

Interner Bericht
DESY F35-78/01
Februar 1978

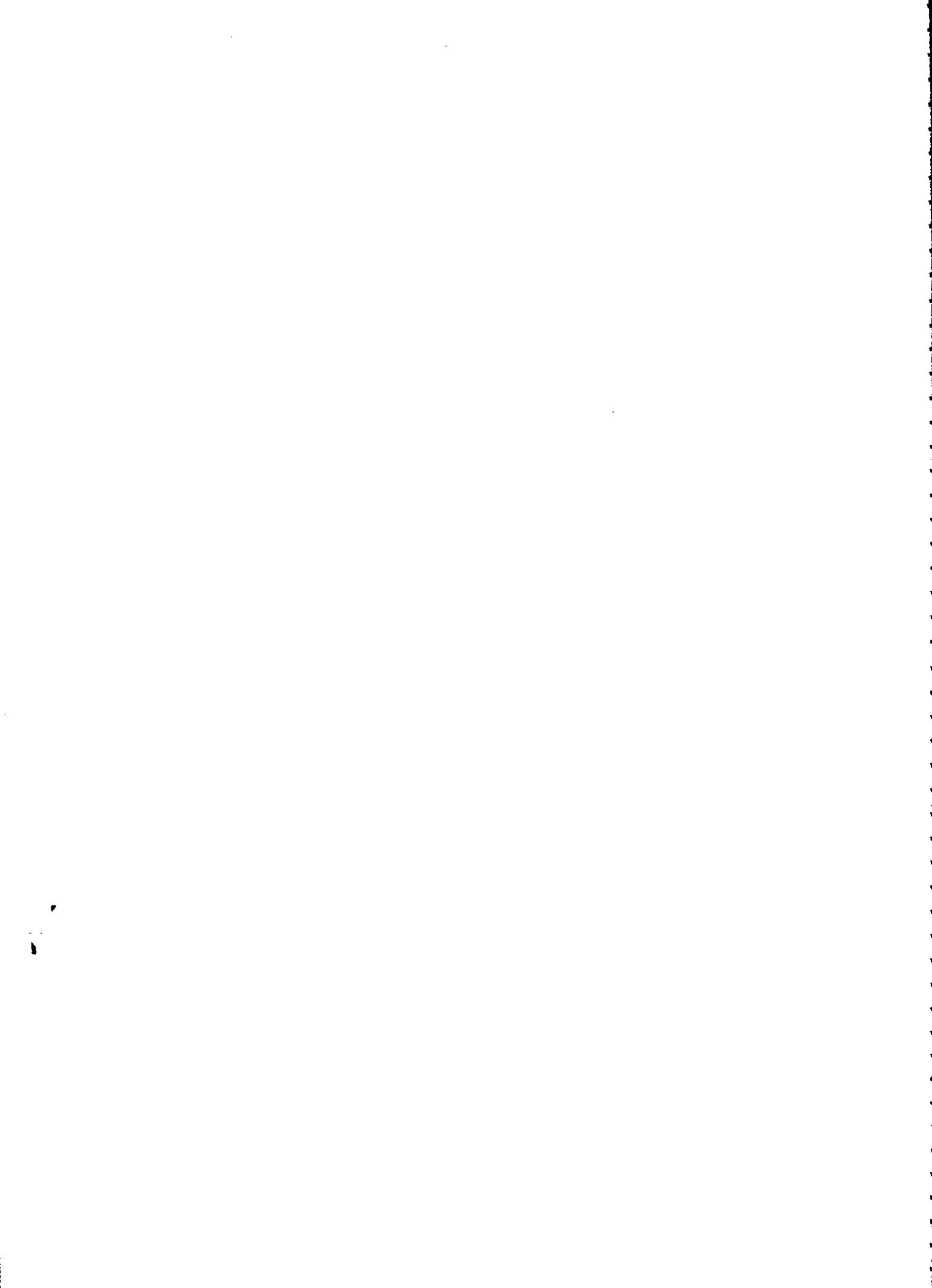
425/2408
DESY-Bibliothek

10. MRZ. 1978

Herstellung und Test von Siliziumdioxid-Aerogel
für den Einsatz in Cerenkovzählern

von

Norbert Kuschnerus



Herstellung und Test von Siliziumdioxid-Aerogel
für den Einsatz in Cerenkovzählern

Experimentelle Diplomarbeit

von

Norbert Kuschnerus

II. Institut für Experimentalphysik der
Universität Hamburg

Hamburg, Februar 1978

<u>Inhaltsverzeichnis</u>	Seite
I. Einleitung	1
II. Der Cerenkoeffekt	3
1. Theoretische Grundlagen des Cerenkoeffekts	3
2. Cerenkovzähler	8
3. Der Einsatz von Cerenkovzählern im TASSO-Detektor	13
III. Die Herstellung von Aerogel	18
1. Beschreibung des Herstellungsverfahrens	20
a. Die Herstellung des Alkogels	21
b. Der Entzug des Lösungsmittels aus dem Alkogel	30
2. Die experimentellen Ergebnisse	39
a. Die Polymerisation der Kieselsäure zum Alkogel	47
b. Die Eigenschaften der hergestellten Aerogelproben	57
IV. Der Brechungsindex des Aerogels	73
1. Das Meßprinzip	76
2. Die Resultate der Brechungsindex-Messungen	81
V. Testmessungen mit Aerogel als Cerenkov-Radiator	90
1. Die Erzeugung von Cerenkovlicht in Aerogel	91
2. Der Versuchsaufbau der Testmessungen	95
3. Die Auswertungsmethoden der Testmessungen	105
4. Die Ergebnisse der Aerogel-Testmessungen	112
a. Einfache Optiken in einem kleinen Cerenkovzähler	114
b. Test von Optiken eines großen Cerenkovzählers	118
c. Untersuchung der Aerogelproben eigener Herstellung	124
d. Die räumliche Intensitätsverteilung des Cerenkovlichts	134

	Seite
VI. Simulationsrechnungen zum Verhalten des Aerogels als Cerenkov-Radiator	142
1. Die Streuung des Cerenkovlichts im Aerogel	143
2. Die Beschreibung des Simulationsprogramms	150
3. Die Ergebnisse der Simulationsrechnungen	158
VII. Zusammenfassung und Ausblick	167

I. Einleitung

Der Speicherring PETRA, der gegenwärtig beim DESY gebaut wird, ermöglicht Experimente mit Schwerpunktsenergien bis zu 2×19 GeV; ein experimenteller Aufbau wird der Solenoid-Detektor TASSO sein. Um die mit entsprechend hohen Impulsen auseinander fliegenden Zerfallsprodukte identifizieren zu können, wird in den TASSO-Detektor ein Hadronen-Spektrometer eingebaut werden (1), der im Abschnitt II.3 beschrieben ist. Das zentrale Element dieses Spektrometers ist ein System aus drei Schwellen-Cerenkovzählern mit Dielektrika (Cerenkov-Radiatoren) unterschiedlicher Brechungsindizes (1.02, 1.00177, 1.00072). Während sich die beiden niedrigen Brechungsindizes mit Gasen unter Normaldruck realisieren lassen (Neo-Pentan und Freon 13), existiert kein natürliches Dielektrikum, dessen Brechungsindex unter Normalbedingungen zwischen 1.002 und 1.33 liegt (2). Mit dem Aerogel steht seit einigen Jahren ein leicht zu handhabender Cerenkov-Radiator zur Verfügung, dessen Brechungsindex je nach den Herstellungsbedingungen zwischen 1.01 und 1.06 liegt.

Das eigentliche Problem des Einsatzes von Aerogel in Cerenkovzählern liegt in seinem großen Streuvermögen für Photonen und der damit verbundenen schlechten Transparenz. Daher wurden im Rahmen dieser Arbeit Verfahren gesucht, die eine reproduzierbare Herstellung von optisch einwandfreiem Aerogel erlauben. Die grundlegenden Eigenschaften und die Experimente zur Herstellung des Aerogels werden im Abschnitt III abgehandelt. Die nachfolgenden Kapitel beschreiben Untersuchungen an den hergestellten Aerogel-Radiatoren; im Abschnitt IV

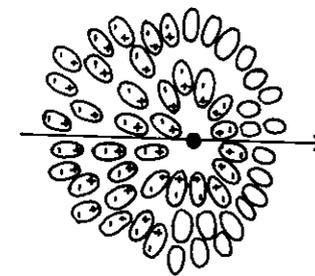
werden die Brechungsindexmessungen und im Abschnitt V die Experimente mit Aerogel-Cerenkovzählern in einem Elektronen-Teststrahl behandelt. Im Kapitel VI werden schließlich Simulationsrechnungen zur Streuung und Absorption von Cerenkovlicht im Aerogel dargestellt, denen eine kurze, theoretische Abhandlung der Lichtstreuung an sphärischen Streuzentren (Mie-Streuung) vorangestellt wird (Abschnitt VI.1). Da die mit der Aerogelherstellung verbundenen Probleme sehr komplex sind, konnte diese Arbeit nicht zu einem völlig abgerundeten Ergebnis führen. Daher werden im letzten Abschnitt weitere experimentelle Möglichkeiten zur Verbesserung der Qualität und zur Untersuchung der Eigenschaften des Aerogels kurz erläutert.

II. Der Cerenkoveffekt

II.1 Theoretische Grundlagen des Cerenkoveffekts

Wenn ein geladenes Teilchen ein Dielektrikum durchquert, werden durch die elektromagnetische Wechselwirkung die Atome längs seiner Bahn polarisiert. (Abbildung 1) Die elektromagnetische Wechselwirkung breitet sich mit Lichtgeschwindigkeit aus. Fliegt das Teilchen hinreichend schnell durch das Dielektrikum, sind die Atome hinter ihm weiterhin polarisiert, während die Polarisation vor dem Teilchen noch nicht auftritt. Es entsteht also ein resultierendes elektrisches Dipolmoment am Teilchenort. Diese mit dem Teilchen wandernde Polarisierung des Dielektrikums verursacht eine Emission elektromagnetischer Strahlung (3).

Abbildung 1: Die Erzeugung des Cerenkovlichts (3)

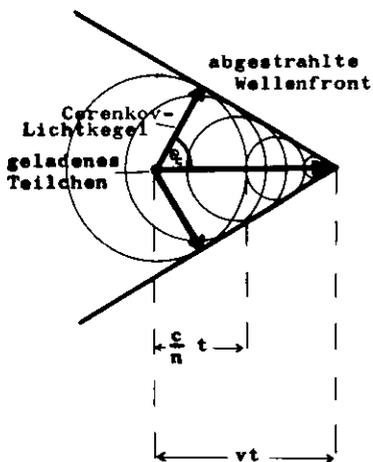


Das geladene Teilchen durchquert ein Dielektrikum und polarisiert dabei die Atome seiner Umgebung. Bei großer Geschwindigkeit ist die Polarisation längs seiner Bahn asymmetrisch, es entsteht ein resultierendes Dipolmoment.

- ⊕ Polarisiertes Atom
- unbeeinflusstes Atom
- (negativ) geladenes Teilchen

Ist die Teilchengeschwindigkeit größer als die Phasengeschwindigkeit des Lichts im Dielektrikum, überlagern sich die abgestrahlten elektromagnetischen Wellen konstruktiv; es bildet sich eine kohärente Wellenfront, die mit einem charakteristischen Winkel θ_c (Cerenkovwinkel) zur Teilchenrichtung abgestrahlt wird. (Abbildung 2) Sie ist polarisiert; der elektrische Vektor steht senkrecht auf der Oberfläche des emittierten Cerenkov-Lichtkegels (3).

Abbildung 2: Die Emission des Cerenkovlichts (2)



Fliegt ein Teilchen mit einer Geschwindigkeit v durch ein Dielektrikum, die größer als die Phasengeschwindigkeit c/n des Lichts im Dielektrikum ist, dann überlagern sich die emittierten Lichtwellen konstruktiv. Es entsteht eine kegelförmige Wellenfront, zu der das Cerenkovlicht senkrecht abgestrahlt wird. Die Ausbreitungsrichtung des Cerenkovlichts bildet den Cerenkov-Lichtkegel mit dem halben Öffnungswinkel θ_c (Cerenkovwinkel).

Diese Strahlung wurde 1934 von Cerenkov entdeckt. 1937 entwickelten Frank und Tamm eine klassische Theorie zur Cerenkovstrahlung und 1940 konnte sie durch Ginzburg und Sokolov quantentheoretisch erklärt werden. (4)

Block 1: Eigenschaften der Cerenkovstrahlung (2,3)

Cerenkovwinkel θ_c :

$$\cos \theta_c = \frac{1}{\beta n(\lambda)} \quad (1)$$

- β = Relativ-Geschwindigkeit v/c des geladenen Teilchens
- v = Teilchengeschwindigkeit
- c = Vakuum-Lichtgeschwindigkeit
- $n(\lambda)$ = Brechungsindex des Dielektrikums

Die untere Grenze der Geschwindigkeit β eines geladenen Teilchens für die Erzeugung von Cerenkovlicht ist die Schwellengeschwindigkeit β_s , für die gilt:

$$\beta_s = \frac{1}{n(\lambda)} \quad (2)$$

Anzahl N der im Wellenlängenintervall (λ_1, λ_2) emittierten Photonen:

$$N = 2\pi\alpha LZ^2 \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} \frac{\sin^2 \theta_c}{\lambda^2} d\lambda \quad (3)$$

- α = Feinstrukturkonstante
- Z = Ladung des Teilchens (in Einheiten der Elementarladung)
- l = Weglänge des Teilchens im Dielektrikum

Näherung: Der Brechungsindex n sei unabhängig von der Wellenlänge λ :

$$N = 2\pi\alpha LZ^2 \left(\frac{1}{\lambda_1} - \frac{1}{\lambda_2} \right) \sin^2 \theta_c \quad (4)$$

$$N = \text{const} \cdot \sin^2 \theta_c = \text{const} \cdot \left(1 - \frac{1}{n^2 \beta^2} \right) \quad (4a)$$

$$\frac{dN}{d\lambda} = \frac{\text{const}}{\lambda^2} \quad (4b)$$

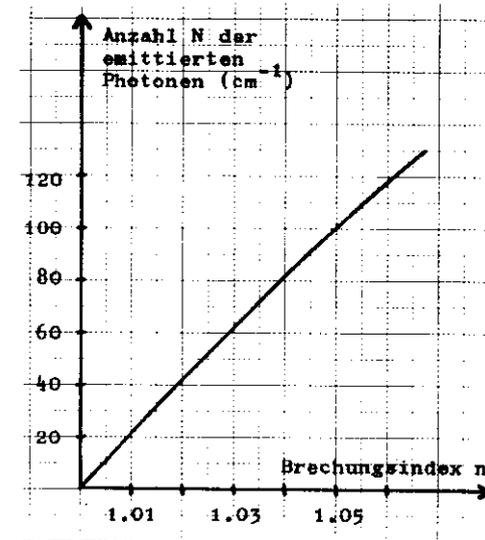
Die für diese Arbeit wichtigen quantitativen Eigenschaften sind im Block 1 zusammengefaßt. Die Tatsache, daß der Cerenkovwinkel θ_c von der Geschwindigkeit des Teilchens und vom Brechungsindex des Dielektrikums (Cerenkov-Radiator) abhängt, bzw. daß erst ab einer gewissen Schwellengeschwindigkeit des Teilchens Cerenkovlicht emittiert wird, kann man zur Identifizierung geladener Elementarteilchen ausnutzen. Dabei ist zu beachten, daß die Zahl der abgestrahlten Photonen umgekehrt proportional zur Wellenlänge des Cerenkovlichts ist. Es ist also im allgemeinen von Vorteil, zum Nachweis des Cerenkovlichts Geräte einzusetzen, die für kurzwelliges Licht (UV) besonders empfindlich sind. (2,3)

Die hier verwendete Photovervielfacher-Röhre (RCA 8854) akzeptiert Licht im Bereich von etwa 230 nm bis 500 nm. Damit wird Formel 4 (Block 1) zu:

$$N = 1077 Z^2 l \sin^2 \theta_c$$

Für ein völlig transparentes Dielektrikum mit einem Brechungsindex im Arbeitsbereich des Aerogels von 1.01 bis 1.06 erhält man daraus für Teilchen mit Lichtgeschwindigkeit 21 bis 118 Photonen pro Zentimeter Weglänge im Dielektrikum (Abbildung 3).

Abbildung 3: Zahl der emittierten Photonen in einem völlig transparenten Dielektrikum mit dem Brechungsindex n für Teilchen mit Lichtgeschwindigkeit.



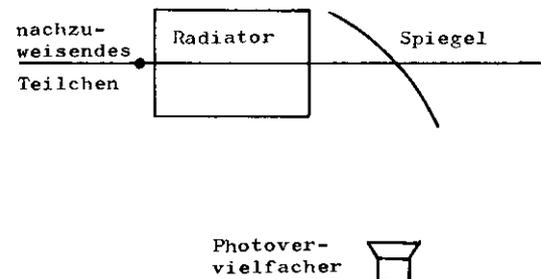
II.2 Cerenkovzähler

Ein wichtiger Teil der Identifizierung von Elementarteilchen ist die Bestimmung ihrer Masse. Eine häufig angewandte Methode der Massenbestimmung besteht darin, daß man sowohl den Impuls als auch die Energie oder die Geschwindigkeit der Elementarteilchen mißt. Da sowohl Magnetfelder als auch Teilchenorte sehr genau meßbar sind, kann man den Impuls der Teilchen am besten über den Krümmungsradius der Teilchenbahn in einem Magnetfeld bestimmen. Zum Beispiel soll im TASSO-Detektor mit einer Ortsauflösung in den Driftkammern von .25 mm und einem Magnetfeld von .5 T eine Impulsauflösung von $\Delta p/p \leq .06$ p/GeV/c erreicht werden (1).

Zur Geschwindigkeitsmessung eignen sich bei niedrigen Geschwindigkeiten Flugzeitähler, mit denen sich zum Beispiel bei einer Zeitauflösung von $\Delta t = .25$ nsec und einer Flugstrecke von $\Delta s = 4$ m Geschwindigkeitsdifferenzen von etwa 5 % der Lichtgeschwindigkeit messen lassen. Damit können Pionen, Kaonen und Protonen bis zu Impulsen von etwa 2 GeV/c voneinander getrennt werden. Bei höheren Teilchenimpulsen ist es am sinnvollsten, Cerenkovzähler zur Teilchen-Identifizierung einzusetzen.

Ein Cerenkovzähler ist ein System aus einem transparenten Dielektrikum (Radiator), einer Optik zur Fokussierung und Photovervielfacher-Röhren zum Nachweis des Cerenkovlichts. (Abb. 4) Im Dielektrikum erzeugen schnelle, geladenen Teilchen längs ihrer Bahn Cerenkovlicht. Die Photovervielfacher-Röhren zum Nachweis der Photonen sind meist im kurzwelligen Spektralbereich des sichtbaren Lichts (350 nm - 550 nm)

Abbildung 4: Schematischer Aufbau eines Cerenkovzählers



In einem Cerenkovzähler ist zu gewährleisten, daß die nachzuweisenden Teilchen nur im Cerenkov-Radiator Licht erzeugen. Daher müssen sowohl die Photovervielfacher als auch transparente Teile der Optik, wie zum Beispiel Linsen außerhalb des Teilchenstrahls angeordnet sein. (5)

empfindlich. Ihr Empfindlichkeitsbereich läßt sich in den UV-Bereich erweitern (bis etwa 250 nm), indem man ein Röhrenfenster aus Quarz benutzt. (5,6)

Im Interesse kleinerer Detektordimensionen ist man im allgemeinen bemüht, die Länge des Cerenkov-Radiators möglichst klein zu halten. Zum Beispiel haben die Gas-Cerenkovzähler im TASSO-Detektor eine Radiatorlänge von nur 60 cm. (1) Um dennoch einen guten Wirkungsgrad zu erzielen, ist es notwendig, das Cerenkovlicht durch eine geeignete Optik auf die Photovervielfacher-Röhren zu fokussieren. Dies kann zum Beispiel durch sphärische Spiegel oder geeignete Radiatorformen erfolgen. (5,6)

Da die Massen der Elementarteilchen diskret verteilt sind, ist zur Identifizierung bereits bekannter Teilchen eine genaue Geschwindigkeitsmessung, die in einem "differentiellen" oder "Vielkanal-Cerenkovzähler" möglich ist, nicht notwendig. (2,7) Es ist häufig ausreichend, eine untere Grenze der Teilchengeschwindigkeit zu kennen, die sich relativ einfach mit einem "Schwellen-Cerenkovzähler" bestimmen läßt. Man nutzt dabei den Effekt aus, daß ein geladenes Teilchen erst dann die Emission von Cerenkovlicht hervorruft, wenn seine Geschwindigkeit größer ist als die Phasengeschwindigkeit des Lichts im Dielektrikum.

