Abb.8 angegebene Potentialverlauf auf dem Rand erschien uns nach eingehenden Diskussionen ein geeigneter Kompromiß.

Die Abb.9 bis 13 zeigen den berechneten Potentialverlauf. Allen Abbildungen gemeinsam sind die Potentiale an den Blenden 1 bis 5 mit +20 V, +10 V, -10 V, -20 V und -20 V. Ferner ist in allen Fällen das Potential der Blende 11 gleich -300 V. Parameter der 5 Kurven ist die gemeinsame Spannung an den Gegenfeldblenden 6 bis 10 mit 0 V, +100 V, +200 V, +300 V und +400 V. Am unteren Rand der Abbildungen zeigen die senkrechten ausgezogenen Striche die Lage der Detektorblenden 1 bis 10. Die senkrechte gestrichelte Linie zwischen den Blenden 2 und 3 zeigt die Mitte des Elektronenstrahles. Man ersieht daraus, daß der Detektor keineswegs optimal gestaltet ist; denn der Durchgriff des großen Gegenfeldpotentials in den Ionisationsbereich hinein ist noch relativ stark. Betrachtet man als Beispiel die Abb.13 im Bereich des Gegenfeldes, so entspricht die unterste Kurve dem Potentialverlauf auf der Achse. Die nächsten darüberliegenden Kurven gehören von unten nach oben zu den Radien $r = 0,5; 1,0; 1,5; 2,0; 2,5; 3,0; 3,5; 4,0; 4,5$ und $5,0$ mm. Die oberste Kurve für $r = 5,0$ mm zeigt am Ort der fünf Gegenfeldblenden und natürlich auch bei allen anderen Blenden ausgeprägte Spitzen, da sie entsprechend einem Lochdurchmesser von 10 mm die Blenden berührt und damit das jeweilige Blendenpotential annimmt. Die Abb.14 zeigt nochmals anschaulich in perspektivischer Darstellung den Potentialverlauf im Detektor für eine Gegenfeldspannung von 300 V. Die vorderste Kurve entspricht wieder dem Potentialverlauf auf der Achse. Jetzt sind nur doppelt so viele Potentialkurven gezeichnet, d.h. die zweite Kurve gehört zu $r = 0,25$ mm, die dritte zu $r = 0,5$ mm usw. Zur Ermittlung der Potentialdifferenz und des Unschärfebereiches ΔU zwischen Ionisationsort und maximal durchlaufener Gegenspannung wird man natürlich nicht diese ungenauen Kurven, sondern den Zahlenoutput des Computerprogrammes benutzen.



