
Aufbau einer Düsenstrahlquelle
zur Erzeugung von ^3He - und
großen ^4He -Tröpfchen

Diplomarbeit

Oliver Bünermann

September 2003

Fakultät für Physik
Universität Bielefeld

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Theorie	3
2.1	Grundlegende Eigenschaften von Helium	3
2.2	Flüssiges ^4He	5
2.3	Flüssiges ^3He	6
2.3.1	Das ideale Fermi-Gas	6
2.3.2	Die Fermi-Flüssigkeit	8
2.3.3	Vergleich beider Theorien mit experimentellen Daten .	11
2.3.4	Suprafluides ^3He	14
2.4	Clusterbildung in einer Düsenstrahlquelle	15
2.5	Eigenschaften von Heliumtröpfchen	18
2.5.1	Tröpfchengröße, Größenverteilung und Form	18
2.5.2	Tröpfchentemperatur, Bindungsenergie	23
2.5.3	Geschwindigkeitsverteilung des Tröpfchenstrahls	24
2.5.4	Radiales Dichteprofil der Heliumtröpfchen	25
2.6	Dotierung von Heliumtröpfchen	26
3	Experimenteller Aufbau	29
3.1	Aufbau der Apparatur	29
3.1.1	Kammersystem	29
3.1.2	Optischer Aufbau	33
3.1.3	Datenaufnahme	34
3.2	Aufbau der neuen Clusterquelle	35
3.2.1	Der Kaltkopf	35
3.2.2	Die neue Clusterquelle	37
3.2.3	Gaszuleitungssystem	40
3.3	Experimentelle Methoden	42
3.3.1	Laserinduzierte Fluoreszenz (LIF)	42
3.3.2	Laserinduzierte Strahlabschwächung (LIBD)	43
3.4	Düsenwechsel	44
4	Messergebnisse und Auswertung	45
4.1	Spezifizierung der Clusterquelle	45
4.2	Spektroskopie von Na-dotierten ^4He -Tröpfchen	52
4.3	Spektroskopie von Na dotierten ^3He -Tröpfchen	63

5 Zeitaufgelöste Spektroskopie	67
5.1 Experimenteller Aufbau	67
5.2 Massenspektrum der Heliumtröpfchen	68
5.3 Oberflächendynamik	69
5.4 Exziplex-Bildung	70
6 Zusammenfassung und Ausblick	74
L Literatur	77

1 Einleitung

Untersuchungen von Atom- und Molekülclustern ermöglichen, eine Verbindung zwischen der Physik der Atome und Moleküle sowie der Physik der kondensierten Materie herzustellen. Diese Arbeit beschäftigt sich speziell mit Clustern aus den beiden Heliumisotopen ^3He und ^4He . Heliumcluster sind die einzigen bekannten Cluster die flüssig sind, daher werden sie auch als Tröpfchen bezeichnet.

Die beiden Heliumisotope besitzen faszinierende Eigenschaften. ^4He ist der Prototyp eines idealen Bose-Gases, wohingegen ^3He ein Gas aus Fermionen darstellt. Bei tiefen Temperaturen treten die verschiedenen Quanteneigenschaften der beiden Isotope zu Tage, wie zum Beispiel die Suprafluidität. Das Auftreten bzw. der Einfluss dieser Eigenschaften beider Heliumisotope kann anhand von Untersuchungen an Tröpfchen beider Isotope herausgestellt werden.

Zur Erzeugung von Heliumtröpfchen wird eine Düsenstrahlquelle benötigt. Bereits 1961 wurde die erste Apparatur zur Erzeugung eines Heliumtröpfchenstrahls von Becker et al. entwickelt [BKL61]. Aus einem Reservoir, in dem hoher Druck und sehr niedrige Temperatur herrscht, wird Helium durch eine kleine Düse ins Vakuum expandiert. Dabei entsteht ein Heliumstrahl mit einer sehr schmalen Geschwindigkeitsverteilung, in dem sich Cluster bilden können. Dieses Prinzip ist bis heute die einzige Möglichkeit, einen Strahl aus Heliumtröpfchen zu erzeugen.

Heliumtröpfchen können auf verschiedene Arten untersucht werden. Durch Streuung des Heliumtröpfchenstrahls an einem Sekundärstrahl kann zum Beispiel die mittlere Tröpfchengröße, die Tröpfchengrößenverteilung und das radiale Dichteprofil der Heliumtröpfchen bestimmt werden. Ein Laserstrahl eignet sich nicht um Heliumtröpfchen direkt zu untersuchen, da diese transparent für ihn erscheinen. Die Verwendung von in Tröpfchen eingelagerten Fremdteilchen als Sonden ist eine weitere Methode, um Experimente mit Heliumtröpfchen durchzuführen. Diese können dann mittels eines Laserstrahls untersucht und der Einfluss der Heliumumgebung auf die Eigenschaften der Fremdteilchen bestimmt werden. Als Sonden verwendet man verschiedene Moleküle und Atome. Im Rahmen dieser Arbeit wurden Alkaliatome als Sonden genutzt, um die Oberflächeneigenschaften der Tröpfchen zu erforschen.

Alkali- sowie Erdalkaliatome nehmen in Verbindung mit Heliumtröpfchen eine besondere Stellung ein. Im Gegensatz zu anderen Fremdteilchen lagern sie sich nicht im Zentrum der Tröpfchen an. Alkaliatome werden auf deren Oberfläche gebunden [SHC⁺96] und Erdalkaliatome befinden sich in der verdünnten Oberflächenschicht der Tröpfchen [SML99]. Entsprechende Experimente mit ^3He -Tröpfchen sind bis zu dieser Arbeit noch nicht durchgeführt worden. Da durch einen Vergleich der beiden Systeme der Unterschied zwischen normal- und suprafluiden Tröpfchen erarbeitet werden kann, bestand ein großes Interesse an derartigen Untersuchungen.

Heliumtröpfchen werden auch als ultrakalte Matrix zur Spektroskopie von

Molekülen und Atomen verwendet (HENDI=Helium-Nanodroplet-Isolation) [SV01]. Moleküle und die meisten Atome lagern sich dabei in der Mitte der Tröpfchen an und werden durch die sehr kalte Umgebung gekühlt. Dies führt im Spektrum zu einer erheblichen Reduzierung der Linien, da die thermische Besetzung höherer Energieniveaus stark zurückgeht. Somit ist es möglich, hochauflösende Spektroskopie durchzuführen. Allerdings muss der Einfluss der Matrix der Heliumtröpfchen auf das Spektrum beachtet werden. Daher sind ^4He -Tröpfchen aufgrund ihrer Suprafluidität besser geeignet als ^3He -Tröpfchen, weil sie nur schwach mit den eingelagerten Fremdteilchen wechselwirken.

Die Erforschung von Heliumtröpfchen erfuhr in den letzten Jahren viel Beachtung. 2001 wurde eine Sonderausgabe der Zeitschrift *journal of chemical physics* über dieses Thema veröffentlicht. In ihr finden sich Übersichtsartikel über den derzeitigen Kenntnisstand. Die experimentellen Ergebnisse werden in den Artikeln [Nor01, SV01, CLSS01] zusammengefasst. Auf die entstandenen theoretischen Modelle wird in den Artikeln [DS01, CM01] eingegangen. Ein etwas älterer Artikel von K. B. Whaley stellt sehr ausführlich die Theorie der Heliumtröpfchen dar [Wha94].

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine Düsenstrahlquelle aufgebaut, die es möglich machen sollte, genügend tiefe Temperaturen zu erreichen, um ^3He -Tröpfchen zu erzeugen. Da bereits zwei Düsenstrahlquellen in der Arbeitsgruppe vorhanden waren, wurde deren Prinzip beim Planen dieser Quelle übernommen [Häg99]. Ferner sollte gezeigt werden, ob und in welcher Art sich Alkaliatome an ^3He -Tröpfchen binden und ob die Dotierungseffizienz groß genug ist, um nachweisbare Intensitäten zu erhalten. Die Intention der Experimente lag darin, mit Alkaliatomen dotierte ^3He -Tröpfchen zu untersuchen und die Unterschiede zwischen ^3He - und ^4He -Tröpfchen in Hinblick auf ihre unterschiedlichen Quanteneigenschaften, insbesondere die Suprafluidität der ^4He -Tröpfchen, herauszustellen. Zur Klärung der Frage, inwiefern die Alkaliatome an ^3He -Tröpfchen gebunden sind, wurde ein Absorptionsspektrum eines Alkali dotierten ^3He -Tröpfchens aufgenommen. Darüberhinaus wurde die Dynamik der ^3He -Tröpfchen-Alkaliatom-Komplexe mittels Echtzeitspektroskopie untersucht und anschließend mit der Dynamik der ^4He -Tröpfchen verglichen.

Funktionsweise und Charakteristika der entstandenen Clusterquelle werden in dieser Arbeit erläutert. Zusätzlich wurde der Einfluss sehr großer ^4He -Tröpfchen auf das $\text{Na}(^4\text{He}_N)$ -Spektrum untersucht. Mit Hilfe der neuen Quelle wurde ein $\text{Na}(^3\text{He}_N)$ -Spektrum aufgenommen. Darüberhinaus wurde im Rahmen einer Zusammenarbeit mit dem Max-Born-Institut in Berlin zeitaufgelöste Spektroskopie an $\text{Cs}(^3\text{He}_N)$, $\text{Rb}(^3\text{He}_N)$ und $\text{K}(^3\text{He}_N)$ durchgeführt.

2 Theorie

Die aus den beiden Heliumisotopen ^3He und ^4He gebildeten Tröpfchen unterscheiden sich erheblich in ihren makroskopischen Eigenschaften. Während die ^4He -Tröpfchen, die eine Gleichgewichtstemperatur von 380 mK [HHT⁺97] besitzen, suprafluid [HMTV96] sind, verhalten sich ^3He -Tröpfchen trotz der tieferen Gleichgewichtstemperatur von 150 mK [HHT⁺97] normalfluid. Dies hat seine Ursache in den unterschiedlichen Kernspins der beiden Isotope. Diese Differenzen sollen in der Theorie herausgestellt und ihr Einfluss auf die Konstruktion der Clusterquelle sowie auf die durchgeführten Experimente erläutert werden. Dazu werden zuerst die besonderen Eigenschaften des makroskopischen ^4He in seiner flüssigen Phase kurz beschrieben. Daraufhin folgt eine ausführliche Diskussion der relevanten Charakteristika von flüssigem ^3He . Diese Ausführungen orientieren sich an den Büchern [EH00] und [Kel69]. Nach einer knappen Erläuterung des Prozesses der Clusterbildung in einer Düsenstrahlquelle werden die Eigenschaften von ^4He - und ^3He -Tröpfchen erläutert und gegenübergestellt. Abschließend wird noch die Dotierung der Tröpfchen mit Fremtteilchen besprochen.

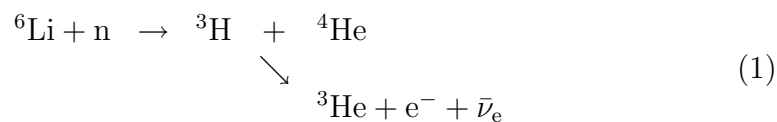
2.1 Grundlegende Eigenschaften von Helium

1868 entdeckte der französische Astronom *Jules Jannssen* eine gelbe Linie im Spektrum der Sonne. Sie konnte keinem der zu dieser Zeit bekannten Elemente zugewiesen werden. Das neu entdeckte Element wurde nach dem griechischen Begriff für die Sonne, Helios, Helium benannt. Fast 30 Jahre später, im Jahre 1895, entdeckte *William Ramsay* dann schließlich Helium auf der Erde. 1908 gelang es *Heike Kamerlingh Onnes*, Helium zu verflüssigen und die moderne Tieftemperaturphysik fand ihren Anfang.

Isotope von Helium

Helium besitzt zwei stabile Isotope. ^4He hat dabei den weitaus größten Anteil am Gasvorkommen auf der Erde. Der natürliche Anteil des Isotops ^3He ist mit 0,14 ppm sehr gering [EH00]. Entdeckt wurde ^3He 1933 von *Oliphant, Kinsey* und *Rutherford*.

^4He wird hauptsächlich aus Erdgasvorkommen gewonnen. Der Jahresverbrauch alleine für Kühlzwecke beläuft sich auf knapp $9 \cdot 10^7$ l [Ber92]. ^3He muss, um es in Experimenten nutzen zu können, künstlich durch Kernreaktionen produziert werden. Zur Herstellung ist man somit auf Abfallprodukte aus Kernreaktoren und Wasserstoffbomben angewiesen. Der Beschuss von Lithium mit Neutronen erzeugt die Reaktion:



Das durch die Reaktion entstandene Tritium zerfällt über einen β -Zerfall in ^3He . Die Halbwertszeit von Tritium beträgt dabei 12,5 Jahre. Da man auf Kernreaktoren angewiesen ist, stand erst Ende der 50er Jahre eine ausreichende Menge von ^3He für Experimente zur Verfügung. Die Jahresproduktion an ^3He beläuft sich zur Zeit auf $1,5 \cdot 10^6$ l/Jahr [Hei97]. Aufgrund der schwierigen und zeitaufwendigen Herstellung ist es sehr teuer. Ein Gasliter ^3He in der Reinheit 99,99995% kostet zur Zeit über €200,-.

Außer den beiden stabilen Isotopen, konnten im Labor noch weitere instabile hergestellt werden: ^5He mit $\tau_{1/2} = 0,8 \cdot 10^{21}$ s, ^6He mit $\tau_{1/2} = 0,80$ s, ^7He mit $\tau_{1/2} = 0,3 \cdot 10^{21}$ s, ^8He mit $\tau_{1/2} = 0,12$ s, ^9He und ^{10}He . Im Folgenden werden die Eigenschaften der beiden stabilen Heliumisotope besprochen, wobei das Hauptgewicht auf ^3He liegt.

Elektronische Struktur und Kernspin von ^4He und ^3He

Helium besitzt zwei Elektronen, hat damit eine abgeschlossene s-Elektronenschale und ist kugelsymmetrisch. Es ist trotz seiner größeren Nukleonen und Elektronenzahl kleiner als Wasserstoff und damit kleinstes Atom überhaupt. ^4He besitzt einen Atomkern aus zwei Protonen und zwei Neutronen. Daraus resultiert der Kernspin $I=0$, somit ist es ein Boson. ^3He hingegen ist ein Fermion, der Kern besteht aus zwei Protonen und einem Neutron. Demnach besitzt es den Kernspin $I=1/2 \hbar$.

Thermodynamische Eigenschaften von ^4He und ^3He

^4He und ^3He sind die einzigen Elemente, die bei Normaldruck nie fest werden, sondern bis $T = 0$ K flüssig sind. Sie lassen sich erst bei Drücken von $P \approx 30$ bar verflüssigen, da die Atome beide Isotope aufgrund ihrer geringen Masse eine hohe Nullpunktsenergie besitzen. Darüberhinaus sind sie nur sehr schwach über *van der Waals-Kräfte* gebunden. Ihre sehr niedrigen Siedepunkte resultieren ebenfalls aus diesen beiden Eigenschaften. Beide Elemente

	^3He	^4He
Dichte bei Normalbedingungen ρ_n [g/cm ³]	$1,3 \cdot 10^{-3}$	$1,7 \cdot 10^{-3}$
Siedetemperatur bei Normaldruck T_S [K]	3,19	4,21
kritische Temperatur T_k [K]	3,32	5,19
kritischer Druck p_k [bar]	1,16	2,29
Dichte $\rho_{T \rightarrow 0}$ [g/cm ³]	0,076	0,145
Dichte am Siedepunkt ρ_S [g/cm ³]	0,055	0,125
Schmelzdruck bei $T = 0$ K [bar]	36,84	25,36

Tabelle 1: Thermodynamische Eigenschaften der beiden Heliumisotope. [EH00, Pob96]

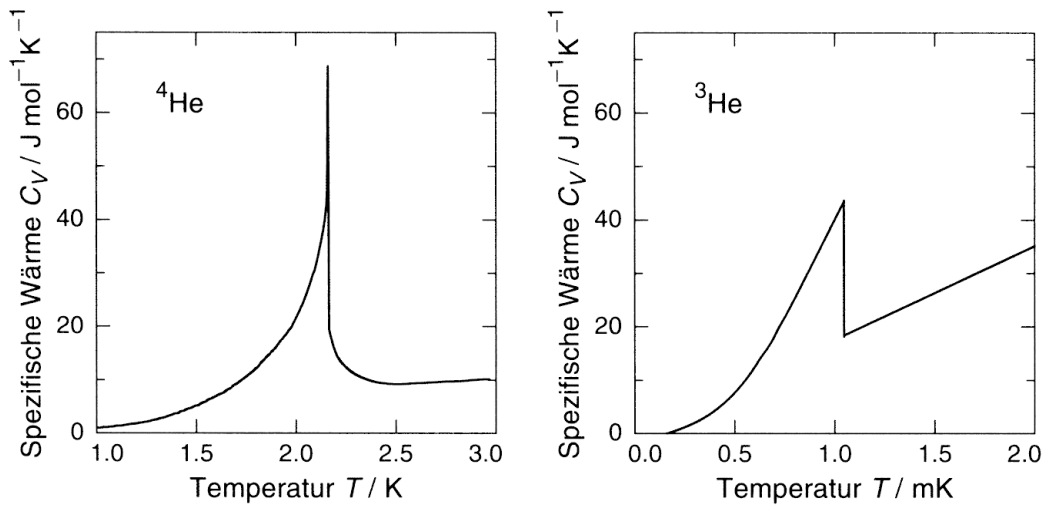


Abbildung 1: Temperaturverlauf der spezifischen Wärme von a) ${}^4\text{He}$ und b) ${}^3\text{He}$ in der Umgebung des λ -Punktes. [EH00]

besitzen keinen Tripelpunkt (Phasendiagramme Abbildungen 9+10). Tabelle 1 fasst einige wichtige thermodynamische Eigenschaften der beiden Isotope zusammen.

2.2 Flüssiges ${}^4\text{He}$

In diesem Abschnitt werden kurz die Eigenschaften von ${}^4\text{He}$ in der flüssigen Phase dargestellt. Die flüssige Phase des ${}^4\text{He}$ lässt sich in zwei Bereiche aufteilen. Bei Normaldruck verhält sich ${}^4\text{He}$ im Bereich von 2,17–4,21 K wie eine ideale Flüssigkeit. Bei 2,17 K tritt ein Phasenübergang auf. ${}^4\text{He}$ ist im Bereich von 0–2,17 K suprafluid.

Die Eigenschaften des ${}^4\text{He}$ verändern sich beim Übergang in die suprafluide Phase dramatisch. Abbildung 1 a) zeigt den Verlauf der spezifischen Wärme in Abhängigkeit der Temperatur. Bis 2,17 K verhält sie sich entsprechend einer idealen Flüssigkeit, sie ist konstant mit der Temperatur. Bei einer Temperatur von 2,17 K strebt die spezifische Wärme gegen unendlich, ein Phasenübergang findet statt. In der suprafluiden Phase konvergiert die spezifische Wärme mit abnehmender Temperatur gegen 0. Der Verlauf dieser Kurve erinnert an das griechische λ . Daher bezeichnet man den Ort des Phasenübergangs als λ -Punkt. Weitere besondere Eigenschaften des suprafluiden ${}^4\text{He}$ sind seine unendliche Wärmeleitfähigkeit, verschwindende Viskosität, der thermodynamische Effekt, das Auftreten des 2. Schalls und die Entstehung von Quantenwirbeln unter Rotation. Aufgrund ihrer Temperatur sind ${}^4\text{He}$ -Tröpfchen suprafluid (Kapitel 2.5.2). Weiter soll in dieser Arbeit nicht auf die Suprafluidität eingegangen werden. Ausführliche Darstellungen finden sich in den Büchern [EH00, Pob96, Ber75].

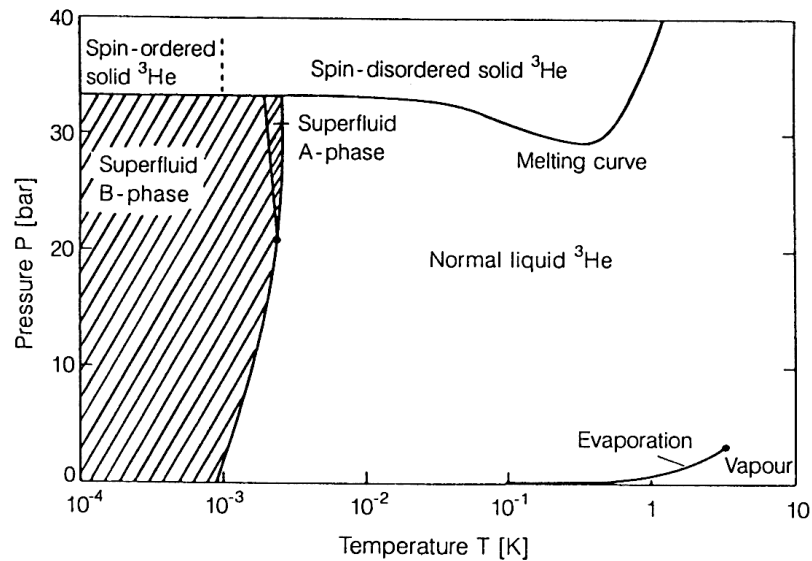


Abbildung 2: Phasendiagramm von ^3He bei tiefen Temperaturen. [Pob96]

2.3 Flüssiges ^3He

In der flüssigen Phase des ^3He treten andere Effekte als beim ^4He auf, da es sich bei ihm um ein Fermion handelt. Unter Normaldruck verhält es sich im Bereich von 1–3,19 K näherungsweise wie ein dichtes klassisches Gas, zum Beispiel ist die spezifische Wärme temperaturunabhängig. Unterhalb von 1 K beginnt die *Fermi-Dirac*-Statistik eine Rolle zu spielen und das Verhalten weicht von dem einer idealen Flüssigkeit ab. Erreichen die Temperaturen einen Bereich von 1–100 mK, verhält sich ^3He wie eine Fermi-Flüssigkeit. Bei einer Temperatur von 1 mK findet sich ein Phasenübergang in eine suprafluide Phase. Abbildung 2 zeigt das Phasendiagramm von ^3He bei sehr niedrigen Temperaturen. Man kann drei unterschiedliche suprafluide Phasen unterscheiden, wobei sich eine davon nur unter Einfluss eines Magnetfeldes zeigt. Die Ausführungen sollen sich hauptsächlich auf den Bereich konzentrieren, in dem sich ^3He wie eine Fermi-Flüssigkeit verhält.

Die *Fermi-Dirac*-Statistik und die starke Wechselwirkung der Nukleonen geben dem ^3He seine besonderen Eigenschaften bei Temperaturen im mK Bereich. *Landau* entwickelte das Modell der Fermi-Flüssigkeit. Es baut auf der Theorie des idealen Fermi-Gases auf und ermöglicht, die makroskopischen Eigenschaften des ^3He zu beschreiben. Beide Theorien sollen kurz dargestellt und anschließend mit experimentellen Daten verglichen werden.

2.3.1 Das ideale Fermi-Gas

Bei der Theorie des idealen Fermi-Gases wird davon ausgegangen, dass die Fermionen untereinander nicht wechselwirken. Die Zustandsdichte freier Fer-

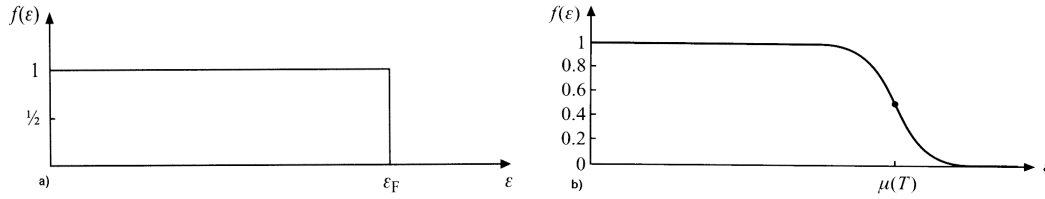


Abbildung 3: *Fermi-Dirac*-Verteilung bei: **a)** $T = 0$ K, **b)** $0 \text{ K} < T \ll T_F$.
[Bai99]

mionen lautet folgendermaßen:

$$D(E) = \frac{(2m)^{\frac{3}{2}} \sqrt{E}}{2\pi^2 \hbar^3} \quad (2)$$

E bezeichnet hierbei die Energie eines Zustandes, m die Masse der ${}^3\text{He}$ -Atome und \hbar das planck'sche Wirkungsquantum geteilt durch 2π . Die Verteilungsfunktion für Fermionen entspricht der *Fermi-Dirac*-Verteilung:

$$f(E, T) = \frac{1}{e^{(E-\mu)/k_B T} + 1} \quad (3)$$

μ entspricht hierbei dem chemischen Potential, welches über die Beziehung $f(E, T) = 1/2$ festgelegt ist, und k_B der *Boltzmannkonstante*. Für $T = 0$ K sind alle Zustände bis zur Fermi-Energie belegt, wobei aufgrund des *Pauli-Prinzips* jeder Zustand mit zwei ${}^3\text{He}$ -Atomen besetzt ist. Abbildung 3 **a)** zeigt die Verteilungsfunktion für $T \rightarrow 0$ K. Für $0 \text{ K} < T \ll T_F$ werden energetisch höhere Zustände eingenommen, die Kante weicht auf. Die Verteilung folgt dann der Form von Abbildung 3 **b)**. Liegt die Temperatur oberhalb der Fermi-Temperatur, kann die Verteilung durch eine *Bose-Einstein*-Verteilung angenähert werden. Damit verhält sich ein Fermi-Gas bei derartigen Temperaturen wie ein Bose-Gas.

Die Masse m , sowie die Anzahldichte n bestimmen den Wert der Fermi-Energie E_F :

$$\begin{aligned} n &= \frac{N}{V} = \int_0^\infty D(E) f(E, T = 0) dE \\ &= \frac{1}{3\pi^2} \left(\frac{2mE_F}{\hbar^2} \right)^{\frac{3}{2}} \\ \Rightarrow E_F &= \frac{\hbar^2}{2m} (3\pi^2 n)^{\frac{2}{3}} \end{aligned} \quad (4)$$

Die Fermi-Temperatur ist definiert durch:

$$T_F = \frac{E_F}{k_B} = \frac{\hbar^2}{2mk_B} (3\pi^2 n)^{\frac{2}{3}} \quad (5)$$

Ab dieser Temperatur treten bei einem idealen Gas aus Fermionen mit der Masse m die Quanteneigenschaften zu Tage. Für ${}^3\text{He}$ ergibt sich laut

dieser Theorie eine Fermi-Temperatur von $T_F \simeq 4,2 \text{ K}$. Eine ausführliche Behandlung dieser Theorie findet sich in den beiden Büchern [Bai99, EH00].

2.3.2 Die Fermi-Flüssigkeit

Landau arbeitete ausgehend vom Grundzustand des idealen Fermi-Gases ein Modell aus, das die starke Kopplung der ^3He -Atome mit berücksichtigt. *Landau* nahm an, dass die Wechselwirkung zwischen den ^3He -Atomen zwar die Energie-Niveaus verschiebt, die Form des Spektrums sich aber nicht verändert. Er führte sogenannte *Quasiteilchen* ein, die einer elementaren Anregung eines wirklichen Atoms im Wechselwirkungsfeld aller seiner Nachbarn entspricht. Ein *Quasiteilchen* ist damit ein kollektiver Zustand des gesamten Systems. Im Gegensatz zum kollektiven Zustand eines Bose-Gases existieren genau so viele *Quasiteilchen* wie reale Atome bei einer Fermi-Flüssigkeit.

Quasiteilchen besitzen eine effektive Masse m^* , die aufgrund der Wechselwirkung verschieden zur Masse m der ^3He -Atome ist. Sie wird durch die Veränderung der *Quasiteilchenenergie* E nahe der Fermi-Oberfläche in Abhängigkeit vom Impuls p definiert:

$$m^* = \frac{1}{v_F} \left(\frac{\partial E}{\partial p} \right)_{p=p_F} = \frac{p_F}{v_F} \quad (6)$$

Hierbei bezeichnet p_F den Fermi-Impuls und v_F die Gruppengeschwindigkeit der *Quasiteilchen* auf der Fermi-Oberfläche. Um die makroskopischen Eigenschaften berechnen zu können, muss die effektive Masse in der *Landau-Theorie* experimentell bestimmt werden.

Die totale Energie u des gesamten Systems setzt sich nun nicht mehr aus der Summe der individuellen *Quasiteilchenenergien* zusammen, sondern ist von der *Quasiteilchen-Verteilungsfunktion* abhängig. Die Energie der *Quasiteilchen* E wurde von *Landau* über die Änderung der Energie des Gesamtsystems δu bei kleiner Änderung der Besetzungswahrscheinlichkeit δf definiert:

$$\delta u = \int E \delta f(E, T) d^3k \quad (7)$$

Die *Quasiteilchenzustände* sind keine Eigenzustände des Systems, aufgrund der Wechselwirkung können Übergänge zwischen den Niveaus auftreten. Daraus resultiert eine Verbreiterung der Energieniveaus entsprechend der Unschärferelation $\delta E \simeq \hbar/\tau$. Da die Lebensdauer eines Zustandes τ proportional zu T^{-2} ist, ist die Unschärfe δE bei genügend tiefen Temperaturen klein gegenüber der thermischen Aufweichung $\Delta E = k_B T$. In diesem Fall sind die *Quasiteilchenzustände* wohldefiniert und die *Fermi-Dirac-Verteilung* (Gleichung (3)) kann verwendet werden.

Die Zustandsdichte einer Fermi-Flüssigkeit an der Fermi-Oberfläche er-

gibt sich zu:

$$D(E_F) = \frac{m^*}{\pi \hbar^2} \sqrt[3]{\frac{3n}{\pi}} \quad (8)$$

Sie ist ähnlich der des idealen Fermi-Gases, nur die Masse m der ^3He -Atome wurde durch die effektive Masse m^* der *Quasiteilchen* ersetzt. Mit einem phänomenologischen Ansatz kann nun die Energie der *Quasiteilchen* beschrieben werden:

$$E(\mathbf{p}, \mathbf{s}, T) = E(\mathbf{p}, \mathbf{s}, T = 0\text{K}) + 2\rho_k \int (h(\mathbf{p}, \mathbf{p}') + \xi(\mathbf{p}, \mathbf{p}') \mathbf{s} \cdot \mathbf{s}') \delta f' d^3 p' \quad (9)$$

Hierbei bezeichnet \mathbf{p} den Impuls und \mathbf{s} den Spin des Quasiteilchens, \mathbf{p}' die Impulse und \mathbf{s}' die Spins der anderen Zustände und ρ_k die Dichte der Zustände im Impulsraum.

$E(\mathbf{p}, \mathbf{s}, T = 0\text{K})$ entspricht der Energie für ein Teilchen der Masse m^* bei der Temperatur $T = 0\text{K}$ auf Basis der Theorie des idealen Fermi-Gases. Der zweite Term auf der rechten Seite beschreibt die Änderung der Energie aufgrund der Wechselwirkung mit den anderen ^3He -Atomen. Die Funktion $h(\mathbf{p}, \mathbf{p}')$ beinhaltet dabei die isotrope Wechselwirkung der Teilchen, die Funktion $\xi(\mathbf{p}, \mathbf{p}') \mathbf{s} \cdot \mathbf{s}'$ die Austauschkräfte der Spins. Da nur Impulse nahe des Fermi-Impulses relevant sind, hängen die Funktionen in erster Näherung nur vom Winkel θ zwischen den beiden Impulsen ab. Die Funktionen $h(\theta)$ und $\xi(\theta)$ lassen sich mit Hilfe der Zustandsdichte an der Fermi-Oberfläche umschreiben und nach *Legendre-Polynomen* entwickeln:

$$D(E_F)h(\theta) = F(\theta) = F_0 + F_1 \cos \theta + F_3 \frac{3 \cos^2 \theta - 1}{2} + \dots \quad (10)$$

$$D(E_F)\xi(\theta) = G(\theta) = G_0 + G_1 \cos \theta + G_3 \frac{3 \cos^2 \theta - 1}{2} + \dots \quad (11)$$

Die Faktoren F_0, F_1, \dots und G_0, G_1, \dots müssen experimentell bestimmt werden. Dazu bringt man sie mit messbaren Größen in Verbindung, wie im

$p[\text{bar}]$	$V_m[\text{cm}^3]$	F_0	F_1	G_0	$\frac{m^*}{m}$
0	36,84	9,30	5,39	-2,78	2,80
3	33,95	15,99	6,49	-2,89	3,16
6	32,03	22,49	7,45	-2,93	3,48
9	30,71	29,00	8,31	-2,97	3,77

Tabelle 2: Experimentell bestimmte Werte des Molvolumens V_m , der Landau-Faktoren F_0, F_1, G_0 und der effektiven Masse m^*/m für flüssiges ^3He , bei einer Temperatur von $\approx 20\text{mK}$ und verschiedenen Drücken. [EH00, KV00]

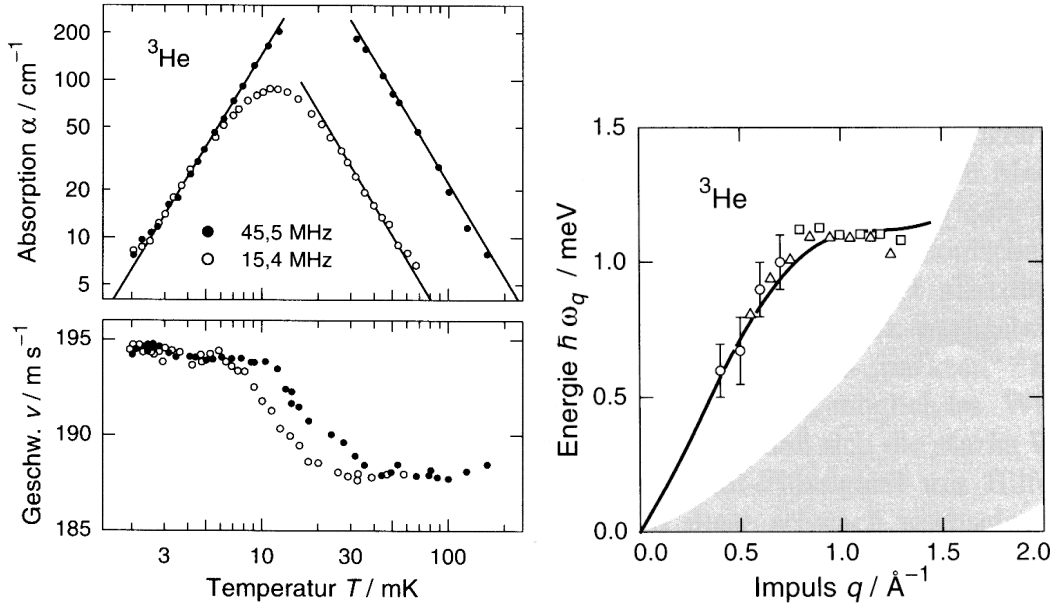


Abbildung 4: Die Temperaturabhängigkeit **a)** des Absorptionskoeffizienten und **b)** der Schallgeschwindigkeit in normal-flüssigem ^3He . **c)** Dispersionskurve von normal-fluidem ^3He . [EH00]

folgenden Kapitel dargestellt wird. Tabelle 2 zeigt experimentell bestimmte Werte der Faktoren und der effektiven Massen bei unterschiedlichen Drücken. Es wird deutlich, dass bei höheren Drücken die Faktoren der isotropen Wechselwirkung, besonders F_0 , stark zunehmen. Das ist verständlich, da die Teilchen dichter gepackt sind und daher häufiger stoßen. Der Faktor der Austauschkraft G_0 hingegen bleibt nahezu gleich.

Dispersionskurve und der nullte Schall

Ein großer Erfolg der *Landau-Theorie* war die Vorhersage des *nullten Schalls*. Für den Fall $\omega\tau \ll 1$ liegt die normale hydrodynamische Schallausbreitung vor, wobei ω die Kreisfrequenz der Schallwelle und τ die mittlere Zeit zwischen zwei Stößen bezeichnet. Aber auch für $\omega\tau \gg 1$ sollten Schallwellen existieren. Sie werden als *nullter Schall* bezeichnet. Experimentell konnte dies bestätigt werden (Abbildung 4 **a)**+**b**). Der Übergang bei ≈ 20 mK vom ersten zum nullten Schall ist in der Temperaturabhängigkeit des Absorptionskoeffizienten α gut zu erkennen (Abbildung 4 **a**). Er ist beim Auftreten des *nullten Schalls* frequenzunabhängig und proportional zu $1/T^2$. Im Falle der normalen Schallausbreitung ist er frequenzabhängig und proportional zu T^2 . Die Schallgeschwindigkeit des *nullten Schalls* wird größer erwartet, als die des normalen Schalls. Auch dies konnte durch Experimente bestätigt werden (Abbildung 4 **b**).