Block 2: Trennung von Teilchen unterschiedlicher Masse im Schwellen-Cerenkovzähler (2)

Schwellenimpuls p_s der Emission von Cerenkovlicht:

$$p_s = \frac{mc}{\sqrt{n^2 - 1}} \quad (1)$$

m = Ruhemasse des nachzuweisenden Teilchens
 n = Brechungsindex des Radiators
 c = Vakuum-Lichtgeschwindigkeit

Bedingung zur Trennung zweier Teilchen mit den Massen m_1, m_2 .

Die Grenzen des Brechungsindex des Radiators sind festgelegt durch:

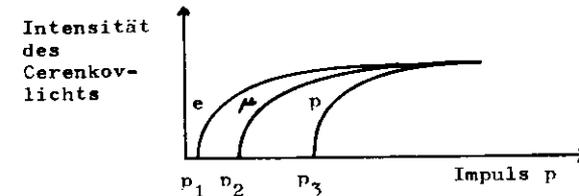
$$\sqrt{1 + \frac{m_1^2 c^2}{p^2}} < n < \sqrt{1 + \frac{m_2^2 c^2}{p^2}} \quad (2)$$

n = Brechungsindex des Radiators
 p = Impuls der Teilchen

Um einen ausreichenden Wirkungsgrad im Nachweis des leichteren Teilchens m_1 zu erreichen, wird der Brechungsindex deutlich größer als die untere Grenze gewählt.

Zur Trennung von Teilchen mit unterschiedlicher Masse wird der Brechungsindex des Radiators so gewählt, daß im erwarteten Impulsbereich die Geschwindigkeit des schwereren Teilchens unterhalb und die des leichteren oberhalb der Schwellengeschwindigkeit liegt (2) (Block 2, Abbildung 5).

Abbildung 5: Abhängigkeit der Intensität des Cerenkovlichts vom Impuls des einfallenden Teilchens



Die Intensität des erzeugten Cerenkovlichts hängt von der Geschwindigkeit β des geladenen Teilchens ab. Leichte Teilchen wie zum Beispiel Elektronen haben daher einen niedrigeren Schwellenimpuls als schwere, wie zum Beispiel Protonen. Eine Teilchentrennung ist jeweils in solchen Bereichen möglich, in denen die Intensität des Cerenkovlichts des leichteren Teilchens ausreichend zum Nachweis mit den Photovervielfachern ist, das schwerere Teilchen aber noch kein Cerenkovlicht erzeugt. (5)

Die Optik des Schwellen-Cerenkovzählers kann so konstruiert werden, daß nahezu das gesamte erzeugte Cerenkovlicht zum Teilchennachweis ausgenutzt wird. Daher ist er sowohl in divergenten Teilchenstrahlen als auch mit Lichtstreuenden Cerenkovradiatoren einsetzbar.

Häufig ist der Impulsbereich eines Radiators, in dem eine Teilchentrennung möglich ist, zu

klein, oder es sollen mehr als zwei Teilchenarten voneinander unterschieden werden. In solchen Fällen ist es notwendig, mehrere Schwellen-Cerenkovzähler mit Radiatoren gestaffelter Brechungsindizes einzusetzen.

11.3 Der Einsatz von Cerenkovzählern im TASSO-Detektor

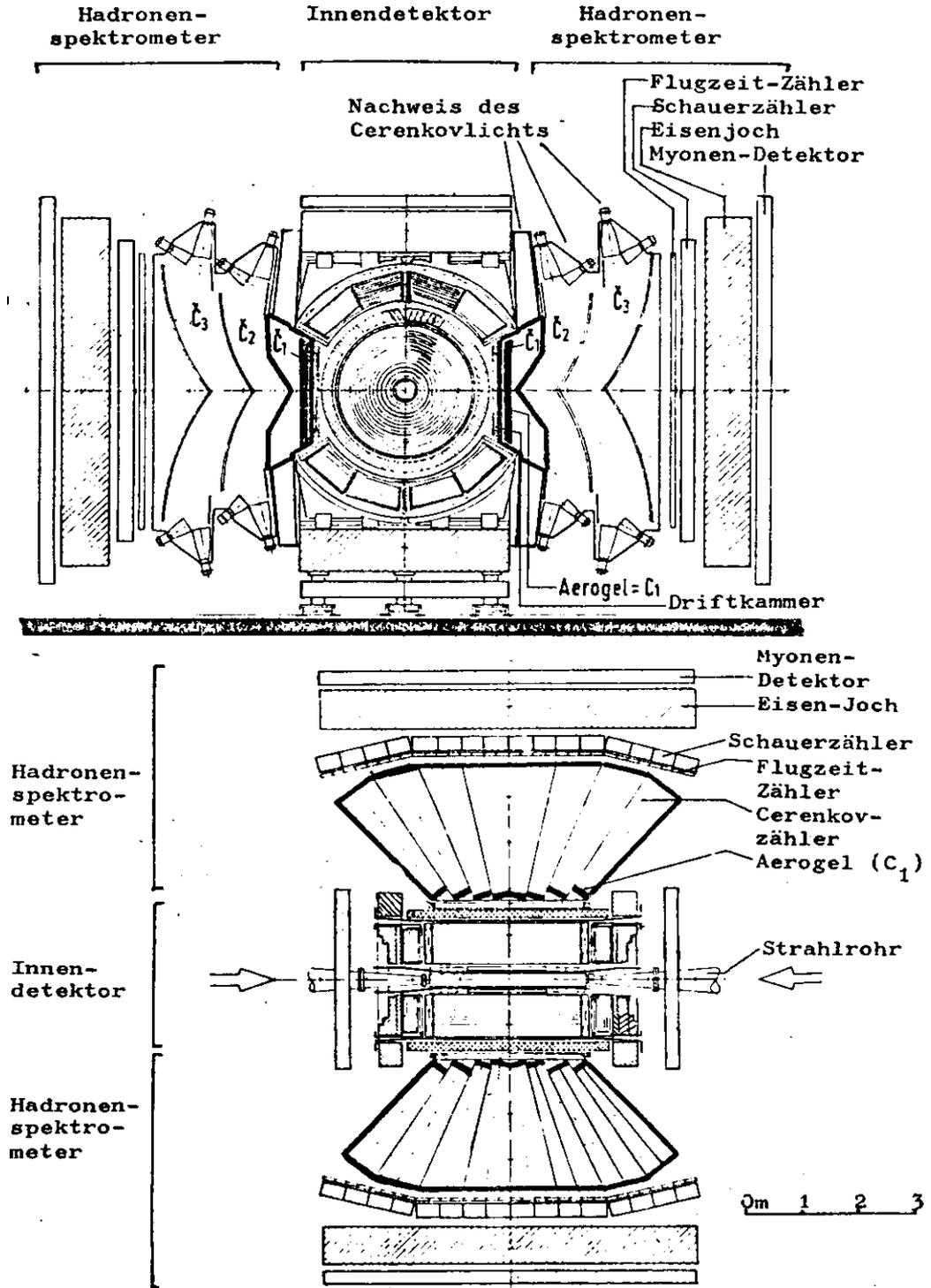
Der TASSO-Detektor soll ab 1979 im PETRA-Speicherring eingesetzt werden. Er ist als großer Solenoid-Detektor geplant, der es ermöglichen soll, geladene Teilchen und Photonen nahezu im gesamten Raumwinkel nachzuweisen (Abbildung 6). Bei den mit PETRA zur Verfügung stehenden Schwerpunktsenergien erwartet man neben dem Zerfall von Teilchen in wenige Zerfallsprodukte die Bildung von eng gebündelten Teilchenstrahlen (Jets).

Um geladene Hadronen bis zu den höchsten Impulsen, die bei PETRA erreichbar sind, identifizieren zu können, soll im TASSO-Detektor ein Hadronen-Spektrometer eingebaut werden. Zwei identische Spektrometerarme werden außerhalb des Solenoids auf gegenüberliegenden Seiten des Detektors angeordnet. Das zentrale Element eines Spektrometerarms ist ein System aus drei Schwellen-Cerenkovzählern, die durch Driftkammern ergänzt sind, um die Flugrichtung und Anzahl der Teilchen zu bestimmen. Weitere Elemente sind Flugzeitähler, Schauerzähler zum Nachweis von Elektronen und f -Quanten und Myonen-Detektoren.

Die Identifizierung von Pionen, Kaonen und Protonen soll bei niedrigen Impulsen mit Hilfe von Flugzeitählern geschehen, die mit einer Zeitauflösung von .25 nsec und einer Teilchenweglänge von 4 m geplant sind. Für Teilchen mit größeren Impulsen wird ein System aus drei Schwellen-Cerenkovzählern mit Aerogel, Neo-Pentan und Freon 13 als Radiatoren eingesetzt werden. Die einzelnen Cerenkovzähler sind in kleinere Zellen unterteilt, was die Analyse von Ereignissen mit mehreren Spuren ermöglicht und außerdem die Konstruktion der optischen Elemente erleichtert. (8)

Abbildung 6: Das Hadronenspektrometer im TASSO-Detektor

Der Detektor ist im senkrechten (oben) und parallelen Schnitt (unten) zur Strahlrichtung dargestellt. Die Schwellen-Cerenkovzähler sind mit C_1, C_2 und C_3 bezeichnet, der Aerogel-Cerenkovzähler ist durch Umrandung hervorgehoben, und die Aerogel-Radiatoren sind als schwarze Blöcke dargestellt. Eine detaillierte Beschreibung des TASSO-Detektors findet man in (1).



Zur Fokussierung des Cerenkovlichts auf die Photovervielfacherröhren dienen ellipsoide Spiegel und teilweise zusätzlich Winston-Lichttüten. (9) (Abbildung 6) Über die Optik des Aerogel-Cerenkovzählers ist noch nicht entschieden worden, da der große Cerenkovwinkel von 11.4° , bei einem Brechungsindex von 1.02, und die Streuung des Lichts im Aerogel einer einwandfreien Abbildung auf die Photovervielfacherröhren entgegenstehen. (Block 3)

Block 3: Technische Daten der Schwellen-Cerenkovzähler in TASSO (1,10)

Anordnung:

Die drei Schwellen-Cerenkovzähler sind im Hadronenspektrometer zwischen den Driftkammern und den Schauerzählern so angeordnet, daß die Radiatoren mit dem höheren Brechungsindex einen geringeren Abstand zum Wechselwirkungspunkt haben. Die Hadronenspektrometerarme sollen außerhalb des Solenoids aufgebaut werden.

Positionen der Spektrometerarme:

Polarwinkel $\theta = 47^\circ - 133^\circ$

Azimutwinkel $\phi = 332^\circ - 28^\circ$ und $152^\circ - 208^\circ$

Raumwinkel = 2.66 sr

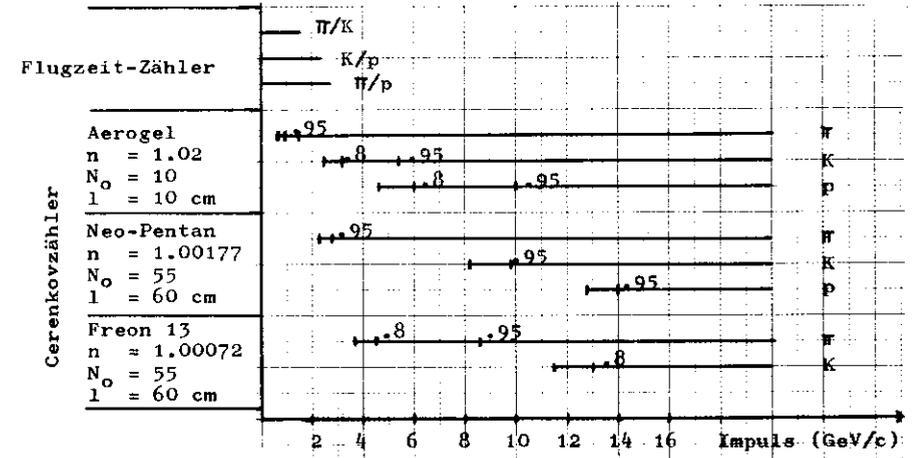
Eigenschaften der Cerenkovzähler:

Zähler	Zahl der Zellen	Radiator	Brechungsindex
C ₁	32	Aerogel	1.02
C ₂	64	Neo-Pentan (C(CH ₃) ₄) Normaldruck	1.00177
C ₃	64	Freon 13 Normaldruck	1.00072

Photovervielfacherröhren: XP 2041 (geplant)

Das System aus den drei Schwellen-Cerenkovzählern und dem Flugzeitzähler erlaubt im gesamten erwarteten Impulsbereich die Identifizierung von geladenen Pionen und, abgesehen vom Impulsintervall von 5 GeV/c bis 8 GeV/c, eine Trennung von geladenen Kaonen und Protonen. (Abbildung 7)

Abbildung 7: Teilchenidentifizierung im Hadronenspektrometer von TASSO (1)



Bei niedrigen Impulsen erfolgt eine Teilchentrennung mit Hilfe der Flugzeitzähler, bei höheren durch die Cerenkovzähler. Für die drei Cerenkovzähler sind die Schwellenimpulse und die Impulse, bei denen ein Wirkungsgrad von 80% bzw. von 95% erreicht wird, angegeben. Diese Zahlen sind aus der Länge des Radiators, seinem Brechungsindex und der Konstanten N₀ berechnet worden. N₀ enthält außer den Konstanten des Blocks 1 (Formel 3) den Wirkungsgrad der Optik und der Photovervielfacherröhre.

Um ein Bild über die Zusammensetzung der Teilchenstrahlen im Energiebereich von PETRA zu erhalten, wurden Monte-Carlo-Rechnungen durchgeführt (1), die ergaben, daß in 55% aller Fälle nur ein Teilchen jeweils eine Zelle der drei Cerenkovzähler durchquert und somit identifiziert werden kann.

III. Die Herstellung von Aerogel

Die Brechungsindizes von Gasen unter Normaldruck sind kleiner als 1.002, die von einfach zu handhabenden Flüssigkeiten und von Festkörpern sind größer als 1.3. (2) Die bleibende Lücke konnte bisher entweder durch stark komprimierte Gase oder tiefgekühlte Flüssigkeiten, wie zum Beispiel flüssigen Wasserstoff oder flüssiges Helium, geschlossen werden. Dies erforderte einen großen technischen Aufwand während des Betriebs des Cerenkovzählers und außerdem dicke Zählerwände, wodurch die Gefahr von unerwünschten Teilchenreaktionen vergrößert wurde. Auf der Suche nach einem problemloseren Cerenkov-Radiator mit einem Brechungsindex zwischen 1.01 und 1.3 stellten Linney und Peters 1972 erstmals Blöcke aus unter hohem Druck gepreßtem Quarzglas-Pulver her. Diese Radiatoren waren aber sehr zerbrechlich und wenig transparent. (11)

Die wesentlichen Probleme dieses Herstellungsverfahrens lagen darin, daß zwischen den Kieselsäure-Teilchen lediglich eine schwache Bindung hergestellt wurde, wodurch die Radiatoren sehr inhomogen waren. Deshalb entwickelten Cantin et. al. ein Herstellungsverfahren, bei dem die Vernetzung der Kieselsäure durch chemische Bindungen erreicht wird. Auf diese Weise können wesentlich homogenere Cerenkov-Radiatoren, die Siliziumdioxid-Aerogele, mit einem Brechungsindex zwischen 1.01 und 1.06 hergestellt werden, die bessere mechanische und optische Eigenschaften haben als die gepreßten Radiatoren. (11,12)

Aufbauend auf diesem Herstellungsverfahren haben wir uns bemüht, die optischen und mechanischen Eigenschaften des Aerogels weiter zu verbessern.

Ziel dieser Arbeit war es, ein Verfahren zu entwickeln, nach dem Aerogel mit hoher Transparenz und ohne Risse reproduzierbar hergestellt werden kann. Dabei lag das Interesse entsprechend den für den TASSO-Detektor gestellten Anforderungen vorwiegend bei einem Brechungsindex des Aerogels von 1.02.

III.1 Beschreibung des Herstellungsverfahrens

Das Herstellungsverfahren nach Cantin besteht im wesentlichen aus zwei Schritten. Im ersten wird aus einem Ester der Kieselsäure durch Hydrolyse ein Alkogel hergestellt. Damit der Ester mit dem zur Hydrolyse notwendigen Wasser vermischt werden kann, muß ihm ein Lösungsmittel, wie beispielsweise Methanol, beigemischt werden. Von Bedeutung ist, daß sich über die Menge des Lösungsmittels die Dichte des späteren Aerogels und damit sein Brechungsindex variieren läßt.

Im zweiten Schritt des Herstellungsverfahrens wird das Lösungsmittel dem Alkogel wieder entzogen - es entsteht das Aerogel. Dazu erhitzt man die mit dem Lösungsmittel bedeckten Alkogele in einem Autoklaven unter genügend hohem Druck, bis der kritische Punkt des Lösungsmittels überschritten wird. Danach läßt man es bei konstanter Temperatur entweichen und kühlt anschließend die Proben ab. (11)

Diese Arbeit konzentriert sich auf den ersten Schritt des Herstellungsverfahrens, die Alkogel-Herstellung. Es sollte versucht werden, durch Variationen des von Cantin et. al. entwickelten Verfahrens die Qualität des Aerogels zu verbessern. Der zweite Schritt, der Entzug des Lösungsmittels aus dem Alkogel, wurde im Rahmen dieser Arbeit nur wenig untersucht und im wesentlichen übernommen.

III.1a Die Herstellung des Alkogels

Zur Herstellung eines Gels, eines Festkörpers sehr poröser Struktur, eignet sich vor allem die flüssige Kieselsäure. Wegen ihrer Unbeständigkeit polymerisiert sie sehr leicht und kondensiert zu amorphem Siliziumdioxid in Form kolloidaler Teilchen oder eines Gels (13). Als Kieselsäureträger bieten sich, wegen ihrer hohen Siliziumdioxid-Konzentration, die Ester der Kieselsäure an, die im Gegensatz zur Kieselsäure chemisch stabil, außerdem leicht zu handhaben und hydrolytisch spaltbar sind (14).

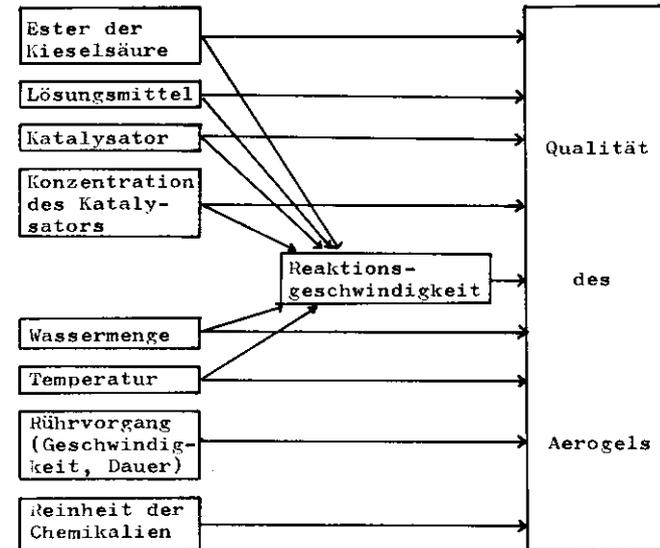
Nach dem Herstellungsverfahren von Cantin vermischt man zunächst einen Ester der ortho-Kieselsäure mit einem Lösungsmittel und gibt dann soviel Wasser hinzu, daß alle Alkylgruppen der Estermoleküle hydrolysiert werden, daß heißt der Ester vollständig in Kieselsäure umgewandelt wird. Im allgemeinen muß das Wasser mit einem basischen oder sauren Katalysator angereichert sein. Nach erfolgter Hydrolyse vernetzen sich die Kieselsäure-Moleküle sofort und bilden amorphe Siliziumdioxid-Kügelchen, die sich zu einem Gerüst zusammenlagern, in dem das Lösungsmittel gespeichert ist. Diese Struktur nennt man Alkogel. Bereits dieser erste Schritt des Herstellungsverfahrens hat einen großen Einfluß auf die Qualität des Aerogels; wichtige Parameter sind insbesondere die Wahl des Kieselsäure-Esters und des Lösungsmittels. (Block 4)

Im folgenden Abschnitt sind die einzelnen Reaktionsschritte, die zur Gelbildung führen, genauer dargestellt.