UVAR = 0. V

Abb.9: Potentialverlauf im Gegenfelddetektor, Gegenspannung 0 V



UVAR = 100. V

Abb.10: Potentialverlauf im Gegenfelddetektor, Gegenspannung +100 V



Abb.11: Potentialverlauf im Gegenfelddetektor, Gegenspannung +200 V

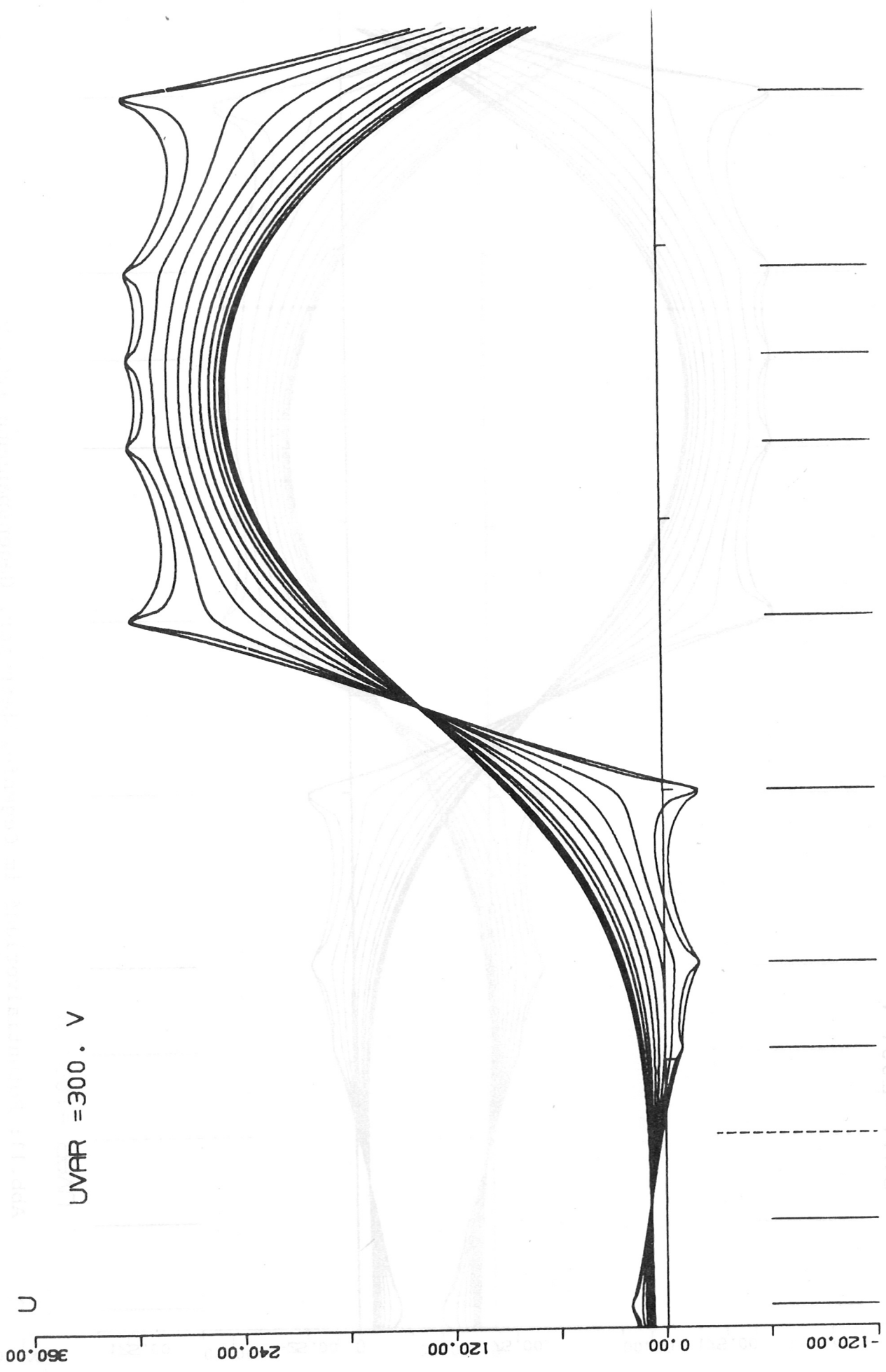


Abb.12: Potentialverlauf im Gegenfelddetektor, Gegenspannung +300 V

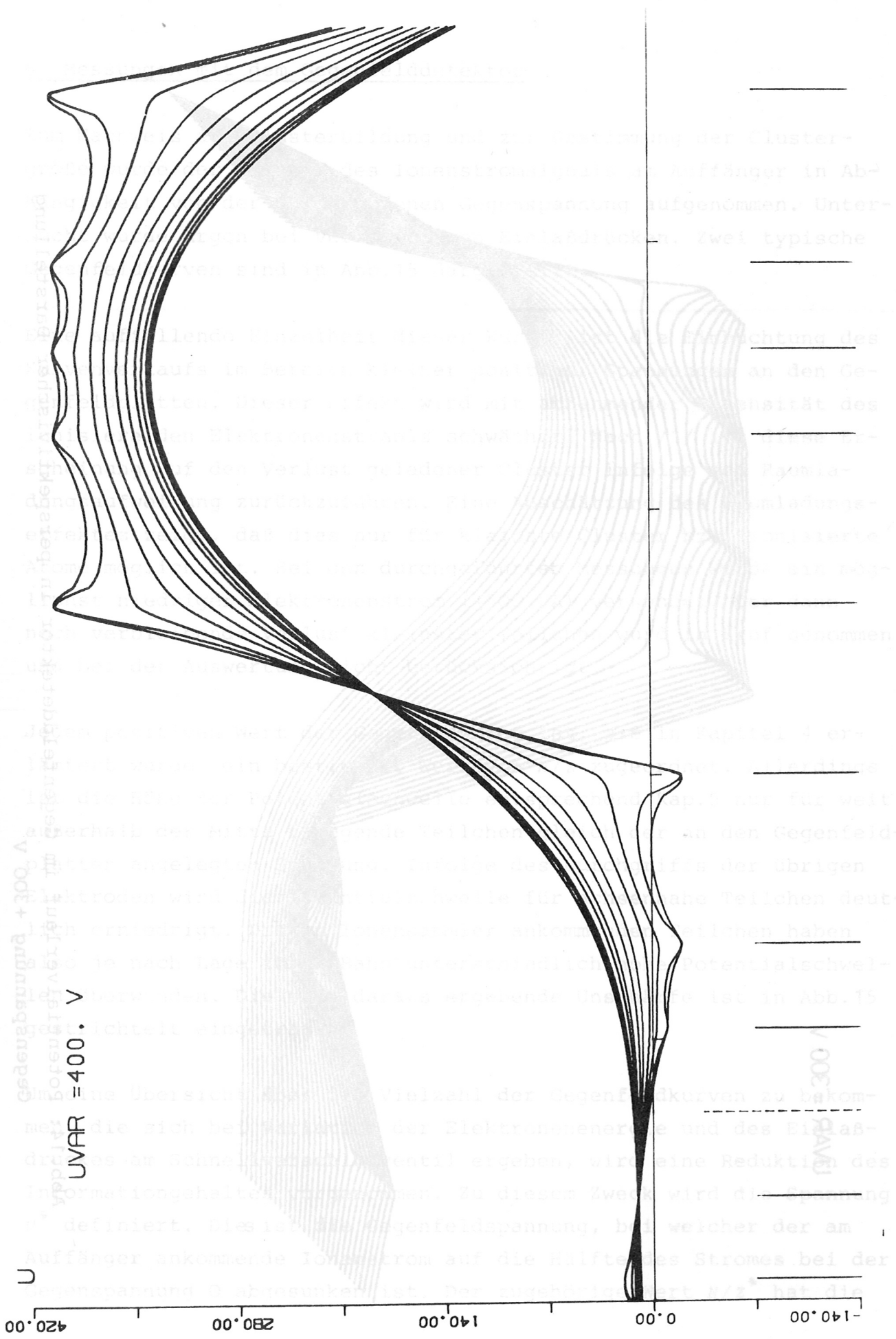


Abb.13: Potentialverlauf im Gegenfelddetektor, Gegenspannung +400 V

UVAR = 300 V

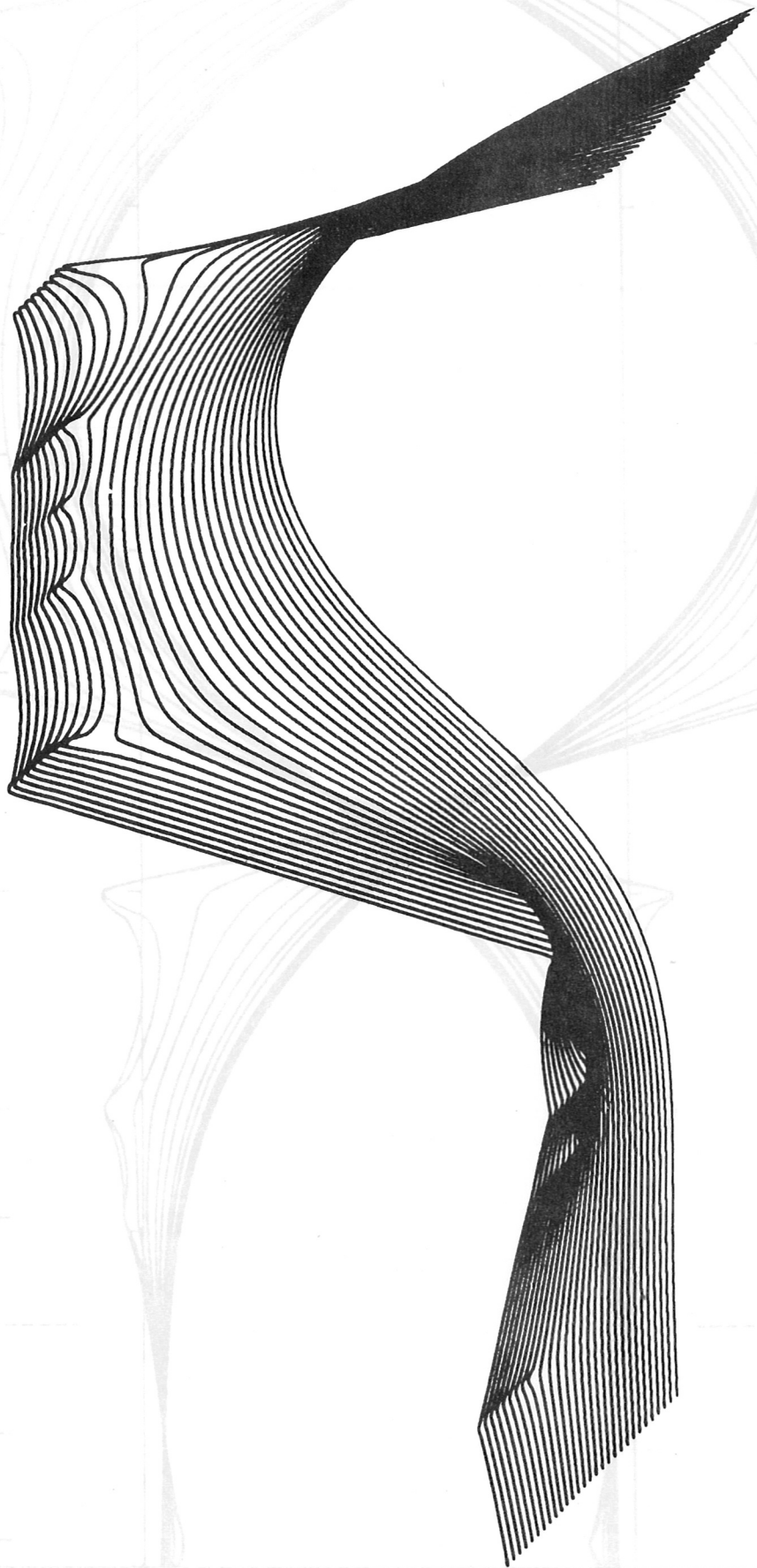


Abb. 14: Potentialverlauf im Gegenfelddetektor in perspektivischer Darstellung
Gegenspannung +300 V

6. Messungen mit dem Gegenfelddetektor