Abbildung 4 **c**) zeigt die Dispersionskurve von ^3He . Die Linie entspricht dem nullten Schall. Der dunkle Bereich stellt das Quasiteilchenkontinuum

dar.

2.3.3 Vergleich beider Theorien mit experimentellen Daten

Mit Hilfe der Zustandsdichte und der Verteilungsfunktion ist es nun möglich, die Abhängigkeiten verschiedener makroskopischer Eigenschaften zu bestimmen. Auf die Herleitungen soll hier nicht weiter eingegangen werden, in [EH00, S.63-69] und [Kel69, S.164-170] können sie nachvollzogen werden. Die Fermi-Temperatur T_F , die mit dem Modell des idealen Fermi-Gases hergeleitet wurde, beträgt nach Gleichung (5) für ${}^3\text{He} \simeq 4,2 \text{ K}$. Dieses Ergebnis ist deutlich höher als die Experimente zeigen ($T_{\text{Fermi}} = 1,75 \text{ K}$ [Gre83]) und lässt schon erahnen, dass das ideale Fermi-Gas kein befriedigendes Modell für flüssiges ${}^3\text{He}$ darstellt. Die qualitativen Abhängigkeiten können dennoch mit ihm erklärt werden. Hingegen gibt die *Landau-Theorie* die Eigenschaften nicht nur qualitativ sondern auch quantitativ gut wieder. Damit stellt sie die weitaus geeignetere Theorie dar, um ${}^3\text{He}$ bei Temperaturen unterhalb von 100 mK zu beschreiben. Die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten ${}^3\text{He}$ -Tröpfchen besitzen eine Temperatur von 150 mK. Sie befinden sich somit im Übergang vom idealen Gas zur Fermi-Flüssigkeit.

Spezifische Wärme

Die spezifische Wärme bei konstantem Volumen C_V ist die partielle Ableitung der inneren Energie pro Volumen u nach der Temperatur T bei konstantem

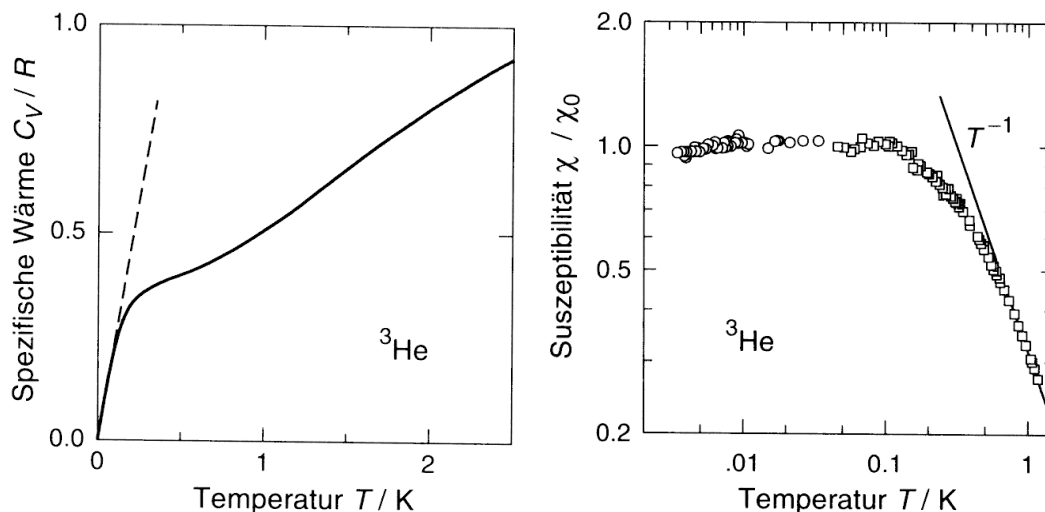


Abbildung 5: Die Temperaturabhängigkeit **a)** der reduzierten spezifischen Wärme, die Hilfslinie verdeutlicht die lineare Abhängigkeit unterhalb von 0,05 K **b)** der magnetischen Suszeptibilität von ${}^3\text{He}$. [EH00]

Volumen V . Die Theorie des idealen Fermi-Gases liefert:

$$C_{V,\text{Fermi}} = \left(\frac{\partial u}{\partial T} \right)_V = \frac{\pi^2 n}{2E_F} k_B^2 T = \gamma T \quad (12)$$

Nach der *Landau-Theorie* erhält man denselben Ausdruck mit einer numerischen Korrektur:

$$C_{V,\text{Landau}} = \frac{m^*}{m} C_{V,\text{Fermi}} \quad (13)$$

Für deutlich geringere Temperaturen als die Fermi-Temperatur wird eine lineare Temperaturabhängigkeit der spezifischen Wärme laut beider Theorien erwartet. Abbildung 5 **a)** zeigt, dass dies für Temperaturen unterhalb von 50 mK tatsächlich zutrifft. Allerdings wird für ein freies Fermi-Gas dieser Verlauf schon ab einer Temperatur von $T = T_F/10$ ($= 420m$ mK) vorhergesagt. Absolut liefert nur die Theorie der Fermi-Flüssigkeit einen akzeptablen Wert.

Magnetische Suszeptibilität

Die magnetische Suszeptibilität χ verhält sich bei hohen Temperaturen entsprechend einer paramagnetischen Flüssigkeit und folgt dem *Curie-Gesetz*, sie ist proportional zu $1/T$. Bei tiefen Temperaturen wird sie, wie für ein Fermi-Gas erwartet, konstant. Auch hier besteht der Unterschied beider Theorien in erster Ordnung nur aus Vorfaktoren:

$$\chi_{\text{Fermi}} = I(I+1)\mu_0\mu_n^2 g_n \frac{2}{3} \frac{n}{E_F} = \beta^2 D(E_F) \quad (14)$$

$$\chi_{\text{Landau}} = \frac{m^*}{m} \left(\frac{1}{1+\frac{1}{4}G_0} \right) \chi_{\text{Fermi}} \quad (15)$$

Hier steht μ_0 für das Bohr'sche Kernmagneton, μ_n für das magnetische Moment, I für den Spin der ^3He -Kerne und g_n für den Landé-Faktor. Die Messung auf Abbildung 5 **b)** bestätigt diese Aussage. Ab ungefähr 100 mK ist die magnetische Suszeptibilität konstant.

Viskosität

Für die Viskosität η ergeben sich nach der *Boltzmann-Gleichung* im Rahmen der kinetischen Gastheorie folgende Ausdrücke:

$$\eta_{\text{Fermi}} = \frac{1}{3} \rho \tau v_F^2 \quad (16)$$

$$\eta_{\text{Landau}} = \left(1 + \frac{1}{3} F_1 \right) \eta_{\text{Fermi}} \quad (17)$$

ρ bezeichnet die Dichte, τ die mittlere Zeit zwischen zwei Stößen und v_F die Fermi-Geschwindigkeit. Aus der Temperaturabhängigkeit von τ ($\propto 1/T^2$)

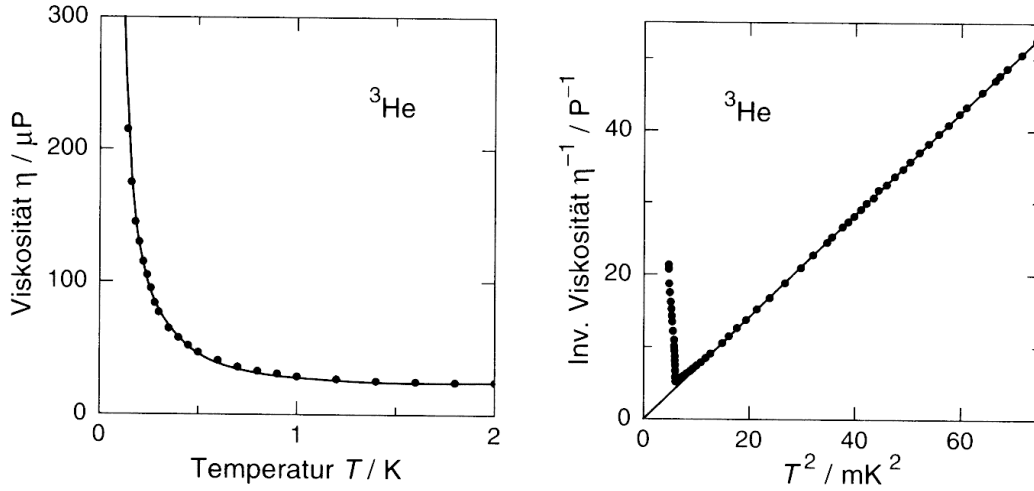


Abbildung 6: a) Die Temperaturabhängigkeit der Viskosität von ^3He b) Veranschaulichung der $1/T^2$ -Abhängigkeit der Viskosität von ^3He . [EH00]

folgt, dass $\eta \propto 1/T^2$ ist. Experimentelle Messungen (Abbildung 6 a)) zeigen einen konstanten Verlauf der Viskosität bis zu einer Temperatur von 1 K. Dann wächst sie bis zum Übergang in die suprafluide Phase auf den Wert $0,2 \text{ P}$ an. Dies kann mit der Viskosität von Honig verglichen werden. Abbildung 6 b) verdeutlicht die erwartete $1/T^2$ -Abhängigkeit. Auch der Übergang zur suprafluiden Phase ist zu erkennen.

Selbstdiffusionskoeffizient

Der Selbstdiffusionskoeffizient D beschreibt den Transport des Kernspins. Er ergibt sich aus der Beziehung $D = \eta/\rho$. Es ergeben sich folgende Ausdrücke für beide Modelle:

$$D_{\text{Fermi}} = \frac{1}{3} \tau v_{\text{F}}^2 \quad (18)$$

$$D_{\text{Landau}} = (1 + G_0) D_{\text{Fermi}} \quad (19)$$

Auch hier wird eine $1/T^2$ -Abhängigkeit erwartet. Abbildung 7 a) zeigt den experimentell bestimmten Verlauf des Selbstdiffusionskoeffizienten. Das Minimum bei 500 mK kennzeichnet den Übergang vom idealen Gas zur Fermi-Flüssigkeit. Bei Temperaturen unterhalb von 100 mK entspricht seine T -Abhängigkeit den Vorhersagen beider Theorien.

Wärmeleitfähigkeit

Für ein freies Fermi-Gas sowie für eine Fermi-Flüssigkeit folgt die Abhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit der Form:

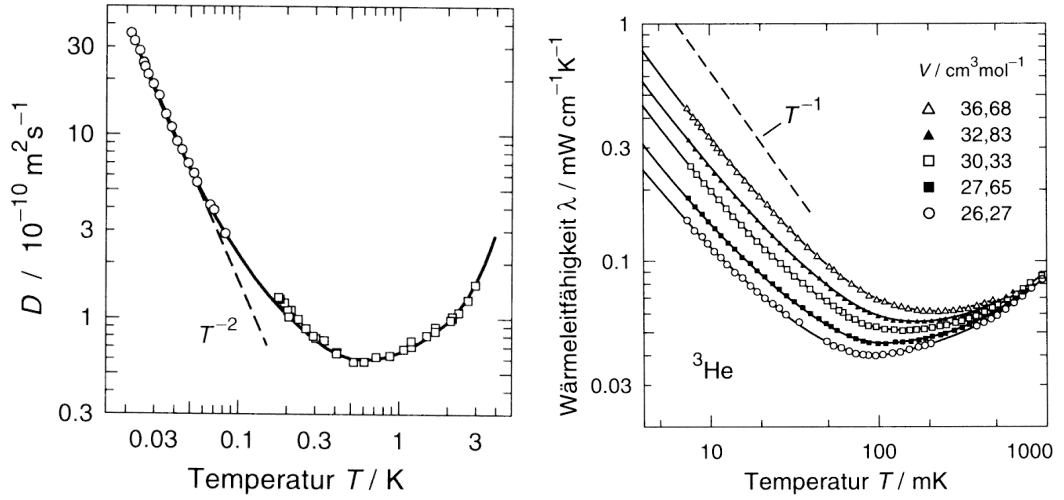


Abbildung 7: Die Temperaturabhängigkeit **a)** des Selbstdiffusionskoeffizienten und **b)** der Wärmeleitfähigkeit von ^3He . [EH00]

$$\lambda_{\text{Fermi}} = \frac{1}{3} C_{V,\text{Fermi}} \rho \tau v_{\text{F}}^2 \quad (20)$$

$$\lambda_{\text{Landau}} = \frac{1}{3} C_{V,\text{Landau}} \rho \tau v_{\text{F}}^2 \quad (21)$$

Die spezifische Wärme C_V ist proportional zu T und τ zu $1/T^2$. Insgesamt erhält man damit eine $1/T$ -Abhängigkeit. Messungen (Abbildung 7 b)) bestätigen dies für niedrige Drücke (hohe Molvolumina) und Temperaturen $< 100 \text{ mK}$. Bei höheren Drücken beginnt immer mehr die Spinfluktuation eine Rolle zu spielen und das Verhalten der Wärmeleitfähigkeit weicht von der $1/T$ -Abhängigkeit ab.

Abschließender Vergleich

Für eine qualitative Beschreibung des flüssigen ^3He bei Temperaturen von $1 - 100 \text{ mK}$ ist die Theorie des idealen Fermi-Gases gut anwendbar. Zur quantitativen Erklärung muss allerdings die starke Wechselwirkung der ^3He -Atome mit berücksichtigt werden, wodurch die Theorie der Fermi-Flüssigkeiten benötigt wird. Deren Parameter müssen durch Experimente bestimmt werden. Für die meisten Eigenschaften reichen die Parameter der nullten und ersten Ordnung aus, um eine gute Übereinstimmung mit dem Experiment zu erreichen. ^3He -Tröpfchen sollten sich im Übergang von einem idealen Gas zur Fermi-Flüssigkeit befinden (Kapitel 2.5.2).

2.3.4 Suprafluides ^3He

Obwohl ^3He ein Fermion ist, besitzt es, je nach Druck, bei Temperaturen unterhalb von 2 mK einen Phasenübergang in eine suprafluide Phase. Es existie-

ren sogar drei verschiedene suprafluide Phasen von ^3He . Der Übergang in eine suprafluide Phase ist möglich, da sich bei derartigen Temperaturen sogenannte *Cooper-Paare* bilden. Dieser Paarzustand aus zwei *Quasiteilchen* besitzt einen ganzzahligen Spin und kann analog zum ^4He kondensieren. Die verschiedenen Eigenschaften des suprafluiden Zustandes verhalten sich ähnlich dem ^4He . Die spezifische Wärme in der Nähe des λ -Punktes (Abbildung 1 b)) zeigt ebenfalls den λ -artigen Verlauf. Auch die Viskosität nimmt stark ab und wurde experimentell 12 Größenordnungen kleiner als in der normalfluiden Phase gefunden [PSN⁺84]. Die drei verschiedenen Phasen $^3\text{He A}$, $^3\text{He A}_1$ und $^3\text{He B}$ unterscheiden sich in der Wechselwirkung der Kernspins untereinander. Die Phase $^3\text{He A}_1$ tritt allerdings nur dann auf, wenn ein äußeres Magnetfeld anliegt. Die Austauschwechselwirkung der Spins wirkt der *Fermi-Dirac*-Statistik entgegen, daher bilden sich keine *Cooper-Paare* mit $S = 0$, sondern mit einem Spin von $S = 1$. S_z kann drei Zustände einnehmen und zwar $0, \pm 1$. Die verschiedenen Phasen unterscheiden sich in den unterschiedlichen Besetzungen der z -Komponente des Spins.

- **$^3\text{He A}$** : Nur Zustände mit $S_z = \pm 1$ werden besetzt, die Paarzustände haben die Form $|\uparrow\uparrow\rangle$ und $|\downarrow\downarrow\rangle$.
- **$^3\text{He A}_1$** : Alle Spins sind parallel zum Magnetfeld ausgerichtet, es gibt nur Paarzustände der Art $|\uparrow\uparrow\rangle$, d.h. $S_z = 1$.
- **$^3\text{He B}$** : Alle drei S_z -Komponenten sind erlaubt, somit gibt es Paarzustände der Art $|\uparrow\uparrow\rangle, |\downarrow\downarrow\rangle$ und $\frac{1}{\sqrt{2}}[|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle]$.

Weiter soll nicht auf die Suprafluidität des flüssigen ^3He eingegangen werden. Eine ausführliche Beschreibung findet sich in [EH00].

2.4 Clusterbildung in einer Düsenstrahlquelle

Zur Erzeugung von Clustern gibt es im Wesentlichen drei verschiedene Prinzipien [Joh02, Ber92]:

- *Düsenstrahlquelle*: Ein Gas wird unter hohem Druck durch eine Düse ins Vakuum expandiert. Es kommt zu einer extremen Abkühlung und es können Cluster entstehen.
- *Gasaggregationsquelle*: Atome oder Moleküle werden in ein strömendes Edelgas verdampft. Dort kühlen sie durch Stöße ab und können zu Clustern kondensieren.
- *Oberflächenquelle*: Mittels eines intensiven Laser- (*Laserverdampfungsquelle*) oder Ionenstrahls (*Sputterquelle*), einer starken elektrischen Entladung (*Pulsed-Arc Cluster Ion Source*) oder eines starken, inhomogenen elektrischen Feldes (*Liquid Metal Ion Source, Spray Source*) werden von einer Oberfläche Atome, Moleküle, Cluster und deren Ionen abgelöst.

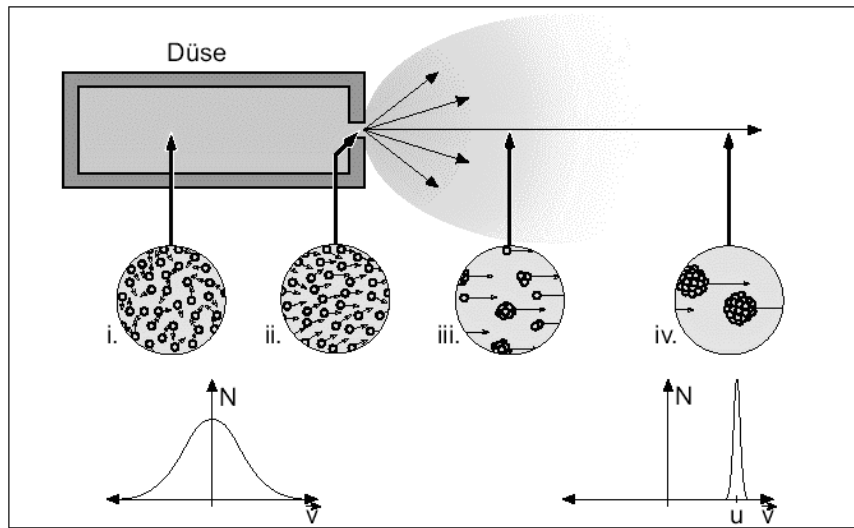
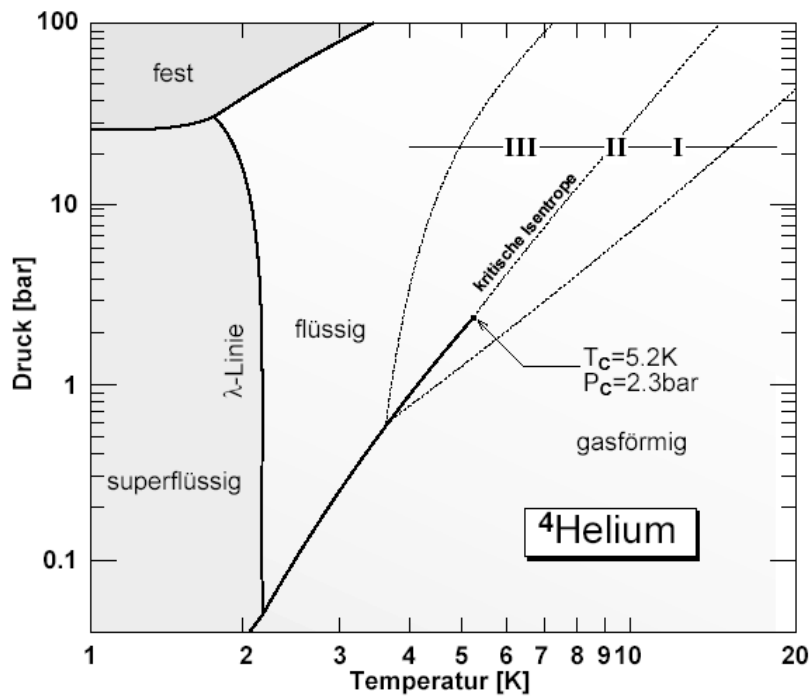
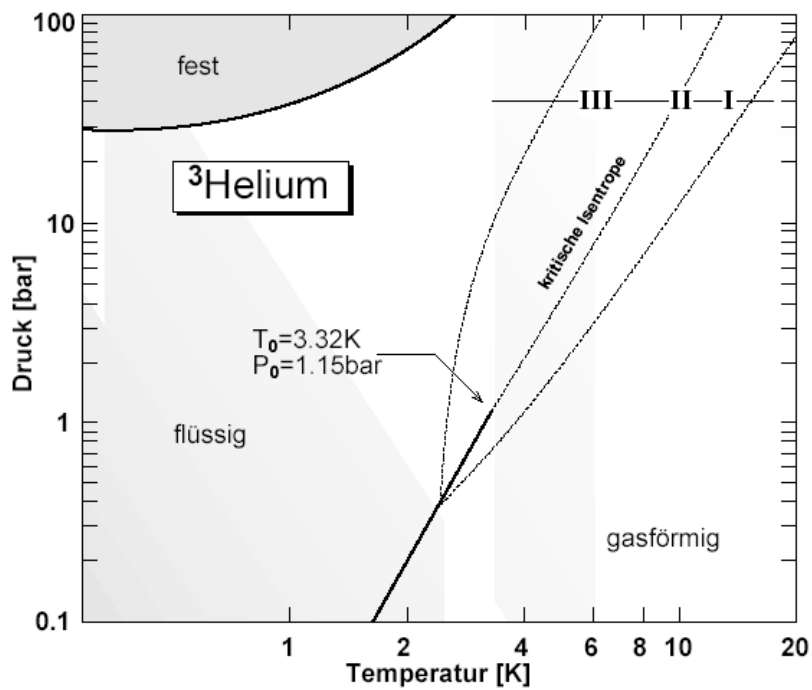


Abbildung 8: Schematischer Ablauf der Expansion und Clusterbildung bei einer Düsenstrahlquelle [DDH87]. Sie wurde zur Verdeutlichung leicht verändert.

Es existieren auch die verschiedensten Kombinationen dieser drei Prinzipien. Bei der konstruierten Clusterquelle handelt es sich um eine *Düsenstrahlquelle*. Daher wird ihre Funktionsweise im Folgenden am Beispiel von Helium erläutert.

Abbildung 8 zeigt schematisch die Funktion einer Düsenstrahlquelle. Das Heliumgas befindet sich in einem Reservoir bei den Anfangsbedingungen p_0 (5–80 bar) und T_0 (< 30 K) (Abbildung 8 i.). Es wird durch eine kleine Düse mit dem Durchmesser d ($1 \mu\text{m} - 1 \text{mm}$) ins Vakuum expandiert (Abbildung 8 ii.). Dabei findet eine adiabatische Entspannung des Heliums statt. Wenn die mittlere freie Weglänge der Teilchen λ sehr viel kleiner ist als die Düsenöffnung d , ereignen sich bei der Expansion viele Stöße und das Heliumgas kühlt stark ab. Die vorher ungerichtete Bewegung wird in eine stark gerichtete Bewegung mit einer scharfen Geschwindigkeitsverteilung umgewandelt (Abbildung 8 ii.). Wird eine hinreichend tiefe Temperatur durch die Kühlung erreicht, kann Kondensation (Abbildung 8 iii.) und schließlich die Clusterbildung (Abbildung 8 iv.) der Teilchen einsetzen. Eine detaillierte Beschreibung dieses Prozesses ist in dem Buch [Hab95] zu finden.

Die Expansion läuft entlang von Isentropen. Der Stagnationsdruck p_0 und die Düsentemperatur T_0 legen dabei den Startpunkt fest. In den Phasendiagrammen von ^4He (Abbildung 9) und ^3He (Abbildung 10) sind jeweils drei Isentropen für unterschiedliche Expansionsbedingungen eingezeichnet. Alle möglichen Isentropen, die zur Clusterbildung führen würden, können in drei Expansionsbereiche eingeteilt werden:

Abbildung 9: Phasendiagramm von $^4\text{Helium}$. [Har97]Abbildung 10: Phasendiagramm von $^3\text{Helium}$. [Har97]

Unterkritische Expansion (Bereich I)

In diesem Bereich verhält sich ^4He bzw. ^3He näherungsweise wie ein ideales Gas. Die Isentropen können durch die Gleichung

$$pT^{\gamma/(1-\gamma)} = p_0T_0^{\gamma/(1-\gamma)} \quad (22)$$

beschrieben werden ($\gamma = C_p/C_V$). Sie haben in der gewählten doppeltlogarithmischen Darstellung die Form von Geraden. Kreuzen sie die Phasenlinie zur flüssigen Phase und die Dichte des Heliums ist noch genügend hoch, kommt es zur Kondensation der Atome und Cluster bilden sich.

Kritische Expansion (Bereich II)

Isentropen dieses Bereichs verlaufen durch oder in der Nähe des kritischen Punktes von ^4He bzw. ^3He . In diesem Bereich bilden sich sowohl Cluster aus der Gas- als auch aus der Flüssigkeitsexpansion.

Überkritische Expansion (Bereich II)

Erniedrigt man die Temperatur der Düse weiter, weichen die Isentropen vom Verhalten eines idealen Gases ab. Sie sind nach unten gekrümmt und treffen von der flüssigen Seite auf die Phasenlinie. Somit findet eine Flüssigkeitsexpansion statt. Diese kann man mit einem Zerstäubereffekt vergleichen. Aus den Fragmenten der Flüssigkeit entstehen sehr große Cluster.

2.5 Eigenschaften von Heliumtröpfchen

2.5.1 Tröpfchengröße, Größenverteilung und Form

Die Größe der Tröpfchen ist abhängig von den Expansionsbedingungen T_0 , p_0 und d . Sie markieren den Startpunkt der Expansion im $p - T$ -Diagramm. Je eher die entsprechenden Isentropen die Phasenlinie flüssig-gasförmig treffen, desto höher ist die Heliumdichte beim Einsetzen der Kondensation. Somit können sich größere Tröpfchen bilden. Durch Änderung des Düsendurchmessers lässt sich der Gasfluss variieren und somit auch die Dichte des Atomstrahls. Die Abhängigkeit der mittleren Tröpfchengröße von ^4He -Tröpfchen folgt in kleinen Temperaturbereichen dem Skalierungsgesetz [Hab95]:

$$\bar{N} \propto \frac{p_0 d^{1,5}}{T^{2,4}} \quad (23)$$

Da im Rahmen dieser Arbeit jedoch große Temperaturbereiche untersucht wurden, konnte das Skalierungsgesetz nicht angewandt werden. Abbildung 11 zeigt einen Vergleich mit experimentellen Daten [FHH⁺99]. Für ^3He -Tröpfchen ist es sogar überhaupt nicht anwendbar. Daher musste zur Bestimmung der im Experiment vorhandenen Tröpfchengrößen auf experimentelle Daten zurückgegriffen werden.

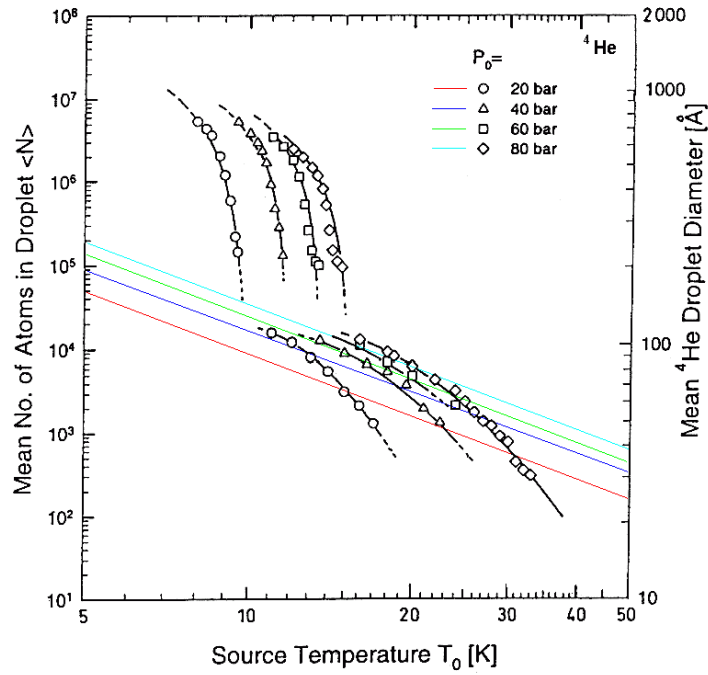


Abbildung 11: Mittlere Tröpfchengröße in Abhängigkeit von T_0 bei unterschiedlichen p_0 und $d = 5 \mu\text{m}$ von ${}^4\text{He}$ -Tröpfchen [FHH⁺99]. Die farbigen Linien wurden hinzugefügt und entsprechen dem Skalierungsgesetz (Gleichung 23) mit dem Startpunkt $p_0 = 50 \text{ bar}$, $T_0 = 19 \text{ K}$, $\bar{N} = 5000$.

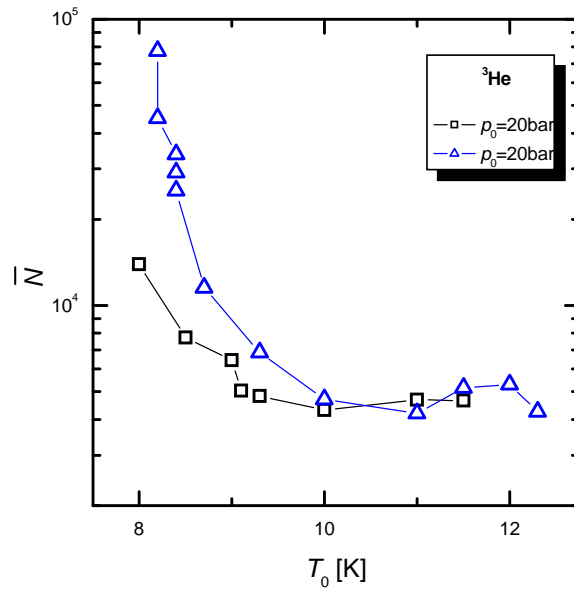


Abbildung 12: Mittlere Tröpfchengröße in Abhängigkeit von T_0 bei $p_0 = 20 \text{ bar}$ und $d = 5 \mu\text{m}$ von ${}^3\text{He}$ -Tröpfchen aus den Daten von: \triangle [HTBP01], \square [Har97].

Zur experimentellen Bestimmung der Tröpfchengröße gibt es verschiedene Ansätze. Als am erfolgreichsten hat sich die Streuung des Tröpfchenstrahls an einem sekundären Atom- oder Molekülstrahl erwiesen [HTD98], da mit dieser Methode die mittlere Tröpfchengröße über einen großen Bereich bestimmt werden kann. Es ist auch möglich, anhand von Entvölkerungsspektroskopie auf die Größe der Tröpfchen zu schließen [Har97]. Die Entvölkerung der Dotierungen der Tröpfchen ist dabei umgekehrt proportional zu ihrer Größe.

Abbildung 11 zeigt die mittlere ^4He -Tröpfchengröße in Abhängigkeit der Temperatur bei verschiedenen Drücken, gemessen durch Streuung an einem sekundären Molekülstrahl [FHH⁺99]. Die mittlere Größe von ^3He -Tröpfchen ist in Abbildung 12 zu sehen. Sie enthält zwei Messungen, die mit unterschiedlichen Methoden durchgeführt wurden. Durch Streuung an einem Molekülstrahl wurden die blau dargestellten Werte bestimmt [HTBP01]. Die schwarzen Zeichen entsprechen Ergebnissen aus der Auswertung eines Entvölkerungsspektrums. Die beiden Messungen zeigen drastische Unterschiede im Bereich sehr großer Tröpfchen.

Die mittleren Tröpfchengrößen von ^4He und ^3He verhalten sich unterschiedlich. Bei ^4He setzt die Clusterbildung je nach Stagnationsdruck schon bei Temperaturen von 30–40 K ein. Die dann gebildeten Tröpfchen sind sehr klein. Im Bereich der unterkritischen Expansion steigt die mittlere Tröpfchengröße mit fallender Temperatur stetig an, bis eine Größe von $\bar{N} \approx 20000$ erreicht ist. Verlässt man den Bereich der unterkritischen Expansion werden die gebildeten Tröpfchen schnell sehr groß ($\bar{N} = 10^5 - 10^7$).

Ein komplett anderes Verhalten zeigt sich bei ^3He . Erst unterhalb von 13 K setzt bei einem Stagnationsdruck von 20 bar die Clusterbildung schlagartig ein und die gebildeten Tröpfchen besitzen sofort eine Größe von einigen tausend Atomen. Die mittlere Tröpfchengröße bleibt im Bereich der unterkritischen Expansion nahezu gleich ($\bar{N} \approx 5000$), nur kurz nach dem Einsetzen der Clusterbildung befindet sich ein kleines Maximum, dessen Ursache jedoch unbekannt ist. Unterschiedliche Stagnationsdrücke p_0 haben allerdings einen Einfluss auf die Clusterbildung. Erhöht man den Stagnationsdruck, setzt die Clusterbildung eher ein und die entstehenden Tröpfchen sind kleiner [HTBP01]. Die Abhängigkeit der Tröpfchengröße von der Düsenöffnung d wurde noch nicht untersucht. Auch ^3He -Tröpfchen werden im Bereich der kritischen und überkritischen Expansion analog zu den ^4He -Tröpfchen sehr groß.