Die Hydrolyse des Esters erfolgt exotherm durch die Aufspaltung ihrer Si-OR - Bindung (R = organisches Radikal), wenn man dem Ester

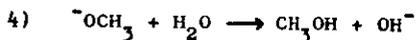
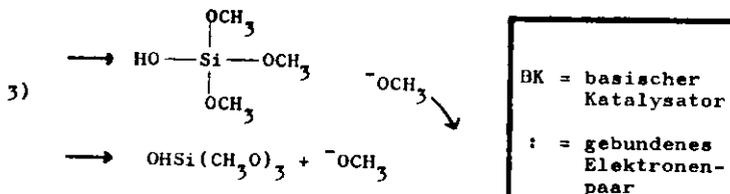
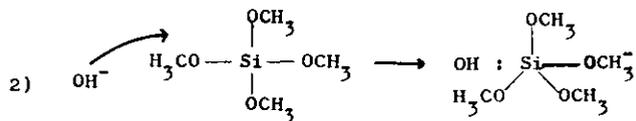
Block 4: Parameter der Alkogelherstellung, die die Qualität des Aerogels beeinflussen

In der Abbildung sind die wesentlichen Parameter dargestellt, deren Einfluß auf die Aerogelqualität zu untersuchen sind. Die große Anzahl verschiedener Parameter kompliziert die Analyse der Versuchsergebnisse und macht langwierige Versuchsreihen erforderlich.



mit einem Katalysator angereichertes Wasser zugebt. Neben der Katalysator-Konzentration bestimmen in basischen Lösungen die Größe der Alkylgruppen des Esters und die Dielektrizitätskonstante des Lösungsmittels die Reaktionsgeschwindigkeit. Daraus läßt sich schließen (13,15), daß die höhere Wertigkeit des Siliziums von 6 für kleine, einfach geladene Anionen (OH⁻, F⁻) gegenüber 4 für größere Molekülgruppen

Abbildung 8: Hydrolyse des Methylesters der ortho-Kieselsäure in basischen Lösungen (13,15)



In basischen Lösungen wird ein Proton des Wassers dem basischen Katalysator BK angelagert (1). Das frei OH^- -Ion lagert sich in einer 5. Bindung an das Silizium-Atom des Esters an (2), wodurch eine Alkylgruppe abgespalten wird (3). Durch Dissoziation eines Wassermoleküls wird sie schließlich neutralisiert und es entsteht ein neues OH^- -Ion (4).

(zum Beispiel Alkylgruppen) entscheidend ist. Daher kann ein OH^- -Ion in einer weiteren kovalenten Bindung an das Silizium angelagert werden (Abbildung 8).

Zur Gelbildung ist die vollständige Hydrolyse des Esters notwendig. Die dazu benötigte Wassermenge ist leicht berechenbar, wenn man beachtet, daß bei der anschließenden Dehydrierung wieder Wasser freigesetzt wird, das ebenfalls zur Hydrolyse beiträgt. (Block 5)

Block 5: Minimale Wassermenge zur vollständigen Hydrolyse eines Kieselsäure-Esters

Die benötigte Wassermenge ist im wesentlichen durch die Zahl der hydrolysierbaren Gruppen des Esters und durch sein Molekulargewicht bestimmt. Es ist zu berücksichtigen, daß bei der anschließenden Dehydrierung wieder Wasser freigesetzt wird, das ebenfalls zur Hydrolyse beiträgt.

Zahl N_W der Wassermoleküle, die pro Estermolekül zur vollständigen Hydrolyse benötigt werden:

$$N_W = N_H - N_D \quad (1)$$

N_H = Zahl der Wassermoleküle, die zur vollständigen Hydrolyse eines Estermoleküls benötigt werden.

N_D = Zahl der Wassermoleküle, die pro Estermolekül bei der anschließenden Dehydrierung wieder freigesetzt werden.

Minimales Massenverhältnis $m(\text{Ester})/m(\text{Wasser})$ zur vollständigen Hydrolyse:

$$\frac{m(\text{Ester})}{m(\text{Wasser})} = \frac{M(\text{Ester})}{M(\text{Wasser}) \cdot N_W} \quad (2)$$

M = Molekulargewicht

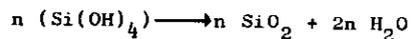
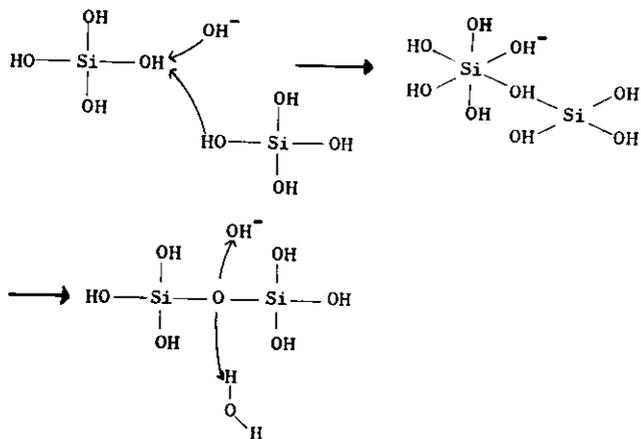
Minimales Volumenverhältnis $V(\text{Ester})/V(\text{Wasser})$ zur vollständigen Hydrolyse:

$$\frac{V(\text{Ester})}{V(\text{Wasser})} = \frac{m(\text{Ester})}{m(\text{Wasser})} \cdot \frac{\rho(\text{Wasser})}{\rho(\text{Ester})} \quad (3)$$

ρ = Dichte

Die durch Hydrolyse gebildete Kieselsäure dehydriert sofort, daß heißt sie polymerisiert über Siloxan- (Si-O-Si) Bindungen, wobei Wasser abgespalten wird. Dieser Prozeß wird ebenfalls durch OH⁻-Ionen katalysiert (13) (Abbildung 9).

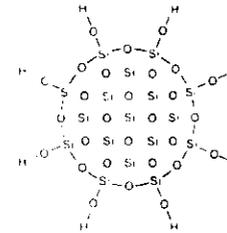
Abbildung 9: Dehydrierung der ortho-Kieselsäure (13)



Die Dehydrierung der ortho-Kieselsäure erfolgt unmittelbar nach ihrer Bildung. Mit Hilfe eines OH⁻-Ions als Katalysator binden sich dabei zwei Silanol- (SiOH) Gruppen, indem sie ein Wassermolekül abspalten; es entsteht eine Siloxan- (Si-O-Si) Bindung. Die Bilanz der Reaktion bei einer vollständigen Dehydrierung, daß heißt bei der Bildung eines Siliziumdioxid-Gerüsts, ist unter der Abbildung angegeben.

Da die Polymerisation der Kieselsäure richtungsunabhängig ist, bilden sich kugelförmige Primärteilchen (Abbildung 10), die im Inneren aus amorphem Siliziumdioxid bestehen und an ihrer Oberfläche Silanol-Gruppen tragen. Die Größe dieser Teilchen, die je nach dem Herstellungsverfahren zwischen 3 nm und 30 nm liegt (13,16), ist für die von uns hergestellten Aerogelproben noch nicht gemessen worden.

Abbildung 10: Primärteilchen bei der Gelbildung (16)



Die Primärteilchen der vernetzten Kieselsäure bestehen im Inneren aus Siliziumdioxid. An ihrer Oberfläche befinden sich reaktionsfähige Silanol- (SiOH) Gruppen.

Wenn die Konzentration der Primärteilchen im Gemisch zunimmt, lagern sie sich über Siloxan-Bindungen zusammen. Die Geschwindigkeit der Zusammenlagerung hängt außer von der Siliziumkonzentration besonders von der Konzentration der OH⁻-Ionen und der negativen Ladung der Primärteilchen ab, die die katalysierende Wirkung der OH⁻-Ionen begrenzt. Die Ladung der Primärteilchen wird durch den pH-Wert der Lösung bestimmt. Weiterhin wird sie bei polaren Lösungsmitteln teilweise abgeschirmt. Dies hat zur Folge, daß die Polymerisationszeit mit wachsender Dielektrizitätskonstante des Lösungsmittels zunimmt (13); die Dielektrizitätskonstante ruft also genau den umgekehrten Effekt wie bei der Hydrolyse hervor. Die Menge des Lösungsmittels bestimmt die Struktur des entstehenden Gerüsts und damit den späteren Brechungsindex des Aerogels (Block 6):

Block 6: Die Abhängigkeit des Brechungsindex des Aerogels vom Mischungsverhältnis des Alkogel-Ansatzes

Der Brechungsindex n des Aerogels setzt sich aus dem der Luft und dem der Siliziumdioxid-Teilchen zusammen, er wird durch die jeweilige gesamte Weglänge des Lichts durch diese beiden Medien bestimmt. Damit hängt er vom Volumenverhältnis des Siliziumdioxids zur Luft im Aerogel ab, bzw. dem des Siliziumdioxids zum Gesamtvolumen:

$$n(\text{Aerogel}) - 1 = \frac{V(\text{SiO}_2)}{V(\text{total})} (n(\text{SiO}_2) - 1) \quad (1)$$

V = Volumen
 n = Brechungsindex

Das Siliziumdioxid-Volumen ist mit dem des Kieselsäure-Esters im Alkogel-Ansatz verknüpft. Setzt man voraus, daß das Volumen des Aerogels gleich der Summe der Einzelvolumina der Bestandteile des Alkogel-Ansatzes ist, gilt für ihr Volumenverhältnis k_E :*

$$k_E = \frac{D}{V(\text{Ester})} \frac{V(\text{SiO}_2)}{V(\text{Ester})} = \frac{\rho(\text{Ester})}{\rho(\text{SiO}_2)} \frac{M(\text{SiO}_2)}{M(\text{Ester})} \quad (2)$$

ρ = Dichte
 M = Molekulargewicht

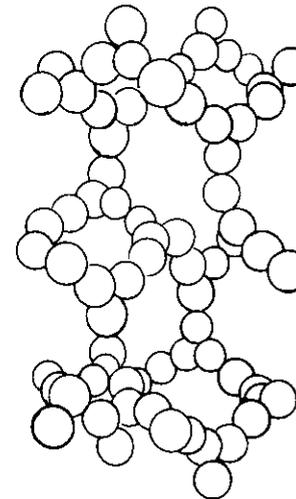
Damit erhält man den gesuchten Zusammenhang zwischen dem Brechungsindex n des Aerogels und dem Verhältnis vom Ester- zum Gesamtvolumen im Alkogel-Ansatz:

$$n(\text{Aerogel}) - 1 = k_E (n(\text{SiO}_2) - 1) \frac{V(\text{Ester})}{V(\text{total})} \quad (3)$$

*Experimentell findet man beim Ansatz des Alkogels einen Volumenschwund von 15% bis 20%, der in diesen Formeln nicht berücksichtigt ist.

Je poröser das Gel ist, desto weniger nächste Nachbarn besitzen die Kügelchen, wobei die Koordinationszahl (Zahl der nächsten Nachbarn) der von uns hergestellten Aerogele etwa 3 ist. Sie ist eng verknüpft mit der Porengröße, die in der gleichen Größenordnung wie die Größe der Primärteilchen liegt. (13) (Abbildung 11)

Abbildung 11: Die Struktur des Gels (13)



Die Größe der Poren und die Koordinationszahl der Primärteilchen im Gel werden durch die Menge des Lösungsmittels beeinflusst. Hier ist die Struktur eines sehr lockeren Gels (Koordinationszahl ≈ 3) dargestellt, was etwa der Struktur des von uns hergestellten Aerogels entspricht.

Nach der Bildung des Gels existieren weiterhin freie Kügelchen. Der Kondensationsprozeß ist also erst einige Zeit, nachdem der Ansatz fest geworden ist, abgeschlossen (13). Einige Daten des Alkogels sind im Block 7 zusammengefaßt.

Einen störenden Einfluß auf die Kondensation der Kieselsäure kann das zur Hydrolyse zunächst notwendige Wasser ausüben. Mit ihren Silanol-Gruppen können die Primärteilchen Wasser absorbieren, wodurch ihre Reaktionsfähigkeit eingeschränkt wird (13,16) (Abbildung 12).

Block 7: Eigenschaften des Alkogels (13)

Primärteilchen

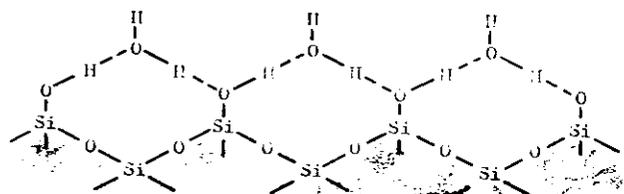
Zusammensetzung: amorphes Siliziumdioxid
 Radius: 1.5 nm - 15 nm
 Dichte: 2.2 g/cm³
 Brechungsindex: 1.45

Gelstruktur

Koordinationszahl der Teilchen	Volumenausfüllung der Teilchen	Porenradius / Teilchenradius
3	.056 - .185	-
4	.123 - .338	1.27
6	.5236	.72
12	.7405	-

Die Koordinationszahl 12 entspricht der dichtesten Kugelpackung

Abbildung 12: Die Absorption von Wasser durch die Silanol-Gruppen (16)



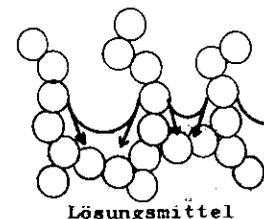
-- Wasserstoff-Brücken

Durch Wasserstoff-Brücken können bei großer Dichte der Silanol-Gruppen Wassermoleküle an die Primärteilchen angelagert werden. Ihre Kondensationsfähigkeit ist dann sehr stark eingeschränkt.

III.1b Der Entzug des Lösungsmittels aus dem Alkogel

Um aus dem hergestellten Alkogel einen Cerenkov-Radiator zu erhalten, dessen Brechungsindex im gewünschten Bereich von 1.01 bis 1.06 liegt, muß ihm das Lösungsmittel entzogen werden. Die Verdunstung des Lösungsmittels aus dem Alkogel, als zunächst einfachste denkbare Möglichkeit, erweist sich als ungeeignet. Während der schrittweisen Verdunstung wandert die Flüssigkeitsoberfläche durch das Alkogel hindurch, wobei sich dessen Gerüststruktur teilweise innerhalb der Flüssigkeits- und teilweise innerhalb der Dampfphase des Lösungsmittels befindet. Aufgrund der geringen Porengröße verursacht die Oberflächenspannung des Lösungsmittels so große Kräfte auf das Gelgerüst, daß die Gerüststruktur zerstört wird. (13) (s. Abb. 13)

Abbildung 13: Die Verdunstung des Lösungsmittels im Alkogel

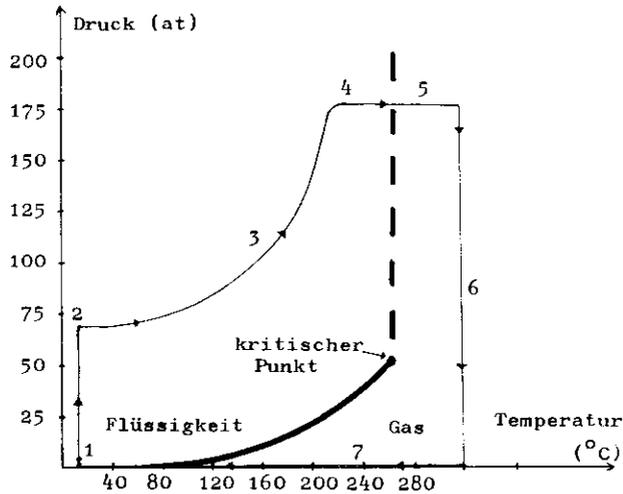


Lösungsmittel

Wenn das Lösungsmittel verdunstet, wandert die Flüssigkeitsoberfläche durch das Gelgerüst hindurch. Die wegen der Oberflächenspannung auf das Gerüst wirkenden Kräfte sind durch die Pfeile angedeutet. Sie sind so groß, daß das Gerüst zerstört wird. Zum Beispiel reichen die Kapillarkräfte aus, um eine Flüssigkeit im Aerogel einige Kilometer hoch steigen zu lassen (13).

Der Übergang von der Flüssigkeits- zur Dampfphase des Lösungsmittels muß also im gesamten Alkogel gleichzeitig geschehen; danach ist es relativ unproblematisch, das gasförmige Lösungsmittel gegen ein anderes Gas, wie zum Beispiel Luft, auszutauschen. Diese Bedingung ist nur erfüllbar, wenn man innerhalb des Phasendiagramms um den kritischen Punkt herumgeht. (Abbildung 14)

Abbildung 14: Schematischer Druck-Temperatur-Verlauf im Autoklaven



- Dampfdruck-Kurve von Propanol
- - - Flüssigkeits-Gas-Grenze bei der kritischen Temperatur
- Temperatur-Druck-Verlauf im Autoklaven

Der Druck-Temperatur-Verlauf einer Versuchsreihe im Autoklaven ist schematisch im Phasendiagramm des Lösungsmittels Propanol dargestellt. Der Herstellungszyklus beginnt bei Normaldruck und Raumtemperatur (1). Zunächst wird der Druck auf 50 at bis 100 at erhöht (2), man befindet sich damit von vorneherein über dem kritischen Druck des Lösungsmittels. Erst danach beginnt der Heizprozeß (3); der Druck im Autoklaven steigt dabei gemäß der Zustandsgleichung an (siehe Block 8) und man muß unter Umständen in der letzten Phase des Heizprozesses den Druck mit Hilfe des Ablaufventils konstant halten, damit der Betriebsdruck des Autoklaven nicht überschritten wird (4). Nach dem Überschreiten der kritischen Temperatur befindet sich das Lösungsmittel in der Gasphase (5) und es wird isotherm expandiert (6), daß heißt dem Gel entzogen. Danach wird das Gel wieder auf Zimmertemperatur abgekühlt (7).

Block 8: Flüssigkeits- und Dampfphasen (17, 18)

Ein reales Gas ist durch die Zustandsgleichung beschrieben, die die Zustandsgrößen Druck p , Volumen V und Temperatur T zueinander in Beziehung setzt. Ihre allgemeinste Form lautet:

$$p = \frac{1}{V} \left(RT + \frac{A_1}{V} + \frac{A_2}{V^2} + \dots \right) \quad (1)$$

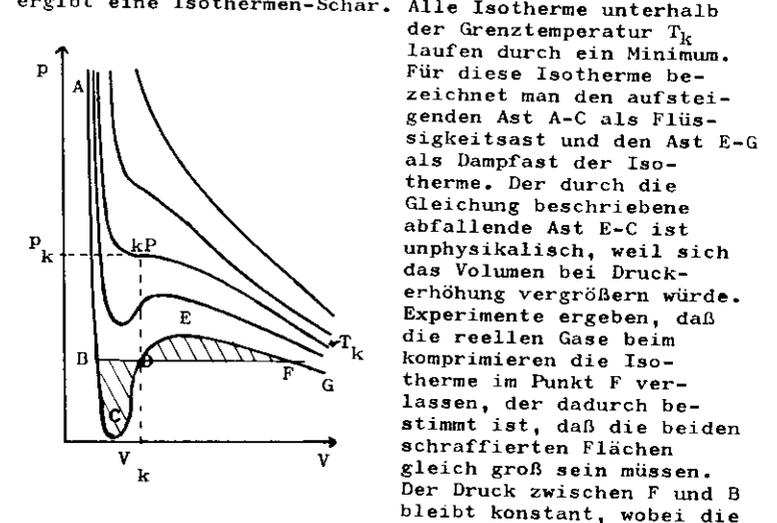
R = Gaskonstante
 A_i = Entwicklungskoeffizienten der Zustandsgleichung (Virialkoeffizienten)

Eine erste Näherung dieser allgemeinen Zustandsgleichung ist die Van-der-Waals-Gleichung:

$$p = \frac{RT}{V-b} - \frac{a}{V^2} \quad (2)$$

a, b = Van-der-Waals-Konstanten (empirisch zu ermittelnde Stoffkonstanten)

Die graphische Darstellung der Van-der-Waals-Gleichung ergibt eine Isothermen-Schar.