Zum Nachweis der Clusterbildung und zur Bestimmung der Clustergröße wurde der Verlauf des Ionenstromsignals am Auffänger in Abhängigkeit von der durchlaufenen Gegenspannung aufgenommen. Untersucht wurde Argon bei verschiedenen Einlaßdrücken. Zwei typische Gegenfeldkurven sind in Abb.15 dargestellt.

Eine auffallende Einzelheit dieser Kurven ist die Einbuchtung des Kurvenverlaufs im Bereich kleiner positiver Spannungen an den Gegenfeldplatten. Dieser Effekt wird mit abnehmender Intensität des ionisierenden Elektronenstrahls schwächer. Nach /1/ ist diese Erscheinung auf den Verlust geladener Cluster infolge von Raumladungsaufweitung zurückzuführen. Eine Abschätzung des Raumladungseffektes zeigt, daß dies nur für kleinste Cluster bzw. ionisierte Atome möglich ist. Bei den durchgeführten Messungen wurde ein möglichst niedriger Elektronenstrom ($\approx 500 \mu\text{A}$) verwendet. Der dann noch verbleibende Verlust kleinster Teilchen wurde in Kauf genommen und bei der Auswertung nicht berücksichtigt.

Jedem positiven Wert der Gegenspannung ist, wie in Kapitel 4 erläutert wurde, ein bestimmter Wert von N/Z zugeordnet. Allerdings ist die Höhe der Potentialschwelle entsprechend Kap.5 nur für weit außerhalb der Mitte fliegende Teilchen gleich der an den Gegenfeldplatten angelegten Spannung. Infolge des Durchgriffs der übrigen Elektroden wird die Potentialschwelle für achsennahe Teilchen deutlich erniedrigt. Die am Ionensammler ankommenden Teilchen haben also je nach Lage ihrer Bahn unterschiedlich hohe Potentialschwellen überwunden. Die sich daraus ergebende Unschärfe ist in Abb.15 gestrichelt eingetragen.