Das unterschiedliche Verhalten der beiden Heliumisotope hat zum einen die Ursache, dass sich ^3He erst bei einer tieferen Temperatur als ^4He verflüssigt. Daher werden bei ^3He tiefere Temperaturen benötigt, um Tröpfchen zu bilden. Desweiteren existieren keine kleinen ^3He -Tröpfchen. ^3He -Tröpfchen einer Größe $N < 1800$ sind bis jetzt nicht experimentell nachgewiesen worden [HTBP01]. Die Ursache besteht darin, dass ^3He -Tröpfchen erst ab einer bestimmten Zahl Atome N gebunden sind. Theoretische Modelle für kleine Tröpfchengrößen, z.B. Variationsrechnung unter Verwendung der Aziz Atom-Atom-Wechselwirkung [GN00], Monte Carlo Methoden [Gua00] und Dichte-

funktionalrechnungen [BNP97] sagen voraus, dass ab einer Anzahl von 29–35 ^3He -Atomen der Cluster stabil sein sollte. Bei ^4He hingegen ist schon der Dimer gebunden [LMKG92]. Damit sich ein Kondensationskern für einen ^4He -Tröpfchen bilden kann, muss demnach mindestens ein Dreier-Stoß stattfinden. Beim ^3He hingegen müssen viel mehr Atome stoßen, damit sich ein stabiles Tröpfchen bilden kann. Warum die mittlere Tröpfchengröße bei ^3He im unterkritischen Bereich konstant bleibt, ist nicht bekannt. Im Bereich der überkritischen Expansion entstehen aufgrund des anderen Bildungsmechanismus sehr große Tröpfchen bei beiden Isotopen. Die mittlere Größe von Tröpfchen, die durch Flüssigkeitsexpansion gebildet werden, ist abhängig von der Oberflächenspannung s , dem Düsendurchmesser d , der Atommasse m und der Flussgeschwindigkeit u [KH99]:

$$\bar{N} \propto \frac{s}{m} \left(\frac{d}{u} \right)^2 \quad (24)$$

Die bei der Expansion entstehenden Tröpfchen besitzen nicht alle dieselbe Größe, sondern es liegt eine breite Größenverteilung vor. Diese folgt im unterkritischen Bereich sowohl bei ^4He [HTD98] als auch bei ^3He [HTBP01] einer Log-Normal- Verteilung:

$$P_N(N) = \frac{1}{\sqrt{2\pi N\delta}} e^{-\frac{(\ln N - \mu)^2}{2\delta^2}} \quad (25)$$

Mittlere Tröpfchengröße und Halbwertsbreite lassen sich aus den Faktoren δ und μ errechnen:

$$\bar{N} = e^{\mu + \frac{\delta^2}{2}} \quad (26)$$

$$\Delta N_{1/2} = e^{\mu - \delta^2 + \delta\sqrt{2\ln 2}} - e^{\mu - \delta^2 - \delta\sqrt{2\ln 2}} \quad (27)$$

Die Verteilungen sind für hohe Düsentemperaturen bei ^4He sehr schmal (Abbildung 13). Wird die Düsentemperatur erniedrigt, werden die Verteilungen immer breiter und das Maximum verschiebt sich zu größeren Tröpfchengrößen. Beim ^3He sind die Verteilungen, entsprechend der mittleren Tröpfchengröße, über den ganzen unterkritischen Bereich nahezu identisch (Abbildung 14). In den Rohdaten ist zu erkennen, dass ^3He -Tröpfchen einer Größe unterhalb von ≈ 1800 ^3He -Atomen nicht nachgewiesen wurden [HTBP01]. Erreicht man langsam den kritischen Bereich, werden auch beim ^3He die Verteilungen breiter. Nach einer Flüssigkeitsexpansion entspricht die Tröpfchengrößenverteilung einer linearen Exponentialverteilung bei beiden Isotopen [KH99]:

$$P_N(N) = \frac{1}{\bar{N}} e^{-\frac{N}{\bar{N}}} \quad (28)$$

Die Form von ^3He - und ^4He -Tröpfchen wird, basierend auf theoretischen Rechnungen, als nahezu kugelförmig angenommen [YL96]. Man erwartet

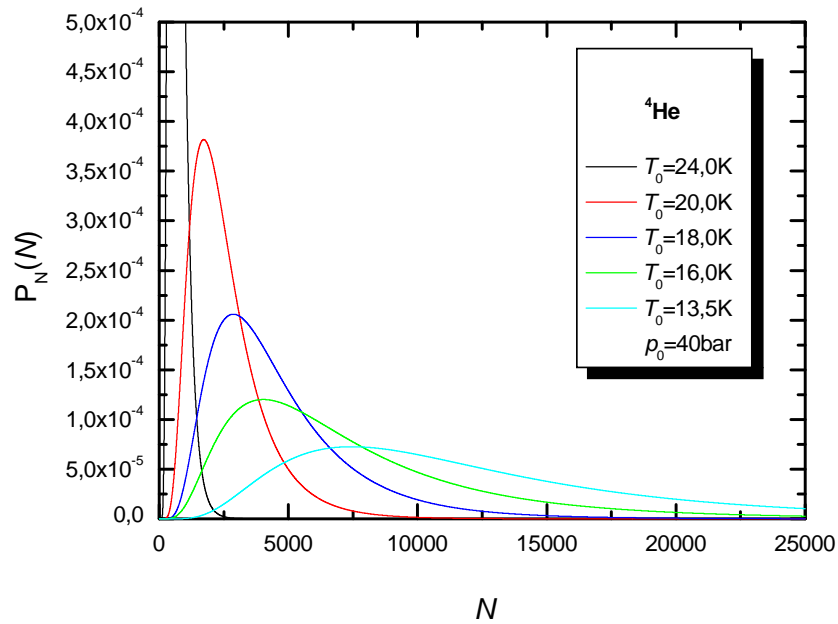


Abbildung 13: Tröpfchengrößenverteilung bei verschiedenen Expansionsbedingungen und $d = 5 \mu\text{m}$ von ${}^4\text{He}$ [HTD98]. Die Kurven wurden mit denen von Harms et al. bestimmten Faktoren der Log-Normalverteilung selbst erstellt.

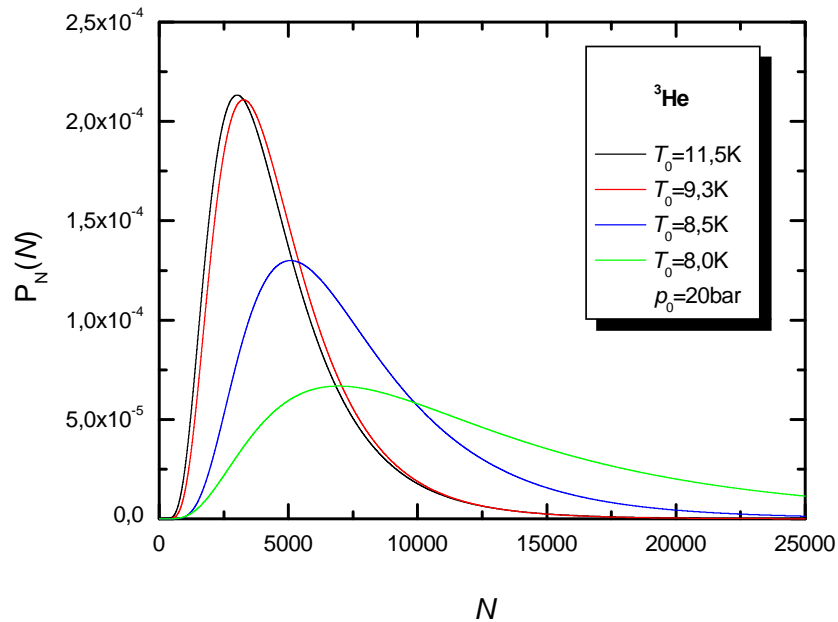


Abbildung 14: Tröpfchengrößenverteilung bei verschiedenen Expansionsbedingungen und $d = 5 \mu\text{m}$ von ${}^3\text{He}$ [HTBP01]. Die Kurven wurden mit denen von Harms et al. bestimmten Faktoren der Log-Normalverteilung selbst erstellt.

zusätzlich das Auftreten von magischen Zahlen bei ${}^3\text{He}$ [ST87, WR92]. Unter der Annahme, dass beide genau kugelförmig sind, sind die Radien der Tröpfchen proportional zu $N^{\frac{1}{3}}$ [Har97]:

$$\begin{aligned} R_{4\text{He}} &= 2,22 \text{ \AA} \cdot N^{\frac{1}{3}} \\ R_{3\text{He}} &= 2,44 \text{ \AA} \cdot N^{\frac{1}{3}} \end{aligned} \quad (29)$$

2.5.2 Tröpfchentemperatur, Bindungsenergie

Die Bindung zwischen den Heliumatomen in einem Tröpfchen ist sehr schwach. Bei ${}^4\text{He}$ beträgt die Bindungsenergie pro Atom $E = 7,15 \text{ K}$ ($0,615 \text{ meV}$), bei ${}^3\text{He}$ ist sie mit $E = 2,5 \text{ K}$ ($0,215 \text{ meV}$) sogar noch geringer [ST87]. Die Tröpfchen werden durch Abdampfen von Heliumatomen nach ihrer Bildung gekühlt, bis sie eine Gleichgewichtstemperatur erreicht haben. Theoretisch wurde berechnet [BS90], dass sich die Temperatur $\approx 10^{-5} \text{ sec}$ nach der Clusterbildung auf ihren Endwert stabilisiert (Abbildung 15). Im Experiment befinden sich die Heliumtröpfchen nach ihrer Bildung $\approx 10^{-4} \text{ sec}$ in der Apparatur, bis sie einen Detektor erreichen. Diese Zeit ist in Abbildung 15 rot markiert. Die tatsächlich bestimmte Tröpfchentemperatur stimmt mit den theoretisch berechneten nach dieser Zeit gut überein.

Um die tatsächliche Temperatur der Heliumtröpfchen zu bestimmen, wurde ein Molekül als Sonde in die Tröpfchen eingelagert und dann mittels hochauflösender Entwölkungsspektroskopie untersucht. Aus der thermischen Besetzung der Rotationszustände kann die Temperatur berechnet werden [HMTV95]. Unter Verwendung des Moleküls SF_6 wurden die Temperaturen der Heliumtröpfchen bestimmt [HHT⁺97].

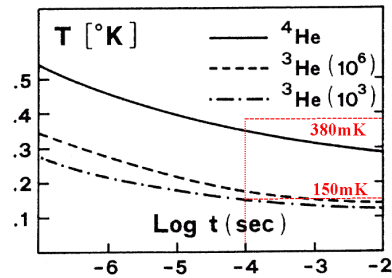


Abbildung 15: Kühlung der Tröpfchen durch Abdampfen von Atomen über die Zeit. [BS90]

$$\begin{aligned} T_{4\text{He}} &= 0,38 \pm 0,01 \text{ K} \\ T_{3\text{He}} &= 0,15 \pm 0,01 \text{ K} \end{aligned} \quad (30)$$

Für ${}^4\text{He}$ -Tröpfchen ist die Temperatur ab einer Atomanzahl $N > 1000$ unabhängig von N [HPST99]. Für ${}^3\text{He}$ gibt es keine analogen Messungen.

Entsprechend dem makroskopischen Verhalten, sollten ${}^4\text{He}$ -Tröpfchen bei dieser Temperatur suprafluid sein. Makroskopisches ${}^3\text{He}$ muss auf Temperaturen unterhalb von 2 mK abkühlen, bis es in die suprafluide Phase übergeht. Weil die Tröpfchen aber nur eine Temperatur von 150 mK besitzen, sind sie normalfluid. Genau genommen sollten sie sich im Übergang vom idealen Gas zur Fermi-Flüssigkeit befinden. Erste experimentelle Beweise für die Suprafluidität von ${}^4\text{He}$ -Tröpfchen, erbrachten Hartmann et al. durch die Untersuchung des Phononen-Flügels der Dispersionskurve von ${}^4\text{He}$ -Tröpfchen [HMTV96]. Bei Experimenten mit ${}^4\text{He}$ - ${}^3\text{He}$ -Mischclustern wurde gezeigt, dass

ab einer Tröpfchengröße von $N > 60$ die Suprafluidität von ${}^4\text{He}$ auftritt [GTV98]. Matrix-Isolations-Spektroskopie von Molekülen in ${}^4\text{He}$ - bzw. ${}^3\text{He}$ -Tröpfchen liefert das Ergebnis, dass die im ${}^4\text{He}$ sehr scharf aufgelösten Linien im Fall von ${}^3\text{He}$ stark verbreitert sind [HHT⁺97]. Dies ist ein weiterer Beweis dafür, dass ${}^4\text{He}$ -Tröpfchen im Gegensatz zu ${}^3\text{He}$ -Tröpfchen suprafluid sind. Verschiedene Systeme mit Hilfe von beiden Isotopen untersuchen zu können eröffnet die Möglichkeit, diese zu vergleichen und den Einfluss der Suprafluidität der ${}^4\text{He}$ -Tröpfchen auf die erhaltenen Spektren zu erkennen.

2.5.3 Geschwindigkeitsverteilung des Tröpfchenstrahls

Anhand der Geschwindigkeitsverteilung der Tröpfchen kann der Übergang von der Gas- zur Flüssigkeitsexpansion verfolgt werden. Abbildung 16 zeigt die Geschwindigkeitsverteilung eines ${}^4\text{He}$ -Tröpfchenstrahls bei unterschiedlichen Expansionsbedingungen. Sie wurden mit Hilfe eines Flugzeit-Massenspektrometers (**T**ime **o**f **F**light) aufgenommen [HTK96]. Die Geschwindigkeit eines Teilchens kann aus seiner Flugzeit berechnet werden, wobei kürzere Zeiten höhere Geschwindigkeiten bedeuten. Das ${}^4\text{He}_2^+$ -Ion ist dabei ein Maß für die Geschwindigkeit des Tröpfchenstrahls, da es nur bei der Fragmentation dieser entstehen kann. Hingegen bildet sich das ${}^4\text{He}^+$ -Ion auch aus freien ${}^4\text{He}$ -Atomen.

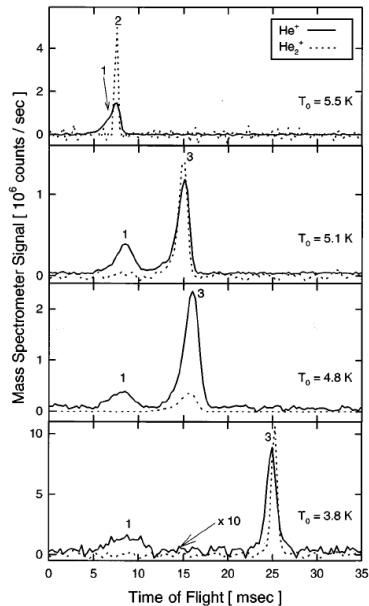


Abbildung 16: ToF-Spektren von ${}^4\text{He}$ -Tröpfchen bei $p_0 = 2, 3\text{bar}$. [HTK96]

Im ersten Bild findet die unterkritische Expansion statt, die Geschwindigkeitsverteilung ist sehr schmal. Im Bereich der kritischen Expansion wächst ein zweiter Peak hinzu, damit ist die Verteilung in diesem Bereich relativ breit. Erniedrigt man die Temperatur weiter, erhält man wieder eine schmale Geschwindigkeitsverteilung mit einer deutlich geringeren mittleren Geschwindigkeit.

Zur Charakterisierung der Tröpfchenstrahlgeschwindigkeit wird zum einen die mittlere Geschwindigkeit v sowie das Geschwindigkeitsverhältnis (*speed-ratio*) $v/\Delta v$ angegeben. Für ${}^4\text{He}$ -Tröpfchen beträgt die mittlere Geschwindigkeit $v = 250 - 500\text{ m/s}$ im Bereich der unterkritischen Expansion, wobei sie mit steigender mittlerer Tröpfchengröße abnimmt. Das Geschwindigkeitsverhältnis hat einen Wert von $v/\Delta v \approx 50$. Im Bereich der kritischen Expansion nimmt die Geschwindigkeit von 250 m/s auf 50 m/s ab. $v/\Delta v$ ist mit 5 sehr gering. Nach einer Flüssigkeitsexpansion beträgt die mittlere Geschwindigkeit $v \approx 50\text{ m/s}$ und die Verteilung ist mit $v/\Delta v \approx 50$ wieder schmal [BKN⁺90].

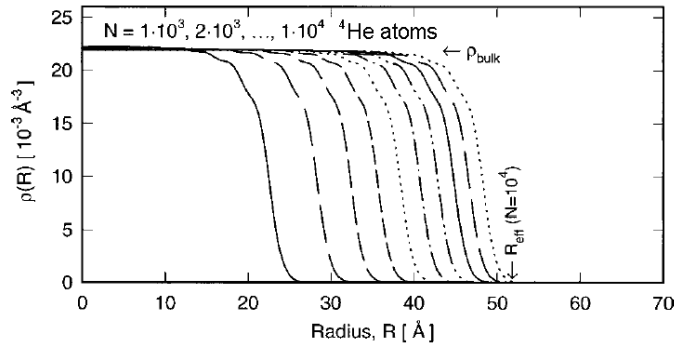


Abbildung 17: Theoretisch berechnete radiale Dichteprofile von ${}^4\text{He}$ -Tröpfchen. [HTD98]

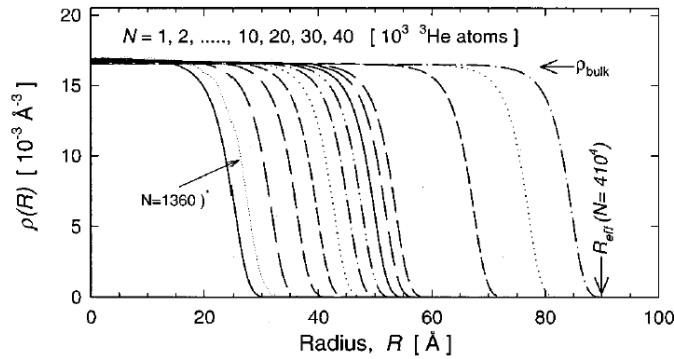


Abbildung 18: Theoretisch berechnete radiale Dichteprofile von ${}^3\text{He}$ -Tröpfchen. [HTBP01]

Die mittlere Geschwindigkeit der ${}^3\text{He}$ -Cluster beträgt im unterkritischen Bereich 250–400 m/s mit einem Geschwindigkeitsverhältnis von $v/\Delta v = 100\text{--}200$ [HTBP01]. Die Verteilungen sind demnach schmäler als die des ${}^4\text{He}$ -Tröpfchenstrahls. In beiden anderen Expansionsbereichen sind bis jetzt keine Messungen durchgeführt worden. Ein ${}^4\text{He}$ ähnliches Verhalten ist aber zu erwarten, da die Eigenschaften, die die unterschiedlichen Clusterbildungen im unterkritischen Bereich hervorrufen, die Flüssigkeitsexpansion nicht beeinflussen sollten.

2.5.4 Radiales Dichteprofil der Heliumtröpfchen

Die mittlere Dichte eines Tröpfchens kann experimentell mit Hilfe von integralen Querschnitten berechnet werden, die über Streuexperimente bestimmbar sind [HTBP01]. Aus diesen Messungen folgt, dass die Heliumtröpfchen im Mittel eine etwas geringere Dichte besitzen als die entsprechenden Flüssigkeiten. Dies ist ein Effekt der geringen Dichte an der Tröpfchenoberfläche, wie auf Abbildung 17 und 18 deutlich wird. Sie zeigen die Ergeb-

	⁴ He– Tröpfchen	³ He– Tröpfchen
Temperatur T [K]	0,38	0,15
Kerndichte ρ [\AA^{-3}]	$2,19 \cdot 10^{-2}$	$1,65 \cdot 10^{-2}$
Oberflächen-Dicke t [\AA]	6,4	6,7
Radius R [\AA]	$2,22 \cdot N^{\frac{1}{3}}$	$2,44 \cdot N^{\frac{1}{3}}$
Bindungsenergie pro Atom [K]	7,15	2,5
Wärmeleitfähigkeit λ [mW/cm K]	$\rightarrow \infty$	$\approx 0,04$
Viskosität η [μP]	$\rightarrow 0$	≈ 200
Spezifische Wärme C_V [J/mol K]	$\rightarrow 0$	2,4
Oberflächenspannung bei $T = 0$ K m [dyn/cm]	0,38	0,16

Tabelle 3: Verschiedene Eigenschaften von ⁴He- und ³He- Tröpfchen im Vergleich. [HTD98, HTBP01, ST87, BS90, EH00, Gre83]

nisse von Dichtefunktionalrechnung für die radialen Dichteprofile der Tröpfchen beider Isotope [HTD98, HTBP01].

Bei beiden Isotopen entspricht die Dichte im Zentrum des Tröpfchens der des makroskopischen Heliums. In einem geringen Bereich an der Oberfläche der Tröpfchen geht die Dichte langsam auf null zurück. Die Oberflächen-Dicke t ist definiert als der Bereich, in dem die Dichte von 90 % auf 10 % der Kerndichte abfällt. Theoretische Rechnungen liefern eine Oberflächendicke von $t \approx 5 \text{\AA}$ für ⁴He-Tröpfchen [HTD98] und $t \approx 8 \text{\AA}$ für ³He-Tröpfchen [HTBP01]. Messungen ergaben für ⁴He eine mittlere Oberflächen-Dicke von $t = 6,4 \pm 1,3 \text{\AA}$ [HTD98]. Für ³He-Tröpfchen wurde eine mittlere Dicke von $t = 6,7 \pm 1,3 \text{\AA}$ beobachtet [HTBP01].

2.6 Dotierung von Heliumtröpfchen

Zur Untersuchung von Heliumtröpfcheneigenschaften gibt es im Wesentlichen zwei Methoden. Zum einen können die Tröpfchen direkt untersucht werden, zum Beispiel durch Streuung an einem Sekundärstrahl. Da Heliumtröpfchen transparent für Laserstrahlen sind, können Photonen nicht verwendet werden, um Heliumtröpfchen direkt anzuregen. Daher dotiert man sie mit Fremdteilchen und beobachtet den Einfluss der Heliumtröpfchen-Umgebung auf deren Eigenschaften.

Die Dotierung der Heliumtröpfchen mit Atomen oder Molekülen kann mittels einer *Pick-Up-Zelle* erreicht werden. Dabei handelt es sich um eine Kammer, in der ein bestimmter Partialdruck p des zu dotierenden Materials herrscht. Der Tröpfchenstrahl durchströmt die Kammer, wobei es zu Stößen zwischen den Heliumtröpfchen und den Atomen bzw. Molekülen kommt. Diese Stöße sind vollständig inelastisch und die Teilchen werden von den Tröpfchen aufgesammelt. Die Anzahl der Stöße hängt vom Partialdruck p ,

der Kammerlänge L und dem Einfangquerschnitt σ_{cap} der Tröpfchen ab. Der Einfangquerschnitt σ_{cap} ist proportional zum geometrischen Querschnitt der Tröpfchen. Damit gilt, unter Verwendung von Gleichung (29):

$$\sigma_{\text{cap}} \propto N^{\frac{2}{3}} \quad (31)$$

Mittels der Ofentemperatur T_{Ofen} lässt sich der Partialdruck p bzw. die Teilchendichte n in der *Pick-Up*-Zelle einstellen. Die Wahrscheinlichkeit, dass k Teilchen aufgenommen werden, folgt einer Poissonverteilung unter der Annahme, dass der Einfangquerschnitt sich nach einer Dotierung nicht ändert:

$$P_k(\bar{Z}) = \frac{\bar{Z}^k}{k!} e^{-\bar{Z}} \quad (32)$$

$\bar{Z} = \sigma_{\text{cap}} n L$ ist die mittlere Stoßzahl beim Durchfliegen der Tröpfchen durch die *Pick-Up*-Zelle. Für kleine Partialdrücke gilt:

$$P_k \propto p^k \quad (33)$$

Die Annahme, der Einfangquerschnitt ändere sich nach einer Dotierung nicht, ist eine Vereinfachung. Denn durch den Einfang eines Teilchens wird dem Tröpfchen Energie zugeführt und es erwärmt sich. Über das Abdampfen von Heliumatomen kühlt sich das Tröpfchen in kurzer Zeit ab und besitzt dann wieder seine ursprüngliche Temperatur. Die zugeführte Energie durch einen Teilcheneinfang setzt sich aus folgenden Bestandteilen zusammen:

$$E_{\text{Ges}}(T_s) = \langle E_{\text{kin}} \rangle_{T_s} + E_i(T_s) + E_{\text{bind}} + E_{\text{comp}} \quad (34)$$

T_s bezeichnet die Temperatur des Fremdteilchens beim Stoß, $\langle E_{\text{kin}} \rangle$ die mittlere kinetische Energie der Relativbewegung von Tröpfchen und Fremdteilchen, E_i die innere Energie des Fremdteilchens, E_{bind} die Bindungsenergie des Fremdteilchens an das Heliumtröpfchen und E_{Comp} die Bindungsenergie eines Fremdteilchenkomplexes bei mehrfacher Dotierung.

Durch das Abdampfen von Heliumatomen verringert sich somit der Einfangquerschnitt der Tröpfchen nach jedem Stoß. Dotiert man z.B. ein ${}^4\text{He}$ -Tröpfchen mit einem Natrium-Atom unter typischen Ofenbedingungen, dampfen 160 Heliumatome von dem Tröpfchen ab [Häg99]. Dies ändert den Einfangquerschnitt bei Tröpfchen einer Größe > 1000 Atome nach einem Stoß allerdings nicht erheblich. ${}^3\text{He}$ -Tröpfchen sind jedoch deutlich schwächer gebunden, und es dampfen ungefähr dreimal so viel Atome wie bei ${}^4\text{He}$ ab.

Ist die zugeführte Energie zu groß, verdampft das komplette Tröpfchen. Es existiert demnach eine Mindestgröße eines Tröpfchens, um mit einem oder mehreren Fremdteilchen dotiert werden zu können.

Die meisten Fremdteilchen lagern sich in der Mitte der Tröpfchen an. Nur Alkali- und Erdalkaliatome nehmen eine besondere Stellung ein. Im Gegensatz zu Molekülen und anderen Atomen, sind die Alkaliatome auf deren Oberfläche gebunden [SHES95a, SHES95b, SHC+96]. Erdalkaliatome befinden sich in der verdünnten Oberflächenschicht [SML97, SML99].

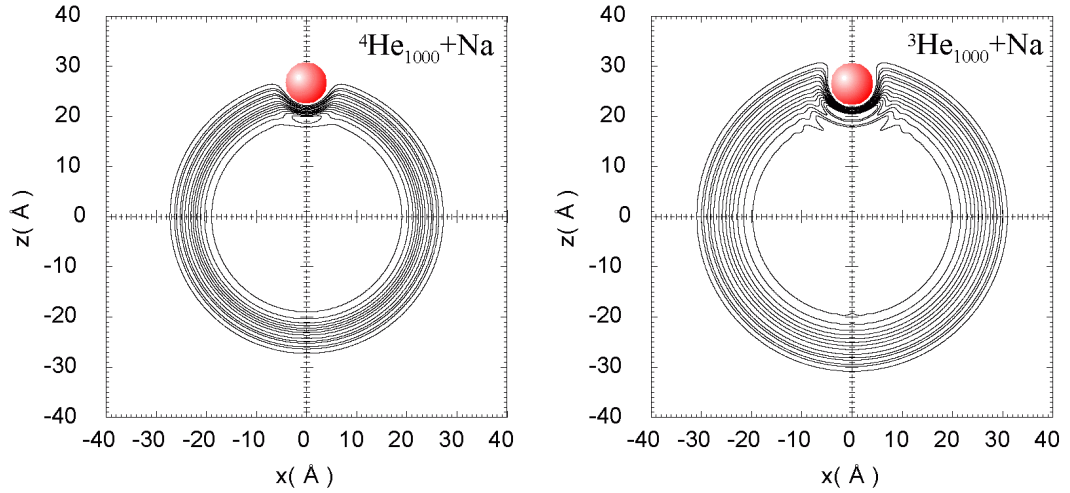


Abbildung 19: Dichteprofile von Natrium dotierten **a)** ${}^4\text{He}$ -Tröpfchen und **b)** ${}^3\text{He}$ -Tröpfchen. Die Linien entsprechen 0, 1%, 0, 5%, 1%, 3%, 5%, 10%, 20%, \dots , 90% der Kerndichte. [PB03]

Dies liegt an der Bindungsenergie des Fremdteilchen-Helium-Komplexes. Alkaliatome sind nur sehr schwach gebunden, und das Außenelektron des s -Orbitals stößt das Helium ab. Daher bildet sich um die Alkaliatome herum eine Blase, ein Gebiet mit verschwindender Heliumdichte. Abbildung 19 **a)** zeigt das Dichteprofil eines mit Natrium dotierten ${}^4\text{He}$ -Tröpfchens, für unsere Arbeitsgruppe theoretisch berechnet mittels Dichtefunktionalrechnungen von M. Pi et al. [PB03]. Die Blase um das Natriumatom ist gut zu erkennen. Dieselbe Rechnung durchgeführt mit ${}^3\text{He}$ ergibt (Abbildung 19 **b)**), dass sich ebenfalls eine Blase um das Natrium zu bilden scheint. Das Natrium ist jedoch etwas tiefer im Tröpfchen gebunden. Im Rahmen dieser Rechnungen wurden auch die Bindungsenergien des Natriums an die jeweiligen Tröpfchen bestimmt [PB03]:

$$\begin{aligned} E_{\text{bind}}(\text{Na}^4\text{He}_{1000}) &= 8,6 \text{ K } (0,74 \text{ meV}) \\ E_{\text{bind}}(\text{Na}^3\text{He}_{1000}) &= 9,2 \text{ K } (0,79 \text{ meV}) \end{aligned} \quad (35)$$

3 Experimenteller Aufbau

In der Arbeitsgruppe existieren zwei Apparaturen, um Experimente mit dotierten Heliumtröpfchen durchzuführen. Sie enthalten jeweils eine Kammer in der die Heliumtröpfchen erzeugt werden, eine Kammer in der sie mittels Verdampfungsöfen dotiert werden können, und verschiedene Detektoranordnungen, die es möglich machen laserinduzierte Fluoreszenz (LIF), laserinduzierte Strahlabschwächung (LIBD), Photoionisation und elektronenstoß- bzw. photoionisierte Massenspektren der Dotierungen zu untersuchen.

Die neu konstruierte Clusterquelle sollte in beiden vorhandenen Apparaturen eingesetzt werden können. Ursprünglich wurden beide Quellenkammern identisch angefertigt. Allerdings wurden an beiden verschiedene Modifikationen vorgenommen, um bestimmte Experimente durchführen zu können. Eine Quellenkammer beinhaltet zusätzlich einen *para-ortho*-Wasserstoffkonverter, mit dessen Hilfe *para*-Wasserstoffcluster erzeugt werden können [Web01]. Die zweite enthält einen Aufbau zur Dotierung der Heliumtröpfchen durch Laser-Ablation [Men01]. Nach den Quellenkammern folgt jeweils eine Ofenkammer mit einem bzw. zwei Verdampfungsöfen zur Dotierung der Tröpfchen. Anschließend finden sich verschiedene Detektoren. Eine dieser Apparaturen ist mobil und wurde z.B. in Berlin am Max-Born-Institut verwendet, um zeitaufgelöste Pump-Probe-Spektroskopie durchzuführen.

In dieser Arbeit soll hauptsächlich die nicht mobile Apparatur beschrieben werden, da an ihr die später vorgestellten Messungen erfolgten. Die mobile Apparatur und ihr Einsatz in Berlin wird in einem separaten Kapitel kurz skizziert. Auf die Konstruktion der Clusterquelle wird im Detail eingegangen.

3.1 Aufbau der Apparatur

3.1.1 Kammersystem

Die Apparatur besteht aus 5 separaten Vakuumkammern. Sie sind alle durch Ventile voneinander getrennt und können somit einzeln belüftet werden. Abbildung 20 zeigt den schematischen Aufbau des Experiments.

Quellenkammer

Die Quellenkammer beinhaltet die Clusterquelle sowie den Wasserstoffkonverter. Dieser ist in der Darstellung auf Abbildung 20 weggelassen worden, da er in Verbindung mit der neuen Quelle nicht verwendet wird. Konstruktion und Funktionsweise des Wasserstoff-Konverters sind in der Diplomarbeit von J. Weber beschrieben [Web01].

Der Clusterstrahl wird an der Düse mit den Expansionsbedingungen T_0 und p_0 erzeugt und verlässt die Kammer durch einen Skimmer. Er dient dazu, den Strahl abzuschälen und eine Strahlzerstörung aufgrund von Schockwellen zu verhindern. Diese Schockwellen bilden sich durch den Hintergrundsdruck in der Vakuumkammer. Der Skimmer muss in den isentropen Bereich der

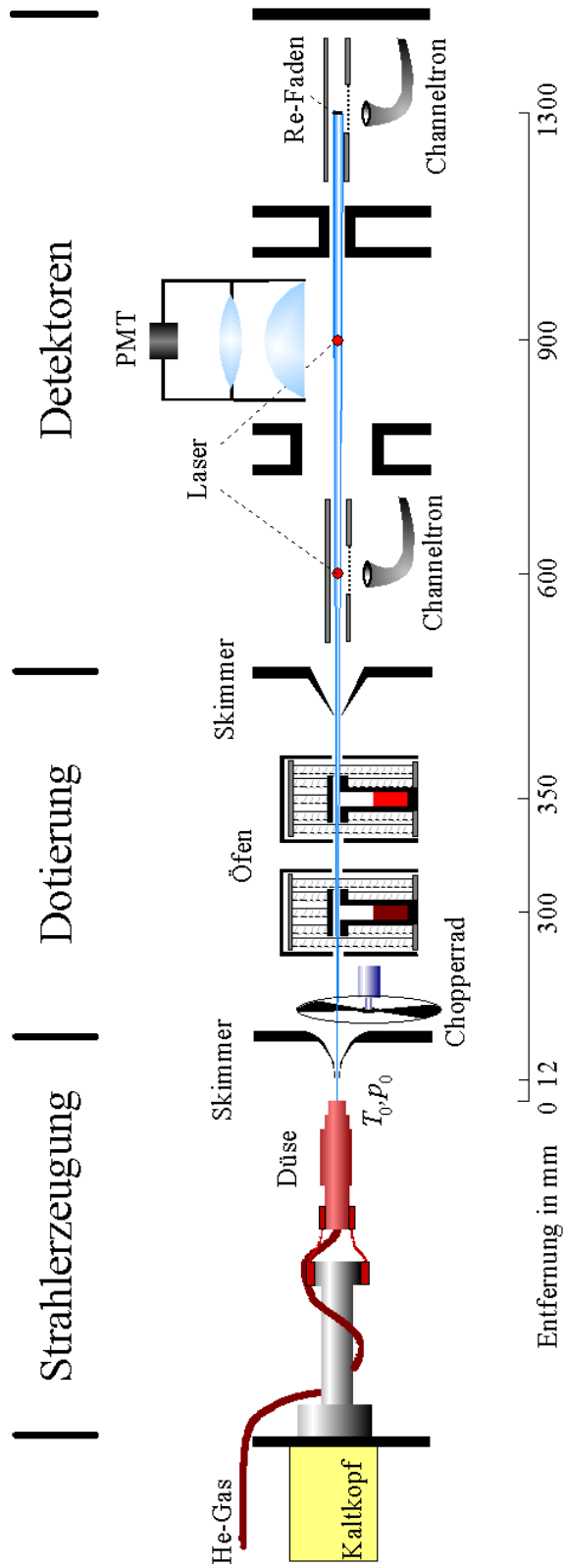


Abbildung 20: Schematischer Aufbau des Experiments (nicht maßstabsgetreu).

Expansion platziert werden. Es befindet sich ein Skimmer der Öffnung $400\ \mu\text{m}$ in einem Abstand von 12 mm nach der Düse. Die Düse liegt in einer Halterung aus Delrin, dessen Lage über einen Miniaturkreuztisch variiert wird und die Düse somit justiert werden kann.

Die Quellenkammer wird durch eine große Öldiffusionspumpe (*DIP 8000, Leybold*) mit einer Pumpleistung von $8000\ \text{m}^3/\text{h}$ evakuiert. Um eine maximale Pumpleistung zu gewährleisten wurde auf eine Schalendampfsperre verzichtet. Allerdings muss jetzt sowohl der Skimmer, als auch die Düse bei Nichtbetrieb geheizt werden, damit sie sich nicht durch kondensierendes Öl zusetzen. Als Vorpumpe fungiert eine Rootspumpe (*RUVAC WA501, Leybold*) mit einer Pumpleistung von $500\ \text{m}^3/\text{h}$, die wiederum eine Drehschieberpumpe (*TRIVAC D65B, Leybold*) mit einer Pumpleistung von $65\ \text{m}^3/\text{h}$ als Vorpumpe verwendet. Die hohe Pumpleistung ist notwendig, da der Gasanfall bei tiefen Düsentemperaturen sehr hoch ist.

Ofenkammer

In der Ofenkammer befinden sich zwei Verdampfungsöfen sowie ein Chopperrad, um den Clusterstrahl periodisch unterbrechen zu können ($\approx 120\ \text{Hz}$). Bei den Verdampfungsöfen handelt es sich um mit dem gewünschten Material gefüllte Edelstahlzellen, die über eine Strahlungsheizung erhitzt werden ($T_{\text{max}} \approx 1000^\circ\text{C}$). Durch zwei Löcher ($\emptyset = 3\ \text{mm}$) kann der Clusterstrahl die Zellen durchströmen und über Stöße die Fremdteilchen aufsammeln. Die genaue Konstruktion der Öfen kann in der Diplomarbeit von M. Wewer nachgelesen werden [Wew99].

Diese Kammer wird von einer Öldiffusionspumpe (*DIF 250, Blazers*) mit einer Pumpleistung von $3200\ \text{m}^3/\text{h}$ bepumpt. Es befindet sich eine Schalendampfsperre zwischen Kammer und Pumpe. Als Vorpumpe dient eine Drehschieberpumpe (*DUO 030 A, Pfeiffer-Blazers*) der Pumpleistung $30\ \text{m}^3/\text{h}$.

Photoionisations-Detektor

In dieser Kammer wird der Clusterstrahl mit zwei zur Deckung gebrachten Laserstrahlen gekreuzt. Ein durchstimmbarer, kontinuierlicher Farbstofflaser dient dazu, die Dotierungen anzuregen, wonach sie durch einen Ar^+ -Ionen-Laser (*Innova 200, Coherent, UV multiline 5 W*) photoionisiert werden können. Die gebildeten Ionen werden mittels eines Channeltrons oder massen aufgelöst mit einem Quadrupolmassenspektrometer nachgewiesen. Zur Zeit der in dieser Arbeit vorgestellten Messungen befand sich dieser Detektor gerade in der Aufbauphase und war noch nicht betriebsbereit. Die Vakuumkammer war allerdings schon in die Apparatur integriert. Die Diplomarbeit von S. Cunovic wird die Funktionsweise dieses Detektors und seine Verwendung erläutern [Cun04].

Bepumpt wird diese Kammer durch eine Turbomolekularpumpe (*CFF450 Turbo, Alcatel*) mit einer Pumpleistung von $450\ \text{m}^3/\text{h}$. Die Vorpumpe teilt

sie sich mit der LIF-Detektor-Kammer. Es handelt sich um eine Drehschieberpumpe (*TRIVAC D40B, Leybold*) mit der Pumpleistung von $40 \text{ m}^3/\text{h}$.