Alle Isotherme unterhalb der Grenztemperatur T_k laufen durch ein Minimum. Für diese Isotherme bezeichnet man den aufsteigenden Ast A-C als Flüssigkeitsast und den Ast E-G als Dampfast der Isotherme. Der durch die Gleichung beschriebene abfallende Ast E-C ist unphysikalisch, weil sich das Volumen bei Druckerhöhung vergrößern würde. Experimente ergeben, daß die realen Gase beim komprimieren die Isotherme im Punkt F verlassen, der dadurch bestimmt ist, daß die beiden schraffierten Flächen gleich groß sein müssen. Der Druck zwischen F und B bleibt konstant, wobei die

Gase kondensieren; diesen, von der Temperatur abhängigen Druck nennt man den Dampfdruck. Bei B liegt dann eine reine Flüssigkeit vor. Die Van-der-Waals-Gleichung beschreibt die Flüssigkeits- und die Dampfphase, versagt aber, wenn Gase und Flüssigkeiten nebeneinander vorliegen. Für alle Isotherme oberhalb der Grenztemperatur T_k existiert keine Flüssigkeitsphase. Die Temperatur T_k nennt man die kritische Temperatur, den Sattelpunkt dieser Isothermen den kritischen Punkt (kP) mit dem kritischen Druck p_k und dem kritischen Volumen V_k .

Man erhitzt also das vollständig mit Lösungsmittel bedeckte Alkogel unter ausreichend hohem Druck, bis sowohl der kritische Druck als auch die kritische Temperatur des Lösungsmittels überschritten werden. Dabei wird die Phasentrennung schlagartig aufgehoben, das gesamte Lösungsmittel befindet sich im Zustand eines realen Gases. Durch anschließende, isotherme Expansion wird das Lösungsmittel dem Alkogel langsam entzogen, wobei die Temperatur ständig größer als die kritische Temperatur des Lösungsmittels sein muß. Andernfalls würde das Lösungsmittel im Alkogel kondensieren, was, wie die Verdunstung, die Gerüststruktur zerstören würde. (siehe Block 8)

Die von uns eingesetzten Lösungsmittel haben kritische Drücke um 50 at und kritische Temperaturen um 250 °C. Die Herstellung des Aerogels erfordert also einen Druckkessel (Autoklav), der mit einer Heizung ausgerüstet ist. Der von uns benutzte Autoklav hat ein Volumen von 5 l und ist für Betriebsdrücke bis zu 330 at und Betriebstemperaturen bis zu 400 °C ausgelegt. (Block 9)

Block 9: Die technischen Daten des Autoklavs *

Inhalt:	5 l
Durchmesser (innen):	82 mm
Maximaler Betriebsdruck:	330 at
Maximaler Prüfdruck:	430 at
Maximale Betriebstemperatur:	400 °C
Dichtung:	Aluminium-Ringe

Der Heizvorgang des Autoklavs wird über einen Vergleichswiderstand gesteuert. Dieser Widerstand, der über einen Rampengenerator linear mit der Zeit bis zu einem Maximalwiderstand wächst, wird über eine

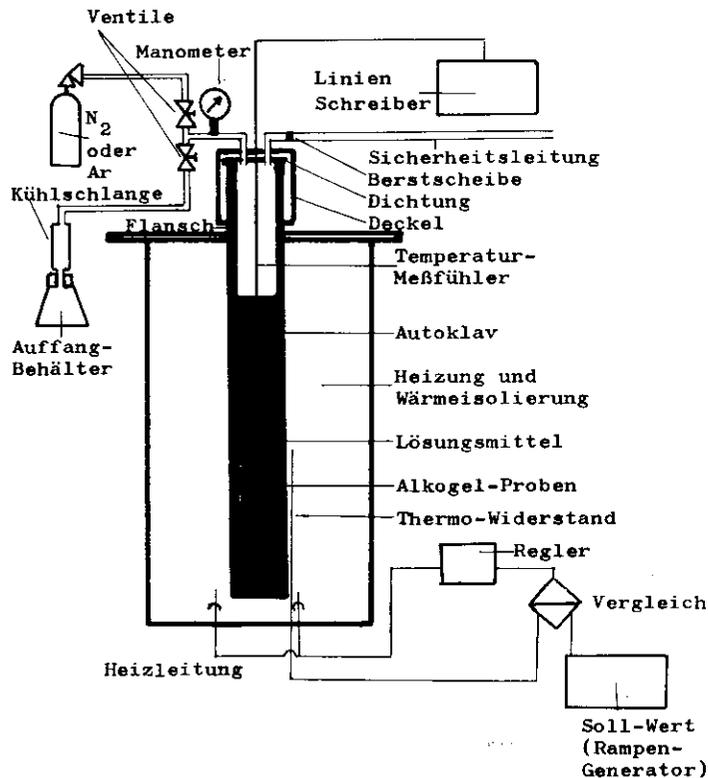
* Der Autoklav wurde uns freundlicherweise von der BASF, Ludwigshafen zur Verfügung gestellt.

Wheatstonesche Brücke mit dem Widerstand des Thermoelements im Heizmantel des Autoklavs verglichen. Ist die Temperatur im Heizmantel kleiner als ihr Soll-Wert, wird die Heizung über ein Relais eingeschaltet. Die Temperatur im Autoklav wird durch einen Thermofühler gemessen und der zeitliche Verlauf mit einem Linienschreiber aufgezeichnet; der Druck wird an einem Manometer angezeigt. Der Vergleichswiderstand behält nach Beendigung des Heizvorgangs seinen Maximalwert, was dazu ausgenutzt wird, die Temperatur im Autoklav während der Expansion konstant, größer als die kritische Temperatur des Lösungsmittels zu halten.

Der Entzug des Lösungsmittels (Expansion) geschieht über eines der Nadelventile des Autoklavs. Der Dampf wird in einer Kühlschlange kondensiert und in einem Gefäß aufgefangen. Ist schließlich im Autoklav Atmosphärendruck erreicht worden, wird dem Gel das restliche Lösungsmittel durch Spülung mit Stickstoff oder Argon entzogen, was außerdem die Abkühlung des Aerogels etwas beschleunigt (Abbildung 15).

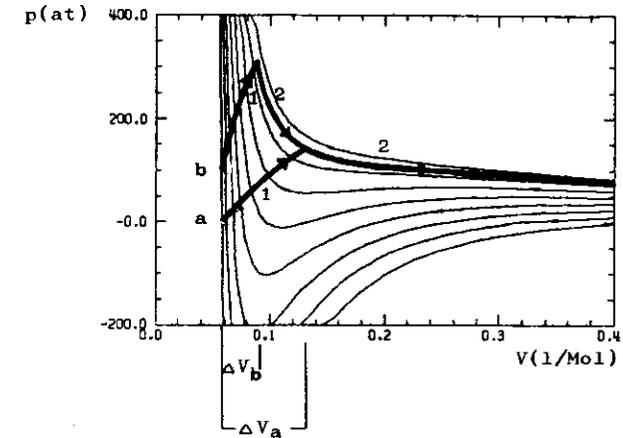
Die mit dem Heizprozeß bedingte Volumenausdehnung des Lösungsmittels und der entstehende Temperaturgradient im Autoklav verursachen Strömungsvorgänge im Alkogel, die über lokale Zerstörungen der Gerüststruktur zur Bildung von Sprüngen und Rissen führen können. Um diese Strömungen möglichst einzuschränken, ist es notwendig, den Autoklav sehr langsam hochzuheizen. Da außerdem nach der Zustandsgleichung

Abbildung 15: Der schematische Aufbau zum Entzug des Lösungsmittels



Das zentrale Instrument zum Lösungsmittel-Entzug ist der Autoklav mit der Heizvorrichtung, mit dessen Hilfe der kritische Punkt des Lösungsmittels überschritten wird. Die Aufheizung des Autoklavs wird über einen Thermowiderstand, einen Rampengenerator, der einen zeitabhängigen Soll-Widerstand liefert, und ein Vergleichsinstrument mit einer Wheatstoneschen Brücke gesteuert. Die Temperatur im Autoklav wird mit einem Temperatur-Meßfühler gemessen und mit einem Linienschreiber registriert. Die Rohrschlüsse dienen zur Herstellung eines Vordrucks im Autoklav und zum Ablassen des Lösungsmittels in der Expansionsphase, das über eine Kühlschlange aufgefangen wird. Ferner besitzt der Autoklav eine Sicherheitsleitung mit einer Berstscheibe, die bei Drücken von über 300 at zerstört wird.

Abbildung 16: Die Volumenänderung des Lösungsmittels im Autoklav



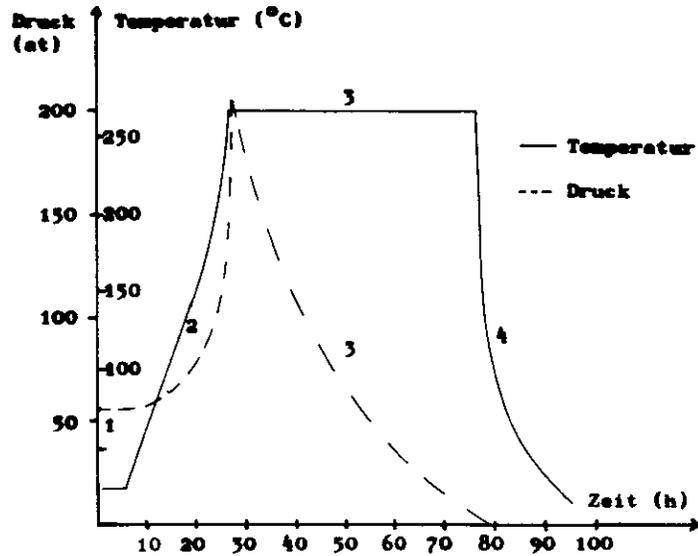
Im Druck-Volumen-Diagramm sind die Isotherme der Zustandsgleichung* für das Lösungsmittel Methanol dargestellt (vergleiche Block 8) und der schematische Verlauf der Heiz- (1) und Expansionsphase (2) des Autoklavs mit niedrigem (a) und hohem Vordruck (b) eingetragen. Man sieht deutlich, daß bei großen Vordrücken die Volumenänderung des Lösungsmittels während des Heizprozesses wesentlich geringer ist als bei niedrigen Vordrücken. Dies bedeutet, daß es zur Vermeidung von starken Strömungen und der damit verbundenen Reißbildung im Gel günstiger ist, den Heizprozeß unter möglichst hohem Druck durchzuführen.

die Volumenänderung bei hohen Drücken geringer ist als bei niedrigen, ist es zweckmäßig, den Heizvorgang nicht mit Atmosphären-, sondern mit einem größeren Vordruck zu beginnen. (Abbildung 16)

Bei unseren Versuchen haben sich Heizdauern zwischen 8 und 20 Stunden sowie Vordrücke zwischen 50 at und 100 at (Stickstoff oder Argon) bewährt, was zu maximalen Drücken im Autoklav von 200 at bis 280 at führte.

* Die Isotherme wurden von G. Poelz (DESY, F35) nach einer Näherung der Virial-Gleichung durchgeführt, die sich etwas von der Van-der-Waals-Gleichung unterscheidet und das Verhalten realer Stoffe besser beschreibt.

Abbildung 17: Die Arbeitsphasen im Autoklav



In der Abbildung ist der Druck- und der Temperaturverlauf der einzelnen Arbeitsphasen des Lösungsmittel-Entzugs im Autoklav dargestellt. Die Zeitskala gibt die Werte einer unserer Versuchsreihen an. In der Phase 1 wird der Autoklav mit einem Vordruck auf seine Dichtigkeit überprüft. Beim Heizprozeß (2) steigt die Temperatur annähernd linear. Während der Expansionsphase (3), in der das Lösungsmittel dem Gel entzogen wird, bleibt die Temperatur konstant. Erst wenn der Druck im Autoklav auf Atmosphärendruck gesunken ist, wird er abgekühlt (4).

Eine weitere Gefahr der Zerstörung der Gelstruktur tritt in der Expansionsphase, also während des Lösungsmittel-Entzugs auf. Das durch die Expansion entstehende Druckgefälle führt zu Strömungen des Lösungsmittel-Dampfes im Gel, die ebenfalls möglichst gering und gleichmäßig sein sollten. Dies ist relativ

einfach durch das Ablaßventil des Autoklaven regelbar; die einzige auftretende Schwierigkeit ist damit verbunden, daß das Ventil manuell geregelt werden muß, was bei unvorsichtiger Handhabung leicht zu plötzlichen Druckabfällen im Autoklav führen kann. Wir haben mit Expansionszeiten zwischen 10 und 24 Stunden gute Erfahrungen gemacht, dies entspricht einem mittleren Durchsatz des Lösungsmittels von etwa .1 ml/sec. (Abbildung 17)

III.2 Die experimentellen Ergebnisse

Zur Herstellung des Aerogels benutzte Cantin als Kieselsäureträger den Methylester der ortho-Kieselsäure, Methanol als Lösungsmittel und Ammoniak als Katalysator (11). Da die Qualität der so hergestellten Radiatoren zunächst nicht zufriedenstellend war, wurde untersucht, ob weitere Kieselsäure-Ester, Lösungsmittel und Katalysatoren zur Aerogelherstellung geeignet sind. Die Eigenschaften der benutzten Chemikalien sind in den Tabellen 2 zusammengefaßt.

Der Silizium-Aluminium-Ester besitzt eine wesentlich komplexere Struktur als die beiden Ester der ortho-Kieselsäure, die sich nur in der Größe der Alkylgruppen voneinander unterscheiden. Diese Merkmale beeinflussen die Gelbildung wesentlich und sind entscheidend für die Eignung des Esters zur Aerogelherstellung. (Tabelle 2a)

Die wichtigsten Daten der Lösungsmittel sind der kritische Punkt, der mit den Betriebsdaten des Autoklavs verträglich sein muß, und ihre Dielektrizitätskonstante, die die Hydrolyse-Geschwindigkeit und die Kondensation der Kieselsäure beeinflusst. Der unterschiedliche Brechungsindex erschwert den Transparenzvergleich zwischen den Alkogelen verschiedener Lösungsmittel, da das Streuvermögen unter anderem von der Differenz des Brechungsindex zwischen dem Streukörper und dem umgebenden Medium abhängt. Die Wahl des Lösungsmittels ist ebenfalls für die Eigenschaften des Aerogels entscheidend. (Tabelle 2b)

Auf der Suche nach geeigneten Katalysatoren interessierte uns zunächst ihr kritischer Punkt. Da der kritische Punkt eines Gemisches schwer zu berechnen ist, waren wir an Katalysatoren interessiert, deren kritischer Druck und

Tabelle 2a: Ester der Kieselsäure (19)

	Summenformel	Strukturformel	Molekulargewicht*	Dichte bei 20° C (g/cm ³)	SiO ₂ -Gehalt (%)
Si-Al-Ester	(C ₂ H ₅ O) ₅ SiOAl(OC ₄ H ₉ sek) ₂	$ \begin{array}{c} \text{C}_2\text{H}_5\text{O} \\ \diagdown \\ \text{C}_2\text{H}_5\text{O}-\text{Si}-\text{O}-\text{Al} \\ \diagup \\ \text{C}_2\text{H}_5\text{O} \end{array} \begin{array}{c} \diagup \\ \text{OC}_4\text{H}_9\text{sek} \\ \diagdown \\ \text{OC}_4\text{H}_9\text{sek} \end{array} $	352.48	.95 - 1.05	-
Methylester (Dynasil M)	(CH ₃ O) ₄ Si	$ \begin{array}{c} \text{OCH}_3 \\ \\ \text{CH}_3\text{O}-\text{Si}-\text{OCH}_3 \\ \\ \text{OCH}_3 \end{array} $	152.1	1.034	39.5
Athylester (Dynasil A)	(C ₂ H ₅ O) ₄ Si	$ \begin{array}{c} \text{OC}_2\text{H}_5 \\ \\ \text{C}_2\text{H}_5\text{O}-\text{Si}-\text{OC}_2\text{H}_5 \\ \\ \text{OC}_2\text{H}_5 \end{array} $	208.1	.933	28.8

Chemikalien der Dynamit Nobel, Troisdorf; Warenzeichen in Klammern.

Die Formeln des Si-Al-Esters geben nur Durchschnittswerte an.

Der Methylester Dynasil M kann als Flüssigkeit oder als Dampf die Hornhaut verletzen und zur Erblindung führen. Es sind daher beim Umgang mit diesem Ester unbedingt eine gasdichte Schutzbrille, Gummihandschuhe und eine gute Ventilation (Abzug) erforderlich.

Tabelle 2b: Lösungsmittel zur Alkogel-Herstellung (20,21)

	Summenformel	Molekulargewicht	kritischer Druck (at)	kritische Temperatur (°C)	Dielektrizitätskonstante ε (bei 25 °C)	Brechungsindex n
Methanol	CH ₃ OH	32.04	78.5	240.	32.63	1.5288
Azeton	CH ₃ COCH ₃	58.08	47.	235.5	20.7	1.3588
Propanol	C ₃ H ₇ OH	60.11	50.9	265.6	20.1	1.3850
Isopropanol	C ₃ H ₇ OH	60.11	47.	235.	18.3	1.3776
Isobutanol	C ₄ H ₉ OH	74.12	41.4	263.	15.8	1.3954
Wasser	H ₂ O	18.01	218.3	374.2	78.3	1.333

Chemikalien: Merck, Darmstadt; p.A.

kritische Temperatur etwa den Werten der Lösungsmittel entspricht. Unter diesem Gesichtspunkt erschienen uns von den basischen Katalysatoren die Amine am geeignetsten zu sein. Die sauren Katalysatoren wurden getrennt untersucht und werden in dieser Arbeit nicht näher beschrieben (23).

Tabelle 2c: Katalysatoren zur Hydrolyse der Kieselsäure-Ester (20,22)

	Summenformel	Molekulargewicht	kritischer Druck (at)	kritische Temperatur (°C)	Reinheit (%)
Ammoniak	NH ₃	17.03	112.5	132.5	99.999
Triäthanolamin	C ₆ H ₁₅ NO ₃	149.19	30.	258.9	99.995
2-Dimethylamino-Äthanol	C ₄ H ₁₁ NO	89.14	36.6	223.3	98.
Essigsäure	CH ₃ COOH	60.05	57.1	321.6	99.9999
Salzsäure	HCl	36.46	82.1	51.4	99.999

Chemikalien: Merck, Darmstadt.

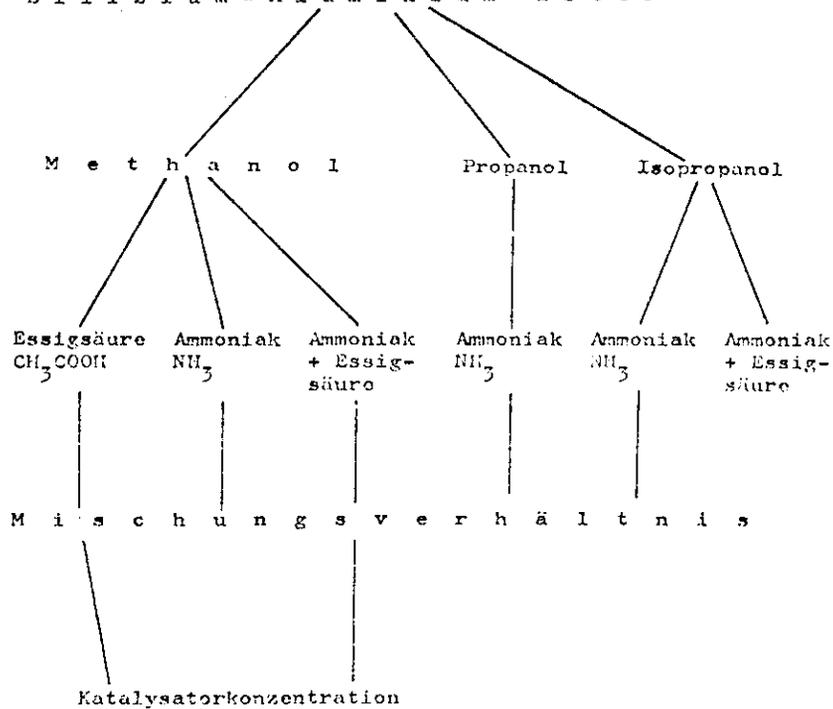
In den Experimenten wurden unterschiedliche Mischungsverhältnisse untersucht, wobei insbesondere die Wassermenge und Katalysatorkonzentration variiert wurden. Der Einfluß der bei der Gelbildung herrschenden Temperatur und der Zeitspanne zwischen abgeschlossener Gelbildung und beginnendem Entzug des Lösungsmittels (Nachreaktionsphase) wurde ebenfalls beobachtet (Abbildung 19).

In fast allen Versuchen wurde mit dem Volumenverhältnis des Esters zum Lösungsmittel gearbeitet, das einem Brechungsindex des Aerogels von etwa 1.02 entspricht. Kleinere Variationen im Brechungsindex waren durch unterschiedliche Wassermengen bedingt. (Abbildung 20)

Abbildung 19: Übersicht der durchgeführten Versuche

Die Schematik dieser zwei Seiten gibt eine Übersicht der durchgeführten Versuche. Aus den drei zur Verfügung stehende Estern der Kieselsäure wurden Alkogeale mit verschiedenen Lösungsmitteln und Katalysatoren hergestellt. Bei vielversprechenden Ansätzen wurde versucht, die Qualität der Alkogeale, bzw. die der Aerogeale, durch Variation des Mischungsverhältnisses und der Katalysatorkonzentration zu verbessern.