Um eine Übersicht über die Vielzahl der Gegenfeldkurven zu bekommen, die sich bei Variation der Elektronenenergie und des Einlaßdruckes am Schnellverschlußventil ergeben, wird eine Reduktion des Informationsgehaltes vorgenommen. Zu diesem Zweck wird die Spannung U^* definiert. Dies ist die Gegenfeldspannung, bei welcher der am Auffänger ankommende Ionenstrom auf die Hälfte des Stromes bei der Gegenspannung 0 abgesunken ist. Der zugehörige Wert N/Z^* hat die

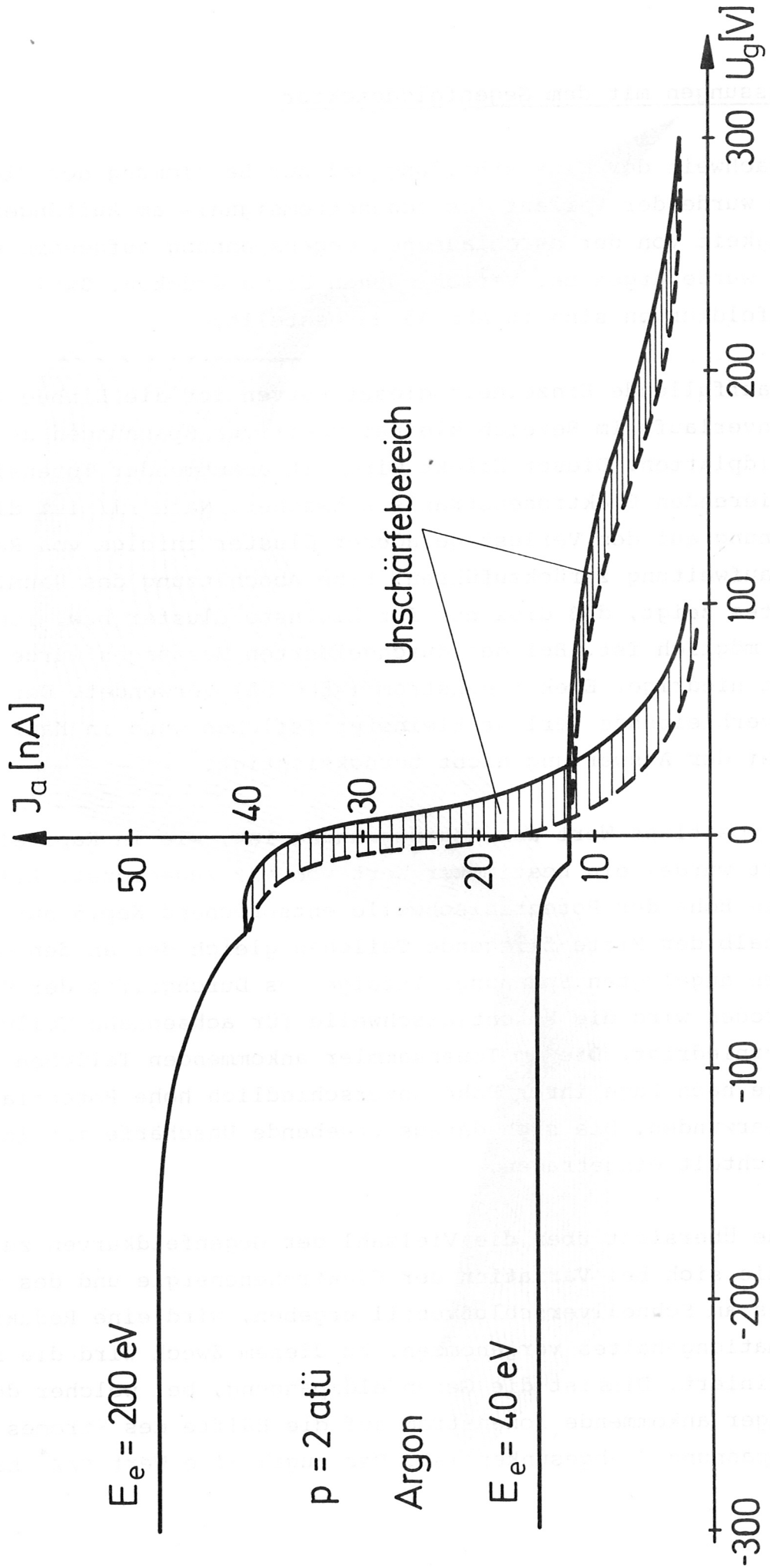


Abb. 15: Typische Gegenfeldkurven mit Angabe des Unschärfbereiches

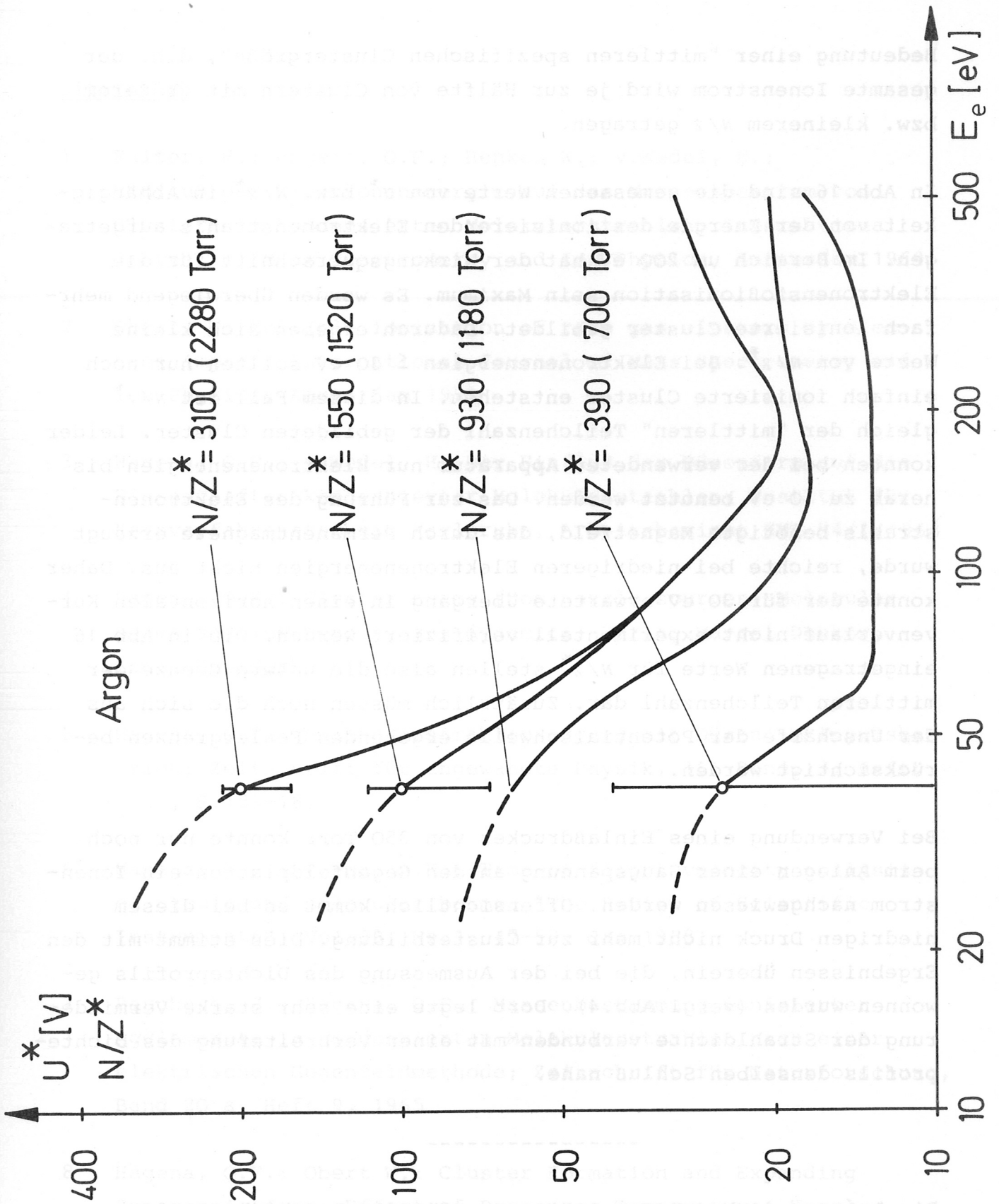


Abb.16: Mittlere spezifische Clustergröße für Argon in Abhängigkeit von der Energie des ionisierenden Elektronenstrahls und vom Einlaßdruck

Bedeutung einer "mittleren spezifischen Clustergröße", d.h. der gesamte Ionenstrom wird je zur Hälfte von Clustern mit größerem bzw. kleinerem N/Z getragen.