LIF-Detektor

Zur Messung der laserinduzierten Fluoreszenz (LIF) wird hier der Clusterstrahl mit dem Strahl eines durchstimmbaren, kontinuierlichen Farbstoff-Lasers gekreuzt. Das emittierte Licht der Dotierung wird mittels eines Linsensystems auf einen Photomultiplier (*R5600U-01, Hamamatsu*) abgebildet. Es besteht weiterhin die Möglichkeit ein Spektrometer zu verwenden, um das emittierte Licht spektral zu zerlegen. Das ursprüngliche Spektrometer wurde von C. Pott mit einer Peltier-Kühlung konzipiert [Pot01]. Diese wurde inzwischen durch eine Flüssig-Stickstoff-Kühlung ersetzt, um das thermische Rauschen weiter zu verringern.

Evakuiert wird die Kammer mittels einer Turbomolekularpumpe (*Turbovac 361, Leybold*) der Pumpleistung $360 \text{ m}^3/\text{h}$. Wie bereits erwähnt, teilt sie sich die Vorpumpe mit dem Ion-Detektor.

LT-Detektor

Die letzte Kammer beinhaltet einen *Langmuir-Taylor-Oberflächen-Ionisation*-Detektor zum Nachweis von Alkali- bzw. Erdalkali dotierten Cluster. Durch

	Hintergrundsdruck	$p_0 = 20 \text{ bar}$ $T_0 = 313 \text{ K}$ $d = 5 \mu\text{m}$	$p_0 = 20 \text{ bar}$ $T_0 = 15 \text{ K}$ $d = 5 \mu\text{m}$
Quellen-Kammerdruck [mbar]	$5,0 \cdot 10^{-7}$	$1,0 \cdot 10^{-5}$	$7,0 \cdot 10^{-5}$
Kammervordruck [mbar]	$3,0 \cdot 10^{-3}$	$6,0 \cdot 10^{-3}$	$3,0 \cdot 10^{-2}$
Ofen-Kammerdruck [mbar]	$1,0 \cdot 10^{-7}$	$1,1 \cdot 10^{-7}$	$2,0 \cdot 10^{-7}$
Kammervordruck [mbar]	$6,0 \cdot 10^{-2}$	$6,0 \cdot 10^{-2}$	$7,0 \cdot 10^{-2}$
Ion-Detektor-Kammerdruck [mbar]	$1,0 \cdot 10^{-7}$	$1,0 \cdot 10^{-7}$	$1,0 \cdot 10^{-7}$
Kammervordruck [mbar]	$1,0 \cdot 10^{-2}$	$1,0 \cdot 10^{-2}$	$1,0 \cdot 10^{-2}$
LIF-Detektor-Kammerdruck [mbar]	$1,0 \cdot 10^{-7}$	$1,0 \cdot 10^{-7}$	$1,0 \cdot 10^{-7}$
Kammervordruck [mbar]	$1,0 \cdot 10^{-2}$	$1,0 \cdot 10^{-2}$	$1,0 \cdot 10^{-2}$
LT-Detektor-Kammerdruck [mbar]	$6,0 \cdot 10^{-8}$	$1,0 \cdot 10^{-7}$	$5,0 \cdot 10^{-7}$

Tabelle 4: Kammerdrücke und -vordrücke bei unterschiedlichen Bedingungen.

einen glühenden Rheniumfaden werden mittels Oberflächen-Ionisation die Atome ionisiert und anschließend können sie durch ein Channeltron nachgewiesen werden. M. Wewers Diplomarbeit [Wew99] sowie die dazugehörige Veröffentlichung [SWML00] beschreiben ausführlich die Funktion und den Aufbau des Detektors .

Eine Ionen-Getter-Pumpe (*VacIon Plus 75, Varian*) sorgt für das Vakuum. Sie hat eine Pumpleistung von $75 \text{ m}^3/\text{h}$ und benötigt keine Vorpumpe.

Druckmessung

Die Drücke in den Vakuumkammern werden mit Hilfe von Ionisationsvakuummetern (*IoniVac IM 210, Leybold-Heraeus*) gemessen. Verschiedene Wärmeleitungsvakuummeter (*Thermovac, Leybold-Heraeus*) dienen zur Bestimmung der Vordrücke. Tabelle 4 zeigt typische Kammerdrücke mit und ohne Clusterstrahl. Der Druckanstieg im LT-Detektor ist ein gutes Maß zur Justage des Clusterstrahls.

3.1.2 Optischer Aufbau

In Abbildung 21 ist der in den Experimenten verwendete Laseraufbau dargestellt. Es wurde ein Ar^+ -Laser (*Innova 90, Coherent, VIS multiline, 8 W*) gepumpter kontinuierlicher Farbstofflaser (*CR-699 Ring Laser, Coherent*) verwendet. Durch Drehung des doppelbrechenden Filter mittels eines Schrittmotors kann die Wellenlänge des Lasers durch das Messprogramm verändert werden. In den hier beschriebenen Experimenten wurde ausschließlich der Laserfarbstoff Rhodamin 6G verwendet, da in dem Bereich von $16500\text{--}18000 \text{ cm}^{-1}$ das $\text{Na}(^4\text{He}_N)$ -Spektrum liegt [SHC⁺96]. Er wurde ohne Etalon, also Multimode, betrieben, so dass eine Auflösung von $0,05 \text{ cm}^{-1}$ erreicht werden konnte. Der Laserstrahl wird mit einem Strahlteiler geteilt, wodurch ein kleiner Teil in ein Wavemeter (*WR 20, Burleigh*) gelenkt wird.

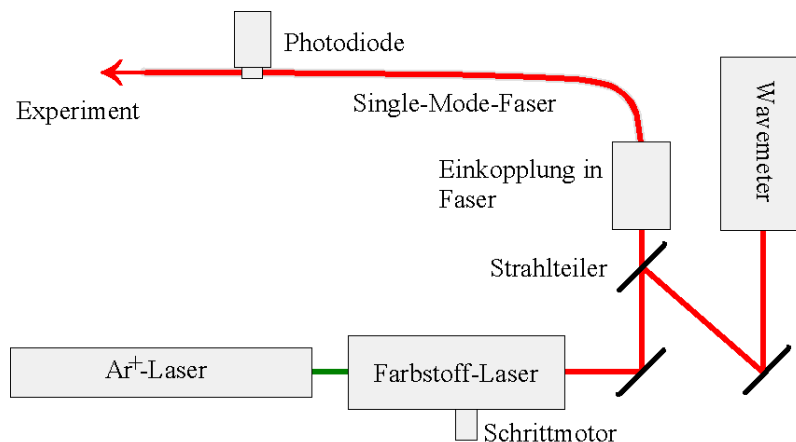


Abbildung 21: Optischer Aufbau

Durch einen Single-Mode-Lichtwellenleiter (*F-SV, Newport*) wird der Laserstrahl zum Experiment geführt. Einkoppelt wurde er mit Hilfe des *Automatic Launchmasters* von *York*. Der Verlauf der Laserleistung wird durch eine von der Elektronik-Werkstatt gefertigten Photodiode über das Streulicht der Faser qualitativ bestimmt. Am Experiment wird der Laserstrahl aus der Faser ausgekoppelt, anschließend der nun divergente Laserstrahl durch ein Mikroskop-Objektiv parallelisiert und letztendlich über ein Fenster in die Vakuumkammer eingestrahlt. Somit stand abhängig von der Wellenzahl am Kreuzungspunkt eine Laserleistung von 90 – 120 mW zur Verfügung.

3.1.3 Datenaufnahme

Die Datenaufnahme sowie die Steuerung des Experiments sind auf Abbildung 22 schematisch dargestellt. Mit Hilfe des Messprogramms kann ausgewählt werden, welche Daten aufgenommen werden sollen. Die Düsentemperatur, sowie die Temperatur der 1. Stufe des Kaltkopfs werden durch den Temperaturregler *Lake Shore 333* über Halbleiterdioden ausgelesen. Das Gerät steuert zusätzlich die Heizung der Düse. Die Wellenzahl kann mit Hilfe eines Schrittmotors, durch Drehen des doppelbrechenden Filters des Farbstofflasers, verändert werden. Die zusätzlichen analogen Eingänge können verschiedene Daten einlesen. Ihre Hauptaufgabe lag in der Aufnahme von Kammer-

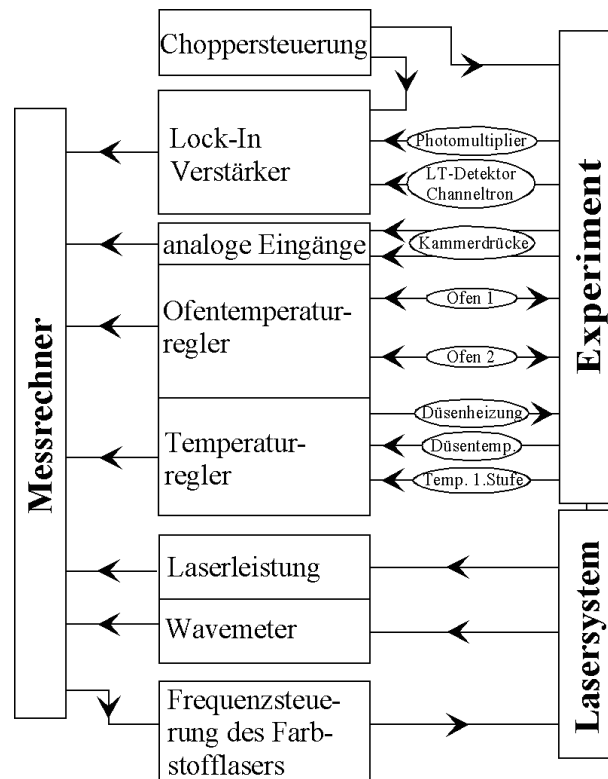


Abbildung 22: Datenaufnahme des Experiments

drücken. Das Messprogramm wurde von K. Multhaup entwickelt [Mul02].

3.2 Aufbau der neuen Clusterquelle

Die bereits vorhandene Clusterquelle erreicht Endtemperaturen von knapp 17 K. Ihre Konstruktion wird in der Diplomarbeit von A. Hägele beschrieben [Häg99]. Um die Möglichkeit zu erlangen, Experimente mit ^3He -Tröpfchen und mit sehr großen ^4He -Tröpfchen durchführen zu können, benötigt man jedoch deutlich tiefere Temperaturen. Die neue Clusterquelle sollte die Möglichkeit besitzen, diese Temperaturen zu erreichen. Darüberhinaus musste sie kompatibel zu den beiden vorhandenen Clusterquellen sein. Da keine Helium-Rückgewinnungsanlage vorhanden ist, sollte das Totvolumen des Gasleitungssystems möglichst gering gehalten werden, um so wenig wie möglich ^3He zu verschwenden. Zusätzlich sollten die zu kühlenden Kupfertteile der Clusterquelle eine möglichst geringe Masse haben, um die Abkühlzeit kurz zu halten.

3.2.1 Der Kaltkopf

Um die Anforderungen an die Temperatur erfüllen zu können, wurde der 4K Kaltkopf *RDK-408D* der Firma *SHI* verwendet. Er wird mit einem wassergekühlten Kompressor *CSW-71D* betrieben. Als Arbeitsgas wird Helium in einem geschlossenen Kreislauf genutzt. Die Kältemaschine durchläuft einen modifizierten zweistufigen *Gifford-McMahon*-Prozess. Es handelt sich somit um eine Wärmekraftmaschine, die einen regenerativen Kreisprozess verwendet.

Einstufiger Gifford-McMahon-Prozess

Der von *Gifford* und *McMahon* entwickelte Kreisprozess arbeitet mit zwei Arbeitsvolumina V_1 und V_2 , in denen verschiedene Temperaturen herrschen. Ein Verdränger (*Displacer*) bewegt sich zwischen beiden Volumina hin und her. Sie sind durch einen Regenerator verbunden, in dem ein Temperaturgradient herrscht. Die Hoch- bzw. Niederdruckseite eines Kompressors wird abwechselnd mit dem System verbunden (vergleiche Abbildung 24 **pressure build-up**).

Der Prozess durchläuft dabei den auf Abbildung 23 dargestellten Weg im T - s -Diagramm. Er kann in vier Abschnitte unterteilt werden (Abbildung 24):

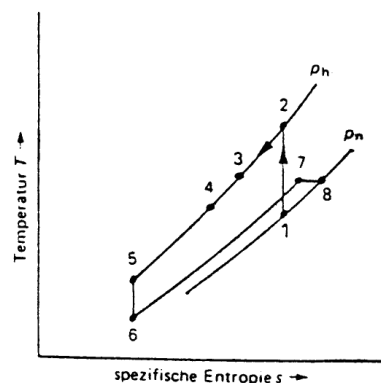


Abbildung 23: *Gifford-McMahon*-Prozess [FH81]

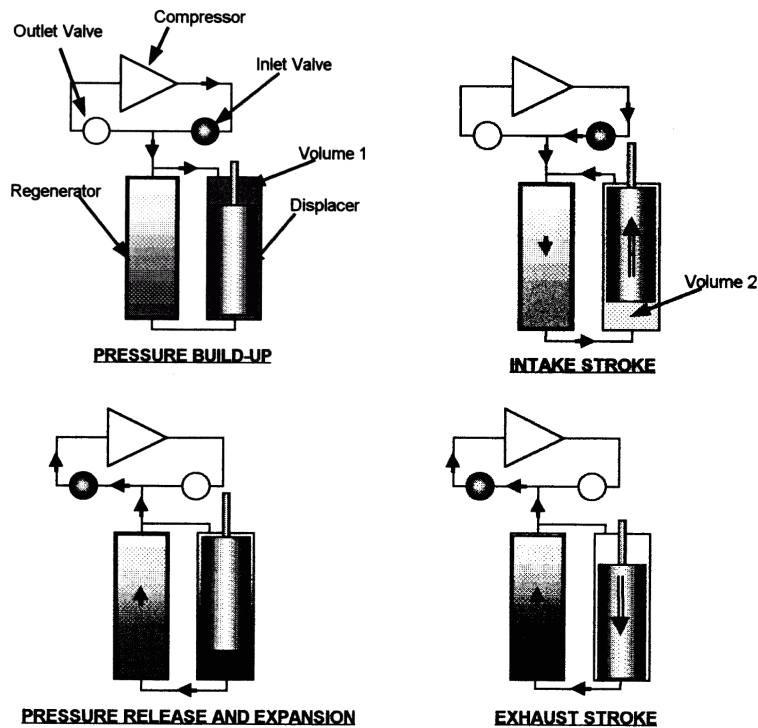


Abbildung 24: Die vier Phasen des *Gifford-McMahon*-Prozesses schematisch dargestellt. [Sum01b]

1. Druckaufbau (**pressure build-up**)

Der Verdränger befindet sich in seiner unteren Stellung (1) und das Hochdruckventil wird geöffnet. Das Helium wird adiabatisch und quasi-isentrop in V_1 komprimiert und erwärmt sich ($1 \rightarrow 2$). Das Druckgefälle nimmt ab und das nachfolgende Helium wird schwächer erwärmt als das vorherige ($2 \rightarrow 3 \rightarrow 4$).

2. Einlasshub (**intake stroke**)

Der Verdränger bewegt sich bei geöffnetem Hochdruckventil in seine obere Stellung. Das Helium wird über den Regenerator von V_1 in V_2 umgefüllt. Dabei wird es isobar abgekühlt ($4 \rightarrow 5$). Durch die Temperaturabnahme verringert sich der Druck und mehr Helium strömt nach.

3. Druckabbau (**pressure release and expansion**)

Das Hochdruckventil wird geschlossen und dafür das Niederdruckventil geöffnet. Das Helium strömt langsam über den Regenerator aus V_2 aus. Dadurch wird es quasi-isentrop entspannt und kühlt weiter ab ($5 \rightarrow 6$). Diese Temperaturabnahme ist die effektive Kühlung des Prozesses.

4. Auslasshub (**exhaust stroke**)

Letztendlich kehrt der Verdränger bei geöffnetem Niederdruckventil

in die untere Lage zurück. Das Helium strömt über den Regenerator zurück in V_1 und erwärmt sich dabei ($6 \rightarrow 7$). Bei der Ausgleichung des verbleibenden Druckgefälles wird es isenthalp entspannt ($7 \rightarrow 8$). Die Endtemperatur (8) ist größer als die Anfangstemperatur (1). Diese Wärmemenge kann dem System als thermische Energie entzogen werden.

Zweistufiger Gifford-McMahon Prozess

Der verwendete Kaltkopf durchläuft einen modifizierten zweistufigen *Gifford-McMahon*-Prozess. Abbildung 25 zeigt den Schnitt durch einen typischen Kaltkopf dieser Art. Die beiden Verdränger (Displacer 1+2) sind aus einem Block gefertigt und bewegen sich somit in Phase. Die beiden Regeneratoren befinden sich im Inneren der Verdränger. Das kalte Volumen $V_{1,2}$ der ersten Stufe und das warme Volumen $V_{2,1}$ der zweiten Stufen sind eins.

Der Vorteil derartiger Kältemaschinen, zum Beispiel im Vergleich zur Stirling Maschine, liegt darin, dass Kompressor und Verdrängersystem voneinander getrennt werden können. Somit wird Masse, die sonst gekühlt werden müsste, eingespart. Darüberhinaus sind die Vibrationen an der Kühlstelle gering. Zusätzlich verfügt sie über zwei Kühlstellen, eine relativ warme (1. Stufe) und eine kalte (2. Stufe). Die 1. Stufe hat dabei erheblich mehr Leistung als die 2. [Sum01a]. Mit Hilfe der 1. Stufe kann z.B. eine Abschirmung vor Wärmestrahlung für das eigentlich zu kühlende Objekt vorgenommen werden. Der Kaltkopf *RDK-408D* verfügt über eine Kühlleistung von 31 W bei 40 K an der 1. und 1 W bei 4, 2 K an der 2. Stufe [Sum01b].

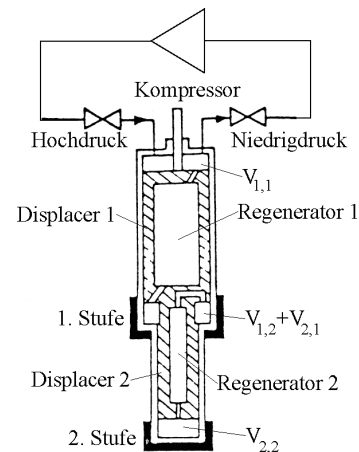


Abbildung 25: Schematische Darstellung eines zweistufigen Kaltkopfs. [FH81]

3.2.2 Die neue Clusterquelle

Die Konstruktion der neuen Clusterquelle musste sich an die gegebenen Maße der schon vorhandenen Quellen anlehnen. Die Länge vom Flansch bis zur Justagehalterung der Düse war fest vorgegeben (42, 5 cm Abbildung 26). Die Konstruktion der Düse, sowie ihrer Abschirmung musste ebenfalls der vorhandenen Quellen nachempfunden werden, damit sie in die vorhandene Justagehalterung passte. Zum Minimieren der Masse wurden die Abschirmungen so klein wie möglich gehalten.

Abbildung 27 zeigt eine maßstabgetreue Zeichnung der konstruierten Quelle sowie des Übergangsflansches, anhand der die mechanische Werkstatt die einzelnen Teile fertigte. Die Konstruktion besteht im Wesentlichen aus

zwei Bestandteilen, der Abschirmung, die Kontakt zur 1. Stufe des Kaltkopfs hat, und der Düse, die über die 2. Stufe gekühlt wird.

Die Abschirmung besteht aus einem Kupferschuh, der auf der 1. Stufe sitzt, sowie einem langen Kupferrohr. Über bewegliche Kupferbänder ist das Kupferrohr mit einem Kupferzylinder verbunden, der direkt die Düse vor Wärmestrahlung abschirmt. Über die Verbindung mit beweglichen Kupferbändern wird ein Kupferkonus gestülpt. Die Abschirmung dient dazu, die zu kühlenden Teile der Clusterquelle vor Wärmestrahlung zu schützen. Sie erreicht in diesem Aufbau eine Endtemperatur von 25 K ohne Gaslast und 72–78 K je nach Stagnationsdruck mit Gaslast.

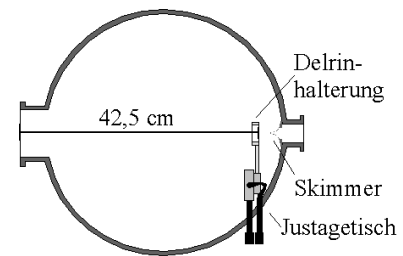


Abbildung 26:
Quellenkammer

Die Düse selbst ist ein 97 mm langer Kupferzylinder mit einer 2 mm Bohrung. Als Düsenöffnung dient eine Platin-Lochblende für Elektronenmikroskope der Firma *Plano W. Plannet GmbH* mit einer Blendenöffnung von $5 \pm 1 \mu\text{m}$. Das Plättchen wird durch ein Einrollverfahren an dem Kupferzylinder befestigt. Die komplette Düse wird über zwei Delrinringe in einem Kupferzylinder zentriert. Dieser hat wiederum Wärmekontakt zu der Abschirmung und wird in die Delrinhalterung der Justageeinrichtung geschoben. Die Düse ist über bewegliche Kupferbänder mit einem Kupferschuh verbunden, der Kontakt zur 2. Stufe des Kaltkopfs besitzt. Damit ist die Düse frei beweglich und entkoppelt von den Schwingungen des Kaltkopfs. Ohne Gaslast wird eine Endtemperatur von 4,5 K erreicht. Mit Gaslast beträgt die Endtemperatur je nach Stagnationsdruck 8–9 K.

Das einströmende Helium wird auf der ersten Stufe über vier Wicklungen vorgekühlt. Dann durchströmt es einen $2 \mu\text{m}$ Edelstahlfilter (*SS-3F-MM-2, Swagelok*), der aus Platzmangel keinen Wärmekontakt zu der Kühlung besitzt, außer über die Leitung und das Gas. Anschließend wird das Gas über drei Wicklungen an der zweiten Stufe des Kühlkopfs erneut vorgekühlt und erreicht schließlich die Düse. Die Vorkühlung ist notwendig, da der Fluss des Heliums mit sinkender Düsentemperatur stark zunimmt.

Die Temperatur wird über Silikondioden der Firma *Lake Shore* gemessen und mit dem Steuergerät *Lake Shore 333* ausgelesen. Die bisher verwendeten Sensoren (*DT-471-SD*) sind nur für Temperaturen bis 10 K brauchbar. Daher wurde für die Messung der Düsentemperatur die Diode *DT-670C-SD* eingesetzt. Die Temperatur der 1. Stufe wurde weiterhin mit einem vorhandenen Sensor gemessen. Die Kältemaschine selber hat keine Möglichkeit, ihre Leistung zu regeln. Somit muss die Düse geheizt werden, um eine bestimmte Temperatur einzustellen. Das Steuergerät besitzt einen *PID-Controller* (proportional-integral-derivative), mit dessen Hilfe eine Heizung gesteuert werden kann. Die Steuerung macht es möglich, die Temperatur auf einem bestimmten Wert zu halten. Als Heizdraht wurde ein zweiadriger Mantel-

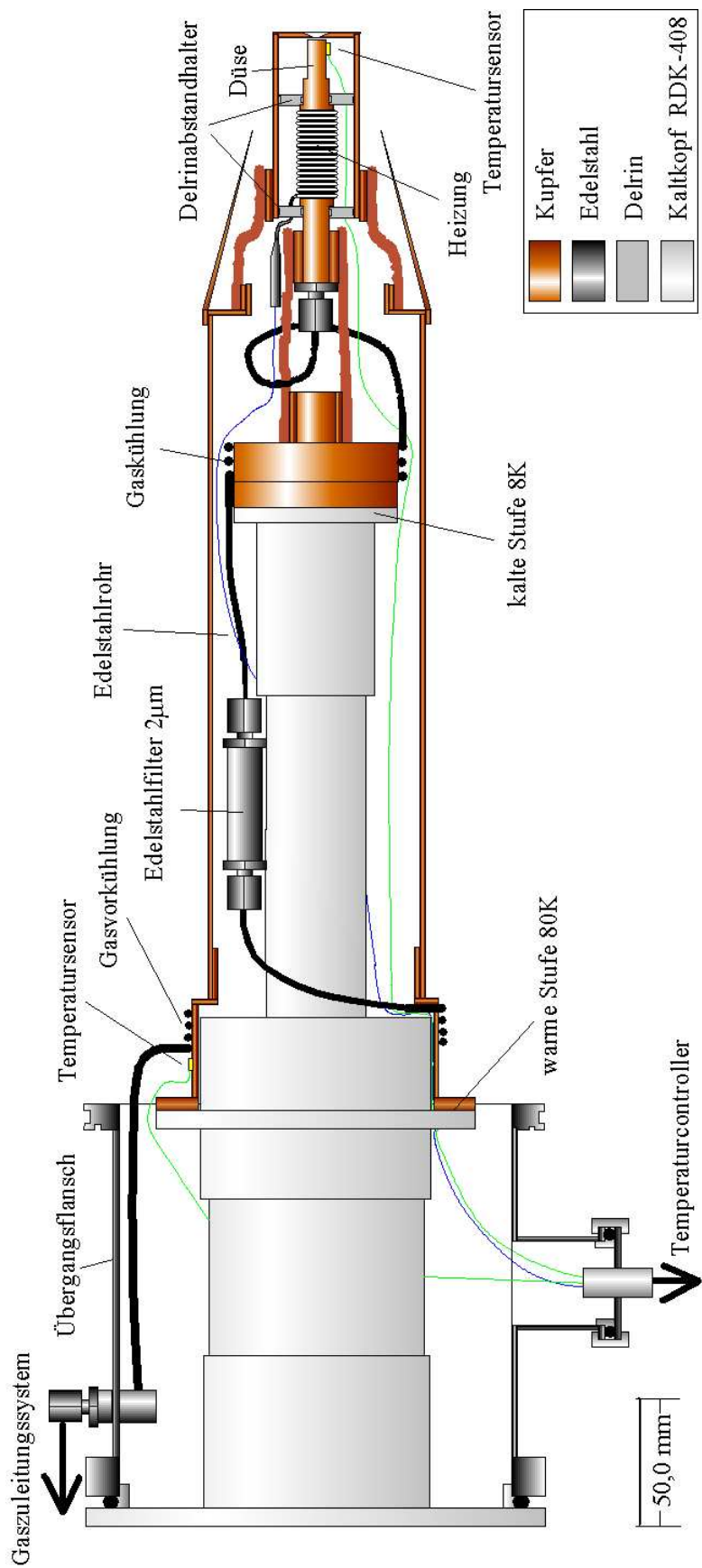


Abbildung 27: Aufbau der neuen Clusterquelle.

Heizleiter (*2NcNcI15, Thermocoax*) verwendet. Die Endstücke wurden selbst gefertigt. Da keine Klarheit bestand, wie viel Kühlleistung an der Düse bereitsteht, war auch nicht vorherzusehen, wie viel Heizleistung benötigt werden würde, um die gewünschten Temperaturen zu erreichen. Ziel war es, unterhalb von 30 K jede Temperatur schnell erreichen und konstant halten zu können. Die Heizleistung von 50 W (50 V, 1 A) des Steuergeräts stellte sich als ausreichend heraus. Der Heizleiter wurde auf eine Länge von ≈ 90 cm zugeschnitten, was einem Widerstand von $32,5 \Omega$ entspricht. Mit der entsprechenden *PID*-Einstellung können nun Temperaturen bis zu 25 K mit einer Genauigkeit von $\pm 0,03$ K eingestellt werden. Bei voller Heizleistung (32,5 W) und laufender Kühlung stabilisiert sich die Düsentemperatur auf ≈ 70 K. Eine Düsentemperatur von ≈ 15 K stellt sich bei einem Zehntel der maximalen Leistung (3,25 W) ein. Aufgrund der hohen Heiz- sowie Kühlleistung ist die *PID*-Einstellung problematisch. Unterhalb von 15 K genügt eine Einstellung, um alle niedrigen Temperaturen schnell stabilisieren zu können. Will man höhere Temperaturen erreichen, muss die Heizleistung erhöht werden. Dementsprechend muss die *PID*-Einstellung verändert werden. Für Temperaturen jenseits der 25 K war es nicht möglich, eine zufriedenstellende Einstellung zu finden. Die Reaktionszeit auf die Kühlung bzw. Heizung der Düsentemperatur ist sehr kurz, so dass der Controller bei keiner der verwendeten Einstellungen schnell genug reagiert und die Düsentemperatur sich nur sehr langsam stabilisiert.

3.2.3 Gaszuleitungssystem

Eine weitere Aufgabe bestand darin, ein Gaszuleitungssystem zu entwerfen, welches ermöglicht, Experimente mit ^3He durchzuführen. Um bei den geplanten Experimenten möglichst hohe Tröpfchenstrahlintensitäten zu erlangen, ist ein hoher Stagnationsdruck p_0 wünschenswert. Allerdings steigt der Fluss des Heliums durch die Düse proportional zu p_0 und somit auch der Anteil, der verloren geht. Da keine Rückgewinnungsanlage für Helium vorhanden war, sollten diese Verluste möglichst gering gehalten werden. M. Hartmann führte im Rahmen seiner Doktorarbeit [Har97] Experimente mit ^3He -Tröpfchen durch. Die von ihm verwendeten Expansionsbedingungen von $p_0 = 20$ bar und $T_0 = 11$ K wurden als sinnvoll für die geplanten Experimente befunden. Man entschied sich für die Reinheit 99,99995 % des ^3He . Die Gefahr, dass die Düse sich durch zusätzliche Verunreinigungen zusetzen könnte, versuchte man dadurch zu minimieren, indem ein Edelstahlfilter zwischen die beiden Kühlstufen eingebaut und ein bestimmtes Einlassverfahren genutzt wurde. ^3He wurde letztendlich in 75 ml Edelstahlflaschen beschafft (*Campro Scientific*). Die Füllung bestand aus 5 Gaslitern, wodurch sich ein Druck von 66,66 bar ergibt.

Abbildung 28 zeigt das entworfene System. Die verschiedenen Elemente sind in einen von der mechanischen Werkstatt gefertigten Edelstahlblock eingeschraubt. Die Gewinde sind durch 1,5 mm-Bohrungen untereinander ver-

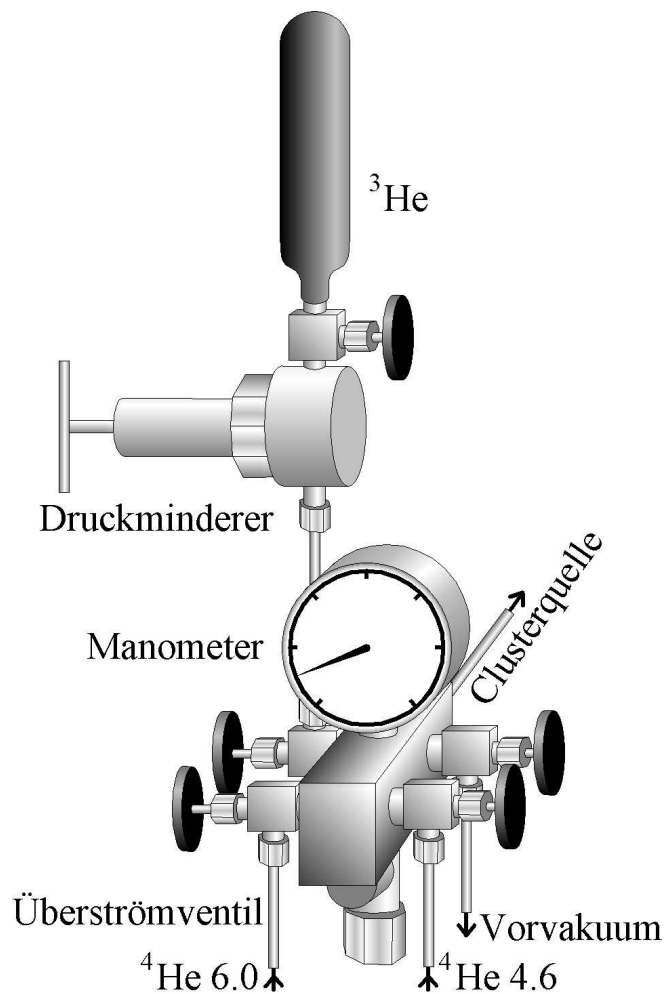


Abbildung 28: Gaszuleitungssystem der neuen Clusterquelle. ${}^4\text{He}$ 6.0 steht für ${}^4\text{He}$ der Reinheit 99,999999 % und ${}^4\text{He}$ 4.6 für 99,99996 % reines ${}^4\text{He}$.

bunden. Zur Druckmessung wird ein Manometer (*PGI-63B-BG100-LAOX, Swagelok*) verwendet. Ein Überströmventil (*SS-4R3A5, Swagelok*) schützt das System vor zu hohen Drücken. Es ist auf einen Maximaldruck von 120 bar eingestellt. An beiden Seiten befinden sich jeweils zwei Regulier- und Absperrventile (*SS-ORM2-S2-A, Swagelok*). Eines davon führt zum Vorpumpensystem der Quellenkammer, damit das System evakuiert werden kann. Das zweite Ventil führt zur Versorgung mit ${}^4\text{He}$ der Reinheit 99,99996 %. Dies wird verwendet, wenn die Clusterquelle lange nicht genutzt wird, um das teure ${}^4\text{He}$ der Reinheit 99,999999 % nicht unnötig zu verschwenden. Ein weiteres Ventil dient zum Einlass von ${}^4\text{He}$ der Reinheit 99,999999 %. Das letzte Ventil führt über einen Druckminderer zur ${}^3\text{He}$ -Flasche. Der ursprüngliche Plan, den Druck über ein sehr feines Nadelventil zu regulieren, erwies sich bei Tests mit ${}^4\text{He}$ als äußerst schwierig und das Risiko lag viel zu hoch, das

Nadelventil zu weit zu öffnen und ^3He zu verschwenden.

Das Todvolumen des Gassystems kann durch eine Rechnung abgeschätzt werden. Das Volumen der einzelnen Bestandteile (Düse, Rohre, Filter, Verbindert, Durchführung, Edelstahlblock, Gewinde, Ventile, Manometer, Überströmventil) wurde einzeln berechnet und anschließend addiert. Leider ist über das Volumen des Druckminderers nichts bekannt. Ohne ihn liegt das Volumen des Gaszuleitungssystem bei $\approx 12 \text{ cm}^3$. Experimentell wurde es über die Abfallzeit des Drucks auf die Hälfte des Flaschenvolumens abgeschätzt, $\approx 32,5 \text{ cm}^3$. Wurde in der Abschätzung nichts übersehen, verfügt der Druckminderer über ein sehr großes Volumen.

Um eine Messung mit ^3He durchzuführen wird folgendermaßen verfahren:

1. Vor dem Starten der Kühlung ^3He -Flasche anschrauben und Druckminderer abpumpen
2. Mit ^4He 99,999999 % auf die gewünschte Temperatur abkühlen
3. Die geplante Messung mit ^4He durchführen und auf Intensität und Zeit optimieren
4. Die Expansionsbedingungen für ^3He einstellen und das System stabilisieren lassen
5. Das Gaszuleitungssystem abpumpen
6. ^3He einlassen und sofort Messung starten

Mit diesem System stehen einem knapp 20 Minuten Messzeit bei $p_0 = 20 \text{ bar}$ und $T_0 = 11 \text{ K}$ zur Verfügung.

3.3 Experimentelle Methoden

Bei den erfolgten Messungen wurden zwei verschiedene Messverfahren angewandt. Diese sollen nun kurz erläutert werden.

3.3.1 Laserinduzierte Fluoreszenz (LIF)

Das Prinzip der laserinduzierten Fluoreszenz besteht darin, die Probe mit Hilfe eines Photons anzuregen und das beim Zerfall in den Grundzustand emittierte Photon nachzuweisen. In Abhängigkeit von der Energie des einestrahlten Photons kann somit ein Anregungsspektrum aufgenommen werden. Experimentell wird dieses Prinzip derart umgesetzt, dass der dotierte Clusterstrahl mit einem Laserstrahl gekreuzt und über ein Linsensystem das emittierte Licht auf einen Photomultiplier abgebildet wird (Abbildung 29). Das Streulicht des Lasers produziert dabei ein störendes Untergrundsignal. Aus diesem Grund wird ein Lock-In-Verfahren genutzt. Dabei wird der Clusterstrahl durch einen Chopper periodisch unterbrochen. Ein Lock-In-Verstärker

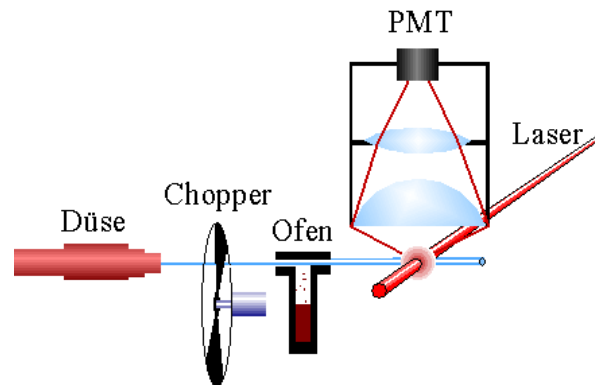


Abbildung 29: Prinzip der laserinduzierten Fluoreszenz (LIF).

verstärkt nur die Differenz aus dem vom Photomultiplier gelieferten Signalen bei vorhandenem und geblocktem Clusterstrahl.