19a) Silizium-Aluminium-Ester



19b)

Äthylester der ortho-Kieselsäure
D y n a s i l A

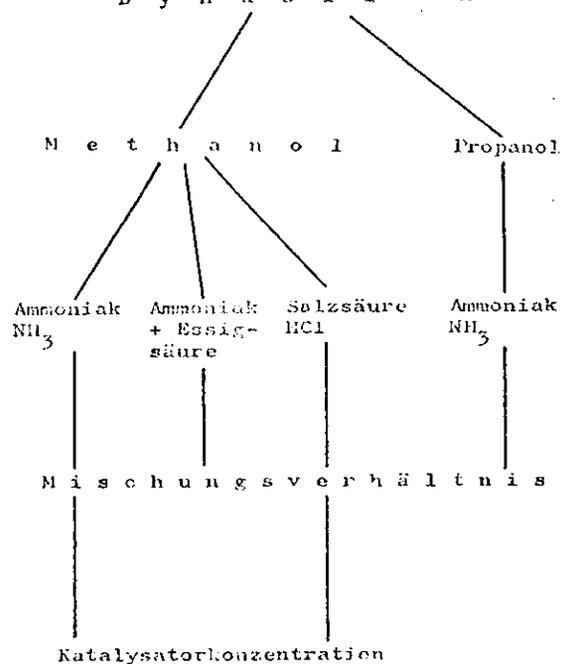
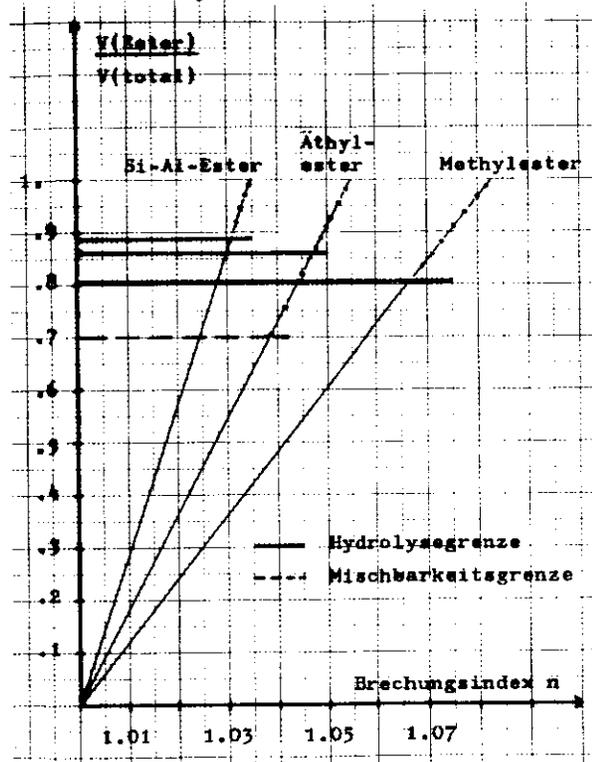


Abbildung 20: Die Mischungsverhältnisse in Abhängigkeit des Brechungsindex des Aerogels



In der Abbildung ist das nach den Formeln des Blocks 6 berechnete Verhältnis des Ester- zum Gesamtvolumen in Abhängigkeit des Brechungsindex des Aerogels dargestellt. Die Formeln sind aus reinen Volumenbetrachtungen hergeleitet worden. Eine obere Grenze des erreichbaren Brechungsindex ist durch die zur vollständigen Hydrolyse notwendige Wassermenge gegeben. Unter der Voraussetzung eines vernachlässigbaren Lösungsmittelvolumens erhält man aus den Formeln des Blocks 5 die eingezeichnete Hydrolysegrenze, oberhalb der keine Gelbildung mehr möglich ist. Die notwendige Mindestmenge des Lösungsmittels setzt den erreichbaren Brechungsindex weiter herab. Dies wurde im Rahmen dieser Arbeit für den Äthylester der ortho-Kieselsäure (Lösungsmittel Methanol) untersucht. Die eingetragene Mischbarkeitsgrenze wurde aus experimentellen Daten gemäß (14) extrapoliert. Es sind also höchstens Brechungsindizes im Bereich der durchgezogenen, dünnen Linien erreichbar.

Die Wassermenge wurde in einem ziemlich großen Bereich zwischen der minimalen zur vollständigen Hydrolyse und dem 10fachen dieses Werts beim Si-Al- und Äthylester variiert, bzw. dem zwei- bis sechsfachen beim Methylester der ortho-Kieselsäure. Ebenfalls wurde die Konzentration jedes Katalysators innerhalb von zwei Größenordnungen verändert. (Tabelle 3)

Tabelle 3: Minimale Wassermenge $V_{\min}(\text{H}_2\text{O})$ zur vollständigen Hydrolyse

Kieselsäure-Ester	$\frac{V_{\min}(\text{H}_2\text{O})}{V(\text{Ester})}$
Methylester der ortho-Kieselsäure	.245
Äthylester der ortho-Kieselsäure	.161
Si-Al-Ester	.128

Die auf das Estervolumen $V(\text{Ester})$ bezogene Wassermenge ist gemäß Block 5 berechnet worden.

Als erster Schritt sollte herausgefunden werden, unter welchen Umständen Alkogele gebildet werden, die qualitativ zur Aerogel-Herstellung geeignet sind. Dabei wurde die Transparenz der Alkogele nur grob beurteilt, da sie oft sehr deutlich variierte und die unterschiedlichen Brechungsindizes der Lösungsmittel eine genauere Analyse erschweren. Als wesentliches Merkmal der Reaktionsgeschwindigkeit diente die Geliertdauer, daß heißt

die Zeitspanne zwischen der Beendigung des Mischvorgangs bis zur Bildung eines festen Gels. Da der Übergang von der hochviskosen Flüssigkeit zum festen Gel fließend ist, kann man diese Zeitspanne nur mit einer Genauigkeit von etwa 10% angeben. Weiterhin ist zu beachten, daß die Kondensation der Kieselsäure mit der Bildung eines Gels noch nicht abgeschlossen ist, und daß die Geliertdauer sowohl von der Hydrolyse- als auch von der Kondensationsgeschwindigkeit abhängt (13).

Die Versuchsbedingungen des Entzugs des Lösungsmittels wurden über längere Versuchsreihen möglichst konstant gehalten, es wurde lediglich die Nachreaktionszeit variiert. Dadurch sollte herausgefunden werden, wie lange es dauert, bis die Kieselsäure nahezu vollständig kondensiert, das heißt die chemischen Reaktionen im Gel abgeschlossen sind. Nach etwa der Hälfte der durchgeführten Experimente wurde von relativ kurzen Heiz- und Expansionszeiten im Autoklaven (≈ 8 h) auf längere Zeiten von 20 h bis 30 h übergegangen, um die Zahl der Sprünge im Aerogel zu reduzieren.

Zur Beurteilung der Aerogelqualität dienten zunächst die Anzahl der Sprünge, die Volumenänderung gegenüber dem Alkogel und die Transparenz. Da uns eine Apparatur zur Messung der Transparenz des Aerogels noch nicht zur Verfügung stand, konnten nur qualitative Unterschiede zwischen den einzelnen Proben festgestellt werden. Weiterhin wurden über die Messung des Brechungsindex in einigen Proben Dichteschwankungen festgestellt (Abschnitt IV) und die Transparenz über die Messung des Cerenkovlichts abgeschätzt. (Abschnitt V)

III.2a Die Polymerisation der Kieselsäure zum Alkogel

Das Mischungsverhältnis des Alkogel-Ansatzes, daß heißt das Volumenverhältnis von Ester:Lösungsmittel:Wasser, und die Art der verwendeten Chemikalien haben einen wesentlichen Einfluß darauf, ob die Kieselsäure zu einem Gel, zu kolloidalen Teilchen oder zu einem Niederschlag kondensiert. Daher wurde zunächst die Mischbarkeit der verschiedenen Kieselsäure-Ester mit Lösungsmittel-Wasser-Gemischen untersucht. (13)

Eine besondere Schwierigkeit trat bei der Verarbeitung des Silizium-Aluminium-Esters auf, wenn Methanol als Lösungsmittel benutzt wurde. Die Gelbildung erfolgte bereits ohne Wasserzugabe im Methanol-Ester-Gemisch so rasch (innerhalb einiger Sekunden), daß eine Vermischung dieser Substanzen nicht möglich war. Der Si-Al-Ester war in Methanol allerdings dann lösbar, wenn so viel Essigsäure hinzugegeben wurde, daß der Ansatz auf einen pH-Wert von etwa 5 gepuffert wurde.

Eine anschließende Zugabe von Wasser, das mit mindestens .15% (Volumen) Ammoniak angereichert sein mußte, leitete die Gelbildung ein. Alle so hergestellten Alkogele hatten allerdings eine sehr schlechte optische Qualität; sie waren weiß-opak. Im Gegensatz dazu ließ sich der Silizium-Aluminium-Ester mit den Lösungsmitteln Propanol und Isopropanol sehr gut vermischen; diese Alkogele waren sehr klar und konnten auf ihre weitere Eignung zur Aerogel-Herstellung getestet werden.

Es ist zwar bekannt, daß die Hydrolyse in Methanol wesentlich schneller erfolgt als in Propanol (15), daß aber der Ester in Methanol offenbar ohne

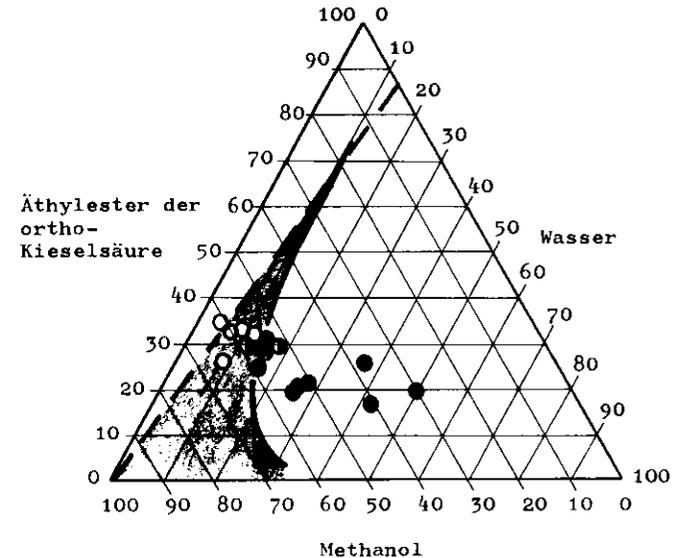
Wasser zu einer Kieselsäure umgewandelt wird, ist ungewöhnlich. Dies deutet darauf hin, daß zumindest im Methanol das chemische Verhalten des Si-Al-Esters nicht mit dem des Methyl- und Äthylesters der ortho-Kieselsäure vergleichbar ist.

Die Ester der ortho-Kieselsäure sind nur in gewissen Verhältnissen mit Alkohol und Wasser mischbar (14). Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Mischbarkeit des Systems Äthylester:Methanol:Wasser in dem Bereich untersucht, der etwa einem Brechungsindex des Aerogels von 1.02 entspricht. Extrapoliert man diese Werte analog zu den Ergebnissen eines Äthylester:Äthanol:Wasser-Systems (14) und beachtet außerdem die minimale Wassermenge zur vollständigen Hydrolyse, ergibt sich ein relativ enger Bereich, in dem eine Gelbildung möglich ist. Dieser Gelierbereich ist in der Abbildung 21 angedeutet worden.

Außerhalb des Mischbarkeitsbereichs bilden sich zwei flüssige Phasen im Ansatz, die sich auch nach wiederholtem Verrühren erneut trennen. In einigen Proben gelierte die untere Phase aus. Innerhalb des Gelierbereichs war die optische Qualität der hergestellten Alkogele bei Verwendung eines basischen Katalysators so schlecht (weiß-opak), daß sie sich nicht zur Aerogel-Herstellung eignen. Ein klares Alkogel konnte nur mit Salzsäure als Katalysator mit der sehr hohen Konzentration von 10% (Volumen) im Wasser hergestellt werden.

Der Methylester der ortho-Kieselsäure erweist sich allgemein als sehr gut mischbar, nur bei Verwendung von Isobutanol als Lösungsmittel bildet sich bei der Wasserzugabe sehr leicht ein weißer Niederschlag, auch wenn das Wasser

Abbildung 21: Die Gelbildung im System Äthylester der ortho-Kieselsäure:
Methanol:Wasser



- mischbar
- ◐ schrittweise Wasserzugabe bis zur Bildung eines Niederschlags
- nicht mischbar
- Mischbarkeitsgrenze
- - - Hydrolysegrenze

In der Abbildung ist der Bereich angegeben, in dem das tertiäre System Äthylester der ortho-Kieselsäure: Methanol:Wasser mischbar ist. Es wurde ausschließlich mit Ammoniak als Katalysator gearbeitet. Die Mengen der einzelnen Komponenten des Systems sind in Volumenprozent, bezogen auf das Gesamtvolumen, angegeben. Links der Mischbarkeitsgrenze, die gemäß den Ergebnissen eines Äthylester:Äthanol:Wasser-Systems (14) aus den experimentellen Daten extrapoliert wurde, ist eine Mischbarkeit des Systems zu erwarten. Rechts der Hydrolysegrenze ist eine vollständige Hydrolyse des Esters gewährleistet. Eine Gelbildung ist also etwa im schattierten Bereich der Abbildung möglich.

zunächst mit einem Teil des Isobutanols vermischt und dann einem Isobutanol-Ester-Gemisch zugegeben wird. Der Niederschlag kann aber durch hohe Rührgeschwindigkeit und sehr langsamer Wasserzugabe ($\approx .1$ ml/sec) verhindert werden. Die Alkogele des Methylesters sind mit kleinen Unterschieden alle sehr transparent und wurden auf ihre Eignung zur Aerogel-Herstellung weiter untersucht.

Das erste Ergebnis dieser Untersuchungen ist also, daß der Äthylester der ortho-Kieselsäure zur Aerogel-Herstellung offenbar ungeeignet ist. Außerdem läßt sich der Si-Al-Ester nur schwer mit Methanol als Lösungsmittel verarbeiten.

Einen gewissen Einblick in die Reaktionsabläufe kann man über die Reaktionsgeschwindigkeit gewinnen, als deren Maß die Geliertdauer dient. Da die Dehydrierung der ortho-Kieselsäure ohne Zeitverlust erfolgt (13), bestimmt vor allem die Hydrolysegeschwindigkeit der Ester und außerdem die Kondensationszeit der Primärteilchen die Geliertdauer.

Man erwartet vor allem eine rapide Abnahme der Hydrolysegeschwindigkeit mit zunehmender Größe der Alkylgruppen der Ester; weiterhin sollte die Silizium-Konzentration im Ester quadratisch in die Geliertdauer eingehen (13) (Block 10).

Vergleicht man die Methyl- und Äthylester der ortho-Kieselsäure miteinander, so sind die experimentellen Ergebnisse in diesem Rahmen verständlich. Die Geliertzeiten des Äthylesters

Block 10: Parameter der Geliertzeit in basischen Lösungen (13)

Die Geliertzeit wird vor allem durch die Hydrolysegeschwindigkeit bestimmt, die entscheidend von der Größe der Alkylgruppen des Kieselsäure-Esters abhängt. Einen zusätzlichen Einfluß hat, vorwiegend bei niedrigen Siliziumkonzentrationen, die Kondensationsgeschwindigkeit der Kieselsäure

Die Hydrolysegeschwindigkeit wird bestimmt durch:

- Größe der Alkylgruppen der Ester
- Art des Katalysators
- Katalysatorkonzentration
- Wassermenge
- Dielektrizitätskonstante des Lösungsmittels ($\propto \epsilon^r, r > 0$)

Die Kondensationsgeschwindigkeit der Kieselsäure hängt ab von der:

Siliziumkonzentration C:

$$t_p \propto \frac{1}{C^2} \quad ; \quad t_p = \text{Zeit bis zum Erreichen eines bestimmten Polymerisationsgrades}$$

Dielektrizitätskonstante ϵ des Lösungsmittels ($\propto \epsilon^{-s}, s > 0$)

pH-Wert der Lösung

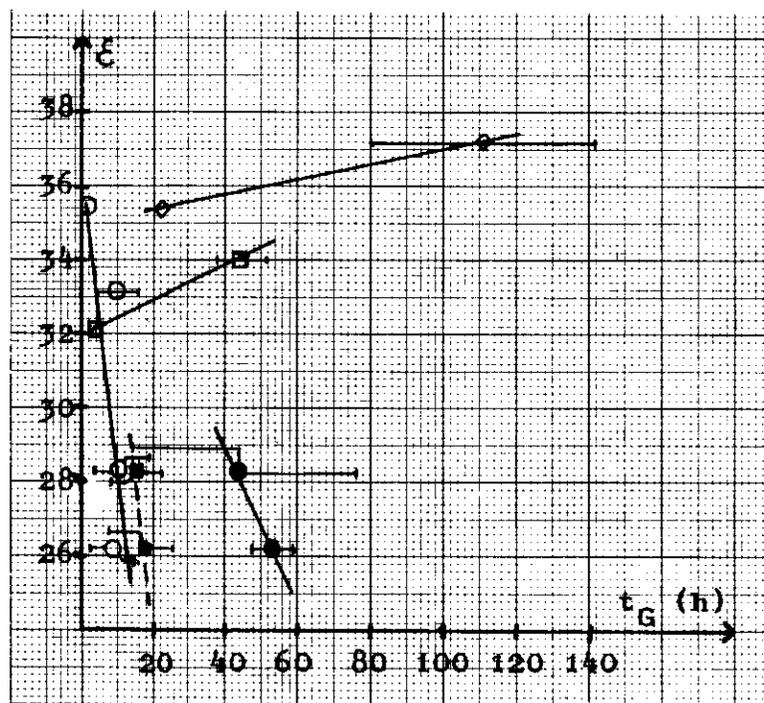
erstrecken sich von 50 h bis 200 h, während die des Methylesters bei vergleichbaren Verhältnissen zwischen einigen Minuten und 5 h liegen. Die unterschiedliche Siliziumkonzentration im Ester kann nur einen Faktor von 2 erklären, also wird die Geliertdauer offenbar wesentlich durch die größeren Alkylgruppen des Äthylesters heraufgesetzt.

Der Silizium-Aluminium-Ester reagiert trotz seiner großen Alkylgruppen sehr schnell. Die Ursache dürfte vor allem in der Reaktionsfreudigkeit des Aluminiums liegen, eventuell kann auch die 5. Alkylgruppe einen zusätzlichen Beitrag liefern. Offensichtlich unterscheiden sich die Reaktionsabläufe beim Si-Al-Ester deutlich von denen der Ester der ortho-Kieselsäure.

In basischen Lösungen erwartet man eine Abnahme der Hydrolysegeschwindigkeit mit sinkender Dielektrizitätskonstante des Lösungsmittels. Untersuchungen über das Verhalten des Methylesters der ortho-Kieselsäure in verschiedenen Lösungsmitteln weisen darauf hin, daß bei Alkoholen die Hydrolysegeschwindigkeit der Ester, jedoch in Azeton die Kondensationsdauer der Primärteilchen den größten Einfluß auf die Gelierzeit hat (Abbildung 22). Dies bedeutet, daß die Gelbildung im Azeton vermutlich nach anderen Mechanismen abläuft als in Alkoholen. Es sei hier schon vorweggenommen, daß trotz sehr klarer Alkogelee die Aerogelee des Azetons intensiv gelb-braun gefärbt sind, was auf die Bildung von Ringverbindungen hindeutet (24).

Die Abhängigkeit der Gelierdauer von der Wassermenge und der Katalysatorkonzentration entspricht durchaus unserem Verständnis der Reaktionsabläufe. (Abb. 23) Beide Größen bestimmen in basischen Lösungen die Anzahl der OH^- -Ionen und damit sowohl die Hydrolyse- als auch die Kondensationsgeschwindigkeit. Beim Silizium-Aluminium-Ester wurde in Isopropanol als Lösungsmittel außerdem untersucht, bei welcher Wassermenge kein Gel mehr gebildet wird, die im Bereich von $\pm 25\%$ mit der theoretischen Wassermenge zur vollständigen Hydrolyse übereinstimmt.