In Abb.16 sind die gemessenen Werte von U^* bzw. N/Z^* in Abhängigkeit von der Energie des ionisierenden Elektronenstrahls aufgetragen. Im Bereich um 200 eV hat der Wirkungsquerschnitt für die Elektronenstoßionisation sein Maximum. Es werden überwiegend mehrfach ionisierte Cluster gebildet. Dadurch ergeben sich kleine Werte von N/Z^* . Bei Elektronenenergien ≤ 30 eV sollten nur noch einfach ionisierte Cluster entstehen. In diesem Fall ist N/Z^* gleich der "mittleren" Teilchenzahl der gebildeten Cluster. Leider konnten bei der verwendeten Apparatur nur Elektronenenergien bis herab zu 40 eV benutzt werden. Das zur Führung des Elektronenstrahls benötigte Magnetfeld, das durch Permanentmagnete erzeugt wurde, reichte bei niedrigeren Elektronenenergien nicht aus. Daher konnte der für 30 eV erwartete Übergang in einen horizontalen Kurvenverlauf nicht experimentell verifiziert werden. Die in Abb.16 eingetragenen Werte für N/Z^* stellen also die untere Grenze der mittleren Teilchenzahl dar. Zusätzlich müssen noch die sich aus der Unschärfe der Potentialschwelle ergebenden Fehlergrenzen berücksichtigt werden.

Bei Verwendung eines Einlaßdruckes von 350 Torr konnte nur noch beim Anlegen einer Saugspannung an den Gegenfeldplatten ein Ionenstrom nachgewiesen werden. Offensichtlich kommt es bei diesem niedrigen Druck nicht mehr zur Clusterbildung. Dies stimmt mit den Ergebnissen überein, die bei der Ausmessung des Dichteprofiles gewonnen wurden (vergl. Abb.4). Dort legte eine sehr starke Verminderung der Strahldichte verbunden mit einer Verbreiterung des Dichteprofiles denselben Schluß nahe.

Die Autoren danken Herrn Springmann für die Durchführung der numerischen Berechnungen.

Literatur

- 1 Falter, H.; Hagena, O.F.; Henkes W.; v.Wedel, H.:
Einfluß der Elektronenenergie auf das Massenspektrum von Clustern in kondensierten Molekularstrahlen; International Journal of Mass Spectrometry and Ion Physics, Amsterdam 1969
- 2 Obert, W.: Multiple ionization of rare gas clusters by electron impact; International Journal of Mass Spectrometry and Ion Physics, Amsterdam 1971
- 3 Hagena, O.F.; v.Wedel, H.: Der Einfluß der Düsenform auf die Eigenschaften kondensierter Molekularstrahlen; Institut für Kernverfahrenstechnik Karlsruhe, Arbeitsbericht KVT 54/1, 1968
- 4 Hagena, O.F.: Cluster beams from nozzle sources; Molecular beams and low density gas dynamics; Verlag Marcel Dekker, Inc., New York
- 5 Hagena, O.F.: Molekularstrahlerzeugung mit Düsen im Impulsbetrieb; Zeitschrift für angewandte Physik, 16. Band, 3. Heft, 1963, S.183-187
- 6 Hagena, O.F.; Varma, A.K.: Time-of-flight velocity analysis of atomic and molecular beams; "The Review of Scientific Instruments", Vol.39, Nr.1, 47-52, Jan.1968
- 7 Bauchert, J.; Hagena, O.F.: Massenbestimmung ionisierter Agglomerate in kondensierten Molekularstrahlen nach einer elektrischen Gegenfeldmethode; Zeitschrift für Naturforschung, Band 20 a, Heft 9, 1965
- 8 Hagena, O.F.; Obert W.: Cluster Formation and Expanding Supersonic Jets: Effect of Pressure, Temperature, Nozzle Size, and Test Gas; The Journal of Chemical Physics, Vol56, Nr.5, March 1972

- 9 Hagen, O.F.; v.Wedel, H.: Strahlprofil, Intensität und Clustergröße von stark divergenten CO_2 -Clusterstrahlen; Arbeitsbericht aus dem Institut für Kernverfahrenstechnik Karlsruhe
- 10 Hagen, O.F.; Obert, W.: Einfluß des Ausgangsdruckes p_0 , der Düsentemperatur T_0 und der Düsenform auf die Kondensation verschiedener Gase, Experimentelle Prüfung des Theorems der "übereinstimmenden Strömungen"; Institut für Kernverfahrenstechnik Karlsruhe, Arbeitsbericht KVT 54/3, Januar 1970