Der Nachteil dieser Methode liegt in der Ungewissheit, ob beim Zerfall des angeregten Zustandes ein Photon emittiert wird und ob es mit dem verwendeten Detektor nachweisbar ist. Über strahlungslose Prozesse kann die angeregte Probe in einen Zwischenzustand zerfallen, dann besitzt das emittierte Photon eine niedrigere Energie als das absorbierte. Es besteht auch die Möglichkeit, dass die Probe komplett strahlungslos in den Grundzustand zurückkehrt. Der Vorteil der Methode liegt darin, dass sie einfach umzusetzen ist und eine hohe Empfindlichkeit besitzt.

3.3.2 Laserinduzierte Strahlabschwächung (LIBD)

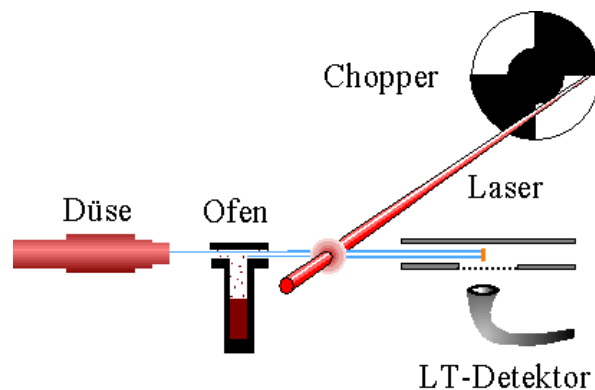


Abbildung 30: Prinzip der laserinduzierten Strahlabschwächung (LIBD).

Das physikalische Prinzip hinter dieser Methode ist die Desorption der Dotierung vom Cluster nach der Anregung mit einem Photon. Dadurch werden die clusterstrahlgetragenen Proben vermindert. Um das Verfahren experimentell umsetzen zu können, benötigt man somit einen Detektor, der

es möglich macht, die clusterstrahlgetragenen Proben nachzuweisen. In dieser Arbeit wurden Alkaliatome untersucht, die leicht mit einem *Langmuir-Taylor*-Detektor nachgewiesen werden können (Abbildung 30). Die Anzahl der Dotierungen des Clusterstrahls wird durch diesen Detektor gezählt. Kreuzt man den Clusterstrahl vor dem Detektor mit einem Laserstrahl, nimmt das Signal aufgrund der Desorption der Probe nach einer Anregung ab. Wird der Laserstrahl mittels eines Chopperrades periodisch unterbrochen, kann über einen Lock-In-Verstärker die Abnahme des Signals bei eingestrahlem Laser bestimmt werden

Diese Methode hat den Vorteil, dass sie unabhängig davon ist, in wie fern beim Zerfall des angeregten Zustandes ein Photon emittiert wird. Ein Nachteil besteht in der aufwendigeren Verwirklichung im Experiment sowie die Notwendigkeit eines Detektors, der die zu untersuchenden Atome bzw. Moleküle nachweisen kann. Es kann eine ähnliche Empfindlichkeit erreicht werden, wie bei der laserinduzierten Fluoreszenz.

3.4 Düsenwechsel

Zwischen den im Folgenden vorgestellten Messungen hatte sich die verwendete Düse zugesetzt und musste durch eine neue ausgetauscht werden. Die Erfahrung zeigt, dass die verwendeten Düsen sich im Betrieb meist dann zusetzen, wenn sich die Expansionsbedingungen schnell verändern. Die Verunreinigungen im Gas frieren normalerweise lange bevor sie die Düse erreichen im Zuleitungssystem aus. Erhöht man aber zum Beispiel schlagartig den Stagnationsdruck, können von Schockwellen gelöste Verunreinigungen die Düse erreichen und in ihr fest frieren. Eine andere Möglichkeit besteht darin, dass bei starkem Heizen ausgefrorene Verunreinigungen abdampfen und zur Düse gelangen. Teilweise kann man derartige Verstopfungen durch Aufheizen auf Flüssigstickstofftemperatur beseitigen. Hat sich die Düse aber erst einmal auf diese Art zugesetzt, läuft sie erfahrungsgemäß nie wieder stabil über einen langen Zeitraum.

Da die neue Quelle sowohl über eine große Kühl- als auch Heizleistung verfügt, können derartige Düsenverstopfungen schnell passieren. Um das Risiko zu minimieren, wurde der Abkühlungsvorgang stets bei 20 K abgefangen. So konnte sich das System einige Zeit bei dieser Temperatur stabilisieren. Kurz vor den Messungen wurde dann die gewünschte Temperatur eingestellt.

Der Fluss durch die neu eingebaute Düse unterschied sich merklich von der vorher verwendeten. Der Quellenkammerdruck betrug bei sonst gleichen Bedingungen nur $5/7$ des Vorherigen. Dadurch sind die Expansionsbedingungen bei gleichen p_0 und T_0 unterschiedlich. Zur Unterscheidung der Messungen und zur besseren Vergleichbarkeit wird bei allen Messungen der Düsendurchmesser angegeben, wobei die Düsenöffnung der ersten Düse auf $5\ \mu\text{m}$ gesetzt und die der zweiten mit Hilfe der Gleichung 36 zu $4,2\ \mu\text{m}$ berechnet wurde.

4 Messergebnisse und Auswertung

Im ersten Teil des folgenden Kapitels werden die Charakteristika der neu konstruierten Clusterquelle erläutert. Im weiteren wurde versucht, das bereits bekannte Spektrum von $\text{Na}(^4\text{He}_N)$ zu reproduzieren, um die Intensität des Tröpfchenstrahls und die Effizienz der Dotierung zu überprüfen. Zusätzlich wurde der Einfluss sehr großer Tröpfchengrößen auf das Spektrum untersucht. Im letzten Teil werden die Ergebnisse der an Natrium dotierten ^3He -Tröpfchen durchgeführten Experimente vorgestellt und diskutiert.

4.1 Spezifizierung der Clusterquelle

Düsentemperatur

Die Konstruktion der neuen Quelle hatte im Wesentlichen das Ziel, die Möglichkeit zu schaffen, tiefere Düsentemperaturen zu erreichen. Abbildung 31 zeigt eine typische Abkühlkurve der neuen Quelle bei einem Stagnationsdruck von 20 bar.

Nach zwei Stunden erreicht die zweite Stufe die Endtemperatur von 8,8 K. Bei gleichen Expansionsbedingungen, allerdings mit einer Düsenöffnung von

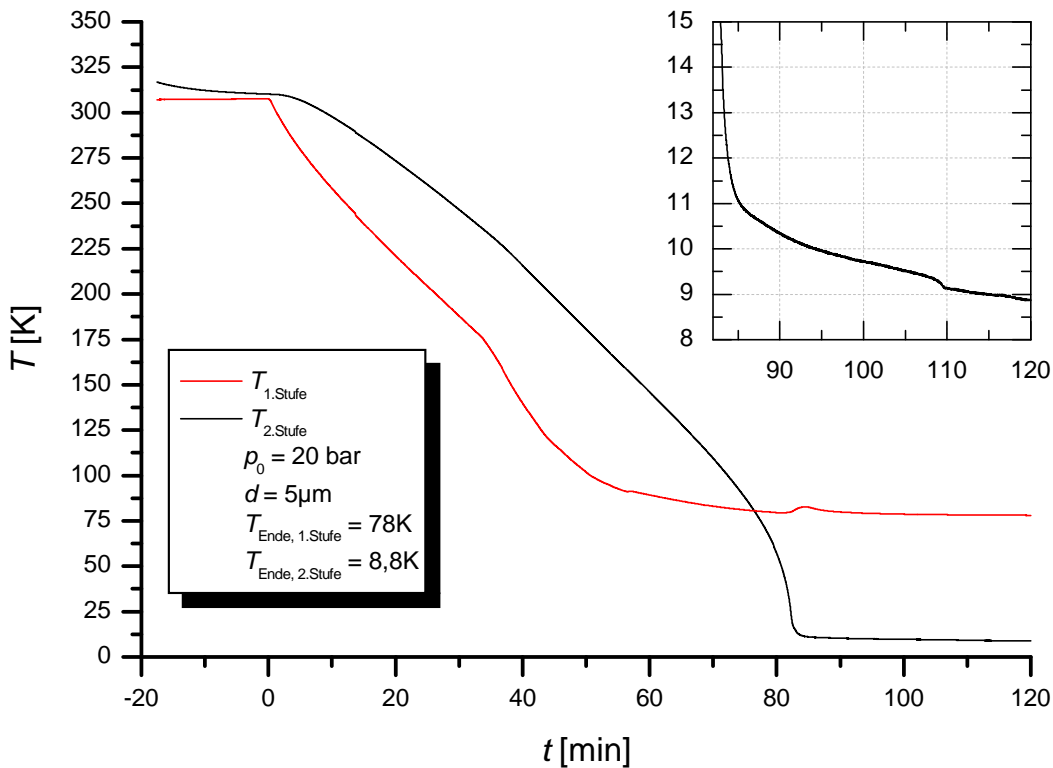


Abbildung 31: Kühlkurve der neuen Clusterquelle. Zur Zeit 0 wurde der Kaltkopf eingeschaltet, kurz davor die Düsenheizung abgeschaltet

p_0 [bar]	10	15	20	25	30
T_{Ende} [K]	9,4	9,1	8,8	8,4	8,0

Tabelle 5: Abhängigkeit der Endtemperatur T_{Ende} vom Stagnationsdruck p_0 .

10 μm , benötigt die bisherige Quelle mehr als drei Stunden, um ihre Endtemperatur von 17 K zu erreichen.

Normalerweise ist zu erwarten, dass die erreichte Endtemperatur mit zunehmendem Stagnationsdruck höher liegt, da durch den erhöhten Quellenkammerdruck die Isolation durch das Vakuum schlechter wird und mehr Helium gekühlt werden muss. Die neue Quelle aber zeigt ein genau entgegengesetztes Verhalten, wie Tabelle 5 verdeutlicht. Die Ursache liegt darin, dass die Kühlleistung der 2. Stufe steigt, wenn die 1. Stufe stärker belastet wird [Sum01a].

Somit ist es nun möglich, den Bereich der unterkritischen Expansion komplett untersuchen zu können, in dem sich Tröpfchen bis zu einer mittleren Größe von ≈ 20000 Heliumatomen bilden. Man gelangt auch in den Bereich der überkritischen Expansion und es ist möglich, sehr große Tröpfchen zu produzieren ($\bar{N} = 10^5 - 10^7$).

Gasfluss

Bei der Aufnahme des Gasflusses in Abhängigkeit von der Temperatur zeigte sich ein Abweichen von dem erwarteten Verhalten. Der Fluss F von Helium durch eine Düse sollte entsprechend einem idealen Gas folgende Abhängigkeit besitzen [POW84]:

$$F \propto \frac{p_0 \cdot d^2}{\sqrt{T_0}} \quad (36)$$

Der Druck in der Quellenkammer ist direkt proportional zum Fluss, da die verwendete Öldiffusionspumpe eine konstante Pumpleistung über den relevanten Druckbereich besitzt [Ley96]. Die Abhängigkeit des Quellenkammerdrucks von der Düsentemperatur entspricht somit der des Heliumflusses durch die Düse. Da der Hintergrunddruck in der Kammer zwei Größenordnungen kleiner ist ($5 \cdot 10^{-7}$ mbar) als der Quellenkammerdruck bei Gasfluss, kann er vernachlässigt werden. Abbildung 32 zeigt den Quellenkammerdruck aufgetragen über $1/\sqrt{T_0}$ bei einem Stagnationsdruck von 20 bar.

Die Düsentemperaturabhängigkeit des Quellenkammerdrucks weicht im Verlauf der Kühlung bei einem Stagnationsdruck von 20 bar unterhalb von ≈ 33 K ($\approx 0,175 \text{ K}^{-1/2}$) von dem linearen Anstieg über $1/\sqrt{T_0}$ ab. Diese Temperatur kann anhand verschiedener Messungen mit dem Einsatz der Clusterbildung in Verbindung gebracht werden (z.B. Abbildung 33). Da die Clusterbildung aber hinter der Düse stattfindet, steht sie eigentlich nicht im Zu-

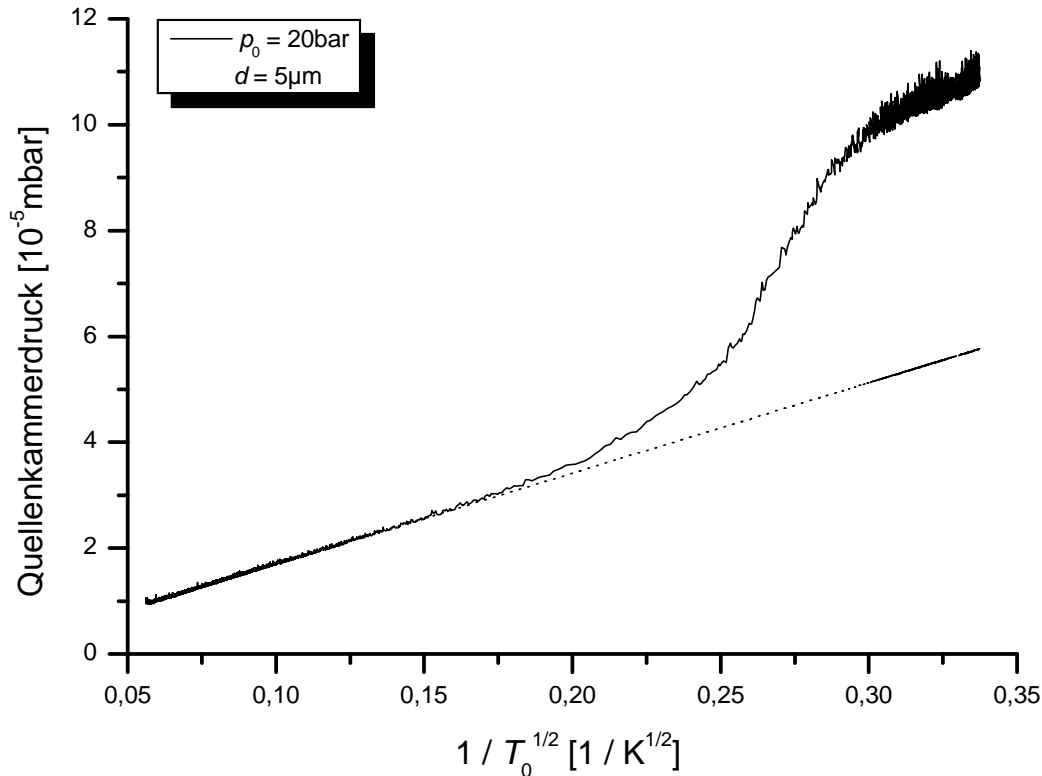


Abbildung 32: Quellenkammerdruck in Abhängigkeit der inversen Wurzel aus der Düsentemperatur T_0 . Die gepunktete Gerade entspricht der erwarteten $1/\sqrt{T_0}$ -Abhängigkeit.

sammenhang mit dem Gasfluss durch die Düse. Fällt die Temperatur weiter ab, findet sich eine erneute Änderung im Verlauf des Quellenkammerdrucks ($p_0 = 20 \text{ bar}$, $T_0 \approx 11 \text{ K}$ ($\approx 0,3 \text{ K}^{-1/2}$)). In diesem Temperaturbereich verlässt man den Bereich der unterkritischen Expansion und gelangt über die kritische in den Bereich der überkritischen Expansion. Der Fluss durch die Düse steigt wieder langsamer mit abnehmender Temperatur an.

Zur Überprüfung wurde die Messung mit verschiedenen Stagnationsdrücken wiederholt. Alle zeigten dieselbe Abweichung, wobei diese bei höheren Stagnationsdrücken eher einsetzte. Es stellte sich allerdings heraus, dass die im Verlauf eines Kühlvorgangs aufgenommenen Werte im Bereich von $12 - 30 \text{ K}$ ($0,29 - 0,18 \text{ K}^{-1/2}$) zu niedrig sind, da dieser Bereich in weniger als 1 Minute durchlaufen wird (Abbildung 31). Kann sich das System aber erst kurz bei den eingestellten Expansionsbedingungen stabilisieren, sind die Kammerdrücke etwas höher als die in Abbildung 32 aufgetragenen. Der Quellenkammervordruck bestätigt ebenfalls die Abweichung des Flusses vom erwarteten Verhalten. Auch eine Veränderung des Saugvermögens der Öldiffusionspumpe im gemessenen Druckbereich kann nicht die Ursache für das gezeigte Verhalten sein, denn sie ist bis zu einem Kammerdruck von $5 \cdot 10^{-4} \text{ mbar}$ konstant [Ley96]. Darüberhinaus beginnt die Abweichung vom erwarteten Ver-

halten bei verschiedenen Quellenkammerdrücken, sobald der Stagnationsdruck verändert wird.

Da der Fluss ab dem Einsetzen der Clusterbildung nicht mehr wie erwartet proportional zu $1/\sqrt{T_0}$ ist, stellt sich die Frage, ob er dann ebenfalls nicht mehr proportional zum Stagnationsdruck p_0 verläuft. Beim genauen Betrachten der aufgenommenen Daten, scheint der Fluss auch nicht proportional zu p_0 zu sein.

Intensität des Heliumstrahls

Mit Hilfe des Druckanstieges in der letzten Kammer der Apparatur, in diesem Fall der LT-Detektor, kann die Düse und somit der Tröpfchenstrahl grob justiert werden. Der Druckanstieg ist dabei ein Maß für die Anzahl der ankommenden Heliumatome. Das Verhalten des Druckanstieges bei Änderung der Düsentemperatur ist in Abbildung 33 zu sehen. Er wurde bestimmt, indem der Hintergrunddruck vom Kammerdruck mit vorhandenem Tröpfchenstrahl abgezogen wurde. Bis zu einer Temperatur von 75 K ist der Druckanstieg nahezu konstant. Dann fällt er ab, bis er bei einer Düsentemperatur von ≈ 28 K

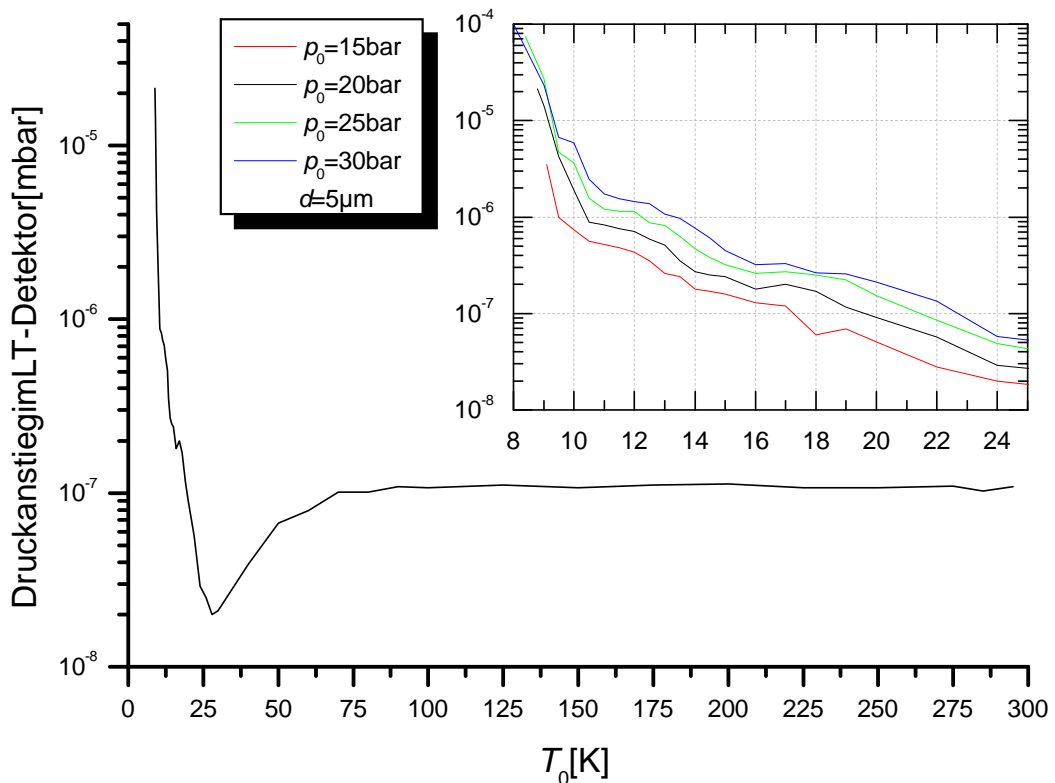


Abbildung 33: Druckanstieg im LT-Detektor in Abhängigkeit von der Düsentemperatur T_0 . Der eingeschobenen Graph zeigt den Bereich unterhalb von 25 K vergrößert bei verschiedenen Stagnationsdrücken p_0 .

ein Minimum erreicht hat. Anschließend steigt er stark an. Der zunächst konstante Verlauf und der anschließende Abfall des Druckanstieges ist nicht verstanden. Der Anstieg hat seine Ursache im Einsetzen der Clusterbildung. Der in Abbildung 33 eingeschobene Graph zeigt die Temperaturabhängigkeit des Druckanstieges im Bereich von 8–30 K bei verschiedenen Stagnationsdrücken. Es ist zu erkennen, dass beim Einsetzen der Flüssigkeitsexpansion im Bereich von 10–11 K der Verlauf die Steigung ändert und der Anstieg noch steiler wird.

Intensität der dotierten Tröpfchen

Es bestand keine Möglichkeit, die Tröpfchenintensität direkt zu bestimmen. Die Tröpfchen mussten dotiert werden, um ein tröpfchenstrahlgetragenes Signal zu erhalten. Mit Hilfe des LT-Detektors können mit Natrium dotierte Tröpfchen nachgewiesen werden. Anhand der Dampfdruckkurve von Natrium zeigt sich, dass die optimale Ofentemperatur für eine einfache Dotierung mit Natrium bei 180 °C liegt.

Die Temperaturabhängigkeit des LT-Signals bei verschiedenen Stagnationsdrücken und einer Düsentemperatur im Bereich von 10–35 K wurde aufgenommen (Abbildung 34). Es ist zu erkennen, dass bei höheren Stagnationsdrücken das Signal eher einsetzt. Dies entspricht der Erwartung, dass die Clusterbildung bei höheren Stagnationsdrücken bei einer höheren

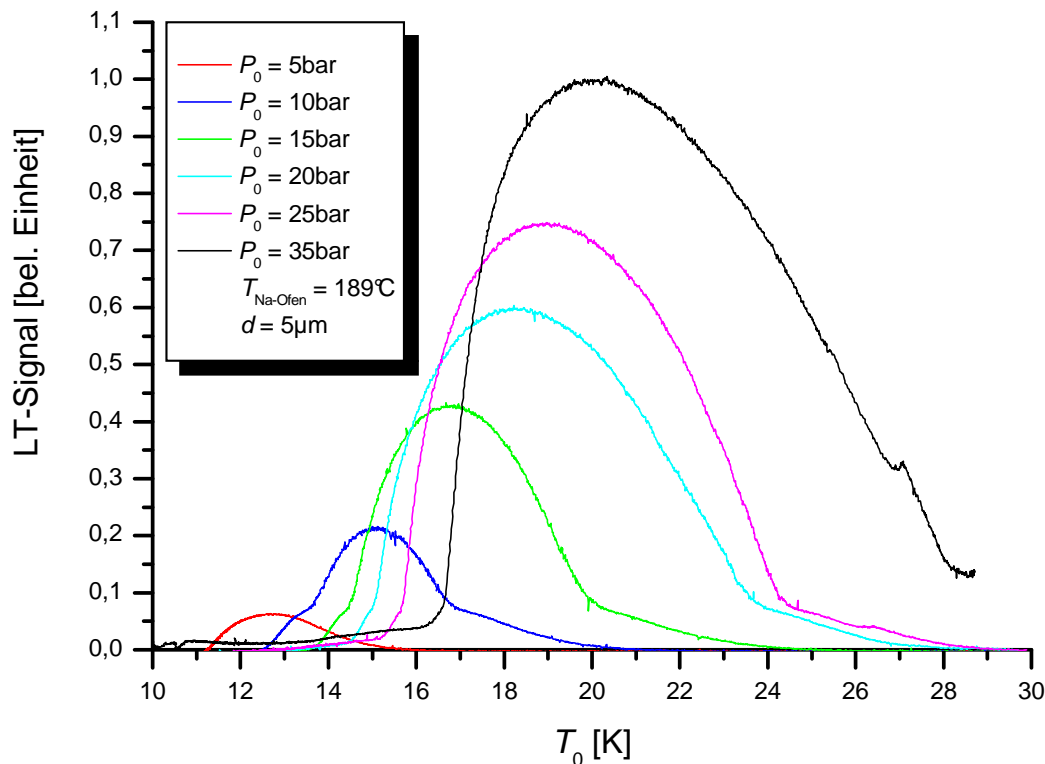


Abbildung 34: Abhängigkeit des LT-Signals von der Düsentemperatur T_0 .

Düsentemperatur beginnt. Anfangs wächst das Signal nur schwach an, jedoch ab einer bestimmten Düsentemperatur wird der Anstieg bedeutend steiler.

Diese Form des Anstiegs hat seine Ursache in der Tröpfchengrößenverteilung. Ausschlaggebend für die Signalintensität ist die Anzahl der Tröpfchen, die groß genug sind, um sie mit einem Natrium dotieren zu können. Diese Zahl hängt zum einen von der absoluten Tröpfchenanzahl und zum anderen von ihrer Größenverteilung ab. Sie gibt den Anteil der absoluten Tröpfchenanzahl an, der die benötigte Größe besitzt.

Die Verteilung der Tröpfchengröße folgt einer Log-Normal-Verteilung (Gleichung (25)). Sie ist charakterisiert durch die beiden Faktoren δ und μ . Bei experimentellen Messungen wurde der Faktor δ abhängig von der mittleren Tröpfchengröße im Bereich von $0,4 - 0,7$ gefunden [HTD98]. Bei der Rechnung sind Tröpfchengrößen unterhalb von $N = 5000$ interessant, daher wurde zur Vereinfachung δ mit einem festen Wert von $0,5$ für alle Verteilungen angenommen. Die mittleren Tröpfchengrößen wurden aus dem Graphen 11 a) abgelesen. Mit ihrer Hilfe und durch die Festlegung des Faktors δ kann über Gleichung (26) μ berechnet werden.

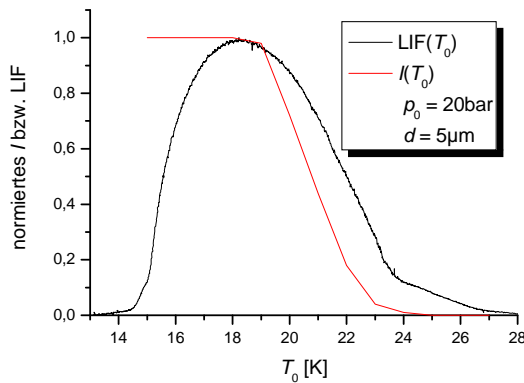


Abbildung 35: Vergleich des errechneten und gemessenen Anstiegs.

Allerdings existiert keine Messungen, die die Tröpfchenanzahl über einen genügend großen Bereich in Abhängigkeit der Düsentemperatur zeigt. Eine Messung allerdings zeigt einen stetigen Verlauf in dem dort untersuchten Bereich ($T_0 = 15 - 24$ K, $p_0 = 70$ bar) [Men01]. Daher erwartet man einen langsamen Anstieg der Tröpfchenanzahl ohne Unstetigkeiten. Somit ist der Verlauf des Anstiegs auf die Log-Normal-Verteilung der Tröpfchengröße zurückzuführen.

Im weiteren Verlauf erreicht das Signal ein Maximum. Wenn der Stagnationsdruck steigt, verschiebt sich das Maximum zu höheren Düsentemperaturen. Dies erscheint auf den ersten Blick überraschend, da die Heliumintensität weiter wächst. Entscheidend für die Signalstärke ist aber nicht die Heliumintensität, sondern die Tröpfchenanzahl. Ab einer bestimmten Düsentemperatur ist ein Punkt erreicht, ab dem die Tröpfchengröße derart stark wächst,

Nun besitzt man beide Faktoren und kann die Größenverteilungen aufstellen. Unter der Annahme, dass ein Heliumtröpfchen eine Größe von mindestens 200 Atomen haben muss, um dotiert werden zu können, wurden die Verteilungen von 200 bis unendlich integriert und anschließend die Ergebnisse über die Düsentemperatur aufgetragen. Abbildung 35 zeigt, dass der Anstieg des Signals im Groben mit dem der Rechnung übereinstimmt. Zusätzlich zu der Verteilung müsste noch die Tröpfchenanzahl berücksichtigt werden.

Allerdings existiert keine Messungen,

dass aufgrund der begrenzten Heliumatome ihre Anzahl zurück geht. Somit nimmt das Signal ab und ist schließlich nicht mehr nachweisbar.

Stabilität

Die folgende Messung (Abbildung 36) zeigt die Stabilität des Quellenkammerdrucks und somit des Flusses durch die Düse über einen Zeitraum von zweieinhalb Stunden. Die Schwankungen liegen im Bereich von $\pm 1,5\%$, was hauptsächlich auf die Messungenauigkeit des Druckmessgeräts zurückzuführen ist.

Anhand des Graphen in Abbildung 37 kann die Güte des Wärmekontaktes zwischen der zweiten Stufe des Kaltkopfs und der Düse abgeschätzt werden. Er zeigt die Schwankungen der Temperatur bei eigentlich konstanten Expansionsbedingungen über eine kurze Zeitspanne. Eine Schwingung der Temperatur mit einer Periode von ≈ 1 sec und einer Amplitude von $0,04$ K ist zu erkennen. Laut Hersteller des Kaltkopfs schwankt die Temperatur der zweiten Stufe ohne Last mit einer Periode von $0,83$ sec und einer Amplitude von $0,5$ K. Diese Periode resultiert aus einer Netzfrequenz von 60 Hz. Da die in diesem Fall verwendete Netzfrequenz 50 Hz betrug, ergibt sich eine Periode von 1 sec. Diese Temperaturschwankung ist gedämpft an der Düse zu sehen. Dies bedeutet, dass die Düsentemperatur innerhalb von weniger als einer Sekunde auf Temperaturänderungen am Kaltkopf reagiert.

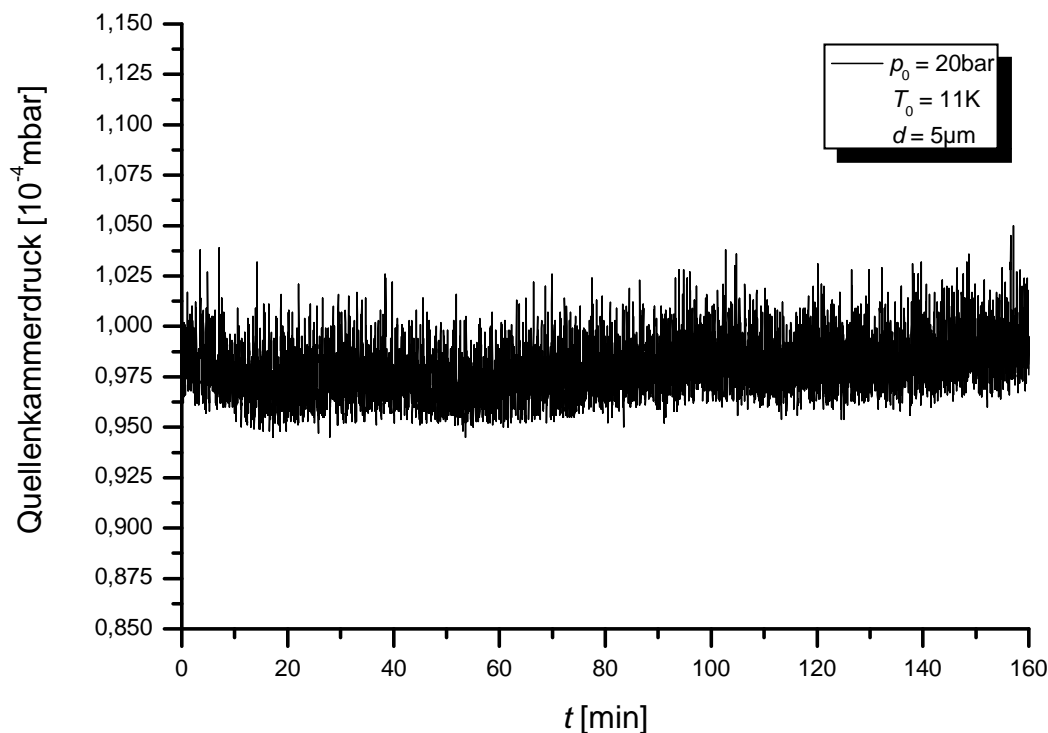


Abbildung 36: Quellenkammerdruck über Zeit t bei konstanten Expansionsbedingungen.

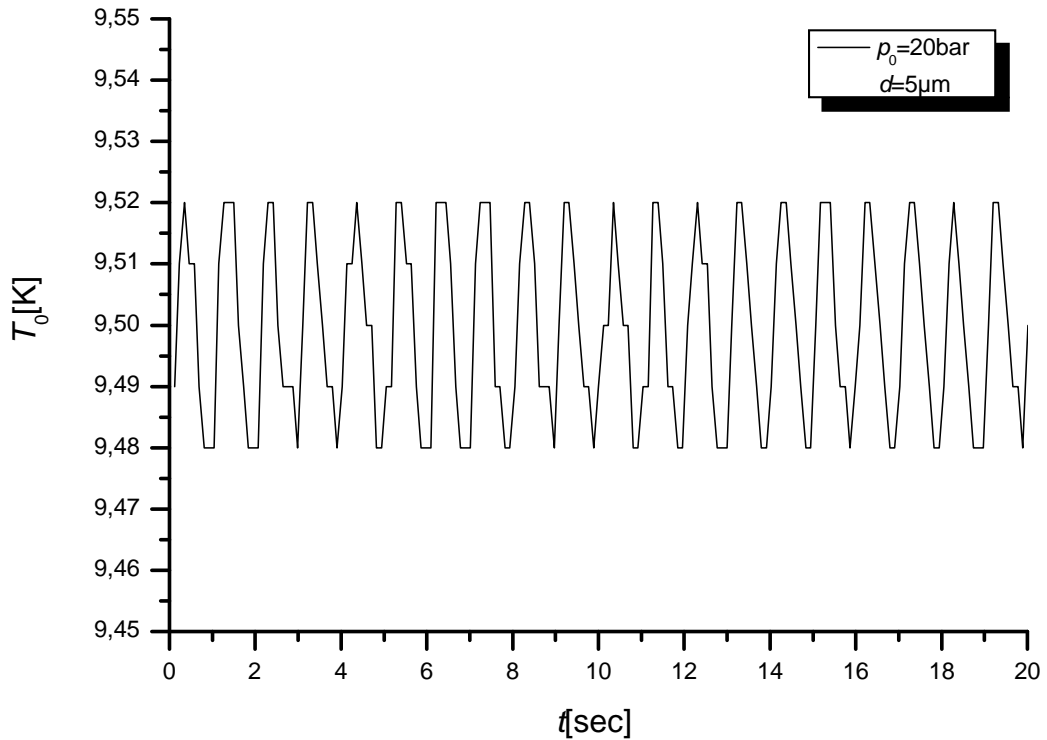


Abbildung 37: Düsentemperatur über Zeit t bei konstanten Expansionsbedingungen

4.2 Spektroskopie von Na-dotierten ^4He -Tröpfchen

Zum Vergleich mit bereits bekannten Messungen wurde versucht, das Spektrum von $\text{Na}(^4\text{He}_N)$ zu reproduzieren [SHC⁺96]. Zusätzlich wurde die Abhängigkeit des Spektrums von der Tröpfchengröße in den Bereich sehr großer Tröpfchen erweitert.

Das $\text{Na}(^4\text{He}_N)$ -Spektrum

Abbildung 38 zeigt ein typisches, mit der neuen Quelle gemessenes Spektrum. Zum Vergleich wird das bekannte Spektrum mit aufgeführt [SHC⁺96]. Das neu gemessene deckt sich nicht mit dem bekannten, es ist deutlich breiter. Bevor auf die Ursache des Unterschieds eingegangen wird, soll die Entstehung des $\text{Na}(^4\text{He}_N)$ -Spektrums erörtert werden.