Abbildung 22: Die Gelierzeiten des Methylesters der ortho-Kieselsäure in verschiedenen Lösungsmitteln



Die Abbildung zeigt die Gelierdauer t_G in Abhängigkeit der Dielektrizitätskonstanten ϵ des Lösungsmittels, bei der die zugegebene Wassermenge berücksichtigt worden ist (Tabelle a). Die verschiedenen Mischungen sind in der Tabelle b angegeben.

Die Abnahme der Gelierdauer mit wachsender Dielektrizitätskonstante bei den Alkoholen als Lösungsmittel weist darauf hin, daß die Hydrolysegeschwindigkeit des Esters die Reaktionsdauer bestimmt. Im Gegensatz dazu scheint beim Azeton die Kondensationsdauer der Primärteilchen der entscheidende Faktor zu sein (vergleiche Block 10).

a) Die Dielektrizitätskonstante ϵ der angesetzten Lösungen

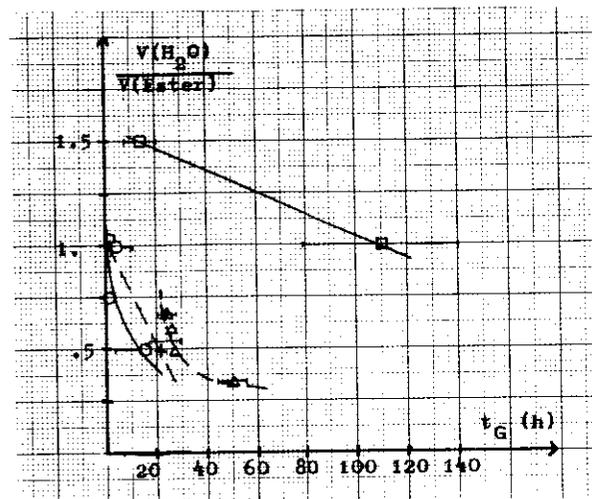
ϵ	Wasser	Methanol	Azeton	Isopropanol	Isobutanol
26.4	.17	-	-	-	.83
28.5	.17	-	-	.83	-
32.1	.23	-	-	.77	-
33.3	.17	.33	-	.50	-
34.0	.23	-	.77	-	-
35.7	.29	-	-	.71	-
36.2	.17	.50	-	.33	-
37.4	.29	-	.71	-	-

In der Tabelle sind jeweils die Volumenanteile der einzelnen Bestandteile der Lösung angegeben.

b) Die untersuchten Mischungsverhältnisse

Symbol	Katalysator (Konzentration)	Volumenverhältnis Ester:Lösungsmittel:Wasser
○	NH_3 (.01%)	10:25:5
●	$\text{C}_4\text{H}_{11}\text{NO}$ (.01%)	10:25:5
■	$\text{C}_4\text{H}_{11}\text{NO}$ (.02%)	10:25:5
○	$\text{C}_6\text{H}_{15}\text{NO}_3$ (1.%)	10:25:5
□	$\text{C}_6\text{H}_{15}\text{NO}_3$ (1.%)	10:25:7.5

Abbildung 23: Die Geliertdauer von Kieselsäure-Ester in Abhängigkeit der Wassermenge



Methylester der ortho-Kieselsäure:

Azeton: —□— NH_3 (.01%)
 Isopropanol: —○— NH_3 (.15%)
 —+— $\text{C}_6\text{H}_{15}\text{NO}_3$ (1%)

Silizium-Aluminium-Ester:

Isopropanol: —△— NH_3 (.15%)

Die Abbildung zeigt die Geliertdauer t_G in Abhängigkeit des Volumenverhältnisses von Wasser:Ester. Die verschiedenen Katalysatorkonzentrationen sind in Volumenprozent, bezogen auf das Wasservolumen, angegeben.

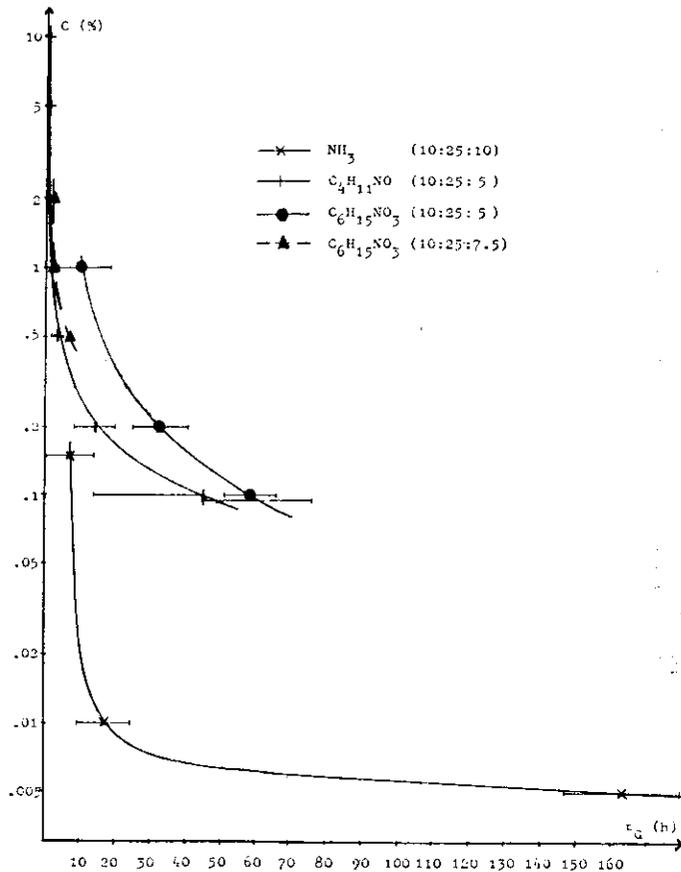
Die relativ kurzen Geliertzeiten des Si-Al-Esters sind eventuell durch die Reaktionsfreudigkeit des Aluminiums und durch seine 5. Alkylgruppe erklärbar.

Geliertdauer haben, während sich die Geliertzeit bei höheren Konzentrationen kaum noch verkürzen läßt. Dies deutet auf eine Sättigung der Lösung mit OH^- -Ionen bei hohen Katalysatorkonzentrationen hin. (Abb.24)

Ergebnis der in diesem Abschnitt beschriebenen Untersuchungen ist, daß die Reaktionsabläufe in den Si-Al-Ester-Systemen sich deutlich von denen in Gemischen der Ester der ortho-Kieselsäure unterscheiden. Ferner verläuft die Gelbildung des Methylesters der ortho-Kieselsäure im Lösungsmittel Azeton offenbar nicht entsprechend der in Alkoholen.

Die Katalysatorkonzentrationen wurden jeweils über zwei Größenordnungen variiert, wobei sich ein deutlicher Einfluß auf die Geliertdauer zeigt. Interessant ist vor allem, daß in Bereichen niedriger Konzentration bereits kleine Variationen in der Katalysatorkonzentration einen großen Effekt auf die

Abbildung 24: Die Geliertdauer des Methylesters in Isopropanol in Abhängigkeit der Katalysatorkonzentration



Die Katalysatorkonzentration C ist auf das Wasservolumen bezogen; die einzelnen Mischungen sind nach dem Schema
 Katalysator (Volumenverhältnis von Ester:Lösungsmittel:Wasser)
 angegeben. Der steile Anstieg der Katalysatorkonzentration bei kurzen Geliertzeiten deutet auf eine Sättigung der Lösung mit OH⁻-Ionen hin.

III.2b Die Eigenschaften der hergestellten Aerogelproben

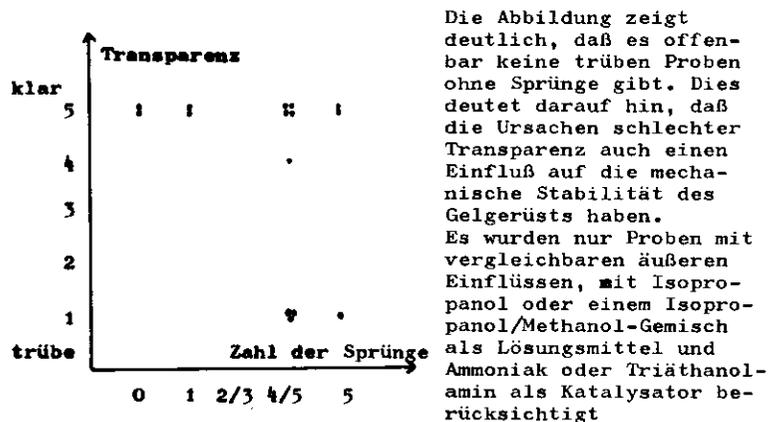
Entsprechend den Ergebnissen des vorhergegangenen Abschnitts wurde Aerogel aus den Alkogelen des Silizium-Aluminium-Esters mit Isopropanol und Propanol und aus den Alkogelen des Methylesters der ortho-Kieselsäure mit Isopropanol, einem Gemisch von 60% Methanol und 40% Isopropanol, Isobutanol und Azeton als Lösungsmittel hergestellt.

Obwohl die Alkogele des Silizium-Aluminium-Esters eine gute Transparenz besaßen, sind die Aerogele als Cerenkov-Radiator völlig ungeeignet. Sie haben eine intensive, dunkelblaue bis schwarze Farbe und sind mehr als 30% gegenüber dem Alkogelvolumen geschrumpft. Die große Verringerung des Volumens während des Lösungsmittelentzugs deutet auf eine Umbildung der Gerüststruktur hin, daß heißt, daß die Koordinationszahl der Primärteilchen bei den hohen Temperaturen im Autoklav erhöht wird. Die trotz der großen Transparenz des Alkogels entstandene intensive Färbung des Aerogels kann so gedeutet werden, daß sich an der Oberfläche der Primärteilchen reaktionsfähige Molekülgruppen befinden, die erst im Autoklav solche Verbindungen eingehen, die durch sichtbares Licht elektronisch angeregt werden können.

Die mit dem Methylester hergestellten Aerogelege weisen von den Herstellungsverfahren abhängige, große Qualitätsunterschiede auf. Daher wurde der Einfluß der einzelnen Herstellungsparameter auf die Eigenschaften des Aerogels differenzierter untersucht. Als Qualitätsmerkmale dienen zunächst die Transparenz der Aerogelege, die nur

qualitativ zwischen den Proben verglichen werden konnte, ferner die Anzahl der Sprünge in den Aerogelproben und die Volumenänderung des Aerogels im Vergleich zum Alkogel.

Abbildung 25: Die Korrelation zwischen der Transparenz der Aerogelproben und der Zahl ihrer Sprünge



Es erweist sich als sehr günstig für die Aerogelherstellung, daß es offenbar kaum Korrelationen zwischen den einzelnen Qualitätsmerkmalen gibt. Lediglich zwischen der Transparenz und der Anzahl der Sprünge konnte ein schwacher Zusammenhang festgestellt werden, wenn die chemischen Ursachen für eine Trübung des Aerogels, wie zum Beispiel die Art des Lösungsmittels oder des Katalysators, vernachlässigt wurden. Offensichtlich konnten keine Aerogelproben hergestellt werden, die eine schlechte Transparenz und wenige Sprünge hatten. Dies ist ein Hinweis darauf, daß bei chemisch vergleichbaren Ansätzen die Ursachen der Aerogeltrübung auch ein Teil der Ursachen für die Sprünge im Aerogel sind (Abbildung 25).

Die Transparenz der Aerogele wurde in fünf Klassen eingeteilt, vom klarsten (5) bis zum sehr trüben (1) Aerogel. Das erste Ergebnis dieser Versuche ist, daß zur Aerogelherstellung Azeton und Isobutanol als Lösungsmittel für den Methylester der ortho-Kieselsäure nicht geeignet sind. Die Aerogele des Azetons sind intensiv gelb-braun gefärbt, die des Isobutanols sehr trübe. (siehe Tabelle 4)

Tabelle 4: Die Transparenz der Aerogele des Methylesters der ortho-Kieselsäure

Lösungsmittel	Transparenzklasse				
	klar 5	4	3	2	trübe 1
Isopropanol	6	1	3	17	5
60% Methanol + 40% Isopropanol	6	0	0	0	3
Isobutanol	0	0	0	0	3

In dieser Tabelle sind jeweils alle hergestellten Aerogele der einzelnen Lösungsmittel aufgeführt. Offenbar ließen sich transparente Proben nur in Isopropanol oder im Isopropanol/Methanol-Gemisch herstellen. Die intensiv gefärbten Proben des Azetons sind in dieser Klassifizierung schlecht einzuordnen und daher weggelassen worden.

Ebenso erwies sich der Katalysator 2-Dimethylamino-Äthanol ($C_4H_{11}NO$) als unbrauchbar, auch seine Aerogele waren sehr trübe. Die Ursache dieses schlechten Ergebnisses könnte allerdings sein, daß uns dieser Katalysator nicht in der

Tabelle 5: Die Transparenz der Aerogele verschiedener Katalysatoren

Katalysator	Transparenzklasse				
	klar				trübe
	5	4	3	2	1
NH_3	0	1	3	0	0
$\text{C}_4\text{H}_{11}\text{NO}$	0	0	0	0	11
$\text{C}_6\text{H}_{15}\text{NO}_3$	8	0	0	0	5

Es sind alle Aerogele des Methylesters berücksichtigt, die nicht gemeinsam mit Proben anderer Katalysatoren im Autoklav waren. Außerdem sind die Proben mit Azeton als Lösungsmittel nicht aufgeführt. Man sieht sehr deutlich, daß alle Aerogele des 2-Dimethylamino-Äthanol ($\text{C}_4\text{H}_{11}\text{NO}$) sehr trübe sind. Die Unterschiede zwischen Ammoniak (NH_3) und Triäthanolamin ($\text{C}_6\text{H}_{15}\text{NO}_3$) lassen sich gut durch andere Parameter im Herstellungsverfahren erklären und sind daher eher zufälliger Natur.

höchsten Reinheit (zur Analyse) vorlag, sondern nur in technisch reiner Form (vergleiche Tabelle 2c). Dies weist darauf hin, daß Verunreinigungen einen sehr großen Einfluß auf die Transparenz der Aerogele haben können. (Tabelle 5) Weiterhin ist bemerkenswert, daß die $\text{C}_4\text{H}_{11}\text{NO}$ -Alkogele auch die Qualität anderer Aerogele nachteilig beeinflussen, wenn ihnen gemeinsam im Autoklav das Lösungsmittel entzogen wird. Die Katalysatoren diffundieren also im Autoklav aus dem Alkogel heraus, daher ist es notwendig, stets nur Proben mit dem gleichen Katalysator im Autoklav zu haben.

Weiter beeinflußt die während der Gelbildung herrschende Temperatur die Transparenz des Aerogels sehr deutlich. Da die chemischen Reaktionen der Gelbildung exotherm sind, erwärmt sich der Ansatz. Diese Erwärmung hält auch noch an, nachdem der Ansatz fest geworden ist, was so gedeutet werden kann, daß die Bildung der Gerüststruktur noch nicht abgeschlossen ist. Um die mit der Erwärmung verbundenen

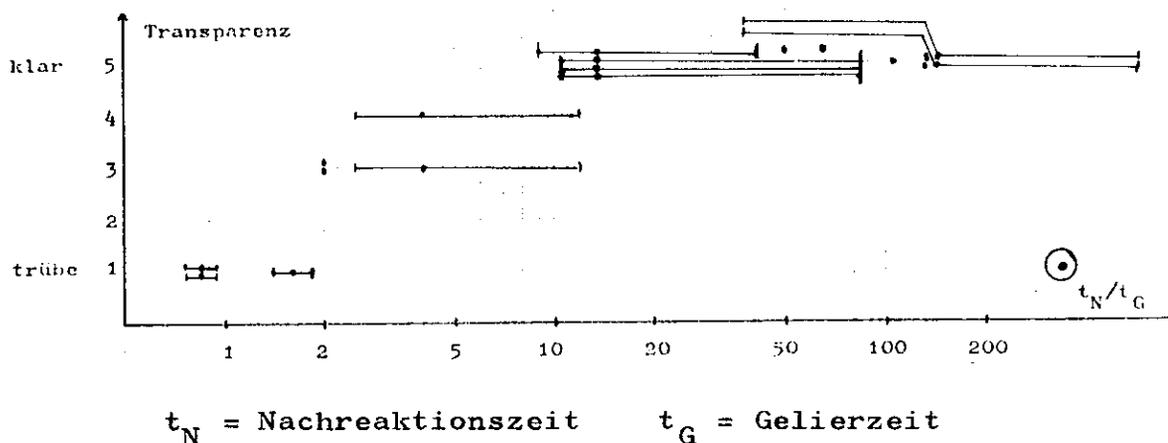
Konvektionsströmungen einzuschränken, die deutliche, im polarisierten Licht sichtbare Inhomogenitäten verursachen, wurden einige Ansätze wärmeisoliert. Bereits die Alkogele waren etwas trüber als jene ohne Wärmeisolierung; die Aerogele waren weiß-opak und stark gesprungen.

Ein zusätzlicher äußerer Einfluß auf die Transparenz konnte festgestellt werden, als eine andere Dichtung als Ersatz für die Aluminium-Ringe getestet wurde. Wir erhofften uns von einer Klingerit-Dichtung eine leichtere Handhabung; es zeigte sich aber, daß das Klingerit mit der Autoklavfüllung nicht verträglich ist. Die abgelassene Füllung (Isopropanol + Restchemikalien der Alkogele) war gelb gefärbt und die Aerogele waren sehr trübe; dabei nahm die Trübung mit geringer werdendem Abstand der Gele von der Dichtung zu.

Nachdem wir also festgestellt haben, daß die Art des Lösungsmittels, des Katalysators, die Temperatur und äußere Bedingungen am Autoklav, wie zum Beispiel die Dichtung, die Transparenz des Aerogels beeinflussen, bleibt zu klären, welche Parameter für die unterschiedliche Transparenz der restlichen Aerogele verantwortlich sind.

Mit Isopropanol und einem Isopropanol/Methanol-Gemisch als Lösungsmittel und Ammoniak (NH_3) und Triäthanolamin ($\text{C}_6\text{H}_{15}\text{NO}_3$) als Katalysator wurden sowohl transparente als auch sehr trübe Aerogelproben hergestellt. Dabei konnte ein sehr deutlicher Zusammenhang zwischen der Transparenz und dem Nachreaktionsquotienten, dem Quotienten aus der Gelier- und der Nachreaktionszeit, nachgewiesen werden. Zur Herstellung eines transparenten Aerogels war es notwendig, daß die Nachreaktionsphase mindestens 15 mal so lang war wie die Geliertdauer. (siehe Abbildung 26)

Abbildung 26: Die Transparenz der Aerogele des Methylesters in Abhängigkeit vom Nachreaktionsquotienten t_N/t_G

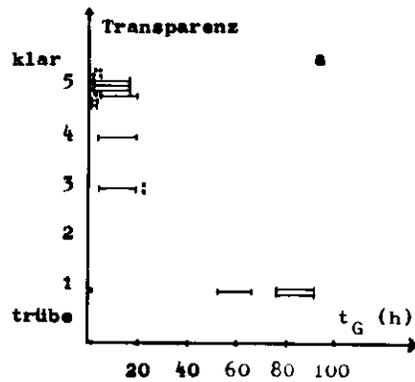


Es sind alle Aerogele des Isopropanols und Isopropanol/Methanol-Gemischs mit Ammoniak und Triäthanolamin als Katalysator berücksichtigt worden, ausgenommen die mit einer Wärmeisolierung und die mit der Klingerit-Dichtung am Autoklav. Die schlechte Qualität der einen Probe mit dem sehr großen Nachreaktionsquotienten liegt vermutlich an ihrer extrem kurzen Gelierzeit von einigen Minuten.