Das $\text{Na}(^4\text{He}_N)$ -Spektrum kann in drei Teile unterteilt werden. Diese Anteile entsprechen jeweils verschiedenen Anregungen des $\text{Na}(^4\text{He}_N)$ -Komplexes. Zwei der Anteile des $\text{Na}(^4\text{He}_N)$ -Spektrums sind erklärbar. Wird $\text{Na}(^4\text{He}_N)$ in den ersten angeregten Zustand A gebracht, bestehen je nach Energie zwei Möglichkeiten, wie sich das p -Orbital des angeregten Natriums zur Oberfläche des Tröpfchens ausrichten kann (Abbildung 39 **a**). Bei einer Π -Anregung liegt es parallel zur Oberfläche des Tröpfchens. Andererseits ist eine senkrechte Ausrichtung möglich, wobei es sich um eine Σ -Anregung handelt.

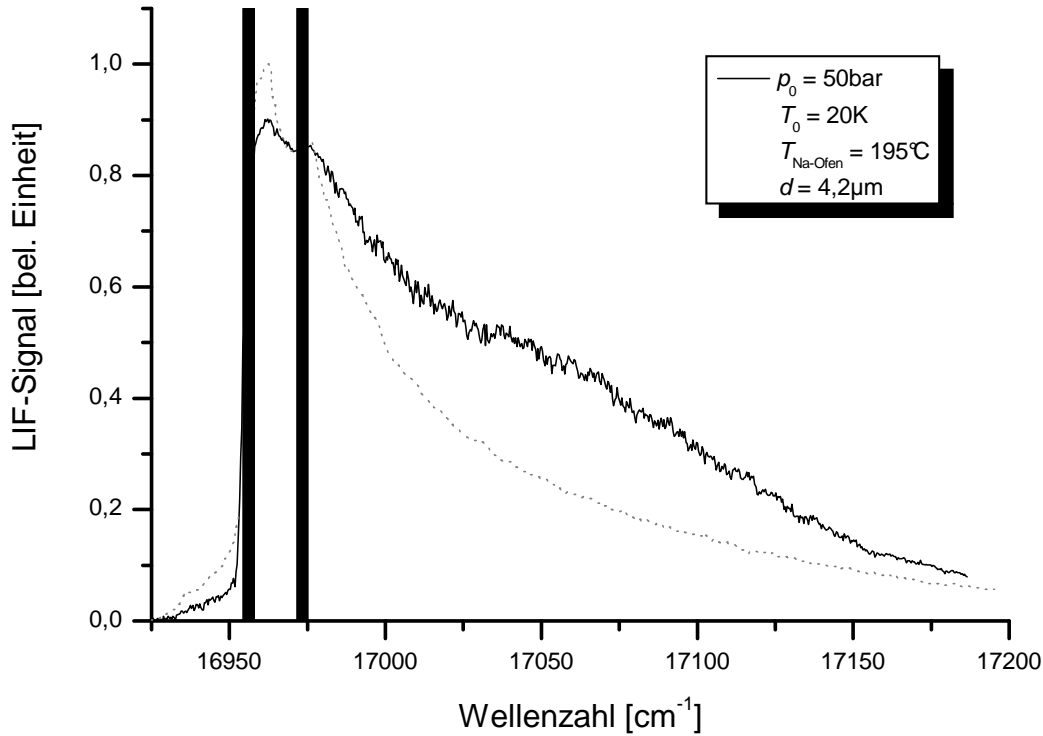


Abbildung 38: Spektrum von $\text{Na}(^4\text{He}_N)$. Das gestrichelte Spektrum dient zum Vergleich [SHC+96]. Die Balken verdecken die durch reines Natrium entstehenden atomaren Linien: $D_1 = 16956,183 \text{ cm}^{-1}$, $D_2 = 16973,379 \text{ cm}^{-1}$. [Her44]

Abbildung 38 a) zeigt das Potential der Na-He-Wechselwirkung. Das $\text{Na}(^4\text{He}_N)$ -Potential setzt sich aus mehreren dieser Potentiale zusammen, hat aber eine sehr ähnliche Form (*frozen-cluster-model* [SHC+96]). Die Π -Anregung des Na-He ist schwach gebunden, wohingegen die Σ -Anregung rein repulsiv ist. Findet demnach eine Σ -Anregung statt, verlässt das Natrium alleine das Tröpfchen. Anschließend zerfällt es in seinen Grundzustand und emittiert Photonen auf der atomaren D_2 -Linie (Abbildung 39 b) 17046 cm^{-1}). Liegt hingegen eine Π -Anregung vor, bildet sich ein sogenannter Exziplex. Um das Helium herum bildet sich im Grundzustand eine Blase verschwindender Heliumdichte, da das Elektron des s -Orbitals die Heliumatome abstößt. Im angeregten Zustand liegt ein p -Orbital vor, wodurch sich senkrecht zu dem Orbital ein Bereich bildet, in dem sich Heliumatome aufhalten können. Durch die parallele Ausrichtung des p -Orbitals im Falle der Π -Anregung haben die Heliumatome des Tröpfchens die Möglichkeit, eine Bindung mit dem angeregten Natrium einzugehen. Ein Exziplex entsteht, wenn sich ein oder mehrere Heliumatome auf diese Weise mit dem Natrium binden und sich der Komplex dann vom Tröpfchen löst. Er wird Exziplex genannt, da er nur im angeregten Zustand existiert. Nach Verlassen des Tröpfchens zerfällt der Zustand wieder, wobei das emittierte Photon durch die Bindung zum Helium zu

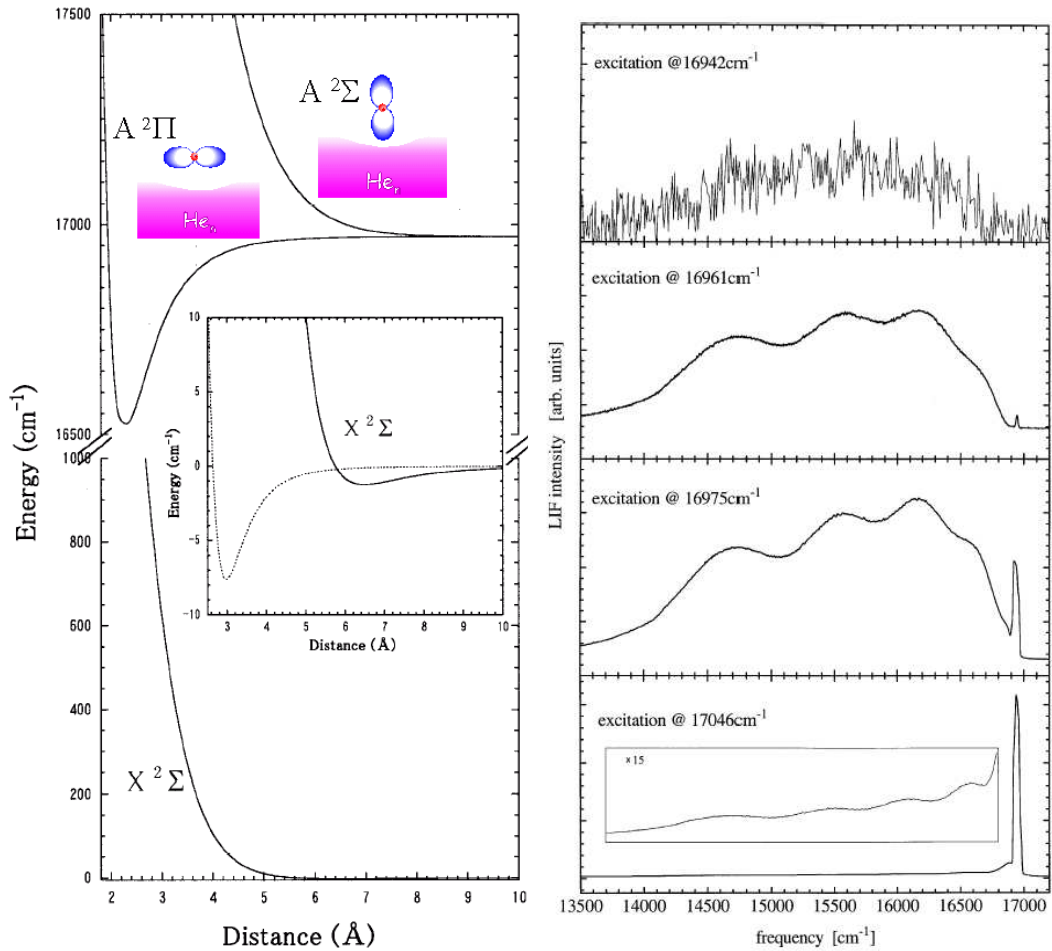


Abbildung 39: a) Potential der Na-He-Wechselwirkung. Die gestrichelte Linie zeigt das He-He-Potential [NY01]. Zur Veranschaulichung wurde die Ausrichtung des p -Orbitals zur Tröpfchenoberfläche hinzugefügt [SMH⁺99] b) Emission von Na($^4\text{He}_N$) in Abhängigkeit der anregenden Wellenlänge. [SHC⁺96]

tiefere Energien verschoben ist (Abbildung 39 b) $16961\text{ cm}^{-1} + 16975\text{ cm}^{-1}$) und der Exziplez zerfällt. Wie auf dem Potentialbild (Abbildung 39 a)) zu erkennen, bilden sich bei Energien im Bereich der atomaren D-Linien Exzipleze. Besitzt das anregende Licht eine Wellenzahl jenseits von 17050 cm^{-1} , überwiegt die Σ -Anregung. Die bei niedriger Energie liegende Stufe im Spektrum kann zur Zeit noch nicht erklärt werden. Es wird aber vermutet, dass sie aus einem Zustand, der mit der Suprafluidität der ^4He -Tröpfchen zusammenhängt, entsteht. Wie Abbildung 39 b) (16942 cm^{-1}) zeigt, befindet sich die Emission der Stufe zu den atomaren D-Linien zu niedrigeren Energien hin verschoben.

Da die Anteile in verschiedenen Energiebereichen emittieren, können sie experimentell getrennt werden. Abbildung 40 zeigt die experimentell be-

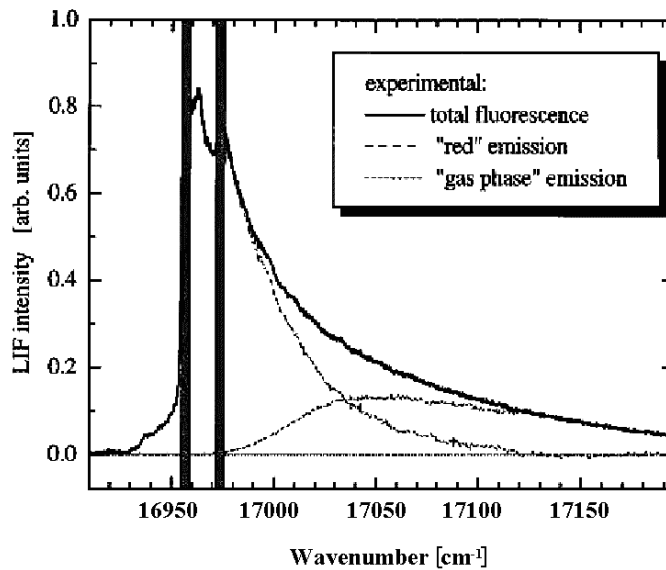


Abbildung 40: Zusammensetzung des $\text{Na}(^4\text{He}_N)$ -Spektrums. [SHC⁺96]

stimmte Zusammensetzung des Spektrums, wobei der Anteil der Π -Anregung und der Stufe mit "red emission" und der Anteil der Σ -Anregung mit "gas phase emission" bezeichnet wird [SHC⁺96].

Die Ursache der Verbreiterung des gemessenen Spektrums liegt in der stark abnehmenden Empfindlichkeit des verwendeten Photomultipliers bei Energien unterhalb von 20000 cm^{-1} . Er stammt von der Firma *Hamamatsu* und hat die Typenbezeichnung *R5600-U-01*. Die Charakteristika finden sich in Abbildung 41. Wie schon erwähnt, zeigt Abbildung 40 die Emission des $\text{Na}(^4\text{He}_N)$ in Abhängigkeit von der Wellenzahl des anregenden Lasers. Die Empfindlichkeit des Photomultipliers ist zu niedrigen Energien bis zu einer Wellenzahl von 14000 cm^{-1} begrenzt und kann somit einen Teil des von der Π -Anregung emittierten Lichts nicht nachweisen. Zusätzlich liefert er bei einer Wellenzahl von 16973 cm^{-1} ein mehr als doppelt so hohes Signal wie bei 14000 cm^{-1} . Dadurch wird der Anteil der Σ -Anregung gegenüber der Π -Anregung überhöht und die gemessenen Spektren sind zu breit.

Eine falsche Normierung der Spektren mit der Laserleistung könnte außerdem zu einer weiteren Verbreiterung führen. Sind die Abhängigkeiten

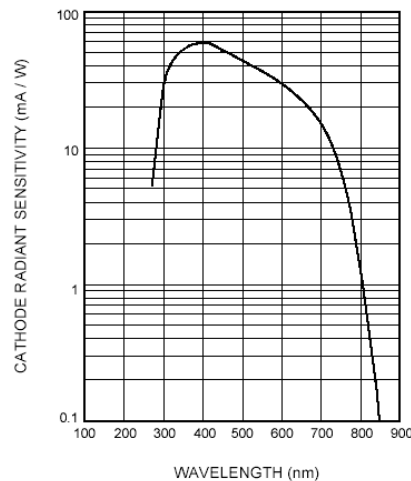


Abbildung 41: Charakteristik des Photomultipliers *R5600-U-01* von *Hamamatsu*. [Ham95]

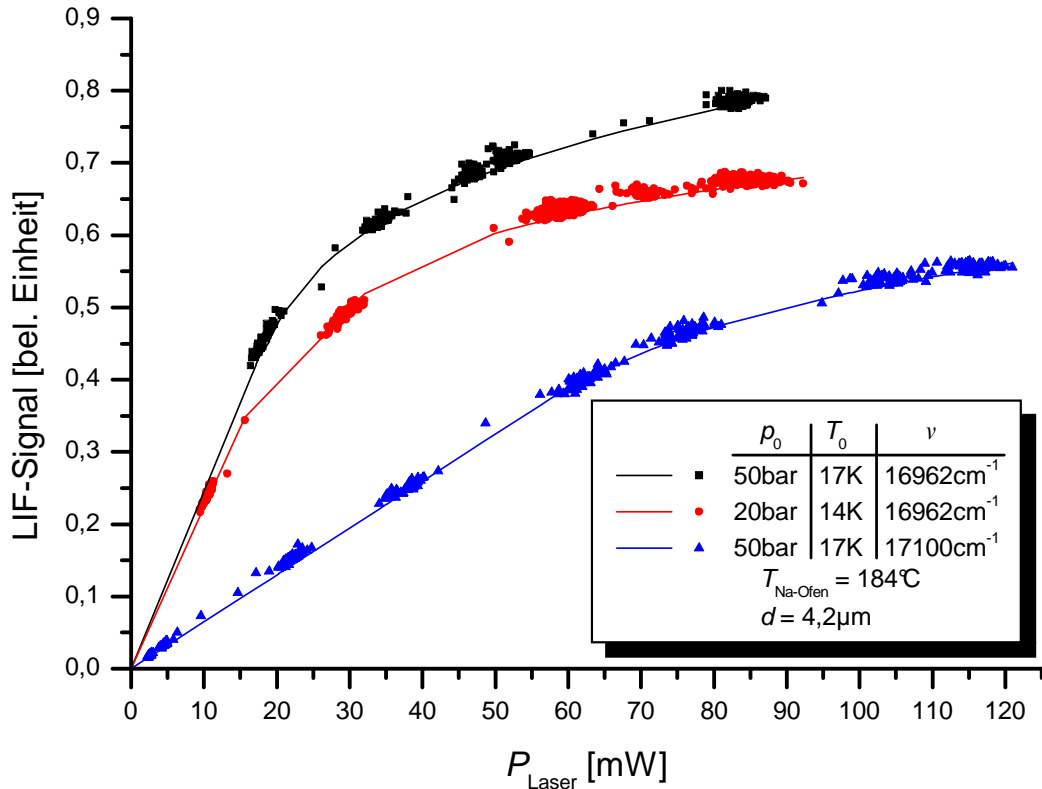


Abbildung 42: Abhängigkeit des LIF-Signals von der Laserleistung bei verschiedenen Wellenzahlen. Die durchgezogenen Linien entsprechen dem durchgeführten Fit.

der verschiedenen Anteile nicht identisch, kann auch dies eine Erhöhung eines Anteils zur Folge haben.

Als Laserfarbstoff wurde Rhodamin 6G genutzt, damit waren Wellenzahlen im Bereich von $16500\text{--}18000\text{ cm}^{-1}$ erreichbar. Bei dem verwendeten Laseraufbau standen je nach Wellenzahl $90\text{--}120\text{ mW}$ Laserleistung am Kreuzungspunkt zur Verfügung. Die Abhängigkeit des LIF-Signals von der Laserleistung wird in Abbildung 42 dargestellt. Repräsentativ für die Π -Anregung wurde die Abhängigkeit bei einer Wellenzahl von 16962 cm^{-1} bestimmt. Eine Wellenzahl von 17100 cm^{-1} wurde hingegen für die Σ -Anregung gewählt. Beide Anteile zeigen ein unterschiedliches Verhalten. Das Signal des Π -Anteils weicht schon ab einer Laserleistung von $\approx 15\text{ mW}$ vom linearen Verhalten ab, beim Σ -Anteil geschieht dies erst bei einer Laserleistung von $\approx 70\text{ mW}$. Die Abhängigkeit des Π -Anteils wurde bei anderen Expansionsbedingungen nachgemessen. Die erhaltenen Kurven unterscheiden sich nur um einen konstanten Faktor, der seine Ursache in der verschiedenen Tröpfchenanzahl besitzt.

Um im linearen Bereich zu arbeiten, hätte man bei sehr geringen Leistungen messen müssen. Dadurch würde ein Faktor von $4\text{--}5$ an Fluoreszenz-Intensität verloren gehen. Daher wurde in Kauf genommen, im Bereich der Sättigung zu messen. Bei der Normierung der Spektren konnte nun nicht

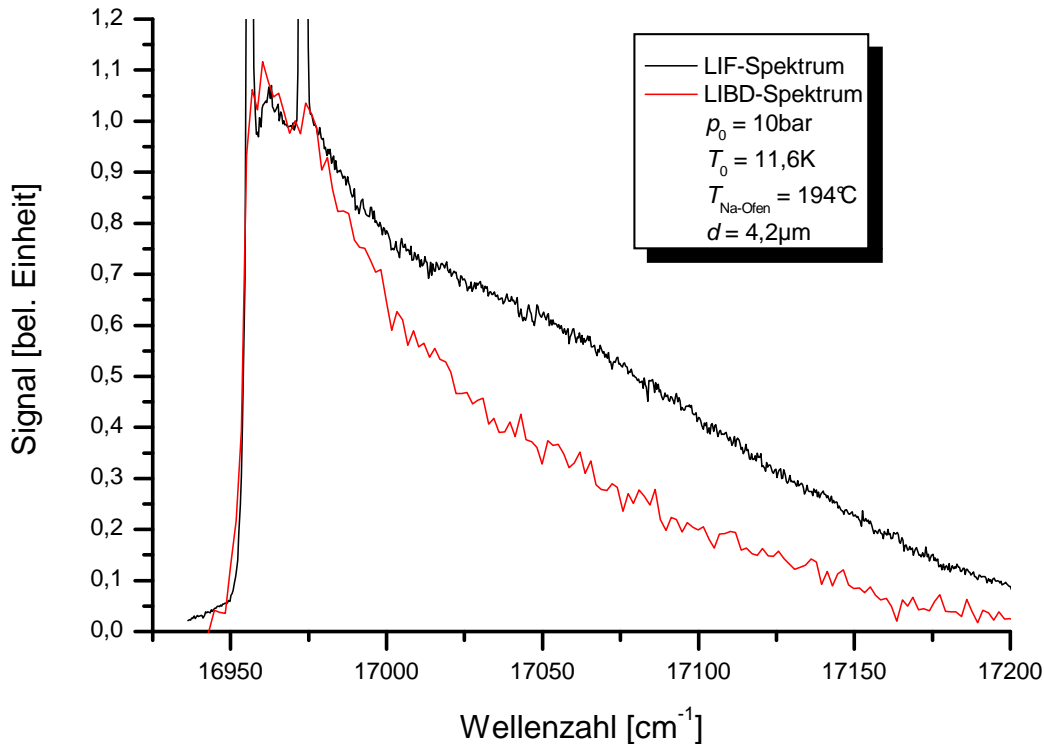


Abbildung 43: Vergleich von LIF- und LIBD-Spektrum bei identischen Expansionsbedingungen.

mehr die Laserleistung direkt verwendet werden. Ein Fit (Abbildung 42) durch die gemessenen Abhängigkeiten lieferte einen linearen Anteil bis zum Einsetzen der Sättigung und einen Anteil $\propto P_{\text{Laser}}^a$. Der Faktor a hat dabei einen mittleren Wert von $\approx 0,17 \pm 0,05$. Mit dessen Hilfe wurden die Spektren anschließend normiert. Versuche das Spektrum mit unterschiedlichen Faktoren a zu normieren ergaben, dass die Normierung nur einen geringen Einfluss auf die Breite der Spektren hat. Der Grund dafür liegt darin, dass sich beide Anteile in Sättigung befinden und die Steigung beider Leistungsabhängigkeiten im Bereich der vorhandenen Laserleistung ähnlich sind. Allerdings besitzt die Normierung einen Einfluss auf das Signal/Rausch-Verhältnis des Spektrums.

Eine weitere Möglichkeit, ein $\text{Na}(^4\text{He}_N)$ -Spektrum aufzunehmen, besteht in der laserinduzierten Strahlabschwächung (LIBD). Im Fall von $\text{Na}(^4\text{He}_N)$ wurde gezeigt, dass das LIF- sowie das LIBD-Spektrum exakt übereinander liegen [CHSS98]. Die laserinduzierte Strahlabschwächung kann nicht durch apparative Effekte verfälscht werden. Abbildung 43 zeigt eine entsprechende LIBD-Messung im Vergleich zu einer LIF-Messung bei identischen Bedingungen. Das LIBD-Spektrum ist nicht verbreitert und kann mit den bekannten Messungen in Deckung gebracht werden. Somit ist der eingeschränkte Bereich des Photomultipliers die Ursache für die Verbreiterung der LIF-Spektren.

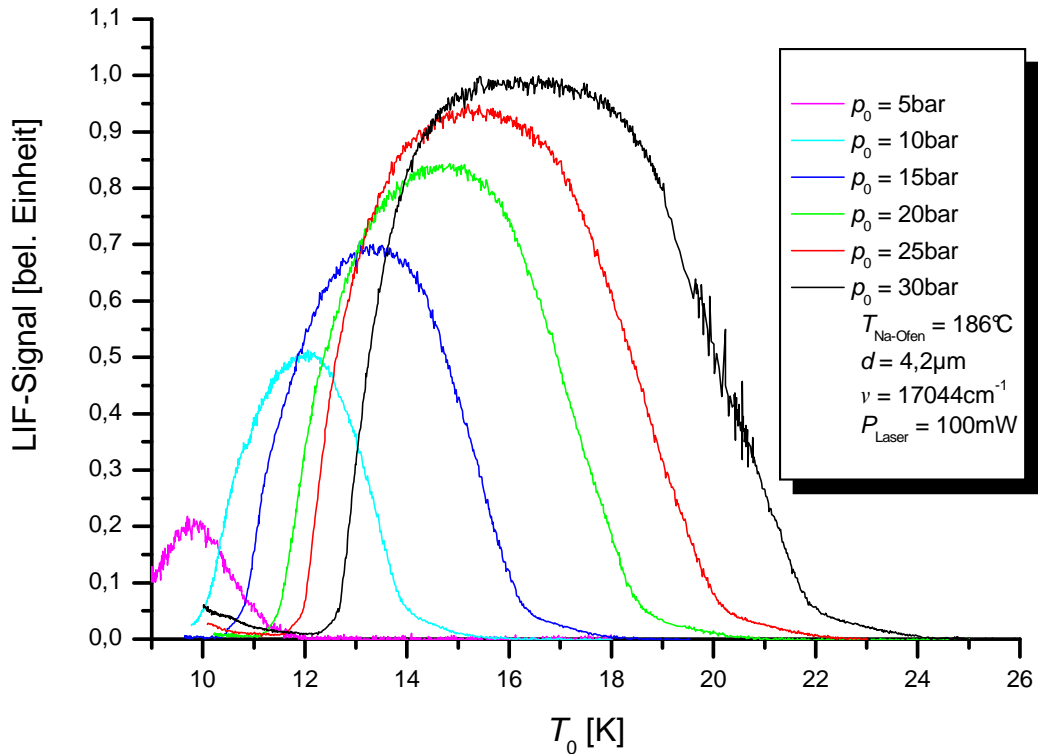


Abbildung 44: Abhängigkeit des LIF-Signals von der Düsentemperatur T_0 .

LIF-Signalabhängigkeit

Aufgrund des Düsenwechsels wurde nochmals die Temperaturabhängigkeit des Signals bei verschiedenen Stagnationsdrücken aufgenommen. Diesmal wurde allerdings das LIF-Signal bei einer Wellenzahl von 17044 cm^{-1} verwendet. Insbesondere soll die Veränderung durch das Wechseln der Düse herausgestellt werden. Außerdem wurde geprüft, inwieweit Messungen bei verschiedenen Düsenöffnungen vergleichbar sind.

Abbildung 44 zeigt die erhaltenen Abhängigkeiten. Da die Düsenöffnung in dieser Messung geringer ist als in der LT-Messung (Abbildung 34), sind die Kurven zu tieferen Temperaturen verschoben. Erst ab einer bestimmten Tröpfchengröße können die Tröpfchen mit Natrium dotiert werden. Um bei identischem Stagnationsdruck die gleiche mittlere Tröpfchengröße wie bei der vorherigen Düse zu erhalten, wird eine um $\approx 3\text{ K}$ tiefere Temperatur benötigt (Gleichung 23). Der Verlauf ist auf den ersten Blick gleich dem der LT-Signalabhängigkeiten. Zum Vergleich der beiden Messungen wurde jeweils die Kurve der LIF- sowie der LT-Messung bei einem Stagnationsdruck von $p_0 = 20\text{ bar}$ über die mittlere Tröpfchengröße aufgetragen. Um die mittlere Tröpfchengröße zu bestimmen, wurde das Skalierungsgesetz verwendet (Gleichung (23)), daher sind die absoluten Zahlen im Bereich der großen Tröpfchen zu klein. Die relativen Verhältnisse sollten aber stimmen. In dem entstandenen Graphen (Abbildung 45) kann man erkennen, dass beide Signa-

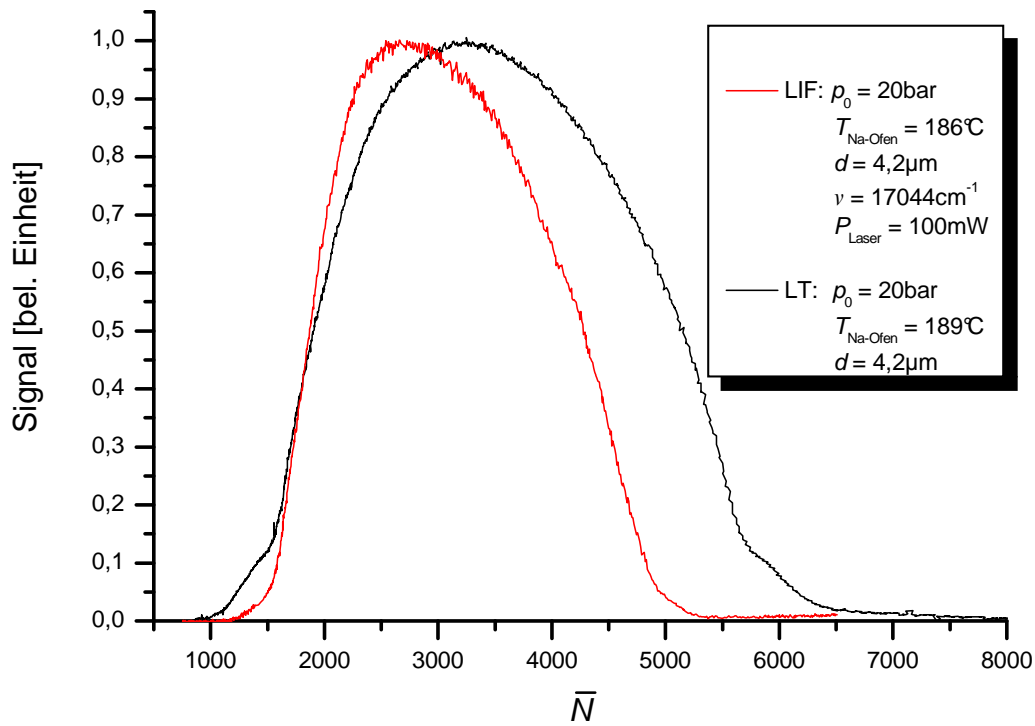


Abbildung 45: Vergleich der LT- und LIF-Signal Tröpfchengrößenabhängigkeit.

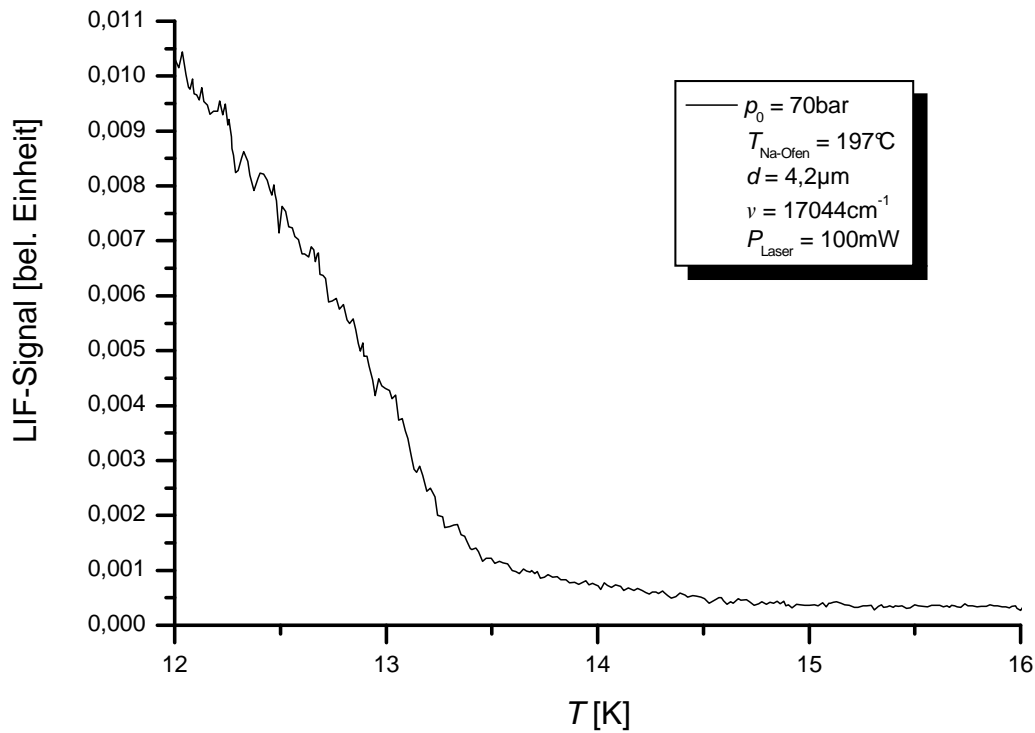


Abbildung 46: Temperaturabhängigkeit der Rayleigh-Streuung.

le nahezu bei derselben mittleren Tröpfchengröße einsetzen. Das Maximum des LT-Signals ist zu höheren Tröpfchengrößen verschoben. Außerdem erhält man bei großen Tröpfchen mehr Intensität. Das liegt an der Möglichkeit, mit dem LT-Detektor im Gegensatz zum LIF-Detektor auch Natriummultimere zu detektieren, die bei größeren Tröpfchen häufiger werden. Das LIF-Signal steigt bei sehr großen Tröpfchen wieder an. Dies erklärt sich durch die starke Zunahme der Rayleigh-Streuung des Lasers an dem Heliumtröpfchen.

Die Rayleigh-Streuung ist proportional zur 4. Potenz der Tröpfchengröße. Sie nimmt daher ab einer bestimmten Tröpfchengröße rapide zu. Abbildung 46 zeigt, dass bei einem Stagnationsdruck von 70 bar die Rayleigh-Streuung bei $T_0 \approx 15$ K ein nachweisbares Signal zur Folge hat. Das entspricht einer mittleren Tröpfchengröße von ≈ 20000 Atomen. Man befindet sich im Grenzbereich zwischen unterkritischer und kritischer Expansion. Die Rayleigh-Streuung nimmt schnell mit sinkender Temperatur zu. Da sie aber erst relevant ist, nachdem das LIF-Signal nicht mehr nachweisbar ist, stellte sie bei den vorgestellten Experimenten kein Problem dar.

Abhängigkeit des $\text{Na}(^4\text{He}_N)$ -Spektrums von der Tröpfchengröße

Bei der Untersuchung der Form des $\text{Na}(^4\text{He}_N)$ -Spektrums in Abhängigkeit von der Tröpfchengröße wurden drei verschiedene Typen beobachtet. Abbildung 47 zeigt drei ausgewählte Spektren, wobei jedes eine der gefundenen Arten repräsentiert. Die beiden Spektren bei kleinen Tröpfchengrößen sind bereits bekannt. Beträgt die mittlere Tröpfchengröße weniger als 5000 Atome, sind die Spektren schmal und die Breite nimmt mit der Tröpfchengröße zu. Ist eine Tröpfchengröße von $N = 5000$ erreicht, bleibt die Breite bis zu einer Größe von über 20000 Atomen pro Tröpfchen konstant. Man findet in diesem Fall das bekannte Spektrum. Bei Tröpfchengrößen jenseits von 20000 ^4He -Atomen wurde eine starke Verbreiterung des Spektrums beobachtet.

Zur Bestätigung wurden die Spektren bei großen Tröpfchengrößen mit laserinduzierter Strahlabschwächung nachgemessen, um apparative Effekte ausschließen zu können (Abbildung 48). Es zeigt sich, dass auch die LIBD-Spektren bei größeren Tröpfchengrößen breiter werden, jedoch nicht derart drastisch.

Zur genaueren Analyse wurde die Halbwertsbreite aller gemessenen Spektren aufgenommen und gegenüber der Tröpfchengröße aufgetragen. Abbildung 49 zeigt den erhaltenen Graphen. Bis zu einer Tröpfchengröße von 15000 Atomen verhält sich die Halbwertsbreite wie bereits beschrieben. Die LIBD-Spektren sind aufgrund des Photomultipliers schmaler und geben die tatsächliche Breite der Spektren in diesem Bereich an. Bei Tröpfchengrößen oberhalb von 20000 ^4He -Atomen nimmt die Halbwertsbreite der LIF-Spektren rapide zu. Diese Messungen sind allerdings nicht in Abbildung 49 enthalten, da die tatsächliche Breite der LIF-Spektren aufgrund eines zu geringen Frequenzbereichs der Messungen nicht bestimmbar ist. Außerdem befindet man sich im Bereich der kritischen bis überkritischen Expansion und die mittlere

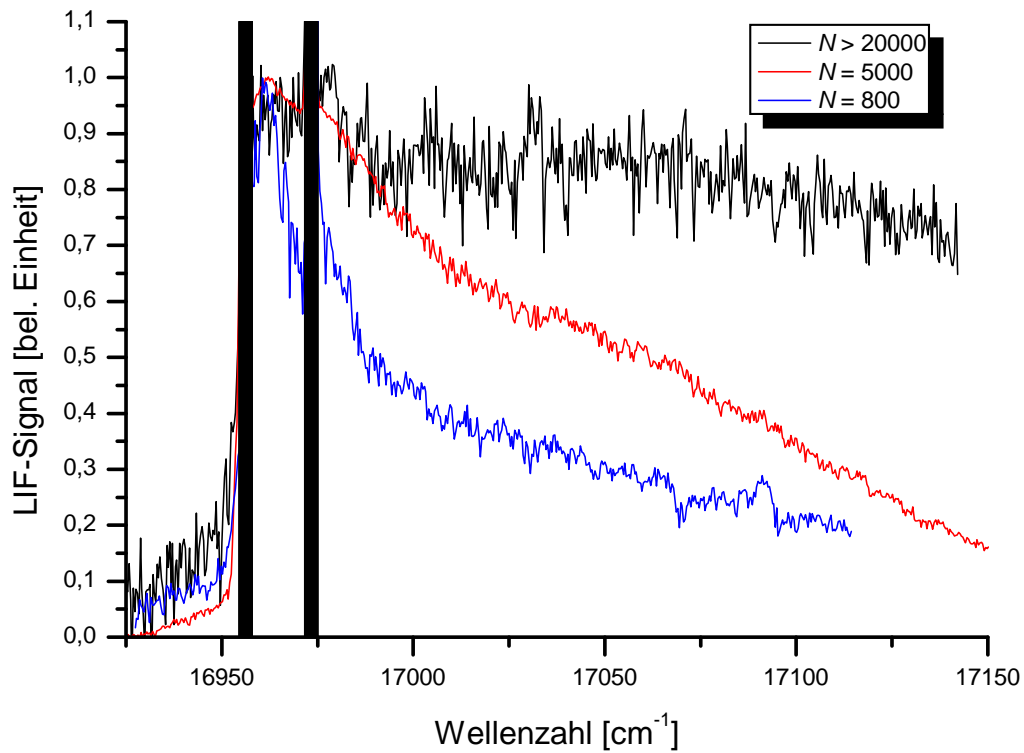


Abbildung 47: Abhängigkeit des $\text{Na}(^4\text{He}_N)$ -LIF-Spektrums von der mittleren ^4He -Tröpfchengröße \bar{N} .

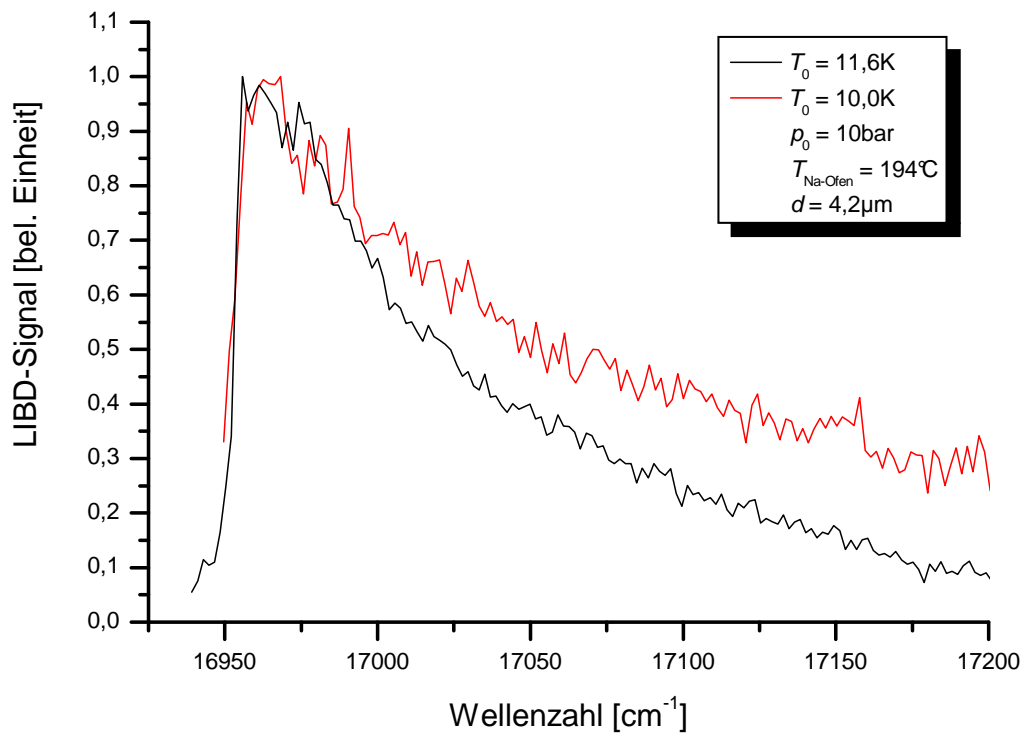


Abbildung 48: Abhängigkeit des $\text{Na}(^4\text{He}_N)$ -LIBD-Spektrums von der Düsentemperatur.

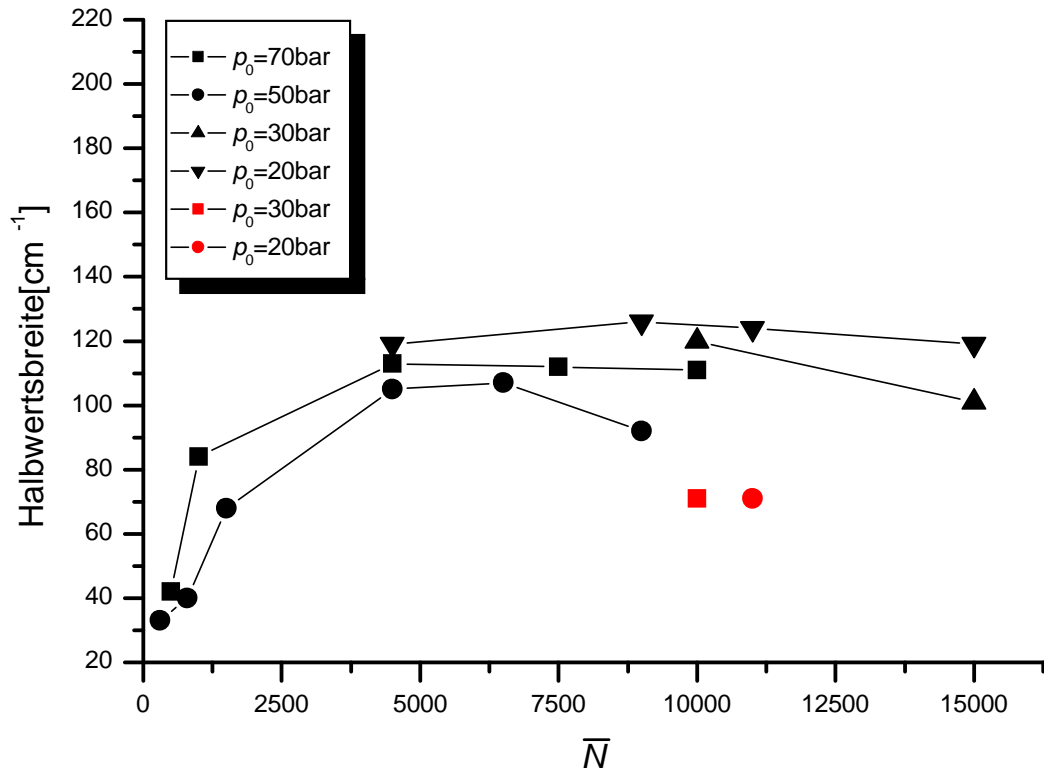


Abbildung 49: Halbwertsbreite des $\text{Na}(^4\text{He}_N)$ -Spektrums in Abhängigkeit von der Tröpfchengröße bei verschiedenen Stagnationsdrücken. Rote Zeichen entsprechen LIBD-, schwarze Zeichen LIF-Messungen. Die LIBD-Messungen geben dabei die wirkliche Breite an.

Tröpfchengröße in diesem Bereich ist nur ungenau bekannt (Abbildung 11).

Die Breite der Spektren ist in erster Linie ein Maß für die Stärke der Wechselwirkung zwischen dem Natrium und dem ^4He -Tröpfchen. Je größer die Bindungsenergie, desto breiter wird das Spektrum. Bei kleinen Tröpfchen ist die Krümmung der Tröpfchen groß und das Natrium ist nur von wenigen Heliumatomen umgeben. Daher ist die Wechselwirkung zu Anfang klein, woraus schmale Spektren folgen. Werden die Tröpfchen größer, vermindert sich ihre Krümmung und es befinden sich mehr Heliumatome in der Umgebung des Natriums. Aus diesem Grund nimmt die Wechselwirkung mit der Tröpfchengröße zu und die Spektren werden langsam breiter. Erreicht die Tröpfchengröße einen Wert von $N \approx 5000$, ist die Heliumumgebung des Natriums nahezu eben. Somit ändert sich bei Vergrößerung des Tröpfchens die Bindungsenergie nicht weiter. Von nun an bleibt die Breite der Spektren konstant. Über die Ursache der Verbreiterung des Spektrums für $N > 20000$ kann nur spekuliert werden. Eine denkbare Erklärung besteht darin, dass Quantenwirbel in derart großen ^4He -Tröpfchen beobachtet wurden. Wie durch [CFHQ98] vorgeschlagen, könnte ein Quantenwirbel das Natrium in das Zentrum des Tröpfchens ziehen. Dadurch bestände ei-

ne stärkere Wechselwirkung zwischen dem Natrium und seiner Heliumumgebung. Dies hätte ein verbreitertes Spektrum zur Folge. F. Dalfovo et al. [DMPB00] schlagen ähnliche Experimente mit Molekülen und Edelgasatomen vor. Theoretische Rechnungen von F. Ancilotto et al. [ABP03] widersprechen dieser Vermutung im Falle des Natriums allerdings. Ihre Rechnungen ergaben, dass Natrium selbst bei der Existenz eines Quantenwirbels nicht die Oberfläche des Tröpfchens verlässt. Sie schlagen hingegen entsprechende Experimente mit Kalzium vor. Bei den durchgeführten Rechnungen wurden nur Tröpfchengrößen bis $N = 1000$ untersucht. Das Auftreten der Verbreiterung findet sich aber erst bei Tröpfchengrößen jenseits von $N = 20000$. Also steht die theoretische Rechnung nicht zwingend im Widerspruch zu der Vermutung, da nicht klar ist, ob die Stabilität der Quantenwirbel von der Tröpfchengröße abhängt. Der ungünstige Frequenzbereich des Photomultipliers spielt höchstwahrscheinlich ebenfalls eine Rolle. Es ist denkbar, dass die bei einer Π -Anregung entstehenden Exziplexe bei diesen Tröpfchengrößen mehrere Heliumatome enthalten. Dies hätte eine weitere Verschiebung der emittierten Photonen zu niedrigeren Energien zur Folge. Somit würde der Photomultiplier sie noch schlechter, oder sogar überhaupt nicht mehr sehen und der Σ -Anteil würde stark überhöht. Die Überprüfung der Messungen mittels laserinduzierter Strahlabschwächung ergab, dass sich die Spektren zwar ebenfalls verbreitert erscheinen, aber nur um $\approx 40 \text{ cm}^{-1}$ Wellenzahlen. Im Falle der LIF-Spektren beträgt die Verbreiterung über 100 cm^{-1} . Wahrscheinlich handelt es sich um ein Zusammenspiel verschiedener Einflüsse. Das Spektrum ist zwar tatsächlich breiter, aber die Verbreiterung wird durch den frequenzselektiven Nachweis verstärkt. Die Beobachtungen sollen in der Zukunft durch weitere Messungen mit einem besseren Photomultiplier sowie auch mit anderen Alkali- bzw. Erdalkaliatomen überprüft werden.

4.3 Spektroskopie von Na dotierten ^3He -Tröpfchen

Ziel der in diesem Abschnitt vorgestellten Messungen war es zu zeigen, ob ^3He -Tröpfchen mit Alkaliatomen dotiert werden können und ob sie ebenfalls auf der Oberfläche der ^3He -Tröpfchen gebunden sind. Die Alkaliatome sind alle auf der Oberfläche der ^4He -Tröpfchen gebunden. Entsprechend ging man davon aus, dass die Bindung der Alkaliatome an ^3He -Tröpfchen ebenfalls identisch für alle Alkaliatome ist. Natrium wurde repräsentativ für die Alkaliatome gewählt, da dessen Spektrum von den verwendeten Lasersystemen gut erreicht und viele Erfahrungen über den Umgang mit Natrium bei der Spektroskopie von $\text{Na}(^4\text{He}_N)$ gesammelt wurden.

Wie bereits in Kapitel 3 erläutert, standen nur 20 Minuten Messzeit zur Verfügung. Es bestanden folglich keine Möglichkeiten, nach einem tröpfchenstrahlgetragenen Signal zu suchen. Die in der Theorie kurz vorgestellten Rechnungen von M. Pi et al. [PB03] ließen hoffen, dass sich das Natriumatom auf der Oberfläche des Tröpfchens befindet. Da es laut der Rechnung etwas tiefer im Tropfen sitzen sollte als bei einem ^4He -Tröpfchen,

war eine Verschiebung des Spektrums zu höheren Energien und eine Verbreiterung zu erwarten. Allerdings wäre es auch denkbar gewesen, dass das Natrium sich überhaupt nicht an den ^3He -Tröpfchen bindet oder im Zentrum des Tröpfchens gebunden ist. Es ist bekannt, dass Natrium im Inneren von Helium nicht strahlt, sondern die Energie beim Zerfallen eines angeregten Zustandes über strahlungslose *Quenching*-Prozesse an das Helium abgibt [TSKY93]. Daraus folgt, dass in beiden Fällen kein tröpfchenstrahlgetragenes Signal bei einer Messung der laserinduzierten Fluoreszenz gefunden würde. Unter diesen Voraussetzungen wurde beschlossen, ein LIF-Spektrum im Wellenlängenbereich des $\text{Na}(^4\text{He}_N)$ -Spektrums aufzunehmen. Das Experiment wurde auf maximale Intensität für $\text{Na}(^4\text{He}_N)$ justiert. Beim Durchfahren des Spektrums wurde eine Schrittweite von 2 cm^{-1} Wellenzahlen als ausreichend befunden. Das Aufnehmen eines kompletten $\text{Na}(^4\text{He}_N)$ -Spektrums benötigte bei dieser Einstellung eine Zeit von knapp fünf Minuten.

Zur Bestätigung, dass die produzierten Tröpfchen wirklich aus ^3He bestehen, wurde die Abhängigkeit des LIF-Signals von der Düsentemperatur aufgenommen. Abbildung 50 zeigt den erhaltenen Verlauf im Vergleich zu $\text{Na}(^4\text{He}_N)$ bei einem Stagnationsdruck von $p_0 = 20\text{ bar}$. Die Intensitäten sind nicht normiert und somit in ihrer Höhe vergleichbar.

Wie zu erwarten, zeigen beide Kurven einen völlig unterschiedlichen Verlauf. Das LIF-Signal von $\text{Na}(^3\text{He}_N)$ setzt bei einer Temperatur von 14 K ein, viel später als bei $\text{Na}(^4\text{He}_N)$. Die Ursache ist zum einen der tiefere Siedepunkt von ^3He , sowie die Instabilität kleiner ^3He -Tröpfchen. Die Nichtexistenz kleiner Tröpfchen ist auch der Grund dafür, dass das Signal schlagartig ansteigt. Wie bereits im Theorieteil vorgestellt, setzt die Bildung von ^3He -Tröpfchen bei einer bestimmten Temperatur abrupt ein und die gebildeten Tröpfchen sind sofort sehr groß. Die Intensität verläuft daraufhin bis zu einer Temperatur von 11 K nahezu konstant. Dies ist erstaunlich, weil es bedeutet, dass nicht nur die Tröpfchengröße (Abbildung 12) über diesen Bereich konstant ist, sondern auch die Tröpfchenanzahl. Der Fluss durch die Düse ist jedoch nicht konstant mit der Düsentemperatur. Der Quellenkammerdruck verhält sich bei gleichen Expansionsbedingungen bei ^3He und ^4He gleich. Somit kann dieses Verhalten nicht durch einen Effekt, der auf dem Gasfluss basiert, erklärt werden. Schließlich fällt das LIF-Signal wieder schlagartig ab und geht bei 10 K im Rauschen unter. In diesem Bereich beginnt die kritische Expansion und die Tröpfchen werden sehr groß, wobei ihre Anzahl stark zurückgeht. Es handelt sich somit bei den produzierten Tröpfchen tatsächlich um ^3He -Tröpfchen.

Zusätzlich ist auf der Abbildung 50 zu erkennen, dass bei gleichem Stagnationsdruck das absolute Signal bei der jeweils optimalen Düsentemperatur vergleichbar intensiv ist. Der Unterschied zwischen den absoluten Signalen bei optimalen Expansionsbedingungen von ^4He ($p_0 = 80\text{ bar}$, $T_0 = 21\text{ K}$) und ^3He bei bestmöglichen Expansionsbedingungen ($p_0 = 20\text{ bar}$, $T_0 = 11\text{ K}$) besteht in einem Faktor von 10.

Zum bestmöglichen Vergleich wurde vor der Messung des $\text{Na}(^3\text{He}_N)$ -

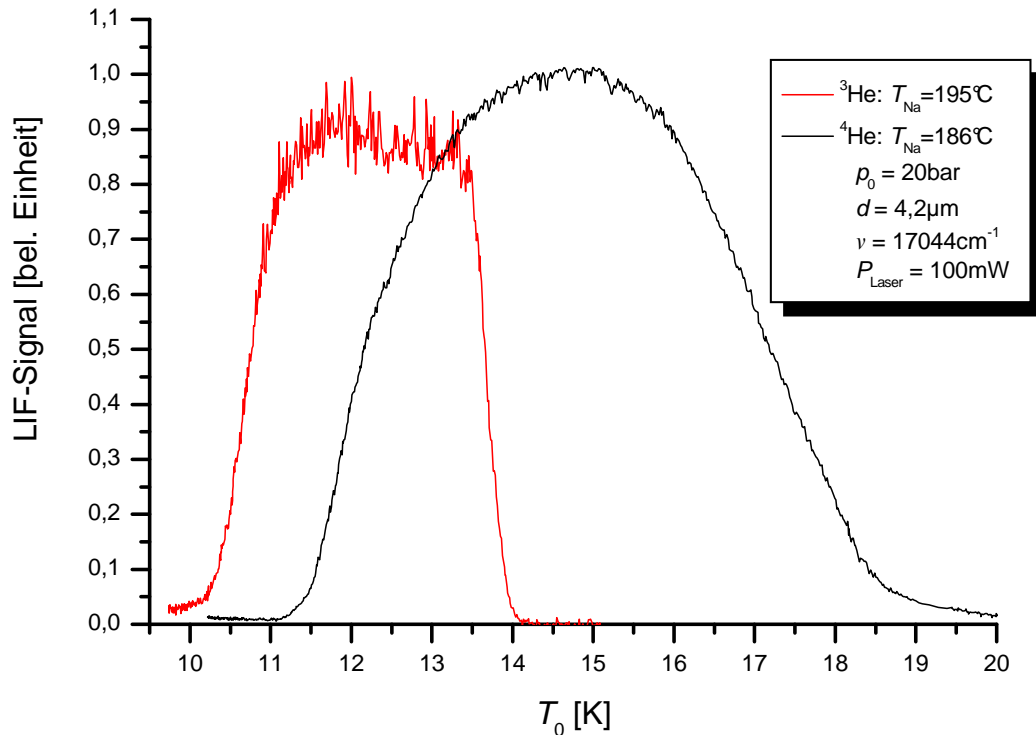


Abbildung 50: LIF-Signal in Abhängigkeit der Düsentemperatur T_0 von $\text{Na}(^3\text{He}_N)$ und $\text{Na}(^4\text{He}_N)$.

Spektrums ein $\text{Na}(^4\text{He}_N)$ -Spektrum mit gleicher Schrittweite, Justage und Einstellung der Apparatur aufgenommen. Abbildung 51 zeigt die beiden Spektren im Vergleich. Aus ihrer sehr ähnlichen Form kann man schließen, dass auch das $\text{Na}(^3\text{He}_N)$ -Spektrum aus einer Π - und einer Σ -Anregung besteht. Demnach werden auch $(\text{Na}^3\text{He}_n)^*$ -Exziplexe gebildet. Die beiden Spektren unterscheiden sich in drei Punkten:

- Das Maximum des $\text{Na}(^3\text{He}_N)$ -Spektrums scheint ein wenig zu höheren Energien verschoben
- Sie haben unterschiedliche Breiten
- Die Stufe des $\text{Na}(^4\text{He}_N)$ -Spektrums ist beim $\text{Na}(^3\text{He}_N)$ -Spektrum entweder nicht vorhanden oder sehr schwach

Die Verschiebung des $\text{Na}(^3\text{He}_N)$ -Spektrums zu höheren Energien kann mit einer etwas höheren Bindungsenergie des Natriums an das Tröpfchen erklärt werden. Aufgrund der höheren Bindungsenergie sollte das Natrium bei ^3He -Tröpfchen etwas tiefer im Tröpfchen gebunden sein. Daraus müsste zusätzlich eine Verbreiterung des Spektrums folgen. Wie bei der Auswertung der $\text{Na}(^4\text{He}_N)$ -Spektren erörtert, werden sie aber leider durch die ungünstige Empfindlichkeit des Photomultipliers verbreitert. Wie sich dies im Spektrum von $\text{Na}(^3\text{He}_N)$ äußert, kann nicht vorhergesagt werden, da nicht bekannt ist,

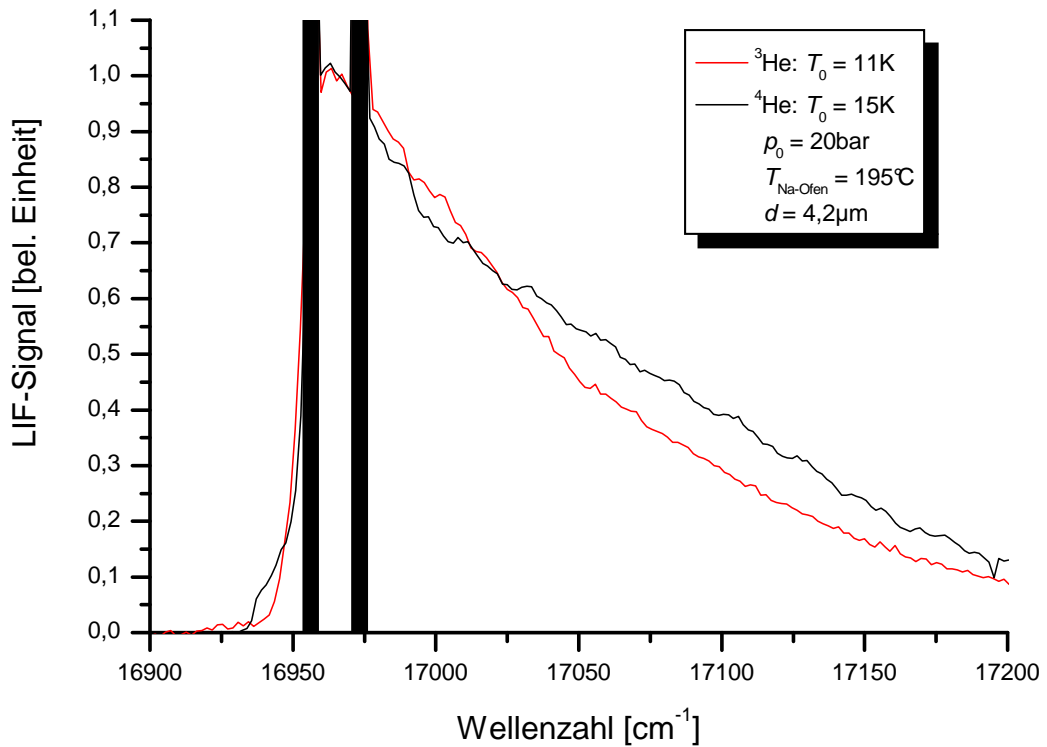


Abbildung 51: LIF-Spektrum von $\text{Na}(^4\text{He}_N)$ und $\text{Na}(^3\text{He}_N)$.

in welchem Wellenlängenbereich die Exziplexe emittieren. Weil die Bindung aufgrund der höheren Nullpunktenergie des ^3He zwischen einem angeregten Natrium und ^3He schwächer als zwischen Natrium und ^4He ist, erwartet man die Emission der Exziplexe gegenüber $(\text{Na}^4\text{He})^*$ zu höheren Energien verschoben. In diesem Fall wäre das $\text{Na}(^3\text{He}_N)$ -Spektrum nicht so stark durch den Photomultiplier verbreitert. Die Aufnahme eines LIBD-Spektrums zur Klärung dieser Frage war aus Zeitgründen leider nicht möglich.

Die bei niedrigen Energien liegende Stufe des $\text{Na}(^4\text{He}_N)$ -Spektrums ist im $\text{Na}(^3\text{He}_N)$ -Spektrum nicht zu finden. Dies erhärtet die Vermutung, dass diese Anregung durch den Einfluss der Suprafluidität des ^4He entsteht.

Die experimentellen Ergebnisse können mit den theoretischen Rechnungen von M. Pi et al. verglichen werden [PB03]. Die Vorhersage, dass Natrium auf der Oberfläche der ^3He -Tröpfchen gebunden ist, konnte bestätigt werden. Die theoretisch bestimmte Bindungsenergie von Natrium an ein ^3He -Tröpfchen liegt im Vergleich zur Bindungsenergie von Natrium an ^4He -Tröpfchen anscheinend im richtigen Bereich.

5 Zeitaufgelöste Spektroskopie

Die am Max-Born-Institut in Berlin mit ^3He durchgeführten Messungen sollen im Rahmen dieses Kapitels kurz dargestellt werden. Mittels des dort verwendeten Laseraufbaus wurde Femtosekunden-Pump-Probe-Spektroskopie an $\text{Cs}(^3\text{He}_N)$, $\text{Rb}(^3\text{He}_N)$ und $\text{K}(^3\text{He}_N)$ durchgeführt. Mit dieser Technik können Bildungs- sowie Zerfallszeiten angeregter Zustände sowie dynamische Prozesse untersucht werden. Es wird kurz auf den Aufbau des Experiments eingegangen und anschließend werden die Ergebnisse dargestellt.

5.1 Experimenteller Aufbau

Abbildung 52 zeigt den Aufbau des am Max-Born-Institut in Berlin durchgeführten Experimentes. Quellen- und Ofenkammer sind vom Prinzip her identisch mit der bereits vorgestellten Apparatur. Die neu konstruierte Clusterquelle konnte problemlos eingesetzt werden. Als Detektor diente ein Quadrupolmassenspektrometer. Mit ihm konnten Massenspektren mittels Elektronenstoß- bzw. Photoionisation aufgenommen werden. Hauptsächlich wurde er aber dazu verwendet, Pump-Probe-Spektren zu bestimmen. Als Laser wurde ein quasi-kontinuierlicher Titan-Saphir-Laser (*Tsunami, Spectra-Physics*) verwendet. Seine Wiederholrate beträgt 80 Hz, typische Pulsbreiten liegen im Bereich von 100–400 fs und er wurde mit einer Leistung von 1,2 W betrieben. Der Strahl des Femtosekundenlasers durchläuft ein *Mach-*

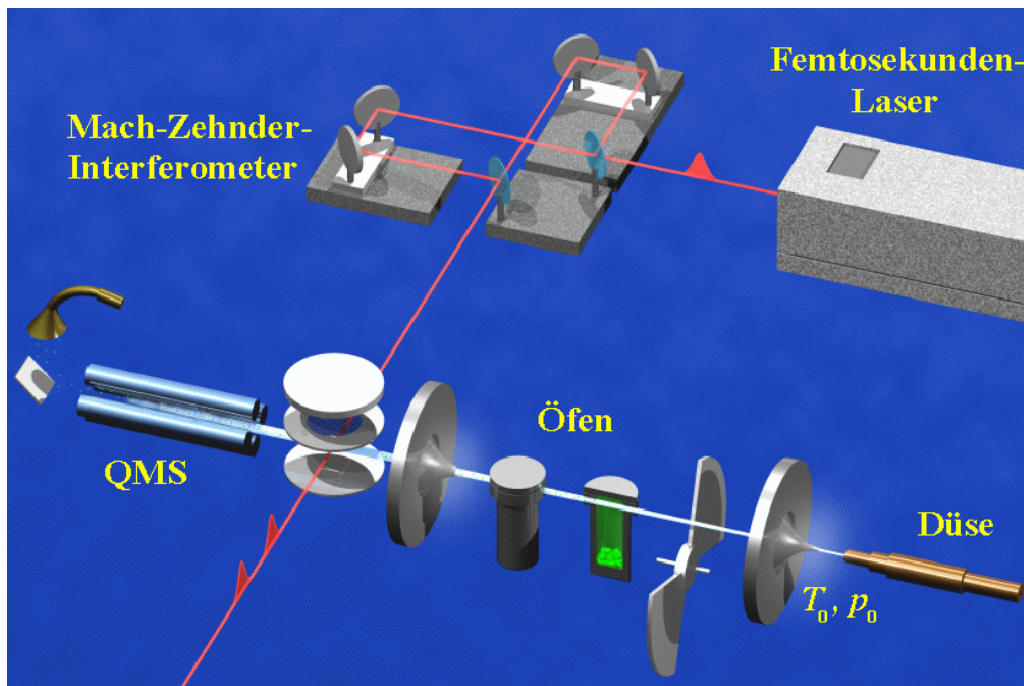


Abbildung 52: Aufbau des Berlin-Experimentes. [Zeichnung: J. Weber]

Zehnder-Interferometer. In ihm wird jeder Laserpuls durch einen Strahlteiler in zwei gleiche Anteile zerlegt. Der eine Anteil durchläuft eine Verschiebeeinheit und der zweite Anteil nimmt immer einen festen Weg. Anschließend werden beide Anteile wieder räumlich übereinander gelegt. Somit erzeugt man zwei zeitlich verschobene Pulse. Die Verschiebeeinheit kann den Abstand der beiden Pulse in 0,225 fs-Schritten variieren. Der maximale Verschiebeweg beträgt 1,8 ns. Der erste Puls wird verwendet, um einen bestimmten Zustand des Alkali-Heliumtröpfchen-Komplexes anzuregen, wonach der zweite Puls diesen Zustand ionisiert. Dies geschieht je nach Alkaliatom über Ein- oder Zweiphotonen-Prozesse. Mit Hilfe des Quadrupolmassenspektrometers war es möglich, die entstehenden Ionen massenselektiert nachzuweisen.

5.2 Massenspektrum der Heliumtröpfchen

Mit Hilfe von Elektronenstoßionisation wurde ein Massenspektrum undotierter ^4He - und ^3He -Tröpfchen aufgenommen. Heliumtröpfchen sind sehr schwer zu ionisieren, daher werden vorzugsweise die aufgesammelten Fremdteilchen oder aber kleine Fragmente der Tröpfchen ionisiert [BKN⁺90]. Abbildung 53 zeigt die beiden erhaltenen Massenspektren. Sowohl bei ^3He als auch bei ^4He sind die Progressionen der jeweiligen Heliummasse identifizierbar. Das Massenspektrum der ^3He -Tröpfchen zeigt auf der Masse 3 den Monomer, der

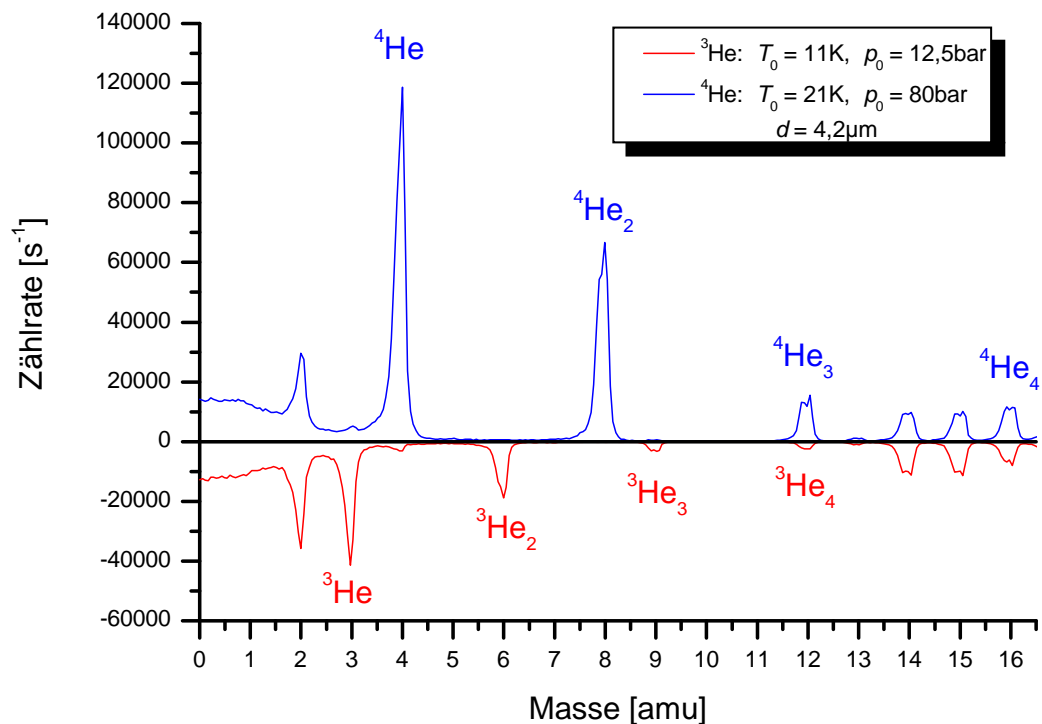


Abbildung 53: Elektronenstoßionisiertes Massenspektrum von undotierten Heliumtröpfchen. Das ^3He -Massenspektrum ist mit -1 multipliziert worden. [DCS⁺03]

Dimer folgt auf 6, der Trimer auf 9 und der Tetramer ist noch schwach auf der Masse 12 zu erkennen. Bei ^4He zeigen sie sich entsprechend auf den Massen 4, 8, 12 und 16, wobei sich auf der Masse 16 auch Sauerstoff befindet. Im ^3He -Massenspektrum ist das ^4He -Monomer schwach vorhanden. Auch das ^4He -Massenspektrum enthält einen kleinen Anteil ^3He , da diese Messung direkt nach einer Messung mit ^3He durchgeführt wurde. Die übrigen Massen sind Verunreinigungen, die durch die Heliumtröpfchen aufgesammelt wurden oder aber ionisiertes Restgas.

Aus den Massenspektren folgt, dass mit der verwendeten Methode ^3He -Tröpfchen erzeugt werden, die einen sehr kleinen Anteil an ^4He enthalten. Dies ist für unsere Experimente aber unkritisch, weil sich Verunreinigungen mit ^4He im Zentrum der ^3He -Tröpfchen befinden. Sie sollten demnach keinen Einfluss auf die auf der Oberfläche gebundenen Alkaliatome haben [PMB99].

5.3 Oberflächendynamik

Zur Untersuchung der Oberflächendynamik der ^3He -Tröpfchen wurden diese mit Cäsium dotiert und dann mittels Pump-Probe-Spektroskopie untersucht.

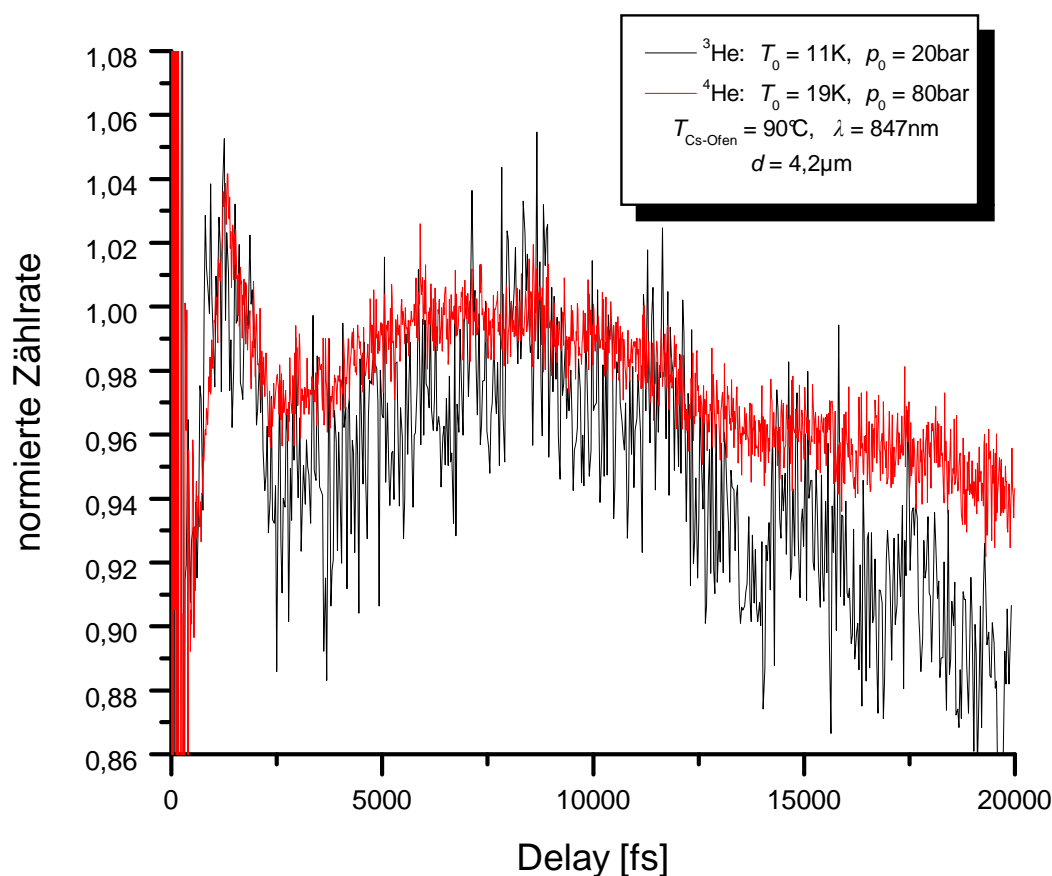


Abbildung 54: Pump-Probe-Spektrum von Cs auf Heliumtröpfchen. [DCS⁺03]

Die Intention bestand darin, die Dynamik der ^3He -Tröpfchen mit der der ^4He -Tröpfchen zu vergleichen. Abbildung 54 zeigt das gemessene Spektrum im Vergleich zu einer ^4He -Messung.