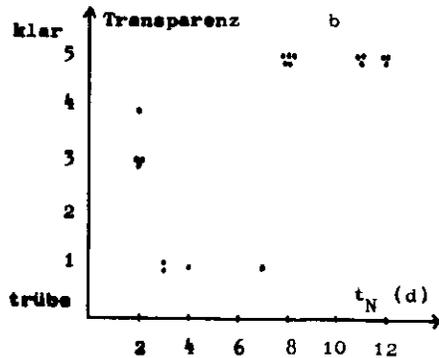
Besonders interessant ist, daß dieses Ergebnis offenbar unabhängig davon ist, ob man Ammoniak oder Triäthanolamin als Katalysator und Isopropanol oder ein Gemisch von 60% Methanol und 40% Isopropanol benutzt. Lediglich eine Aerogelprobe besitzt, trotz des großen Nachreaktionsquotienten von 330, eine schlechte Qualität. Diese an sich transparente Probe hatte einen konusförmigen, sehr trüben, Kern von etwa $1/3$ ihres Gesamtvolumens, der leicht zerbröckelte. Ihr Ansatz unterschied sich von den anderen Proben vor allem durch seine extrem kurze Gelierdauer von wenigen Minuten, die durch eine relativ große Wassermenge vom 6fachen der minimalen zur vollständigen Hydrolyse bedingt war. Ein direkter Zusammenhang mit der Wassermenge ist unwahrscheinlich, weil mit der gleichen Menge wesentlich homogeneres Aerogel hergestellt werden konnte,

indem über die Katalysatorkonzentration die Gellierzeit verlängert wurde. Dies zeigt, daß im Ansatz beim Verrühren der Chemikalien Inhomogenitäten entstehen, zum Beispiel können sich bereits gebildete Primärteilchen in der Mitte konzentrieren. Wenn die Gellierzeit sehr kurz ist, können diese Inhomogenitäten offenbar nicht mehr durch Diffusion ausgeglichen werden, sondern frieren quasi ein.

Abbildung 27: Der Einfluß der Gellierzeit t_G (a) und der Nachreaktionszeit t_N (b) auf die Transparenz der Aerogelproben



Betrachtet man für die Proben der Abbildung 26 die Transparenz in Abhängigkeit der einzelnen Größen des Nachreaktionsquotienten, so ergibt sich ein unterschiedliches Bild. Während der Einfluß der Gellierzeit auf die Transparenz des Aerogels ähnlich deutlich wie der des Nachreaktionsquotienten zu sein scheint, besteht offenbar kein Zusammenhang zwischen der Transparenz und der Nachreaktionszeit.



Betrachtet man die Gellierzeit oder die Nachreaktionszeit getrennt, so scheint es ebenfalls einen gewissen Zusammenhang mit der Transparenz zu geben. Der Einfluß die Gellierdauer selbst scheint in diesen Experimenten ähnlich deutlich zu sein wie der des Nachreaktionsquotienten. Im Gegensatz dazu läßt sich nur eine sehr schwache Relation zwischen der Nachreaktionszeit und der Transparenz feststellen (Abbildung 27). Da das Hauptziel zunächst war, möglichst klare Aerogele herzustellen, wurden die Gellier- und die Nachreaktionszeit nicht völlig unabhängig voneinander variiert, sondern relativ viele Proben angesetzt, die gleichzeitig eine kurze Gellierzeit und eine lange Nachreaktionsphase hatten. Es wäre interessant, jetzt noch die Extremfälle mit kurzer und sehr langer Gellier- und Nachreaktionszeit bei gleichem Quotienten zu untersuchen.

Tabelle 6: Die Anzahl der Sprünge in den Aerogelen des Methylesters der ortho-Kieselsäure

Lösungsmittel	Zahl der Sprünge				
	0	1	2/3	4/5	>5
Isopropanol	1	2	4	14	9
60% Methanol + 40% Isopropanol	2	1	0	6	0
Azeton	1	2	1	0	0
Isobutanol	0	0	3	0	0

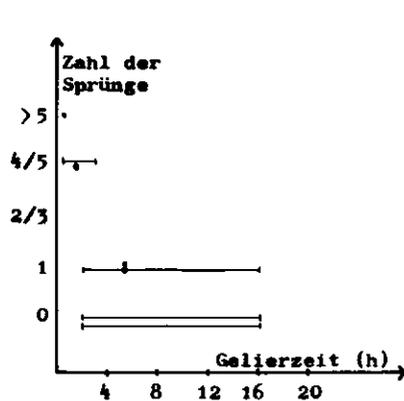
Es sind alle hergestellten Proben berücksichtigt, die nicht so opak waren, daß Sprünge nicht mehr festgestellt werden konnten. Die Tabelle zeigt die große Schwierigkeit, sprunghafes Aerogel herzustellen.

Eine große Schwierigkeit bestand darin, Aerogele ohne Sprünge herzustellen. (siehe Tabelle 6) Die Sprünge sind insofern sehr störend, als wir natürlich an einem möglichst homogenen Cerenkov-Radiator interessiert sind. Andernfalls wird bei

ungünstiger räumlicher Orientierung der Sprünge das Cerenkovlicht an ihnen reflektiert, wodurch eine Abbildung des Lichts auf die Photovervielfacherröhren des Cerenkovzählers erschwert wird.

Auf der Suche nach den Ursachen der Sprünge soll versucht werden, zwischen den äußeren Einflüssen während des Entzugs des Lösungsmittels im Autoklav und den durch die Bildung des Alkogels bedingten zu unterscheiden. Es wurden Sprünge im Aerogel festgestellt, die von starken Dichteschwankungen begleitet waren (vergleiche Abschnitt IV.2), die vermutlich bereits bei der Gelbildung verursacht wurden. Die Sprünge ohne Dichteschwankungen können während des Lösungsmittelentzugs im Autoklav entstanden sein.

Abbildung 28: Der Einfluß der Gelierzeit auf die Sprünge im Aerogel



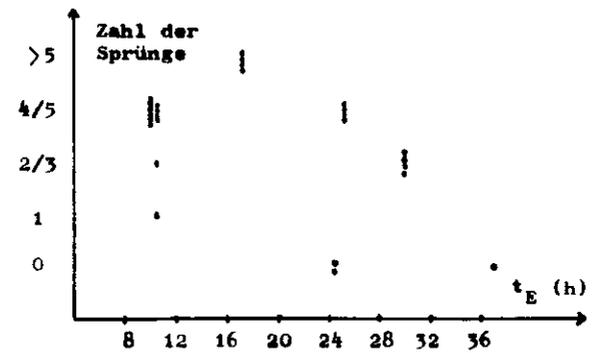
Die Abbildung zeigt die Aerogele des Methyl-esters der ortho-Kieselsäure mit Isopropanol oder dem Isopropanol/Methanol-Gemisch als Lösungsmittel und Triäthanolamin als Katalysator. Es wurden nur die Proben berücksichtigt, deren Sprünge mit starken Dichteschwankungen im Aerogel verbunden waren. Offenbar begünstigt eine Gelierzeit von weniger als 4 Stunden die Bildung von Sprüngen.

Beschränkt man sich auf im chemischen Ansatz vergleichbare Proben, deren Sprünge während der Gelbildung verursacht zu sein scheinen, läßt sich ein

Zusammenhang zwischen der Zahl der Sprünge und der Gelierdauer nachweisen. Auch dieses Ergebnis zeigt, daß sich Inhomogenitäten im Alkogel bei sehr kurzen Gelierdauern nicht vermeiden lassen. (Abbildung 28)

Einen deutlichen Einfluß der Heiz- und Expansionszeiten des Autoklaven auf die Sprungbildung ist nicht erkennbar. Betrachtet man ausschließlich die Proben, in denen keine Dichteschwankungen nachgewiesen wurden, läßt sich nur eine gewisse Tendenz vermuten, daß längere Heiz- und Expansionsphasen im Autoklaven die Zahl der Sprünge im Aerogel herabsetzen. (Abbildung 29)

Abbildung 29: Der Einfluß der Expansionszeit t_E des Autoklaven auf die Anzahl der Sprünge im Aerogel



Die Abbildung zeigt die Aerogelproben des Methyl-esters, in denen keine Dichteschwankungen nachgewiesen werden konnten. Proben, bei deren Herstellung starke Druckstöße im Autoklav bemerkt wurden, sind nicht abgebildet. Man erkennt eine leichte Tendenz, daß längere Expansionszeiten zu weniger Sprüngen führen.

Allerdings ist die Expansionszeit nur ein Maß für die mittlere Strömungsgeschwindigkeit des Lösungsmittels im Gel. Die so nicht erfaßbaren Strömungsschwankungen, insbesondere kurze, stoßartige Druckabfälle, dürften einen wesentlich größeren Einfluß auf die Sprungbildung in den Proben haben.

Die schwache Korrelation zwischen der Zahl der Sprünge und der Transparenz (siehe Abbildung 25) deutet darauf hin, daß es auch in Bezug auf die Zahl der Sprünge im Aerogel nachteilig ist, wenn mit dem Entzug des Lösungsmittels begonnen wird, bevor die Gelbildung völlig abgeschlossen ist. Bei den hohen Temperaturen im Autoklaven wird das Gelgerüst dann vermutlich lokal zerstört und es bilden sich größere Zusammenballungen von Primärteilchen. Dies führt zwangsläufig zu Sprüngen im Aerogel und zu einem größeren Streuvermögen. Der gleiche Mechanismus dürfte auch für den negativen Einfluß der Wärmeisolierung während der Gelbildung verantwortlich sein.

Bei einigen Proben konnte eine Volumenänderung der Aerogele im Vergleich zu den Alkogelen festgestellt werden. Es kamen sowohl Vergrößerungen als auch Verkleinerungen des Volumens vor. (Tab. 7) Diese Volumenänderungen sind insofern sehr unangenehm, als dadurch der Brechungsindex geändert wird und die Proben ihre exakte Form verlieren, die für eine fugenlose Stapelung im Cerenkovzähler notwendig ist.

Eine deutlich erkennbare Ursache der Volumenänderung konnte nicht gefunden werden. Schwache Effekte ließen sich nur dann nachweisen, wenn Proben betrachtet wurden, bei denen nur ein Parameter des chemischen Ansatzes verändert und alle anderen Verhältnisse konstant gehalten wurden.

Tabelle 7: Die Volumenänderungen während der Aerogelherstellung

Lösungsmittel	Volumenänderung ΔV				
	+		0	-	
	>5%	0-5%		0-5%	>5%
Isopropanol	5	0	21	6	0
60% Methanol + 40% Isopropanol	0	0	7	1	1
Azeton	0	1	2	0	1
Isobutanol	2	0	0	1	0

In der Tabelle sind alle hergestellten Aerogelproben des Methylesters der ortho-Kieselsäure aufgeführt. Offenbar ist die Volumenänderung ein vergleichbar geringes Problem. Bei den kleinen Aerogelproben ($\approx 40 \text{ cm}^3$) ist sie allerdings nur schwer festzustellen; bei der Herstellung größerer Aerogelproben könnte sich dieser Effekt deutlicher bemerkbar machen.

So besteht bei der Verwendung des Gemisches von 60% Methanol und 40% Isopropanol als Lösungsmittel und Triäthanolamin konstanter Konzentration als Katalysator ein Zusammenhang zwischen der zugegebenen Wassermenge und der Volumenänderung. (Abbildung 30)

Bei vergleichbaren Proben in reinem Isopropanol konnte dagegen kein solcher Zusammenhang gefunden werden, wohl aber in Azeton zwischen der Volumenänderung und der Gelierzeit, die bei konstanter Wassermenge über die Katalysatorkonzentration gesteuert wurde. (Abbildung 31)

Es scheint, daß die Volumenänderungen, die durch Umordnungen in der Gerüststruktur hervorgerufen sein mögen, wesentlich von der Chemie des Alkogelansatzes abhängig sind. Es ist also notwendig, Ansätze, die in Bezug auf die Transparenz und die

Abbildung 30: Die Volumenänderung ΔV des Aerogels des Methylesters im Methanol/Isopropanol-Gemisch

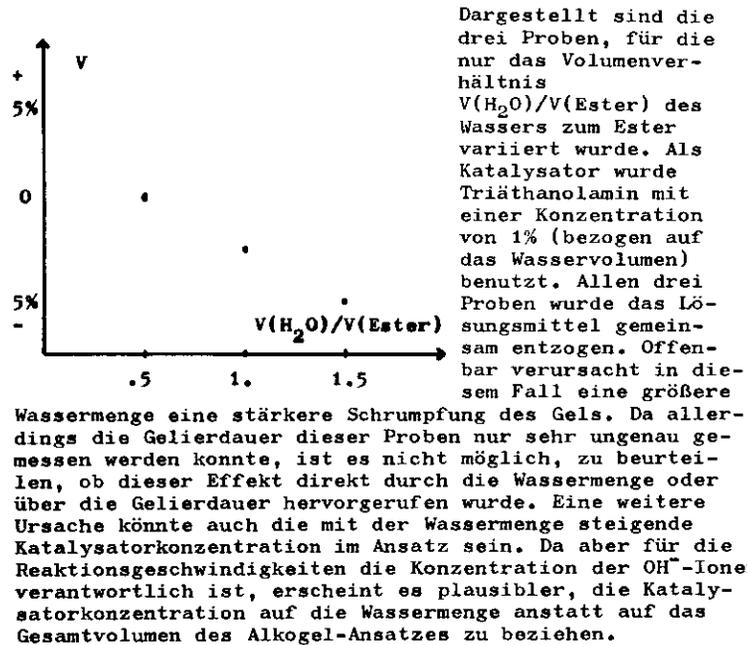
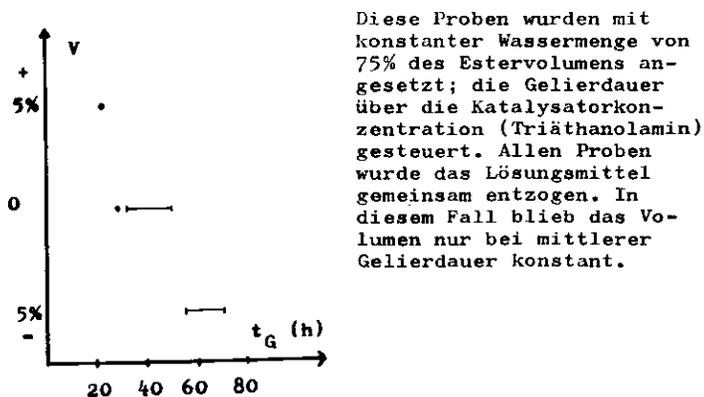


Abbildung 31: Die Volumenänderung ΔV des Aerogels des Methylesters in Azeton als Lösungsmittel

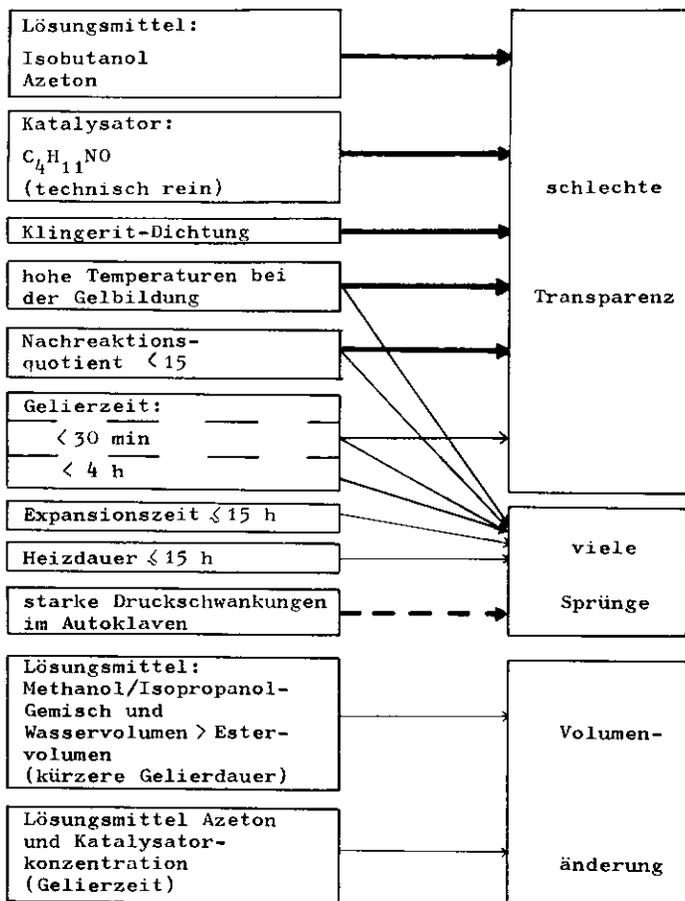


Zahl der Sprünge vielversprechend sind, in Hinblick auf die Volumenänderung zu optimieren. Dies ist gut möglich, da die Geliertdauer von zwei voneinander unabhängigen Parametern, der Wassermenge und der Katalysatorkonzentration, bestimmt wird. (Abbildung 32)

Es konnten also recht gute Aerogele mit dem Methylester der ortho-Kieselsäure in dem Lösungsmittel Isopropanol und in einem Isopropanol/Methanol-Gemisch hergestellt werden, wenn Ammoniak oder Triäthanolamin als Katalysator benutzt wurden. Für die Transparenz ist entscheidend, daß die Nachreaktionszeit mehr als 15 mal so groß ist wie die Geliertdauer. Zusätzlich sollte man in Bezug auf die Sprünge eine Geliertzeit von mehr als 4 Stunden anstreben und auf einen möglichst gleichmäßigen Entzug des Lösungsmittels aus dem Alkogel achten. Zur Vermeidung von Volumenänderungen muß der Ansatz in Hinblick auf die Wassermenge und Katalysatorkonzentration jeweils optimiert werden (Tabelle 8).

Es wurden weiterhin Proben entsprechend dem Ansatz von Cantin et. al. hergestellt (Methylester der ortho-Kieselsäure, Methanol als Lösungsmittel und Ammoniak als Katalysator), die bezüglich der Transparenz mindestens gleich gute Ergebnisse wie die hier beschriebenen Proben lieferten und zusätzlich weniger zur Bildung von Sprüngen neigten (25).

Abbildung 32: Ursachen für eine Minderung der Aerogelqualität



Diese Schematik vermittelt einen Überblick der Versuchsergebnisse dieses Abschnitts, die mit dem Methylester der ortho-Kieselsäure gewonnen wurden. Die Stärke der nachgewiesenen Zusammenhänge ist durch die Dicke der Pfeile angedeutet. Der gestrichelte Pfeil weist auf eine vermutete aber nicht nachgewiesene Beziehung hin. Es soll in erster Linie ein Eindruck über die Komplexität der Probleme, die mit der Aerogel-Herstellung verbunden sind, vermittelt werden. Sicherlich sind damit noch nicht alle Faktoren erfaßt worden.

Tabelle 8: Parameter der Aerogelproben guter Qualität

Probe	Lösungsmittel	Katalysator (Konzentration)	Volumenverhältnis Ester:Lösungsmittel:Wasser	Gelie- dauer (h)	Nach- reaktions- quotient	Zahl der Sprünge	Trans- parenz- klasse	Volumen- änderung
KMPVT 33	Isopropanol	$C_6H_{15}NO_3$ (.5%)	10:25: 8.25	.5-3.1	50	1	5 (klar)	0
KMPMV 41	60% Methanol + 40% Isopropanol	$C_6H_{15}NO_3$ (1.%)	10:25: 5	2.-16.2	15	0		0
KMPNV 42			10:25:10			1		- (0-5%)
KMPMV 43			10:25:15			0		< -5%

Für alle Aerogelproben wurde der Methylester der ortho-Kieselsäure benutzt. Die Katalysator-Konzentration ist auf das Wasservolumen bezogen. Die Ungenauigkeit der Gelierdauer der KMPMV-Reihe erklärt sich daraus, daß die Gelbildung über Nacht erfolgte.

IV Der Brechungsindex des Aerogels

Die Bestimmung des Brechungsindex des Aerogels ist nicht nur wichtig, um zu prüfen, ob der Cerenkov-Radiator den Anforderungen der Teilchen-Identifizierung gerecht werden kann (vergleiche Abschnitt II), sondern hilft auch bei der Beurteilung der Herstellungsverfahren. Da der Brechungsindex n des Aerogels von der Aerogeldichte abhängt, kann man über die Messung des Brechungsindex die Homogenität der Aerogelproben testen (Block 11). Besonders interessant ist dabei die Frage, ob das häufige Auftreten von Sprüngen parallel zur Grundfläche bei etwa 60% aller zylindrischen Aerogelproben mit Dichteschwankungen verbunden ist.

Zur Messung des Brechungsindex eines Cerenkov-Radiators stehen mehrere Methoden zur Verfügung, wie zum Beispiel die Bestimmung des Cerenkov-Schwellenimpulses (26) oder des Cerenkovwinkels des Aerogels (vergleiche Abschnitt II). Diese Methoden waren aber in unserem Fall ungeeignet, weil zum Zeitpunkt unserer Messungen beim DESY nur Elektronenstrahlen mit Impulsen von drei Größenordnungen über dem Schwellenimpuls im Aerogel zur Verfügung standen (2.54 MeV/c bei einem Brechungsindex von 1.02); weiterhin ist der Cerenkovwinkel wegen der Lichtstreuung im Aerogel nur sehr ungenau meßbar (vergleiche Abschnitt V.4d). Der Brechungsindex ist wesentlich einfacher mit Hilfe eines LASERS bestimmbar, wobei man entweder den Winkel der Totalreflexion oder die Brechung des Lichts an der Oberfläche des Aerogels messen kann. Der LASER dient dabei nur als Quelle eines eng gebündelten, parallelen, monochromatischen Lichtstrahls.