Die Form dieser Spektren hängt stark von der mittleren Größe der Heliumtröpfchen ab [Dro04]. Daher sind die ^3He - und ^4He -Messungen schwer zu vergleichen. Die Formen der $\text{Cs}(^3\text{He}_N)$ - und $\text{Cs}(^4\text{He}_N)$ -Spektren ähneln sich stark, bei beiden findet sich ein schmaler Peak zu Anfang und ein breiter Peak im weiteren Verlauf des Spektrums. Das $\text{Cs}(^4\text{He}_N)$ -Spektrum, welches bei einem Stagnationsdruck von 80 bar und einer Düsentemperatur von 19 K aufgenommen wurde, stimmt am besten mit dem $\text{Cs}(^3\text{He}_N)$ -Spektrum überein und wurde daher zu Vergleich gewählt. Darüberhinaus liegt die mittlere Größe der ^4He -Tröpfchen bei diesen Expansionsbedingungen im selben Bereich wie die Größe der untersuchten ^3He -Tröpfchen.

Die Ähnlichkeit beider Spektren ist erstaunlich, da die verschiedenen Heliumtröpfchen sehr unterschiedlichen Eigenschaften besitzen. Die Suprafluidität der ^4He -Tröpfchen hat anscheinend keinen Einfluss auf die Oberflächendynamik im Vergleich zu den normalfluiden ^3He -Tröpfchen.

5.4 Exziplex-Bildung

Bei den folgenden Messungen wurde die Exziplex-Bildung von $\text{Rb}(^3\text{He}_N)$ und $\text{K}(^3\text{He}_N)$ untersucht. Derartige Untersuchungen sind mit ^4He -Tröpfchen bereits durchgeführt worden [SMH⁺99, SCS01, RHC⁺00, DCSS02]. Es wurde gezeigt, dass sich bei den Alkaliatomen Exziplexe bilden, wobei die Bildungszeiten von Alkali- zu Alkaliatom sehr unterschiedlich sind. Das Ziel der folgenden Messungen war, den Bildungsprozess der Exziplexe bei ^3He -Tröpfchen zu bestimmen und das Resultat mit ^4He -Messungen zu vergleichen. Eine knappe Zusammenfassung der Ergebnisse wird hier vorgestellt.

Rubidium

Durch die Aufnahme eines Massenspektrums von $\text{Rb}(^3\text{He}_N)$ konnte nochmals überprüft werden, ob die Alkaliatome Exziplexe mit ^3He bilden. Zur Ionisation diente der Femtosekundenlaser. Abbildung 55 zeigt das entstandene Spektrum, sowie zum Vergleich ein Massenspektrum von $\text{Rb}(^4\text{He}_N)$. Rubidium und sein Isotop können in beiden Spektren identifiziert werden. Im $\text{Rb}(^3\text{He}_N)$ -Spektrum zeigen sich der $(^{85}\text{Rb}^3\text{He})^*$ - sowie der $(^{87}\text{Rb}^3\text{He})^*$ -Exziplex. Das Massenspektrum von $\text{Rb}(^4\text{He}_N)$ enthält die entsprechenden Exziplexe ebenfalls. Zusätzlich kann man noch die $(\text{Rb}^4\text{He}_2)^*$ -Exziplexe erkennen. Die Tripelpeakstruktur ist auf einen Effekt der Auflösung des Massenspektrometers zurückzuführen.

Der einfache Exziplex bildet sich beim ^3He anscheinend häufiger als bei ^4He . Der zweifache Exziplex ist bei ^3He nicht zu erkennen, da die Intensität bei dieser Messung deutlich geringer war als bei ^4He .

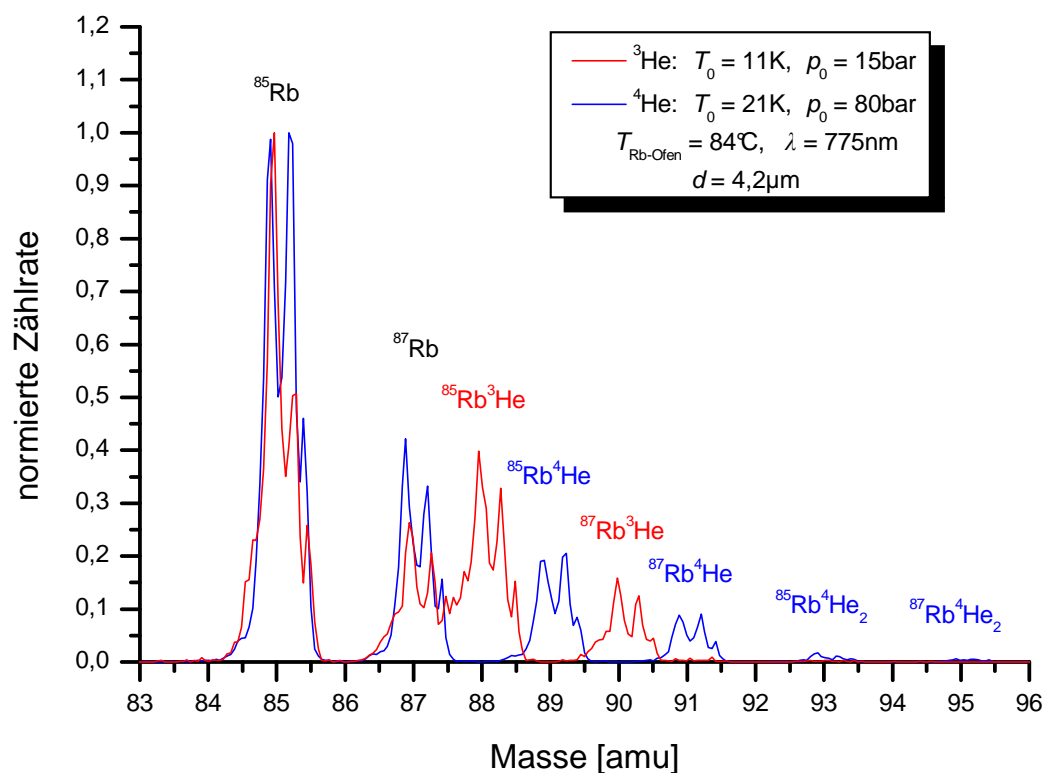


Abbildung 55: Photoionisiertes Massenspektrum von Rb-dotierten Heliumtröpfchen. [DCS⁺03]

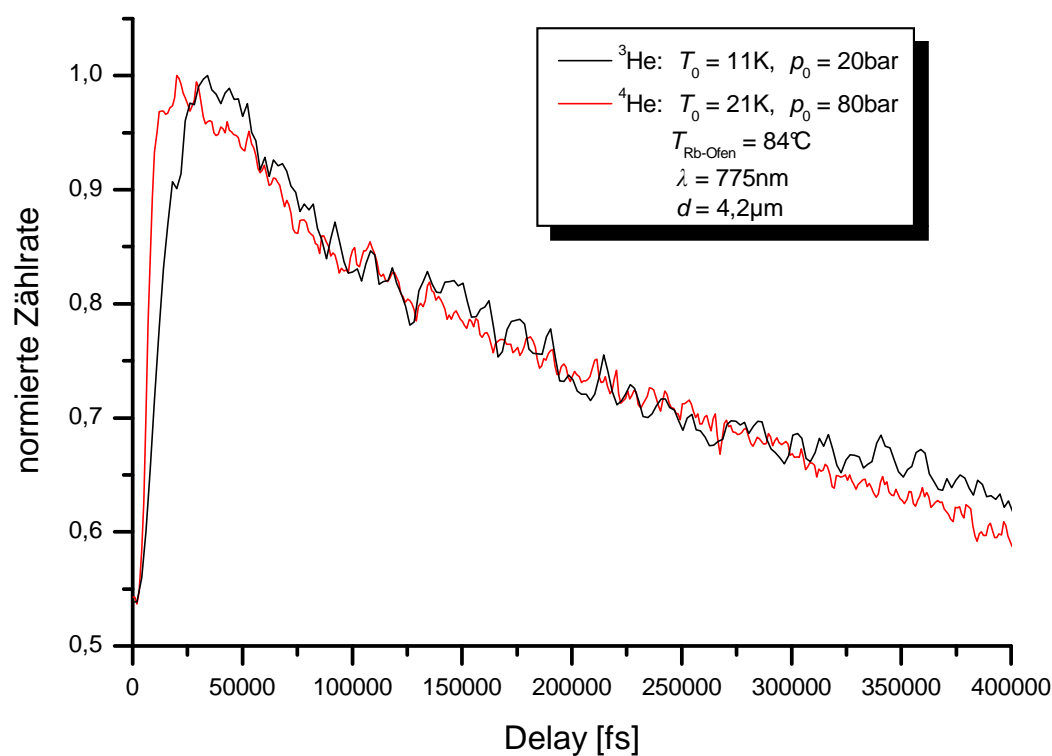


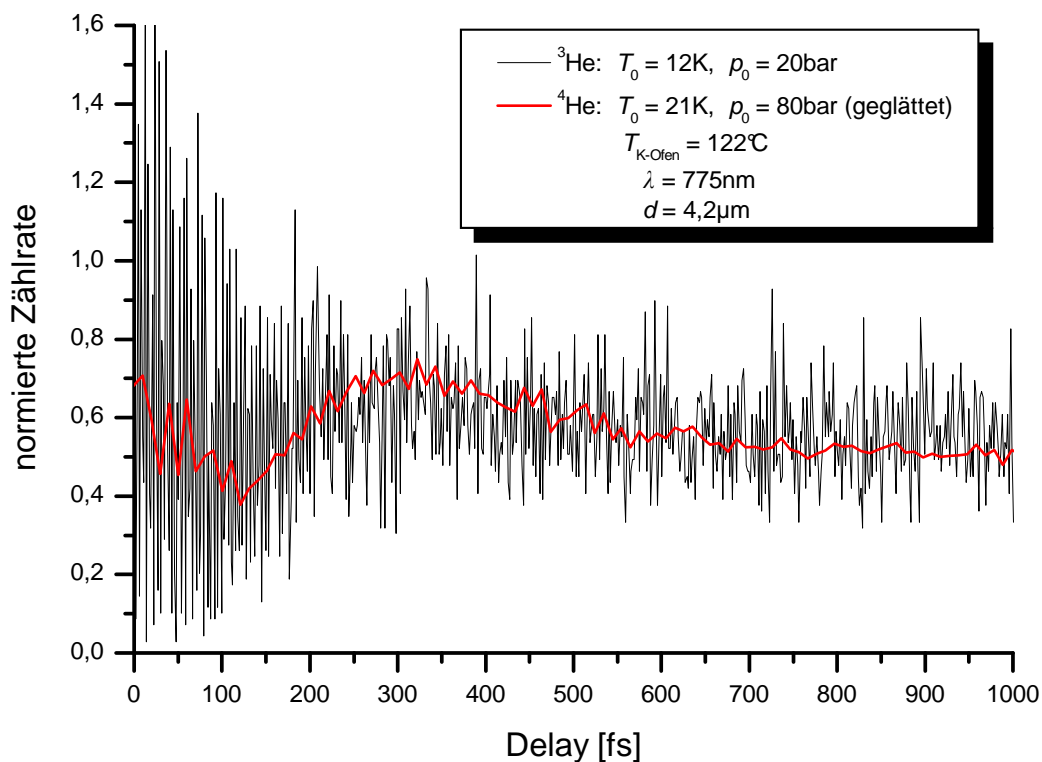
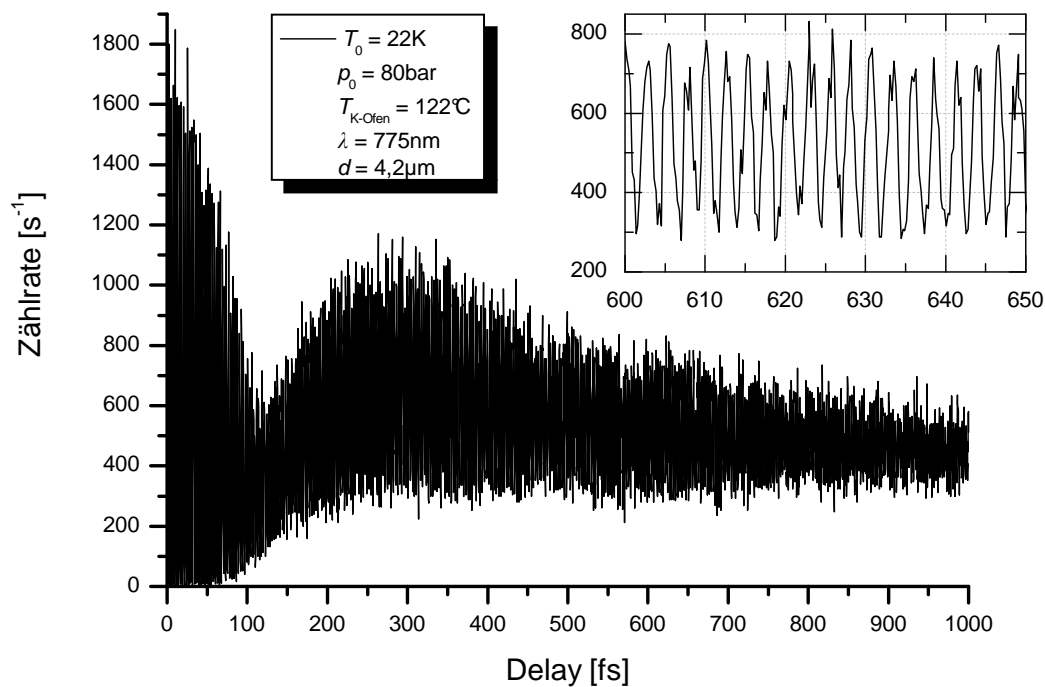
Abbildung 56: Pump-Probe-Spektrum des Rb*He-Exziplexes. [DCS⁺03]

Um die Bildungszeiten des $(^{85}\text{Rb}^3\text{He})^*$ -Exziplexes zu bestimmen, wurde ein Pump-Probe-Spektrum auf der Masse 88 aufgenommen. Das Ergebnis ist auf Abbildung 56 dargestellt, wobei zum Vergleich auch eine entsprechende Messung mit ^4He enthalten ist. Die Bildungszeit des $(^{85}\text{Rb}^3\text{He})^*$ -Exziplexes ist langsamer als die des $(^{85}\text{Rb}^4\text{He})^*$ -Exziplexes, wohingegen kein deutlicher Unterschied in der Zerfallszeit zu erkennen ist. Ein einfaches Modell aus zwei addierten Exponentialfunktionen ergibt eine Bildungszeit des $(^{85}\text{Rb}^4\text{He})^*$ -Exziplexes von $\approx 5,6$ ps. Bei dem $(^{85}\text{Rb}^3\text{He})^*$ -Exziplez erhält man $\approx 8,5$ ps [Dro04].

Kalium

Dasselbe Experiment wurde ebenfalls mit Kalium durchgeführt. Allerdings hat der Kalium-Exziplez selbst bei optimalen ^4He -Bedingungen nur eine geringe Intensität. Darüberhinaus zeigen sich beim Kalium-Exziplez Quanteninterferenzen [SMH⁺99, SCS01], wie in Abbildung 58 gut zu erkennen ist. Bei den verwendeten Expansionsbedingungen für ^3He ist die Zählrate sogar nochmals um einen Faktor 10 geringer. Darüberhinaus bilden sich beim $(\text{K}^3\text{He})^*$ -Exziplez ebenfalls Quanteninterferenzen. Daher wirkt die vorgestellte Messung sehr verrauscht und der Kontrast ist schlecht zu erkennen. Das Pump-Probe-Spektrum wird in Abbildung 57 dargestellt. Zum Vergleich ist zusätzlich eine geglättete ^4He -Messung zu sehen. Das Verhalten der beiden Exziplexe scheint ähnlich, wobei aufgrund des geringen Kontrastes der ^3He -Messung noch keine Aussagen über die Bildungs- bzw. Zerfallszeiten gemacht werden können.

Auch bei der Exziplez-Bildung finden sich keine großen Unterschiede in dem Verhalten der ^3He - und ^4He -Tröpfchen. Der Unterschied zwischen normal- und suprafluid hat demnach auch keinen großen Einfluss auf die Bildung von Exziplezen.

Abbildung 57: Pump-Probe-Spektrum des $\text{K}^* \text{}^3\text{He}$ -Exzplexes. [DCS+03]Abbildung 58: Pump-Probe-Spektrum des $\text{K}^* \text{}^4\text{He}$ -Exzplexes. [DCS+03]

6 Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine Düsenstrahlquelle zur Erzeugung von ^3He -Tröpfchen konstruiert und getestet. Sie ermöglicht es, Temperaturen bis zu 8 K zu erreichen, wofür die Kühlung eine Zeit von ca. zwei Stunden benötigt. Im Verhalten des Heliumflusses durch die Düse zeigt sich eine Abweichung von der Theorie bei sehr tiefen Düsentemperaturen. Die genaue Ursache dieser Abweichungen ist nicht verstanden.

Es wurde versucht, das $\text{Na}(^4\text{He}_N)$ -Spektrum zu reproduzieren. Aufgrund des frequenzselektierten Nachweises wirken die erhaltenen Spektren zu breit. Bei sehr großen Tröpfchengrößen wurde eine Verbreiterung des $\text{Na}(^4\text{He}_N)$ -Spektrums beobachtet. Ihre genaue Ursache muss noch gefunden werden, aber es wäre möglich, dass stabile Quantenwirbel in sehr großen Heliumtröpfchen beobachtet wurden.

Desweiteren wurde gezeigt, dass mit der aufgebauten Clusterquelle ^3He -Tröpfchen erzeugt werden können. Ein Spektrum von $\text{Na}(^3\text{He}_N)$ wurde aufgenommen und mit dem $\text{Na}(^4\text{He}_N)$ -Spektrum verglichen. Sie zeigen starke Ähnlichkeiten, wie es im Wesentlichen durch die Rechnungen von M. Pi et al. vorhergesagt wurde [PB03]. Das Maximum des Spektrums ist im Fall von ^3He leicht zu höheren Energien verschoben, über die Breite des Spektrums kann aufgrund des Photomultipliers keine Aussage getroffen werden. Das Fehlen der niederenergetischen Stufe im $\text{Na}(^3\text{He}_N)$ -Spektrum verstärkt die Vermutung, dass sie im $\text{Na}(^4\text{He}_N)$ -Spektrum aus einem Zustand resultiert, der auf die Suprafluidität der ^4He -Tröpfchen zurückzuführen ist.

Die kurz vorgestellten am Max-Born-Institut durchgeführten Messungen zeigen, dass es möglich ist, Pump-Probe-Messungen von Alkali dotierten ^3He -Tröpfchen durchzuführen. Obwohl die ^3He -Tröpfchen im Gegensatz zu den ^4He -Tröpfchen normalfluid sind, zeigen sich bei der Untersuchung der Oberflächendynamik sowie in der Bildung von Exzipleken keine großen Unterschiede. Eine genaue Ausarbeitung dieser Messungen wird sich in der Doktorarbeit von G. Droppelmann finden [Dro04].

Mit Hilfe der entwickelten Clusterquelle besteht nun die Möglichkeit, Experimente mit ^3He - und ^4He -Tröpfchen durchzuführen. Durch Vergleiche beider Systeme kann vielleicht Klarheit geschaffen werden, inwieweit sich die unterschiedlichen Quanteneigenschaften der beiden Isotope auswirken. Interessante Fragen wären zum Beispiel, inwiefern Erdalkaliatome an ^3He -Tröpfchen gebunden sind, wie die Absorptionsspektren der anderen Alkali- $^3\text{He}_N$ aussehen oder ob die Verbreiterung des Absorptionsspektrums bei sehr großen Tröpfchengrößen auch bei anderen Alkali- und Erdalkaliatomen auftritt. Es können ebenfalls ^4He - ^3He -Mischcluster mit der konstruierten Clusterquelle untersucht werden. ^4He - ^3He -Mischcluster bestehen aus einem ^4He -Kern, der von ^3He umgeben ist [PMB99]. Das ^3He dient dabei zur Kühlung des ^4He -Kerns. Somit ist es möglich, die Temperatur der ^4He -Tröpfchen zu verringern und den Einfluss der tieferen Temperaturen auf seine Eigenschaften zu untersuchen.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich allen Personen danken, die mich bei der Durchführung dieser Arbeit unterstützt und zur Fertigstellung dieser Diplomarbeit beigetragen haben.

Mein besonderer Dank gilt Hochsch.-Doz. Dr. Frank Stienkemeier, der es mir ermöglichte, in seiner Arbeitsgruppe diese Diplomarbeit durchzuführen. Dieser Dank gilt auch für die hilfreichen Anregungen und Diskussionen.

Priv.-Doz. Dr. Feldmann danke ich, dass er sich bereit erklärt hat, diese Diplomarbeit als Zweitgutachter zu beurteilen.

Für die wertvolle Unterstützung und Korrekturvorschläge möchte ich mich bei meinem Betreuer Markus Wewer bedanken.

Ebenfalls möchte ich Patrick Claas, Georg Droppelmann und Stephan Hülsmann für die konstruktive Kritik beim Korrekturlesen danken.

Allen Mitarbeitern und Kollegen meiner Arbeitsgruppe danke ich für das freundschaftliche Arbeitsklima und die anregenden Diskussionen.

Den Mitarbeitern der mechanischen Werkstatt möchte ich für die Fertigung der Quellenkomponenten danken.

Bei meiner Familie und besonders bei meiner Freundin Katrin möchte ich mich für die viele Unterstützung und das Korrekturlesen bedanken.

Erklärung

Hiermit erkläre ich, dass die vorliegende Arbeit selbstständig verfasst, keine anderen Quellen und Hilfsmittel als die angegebenen benutzt und die Stellen der Arbeit, die anderen Werken dem Wortlaut oder Sinn nach entnommen sind, in jedem Fall unter Angabe der Quelle als Entlehnung kenntlich gemacht habe. Das Gleiche gilt für beigegebene Zeichnungen und Darstellungen.

Bielefeld, den

Oliver Bünemann

Literatur

- [ABP03] F. Ancilotto, M. Barranco und M. Pi. Probing vortices in impurity-doped ^4He clusters. *unveröffentlichte Ergebnisse*, 2003.
- [Bai99] Ralph Baierlein. *Thermal Physics*, Kapitel 9. Fermions and bosons at low temperatures, Seiten 182–221. Cambridge University Press, 1999.
- [Ber75] Bergmann·Schäfer. *Lehrbuch der Experimentalphysik Band IV, Teil 2: Aufbau der Materie*. Walter de Gruyter, 1975.
- [Ber92] Bergmann·Schäfer. *Lehrbuch der Experimentalphysik Band 5: Vielteilchensysteme*. Walter de Gruyter, 1992.
- [BKL61] E. W. Becker, R. Klingelhöfer und P. Lohse. Strahlen aus kondensiertem Helium im Hochvakuum. *Zeitschrift Naturforschung*, 16: 1259, 1961.
- [BKN⁺90] H. Buchenau, E. L. Knuth, J. Northby, J. P. Toennies und C. Winkler. Mass spectra and time-of-flight distributions of helium cluster beams. *Journal of Chemical Physics*, 92: 6875–6889, 1990.
- [BNP97] M. Barranco, J. Navarro und A. Poves. Structure and stability of ^3He droplets. *Physical Review Letters*, 78: 4729–4732, 1997.
- [BS90] D. M. Brink und S. Stringari. Density of states and evaporation rate of helium clusters. *Zeitschrift für Physik D*, 15: 257–263, 1990.
- [CFHQ98] J. D. Close, F. Federmann, K. Hoffmann und N. Quaas. Helium droplets: A nanoscale cryostat for high resolution spectroscopy and studies of quantized vorticity. *Journal of Low Temperature Physics*, 111: 661–676, 1998.
- [CHSS98] C. Callegari, J. Higgins, F. Stienkemeier und G. Scoles. Beam depletion spectroscopy of alkali atoms (Li, Na, K) attached to highly quantum clusters. *Journal of Physical Chemistry*, 102: 95–101, 1998.
- [CLSS01] C. Callegari, K. K. Lehmann, R. Schmied und G. Scoles. Helium nanodroplets isolation rovibrational spectroscopy: Methods and recent results. *Journal of Chemical Physics*, 115: 10090–10110, 2001.
- [CM01] D. M. Ceperley und E. Manousakis. Path integral Monte Carlo applications to quantum fluid in confined geometries. *Journal of Chemical Physics*, 115: 10111–10118, 2001.

- [Cun04] S. Cunovic. Diplomarbeit. Universität Bielefeld, 2004.
- [DCS+03] G. Droppelmann, P. Claas, F. Stienkemeier, C. P. Schulz und O. Bünermann. Messzeit MBI berlin. *unveröffentlichte Ergebnisse*, 2003.
- [DCSS02] G. Droppelmann, P. Claas, F. Stienkemeier und C. P. Schulz. Messzeit MBI berlin. *unveröffentlichte Ergebnisse*, 2002.
- [DDH87] W. Demtröder, H.-J. Donnelly und R. H. Hills. Molekülspektroskopie in kalten Düsenstrahlen. *Physikalische Blätter*, 43: 7–13, 1987.
- [DMPB00] F. Dalfovo, R. Mayol, M. Pi und M. Barranco. Pinning of quantized vortices in helium drops by dopant atoms and molecules. *Physical Review Letters*, 85: 1028–1031, 2000.
- [Dro04] G. Droppelmann. Doktorarbeit. Universität Bielefeld, 2004.
- [DS01] F. Dalfovo und S. Stringari. Helium nanodroplets and trapped Bose-Einstein condensates as prototypes of finite quantum fluids. *Journal of Chemical Physics*, 115: 10078–10089, 2001.
- [EH00] C. Enss und S. Hunklinger. *Tieftemperaturphysik*. Springer, 2000.
- [FH81] H. Frey und R. A. Haefer. *Tieftemperaturtechnologie*. VDI-Verlag GmbH, 1981.
- [FHH+99] M. Farnik, J. Harms, U. Henne, B. Samelin und J. P. Toennies. Mean size of ^4He -clusters. *unveröffentlichte Ergebnisse*, 1999.
- [GN00] R. Guaridiola und J. Navarro. Variational study of ^3He droplets. *Physical Review Letters*, 84: 1114–1147, 2000.
- [Gre83] D. S. Greywall. Specific heat of normal liquid ^3He . *Physical Review B*, 27: 2747–2766, 1983.
- [GTV98] S. Grebenev, J. P. Toennies und A. F. Vilesov. Superfluidity within a small helium-4 cluster: The microscopic Andronikashvili experiment. *Science*, 279: 2083–2085, 1998.
- [Gua00] R. Guardiola. Drops of ^3He atoms with good angular-momentum quantum numbers. *Physical Review B*, 62: 3416–3421, 2000.
- [Hab95] H. Haberland. Experimental methods. In H. Haberland, Editor, *Clusters of Atoms and Molecules I*, Seiten 207–253. Springer, 1995.
- [Ham95] Hamamatsu. *Datenblatt: Metal package photomultiplier tube R5600 series*, 1995.

- [Har97] M. Hartmann. Doktorarbeit: Hochauflösende Spektroskopie von Molekülen in $^4\text{Helium}$ - und $^3\text{Helium}$ -Clustern. Georg-August-Universität zu Göttingen, 1997.
- [Hei97] W. Heil. Helium läßt die Lunge „leuchten“. *Physik in unserer Zeit*, 28: 168–174, 1997.
- [Her44] G. Herzberg. *Atomic spectra and atomic structure*. Dover Publications, 2. Auflage, 1944.
- [Häg99] A. Hägele. Diplomarbeit: Aufbau einer Quelle zur Erzeugung von dotierten Helium-Clustern. Universität Bielefeld, 1999.
- [HHT⁺97] J. Harms, M. Hartmann, J. P. Toennies, A. F. Vilesov und B. Sartakov. Rotational structure of the IR spectra of single SF_6 molecules in liquid ^4He and ^3He droplets. *Journal of Molecular Spectroscopy*, 185: 204–206, 1997.
- [HMTV95] M. Hartmann, R. E. Miller, J. P. Toennies und A. Vilesov. Rotationally resolved spectroscopy of SF_6 in liquid helium clusters: A molecular probe of cluster temperatur. *Physical Review Letters*, 75: 1566–1569, 1995.
- [HMTV96] M. Hartmann, F. Mielke, J. P. Toennies und A. F. Vilesov. Direct spectroscopic observation of elementary excitations in superfluid He droplets. *Physical Review Letters*, 76: 4560–4563, 1996.
- [HPST99] M. Hartmann, N. Pörtner, B. Sartakov und J. P. Toennies. High resolution infrared spectroscopy of single SF_6 molecules in helium droplets. I. Size effects in ^4He droplets. *Journal of Chemical Physics*, 110: 5109–5123, 1999.
- [HTBP01] J. Harms, J. P. Toennies, M. Barranco und M. Pi. Experimental and theoretical study of the radial density distributions of large ^3He droplets. *Physical Review B*, 63: 184513, 2001.
- [HTD98] J. Harms, J. P. Toennies und F. Dalfovo. Density of superfluid helium droplets. *Physical Review B*, 58: 3341–3350, 1998.
- [HTK96] J. Harms, J. P. Toennies und E. L. Knuth. Droplets formed in helium free-fet expansions from states near the critical point. *Journal of Chemical Physics*, 106: 3348–3356, 1996.
- [Joh02] R. L. Johnston. *Atomic and molecular clusters*. Taylor & Francis, 2002.
- [Kel69] W. E. Keller. *Helium-3 and Helium-4*. Plenum Press · New York, 1969.

- [KH99] E. L. Knuth und U. Henne. Average size and size distribution of large droplets produced in a free-jet expansion of a liquid. *Journal of Chemical Physics*, 110: 2664–2668, 1999.
- [KV00] M. Kollar und D. Vollhardt. Thermodynamik consistent equilibrium properties of normal-liquid ^3He . *Physical Review B*, 61: 15347–15360, 2000.
- [Ley96] Leybold. *Gebrauchsanweisung für Öldiffusionspumpe DIP 8000*, 1996.
- [LMKG92] F. Lou, G. C. McBane, G. Kim und C. F. Giese. The weakest bound: Experimental observation of helium dimer. *Journal of Chemical Physics*, 98: 3564–3567, 1992.
- [Men01] S.-O. Mende. Diplomarbeit: Laser Ablation zur Dotierung von superflüssigen Helium-Nanotröpfchen. Universität Bielefeld, 2001.
- [Mul02] K. Multhaupt. Diplomarbeit: Implementierung eines rechnergestützten Systems zur Experimentsteuerung und Datenaufnahme. Universität Bielefeld, 2002.
- [Nor01] J. A. Northby. Experimental studies of helium droplets. *Journal of Chemical Physics*, 115: 10065–10077, 2001.
- [NY01] A. Nakayama und K. Yamashita. Path integral Monte Carlo study on the structure and absorption spectra of alkali atoms (Li, Na, K) attached to superfluid helium clusters. *Journal of Chemical Physics*, 114: 780–791, 2001.
- [PB03] M. Pi und M. Barranco. Density functional calculations for Na-doped ^4He and ^3He clusters. *unveröffentlichte Ergebnisse*, 2003.
- [PMB99] M. Pi, R. Mayol und M. Barranco. Structure of large ^3He - ^4He mixed drops around a dopant molecule. *Physical Review Letters*, 82: 3093–3096, 1999.
- [Pob96] F. Pobell. *Matter and methods at low temperatures*. Springer, 2. Auflage, 1996.
- [Pot01] C. Pott. Diplomarbeit: Aufbau eines CCD-Spektroskopiesystems zur Messung von Emissionsspektren Laser-angeregter dotierter Helium-Cluster. Universität Bielefeld, 2001.
- [POW84] L. Prandtl, K. Oswatitsch und K. Wieghardt. *Führer durch die Strömungslehre*. Vieweg, 8. Auflage, 1984.
- [PSN⁺84] J. P. Pekola, J. T. Simola, K. K. Nummilla, O. V. Lounasmaa und R. E. Packard. Persistent-current experiments on superfluid $^3\text{He-B}$ and $^3\text{He-A}$. *Physical Review Letters*, 53: 70–73, 1984.

- [RHC⁺00] J. Reho, J. Higgins, C. Callegari, K. K. Lehmann und G. Scoles. Alkali-helium exciplex formation on the surface of helium nanodroplets. II. A time-resolved study. *Journal of Chemical Physics*, 113: 9694–9701, 2000.
- [SCS01] C. P. Schulz, P. Claas und F. Stienkemeier. Formation of K*He exciplexes on the surface of helium nanodroplets studied in real time. *Physical Review Letters*, 87: 153401, 2001.
- [SHC⁺96] F. Stienkemeier, J. Higgins, C. Callegari, S. I. Kanorsky, W. E. Ernst und G. Scoles. Spectroscopy of alkali atoms (Li, Na, K) attached to large helium clusters. *Zeitschrift für Physik D*, 38: 253–263, 1996.
- [SHES95a] F. Stienkemeier, J. Higgins, W. E. Ernst und G. Scoles. Laser spectroscopy of alkali-doped helium clusters. *Physical Review Letters*, 74: 3592–3595, 1995.
- [SHES95b] F. Stienkemeier, J. Higgins, W. E. Ernst und G. Scoles. Spectroscopy of alkali atoms and molecules attached to liquid He clusters. *Zeitschrift für Physik B*, 98: 413–416, 1995.
- [SMH⁺99] F. Stienkemeier, F. Meier, A. Hägele, H. O. Lutz, E. Schreiber, C. P. Schulz und I. V. Hertel. Coherence and relaxation in potassium-doped helium droplets studied by femtosecond pump-probe spectroscopy. *Physical Review Letters*, 83: 2320–2323, 1999.
- [SML97] F. Stienkemeier, F. Meier und H. O. Lutz. Alkaline earth metals (Ca, Sr) attached to liquid helium droplets: Inside or out? *Journal of Chemical Physics*, 107: 10816–10818, 1997.
- [SML99] F. Stienkemeier, F. Meier und H. O. Lutz. Spectroscopy of barium attached to superfluid helium. *European Physical Journal D*, 9: 313–315, 1999.
- [ST87] S. Stringari und J. Treiner. Systematics of liquid helium clusters. *Journal of Chemical Physics*, 87: 5021–5027, 1987.
- [Sum01a] Sumitomo Heavy Industries, Ltd.: Cryogenics Department. *Datenblatt: RDK-408D 4K cold head*, 2001.
- [Sum01b] Sumitomo Heavy Industries, Ltd.: Cryogenics Department. *Operation Manual: SRDK Series CRYOCOOLER*, March 2001.
- [SV01] F. Stienkemeier und A. F. Vilesov. Electronic spectroscopy in He droplets. *Journal of Chemical Physics*, 115: 10119–10137, 2001.

- [SWML00] F. Stienkemeier, M. Wewer, F. Meier und H. O. Lutz. Langmuir-Taylor surface ionization of alkali (Li, Na, K) and alkaline earth (Ca, Sr, Ba) atoms attached to helium droplets. *Review of Scientific Instruments*, 71: 3480–3484, 2000.
- [TSKY93] Y. Takahashi, K. Sano, T. Kinoshita und T. Yabuzaki. Spectroscopy of alkali atoms and molecules in superfluid helium. *Physical Review Letters*, 71: 1035–1038, 1993.
- [Web01] J. Weber. Diplomarbeit: Entwicklung und Erprobung eines Konverters zur Erzeugung von para-Wasserstoff-Clustern. Universität Bielefeld, 2001.
- [Wew99] M. Wewer. Diplomarbeit: Aufbau und Erprobung eines Langmuir-Taylor Detektors zum Nachweis dotierter Heliumcluster. Universität Bielefeld, 1999.
- [Wha94] K. B. Whaley. Structure and dynamics of quantum clusters. *International Reviews in Physical Chemistry*, 13: 41–84, 1994.
- [WR92] S. Weisgerber und P. G. Reinhard. The shell structure of ^3He droplets. *Zeitschrift für Physik D*, 23: 275–282, 1992.
- [YL96] C. Yannouleas und U. Landmann. Shapes of ^3He clusters. *Physical Review B*, 54: 7690–7693, 1996.