Da der Totalreflexionswinkel von 78° bei einem Brechungsindex von 1.02 an der porösen Aerogeloberfläche ebenso schwer zu bestimmen ist wie die exakte räumliche Orientierung der glatten

Block 11: Der Zusammenhang zwischen dem Brechungsindex n und der Dichte ρ des Aerogels

Wie im Abschnitt III gezeigt wurde, hängt der Brechungsindex n des Aerogels vom Volumenanteil des amorphen Siliziumdioxids am Gesamtvolumen ab. Die Formel lautete:

$$n(\text{Aerogel}) - 1 = \frac{V(\text{SiO}_2)}{V(\text{total})} (n(\text{SiO}_2) - 1) \quad (1, \text{Block } 6)$$

V = Volumen
n = Brechungsindex

Das Volumenverhältnis V(SiO₂)/V(total) bestimmt außerdem die Dichte ρ des Aerogels:

$$\rho(\text{Aerogel}) = \frac{\rho(\text{SiO}_2)V(\text{SiO}_2) + \rho(\text{Luft})V(\text{Luft})}{V(\text{total})} \quad (1)$$

$$\Rightarrow \frac{V(\text{SiO}_2)}{V(\text{total})} = \frac{\rho(\text{Aerogel}) - \rho(\text{Luft})}{\rho(\text{SiO}_2) - \rho(\text{Luft})} \quad (2)$$

Setzt man die Formel (2) in die Formel (1, Block 6) ein, folgt für den Brechungsindex des Aerogels:

$$n(\text{Aerogel}) - 1 = (n(\text{SiO}_2) - 1) \left(\frac{\rho(\text{Aerogel})}{\Delta \rho} - \frac{\rho(\text{Luft})}{\Delta \rho} \right) \quad (3)$$

$$\Delta \rho = \rho(\text{SiO}_2) - \rho(\text{Luft})$$

Zahlenwerte der Konstanten:

$$\begin{aligned} n(\text{SiO}_2) &= 1.45 \\ \rho(\text{SiO}_2) &= 2.2 \text{ g/cm}^3 \\ \rho(\text{Luft}) &= 1.29 \cdot 10^{-3} \text{ g/cm}^3 \end{aligned}$$

Da die Dichte der Luft klein gegen die des amorphen Siliziumdioxids ist, kann man die Näherung machen:

$$\begin{aligned} n(\text{Aerogel}) - 1 &= \frac{n(\text{SiO}_2) - 1}{\rho(\text{SiO}_2)} \rho(\text{Aerogel}) = \\ &= .2045 \text{ cm}^3/\text{g} \cdot \rho(\text{Aerogel}) \end{aligned} \quad (4)$$

Sprünge innerhalb des Aerogels, an denen Totalreflexion stattfindet, ist eine Messung der Brechung des LASERlichts an der Mediengrenze von Aerogel und Luft die einfachste Methode. Die untersuchten Aerogelproben lagen in zwei verschiedenen Formen vor. Aus Saclay (27) wurden uns hexagonale Proben zur Verfügung gestellt; die bei uns hergestellten Proben hatten aufgrund der bei der Herstellung verwendeten Glasgefäße eine zylindrische Form. Die Proben wurden daher wie ein hexagonales Prisma bzw. wie eine zylindrische Linse in den Strahlengang gebracht und die durch das Aerogel verursachte Ablenkung des LASERstrahls gemessen. Die größte dabei auftretende Schwierigkeit ist mit solchen Inhomogenitäten im Aerogel verbunden, die das LASERlicht so stark auffächern, daß die Ablenkung nur noch mit großer Unsicherheit bestimmt werden kann. Zum Beispiel waren Brechungsindexmessungen nur in Abständen von mindestens .5 cm von den Grundflächen der Aerogelproben möglich.

IV.1 Das Meßprinzip

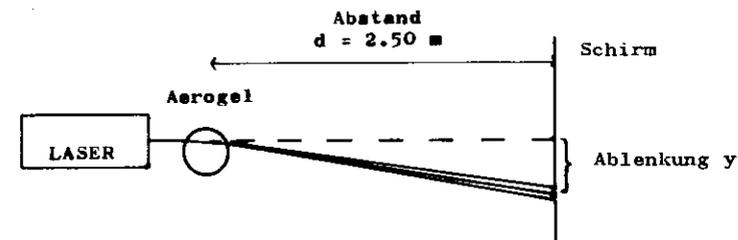
Der Brechungsindex wird über die Lichtbrechung eines LASERstrahls (Wellenlänge $\lambda = 633 \text{ nm}$) an der Mediengrenze zwischen Aerogel und Luft bestimmt. Dabei wird die nach dem Brechungsgesetz geltende Beziehung

$$\frac{\sin \alpha_1}{\sin \alpha_2} = \frac{c_1}{c_2} = \frac{n_2}{n_1}$$

α_i = Winkel des Lichtstrahls im Medium i relativ zur Normalen der Mediengrenze
 c_i = Lichtgeschwindigkeit im Medium i
 n_i = Brechungsindex des Mediums i

ausgenutzt. Den Versuchsaufbau zeigt die Abbildung 33.

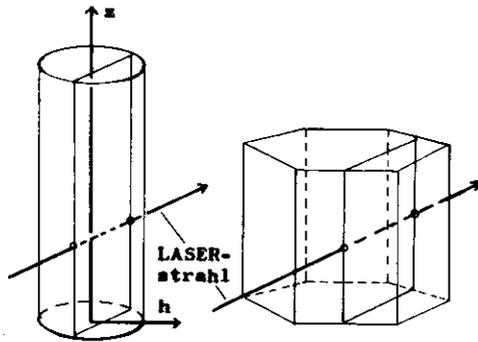
Abbildung 33: Der Versuchsaufbau zur Messung des Brechungsindexes



Ein Helium-Neon-LASER dient als Quelle eines parallelen, monochromatischen Lichtstrahls der Wellenlänge $\lambda = 633 \text{ nm}$. Das Aerogel befindet sich auf einem Tisch, der senkrecht zum Strahl in zwei Richtungen verstellbar ist; damit läßt sich der Brechungsindex an verschiedenen Stellen in der Aerogelprobe messen. Wegen des niedrigen Brechungsindex des Aerogels ist ein relativ großer Abstand $d = 2.50 \text{ m}$ vom Aerogel zum Schirm notwendig, um eine Lichtablenkung y auf dem Schirm von etwa 20 cm zu erreichen.

Der Brechungsindex wurde als Funktion der Höhe z über der Grundfläche der Aerogelproben und bei den zylindrischen Stücken zusätzlich als Funktion des Abstandes h von der Zylinderachse gemessen. (Abb. 34)

Abbildung 34: Die Koordinaten bei der Brechungsindexmessung



In der Abbildung sind die Koordinaten dargestellt, in deren Abhängigkeit der Brechungsindex gemessen wurde; links die Verhältnisse in den von uns hergestellten zylindrischen und rechts in den uns von Saclay (27) zur Verfügung gestellten hexagonalen Proben. Der Anschaulichkeit halber ist die Einfallsebene des LASERstrahls eingezeichnet worden.

Die genauen Verhältnisse in der Bestimmung des Brechungsindex sind im Block 12 für hexagonale und zylindrische Aerogelproben dargestellt.

Der Nachteil dieser Methode ist, daß der Brechungsindex n direkt und nicht (n-1) gemessen wird, weshalb bei einem Brechungsindex von 1.02 eine Genauigkeit von $\Delta n/n$ im Promille-Bereich notwendig ist, um sinnvolle Aussagen über Dichteschwankungen im

Block 12: Die Bestimmung des Brechungsindex n

Der Brechungsindex wird aus dem Ablenkwinkel, gegeben durch die Ablenkung y des Lichtstrahls auf einem Schirm und dem Abstand d des Aerogels zum Schirm, bestimmt. Nach dem Brechungsgesetz gilt für den Brechungsindex n des Aerogels:

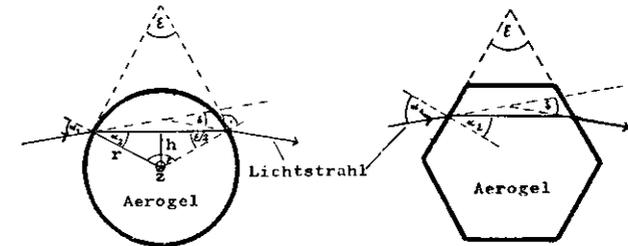
$$n(\text{Aerogel}) = \frac{\sin \alpha_1}{\sin \alpha_2} n(\text{Luft}) \quad (1)$$

$$n(\text{Luft}) = 1.00028$$

Für die Winkel α_1, α_2 gilt sowohl in zylindrischen als auch in hexagonalen Proben, falls der Lichtstrahl sie symmetrisch durchläuft (siehe Abbildung):

$$\alpha_1 = \frac{\delta + \epsilon}{2} \quad \alpha_2 = \frac{\epsilon}{2} \quad (2)$$

$$\text{mit: } \delta = \arctg \frac{y}{d} \quad (3)$$



Der einzige Unterschied zwischen den geometrischen Verhältnissen der Proben besteht im Winkel ϵ , der bei den hexagonalen Stücken 60° beträgt, während er bei den zylindrischen vom Abstand h des Lichtstrahls von der Zylinderachse abhängt:

$$\epsilon = 2 \arcsin \frac{h}{r} \quad (4)$$

r = Radius des Zylinders

Damit erhält man für den Brechungsindex n des Aerogels:

a) hexagonale Stücke:

$$n_H(\text{Aerogel}) = \frac{\sin \left(\frac{\arctg \frac{y}{d} + 30^\circ}{2} \right)}{2} \cdot n(\text{Luft}) \quad (5a)$$

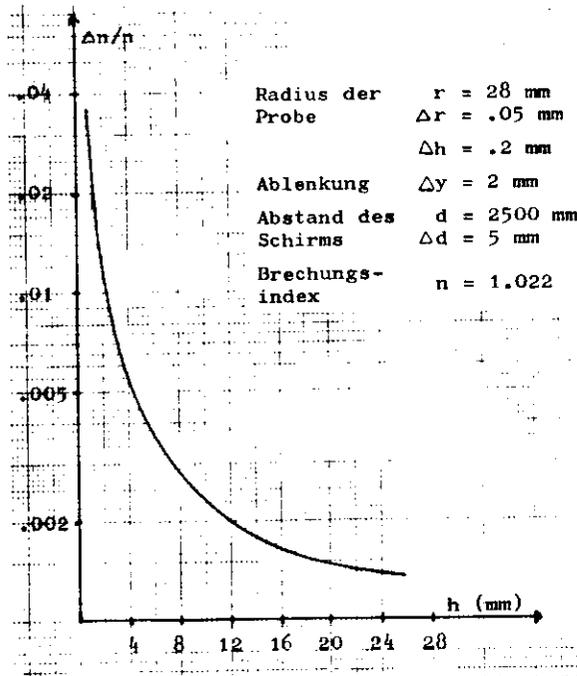
b) zylindrische Stücke:

$$n_Z(\text{Aerogel}) = \frac{r}{h} \sin \left(\frac{\arctg \frac{y}{d} + \arcsin \frac{h}{r}}{2} \right) \cdot n(\text{Luft}) \quad (5b)$$

Aerogel machen zu können. Dies setzt eine exakte Bestimmung der Aerogelabmessungen und der Lichtablenkung y voraus. Letzterer sind durch die Aufweitung des LASERstrahls im Aerogel Grenzen gesetzt; die erreichten Genauigkeiten lagen bei $\Delta y \approx 2\text{mm}$.

Ein großer Vorteil der hexagonalen Proben ist, daß sie eine ortsunabhängige Ablenkung des Lichtstrahls hervorrufen, während sie bei den zylindrischen Stücken mit dem Abstand h von der Zylinderachse wächst. Da der absolute Fehler Δy der Lichtablenkung y nahezu konstant ist, erhöht sich bei den zylindrischen Proben der relative Fehler $\Delta y/y$ mit sinkendem Abstand h von der Zylinderachse, dessen relativer Fehler $\Delta h/h$ analog für kleinen Abstand gegen unendlich geht. Aus diesem Grunde ist der Brechungsindex n nur in größeren Abständen h von mindestens $1/4$ des Zylinderradius sinnvoll meßbar, während er in hexagonalen Stücken im gesamten Volumen bestimmt werden kann. (Abb. 35)

Abbildung 35: Der systematische, relative Fehler $\Delta n/n$ des Brechungsindex n einer zylindrischen Aerogelprobe.

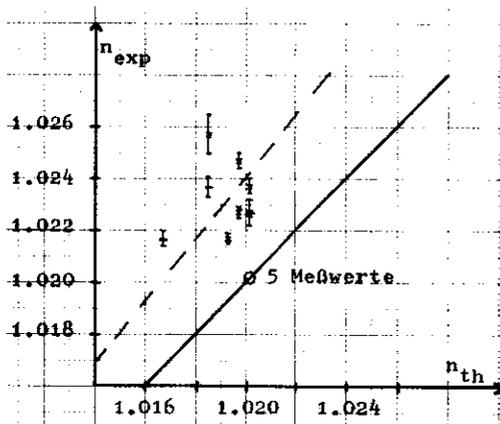


Die Abbildung zeigt, wie der Fehler Δn des Brechungsindex n steigt, wenn der Abstand h des Lichtstrahls von der Zylinderachse sinkt. Die für dieses Beispiel zugrunde gelegten Daten entsprechen den von uns hergestellten Aerogelproben mit einem Volumen von etwa 150 cm^3 . Da zur Registrierung von Dichteschwankungen Genauigkeiten im Promille-Bereich erforderlich sind, kann der Brechungsindex nahe des Zentrums nicht exakt genug gemessen werden.

IV.2 Die Resultate der Brechungsindex-Messungen

Der Brechungsindex wurde von den im Abschnitt III beschriebenen Aerogelen und zusätzlich von Proben bestimmt, die aus dem Methyl ester der ortho-Kieselsäure mit Methanol als Lösungsmittel hergestellt worden sind (25). Das Volumen der Proben variierte zwischen 90 cm^3 und 250 cm^3 , ihre Radien zwischen 20 mm und 28 mm. Der systematische Fehler der Messung lag bei .2% (vergleiche Abschnitt IV.1); größere Schwankungen im Brechungsindex traten nur in Proben mit Sprüngen auf und sind durch Inhomogenitäten im Aerogel bedingt.

Abbildung 36: Vergleich des gemessenen mit dem erwarteten Brechungsindex



In der Abbildung sind alle im Abschnitt III beschriebenen Proben berücksichtigt, bei denen eine Messung des Brechungsindexes möglich war. Die Volumenänderung bezieht sich auf die Differenz zwischen dem Aerogel- und dem Alkogelvolumen; im Kreis liegen 5 Meßpunkte, davon 2 ohne Volumenänderung, während 3 Proben um 5 - 10% gewachsen sind. Der theoretische Brechungsindex (durchgezogene Gerade) wurde nach der Formel (3) im Block 6 (Abschnitt III.1a) berechnet. Berücksichtigt man zusätzlich den beobachteten Volumenschwund (etwa 20%) beim Ansatz des Alkogels,

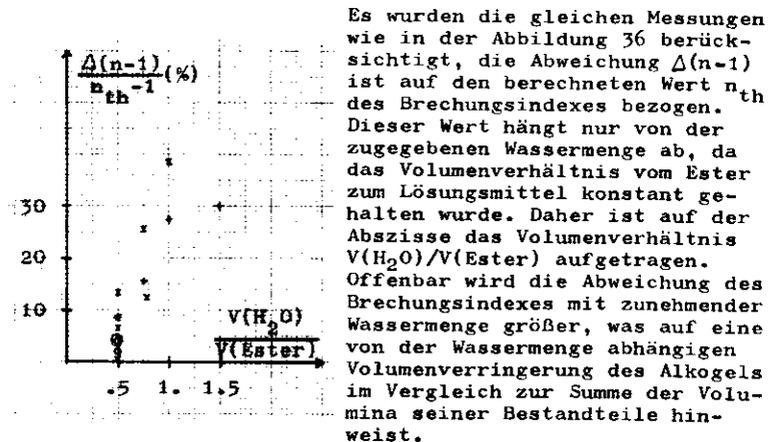
Volumenänderung ΔV :
 $\times = 0$ $+ = -(0-5\%)$

dann erwartet man einen etwas höheren Brechungsindex (gestrichelte Gerade), der relativ gut mit den Meßdaten übereinstimmt.

Vergleicht man zunächst den gemessenen mit dem nach Block 6 (Abschnitt III.1a) berechneten Brechungsindex n_{th} , dann fällt auf, daß bei niedrigen Brechungsindizes Abweichungen der Meßwerte bis zu 30% von $(n_{th}-1)$ auftreten. Die beobachtete Volumendifferenz zwischen dem Aerogel und dem Alkogel ist zu gering, um so große Abweichungen erklären zu können. Berücksichtigt man jedoch den beobachteten Volumenschwund beim Alkogelansatz ($\approx 20\%$), so stimmen die Meßwerte recht gut mit den erwarteten Werten überein (Abbildung 36).

Da bei der Herstellung der Proben das Volumenverhältnis vom Ester zum Lösungsmittel konstant war, wurden die Variationen des Brechungsindexes in erster Linie

Abbildung 37: Die Abweichung des gemessenen vom berechneten Brechungsindex



Es wurden die gleichen Messungen wie in der Abbildung 36 berücksichtigt, die Abweichung $\Delta(n-1)$ ist auf den berechneten Wert n_{th} des Brechungsindexes bezogen. Dieser Wert hängt nur von der zugegebenen Wassermenge ab, da das Volumenverhältnis vom Ester zum Lösungsmittel konstant gehalten wurde. Daher ist auf der Abszisse das Volumenverhältnis $V(H_2O)/V(Ester)$ aufgetragen. Offenbar wird die Abweichung des Brechungsindexes mit zunehmender Wassermenge größer, was auf eine von der Wassermenge abhängigen Volumenverringerung des Alkogels im Vergleich zur Summe der Volumina seiner Bestandteile hinweist.

Volumenänderung ΔV des Aerogels im Vergleich zum Alkogel:
 $\times = 0$ $+ = -(0-5\%)$ $\circ = +(5-10\%)$

durch die zugegebene Wassermenge zum Alkogelansatz beeinflusst. Es ist also auch eine Korrelation zwischen dem Volumenschwund beim Alkogelansatz und der Wassermenge denkbar; daß heißt, das eine größere zugegebene Wassermenge zu größerem Volumenschwund beim Alkogelansatz und damit zu einer größeren Dichte im Aerogel führt (Abbildung 37).

Ein großer Teil der Messungen bezog sich auf den örtlichen Verlauf des Brechungsindex, bzw. der Dichte im Aerogel; insbesondere wurde untersucht, ob die häufig auftretenden Sprünge parallel zu den Grundflächen des Zylinders (Querschnittsprünge) mit Dichteschwankungen im Aerogel gekoppelt sind. Eine Übersicht der auftretenden Schäden in den Aerogelproben gibt die Tabelle 9.

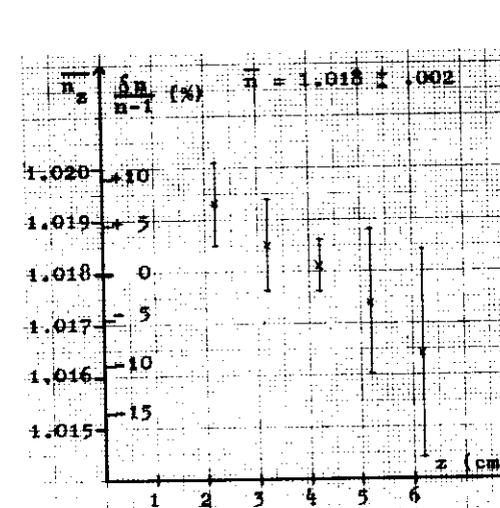
Tabelle 9: Übersicht der untersuchten Aerogelproben

Lösungsmittel	Zahl der Proben			
	untersucht	unversehrt	mit Querschnittsprünge	mit sonstigen Sprünge
Methanol (25)	7	3	4	0
60% Methanol 40% Isopropanol	3	2	0	1
Isopropanol	13	0	7	6
Azeton	4	1	2	1
Summe	27	6	13	8

Zusätzlich zu den im Abschnitt III beschriebenen Aerogelen wurden Proben untersucht, die mit Methanol als Lösungsmittel hergestellt worden sind. 60% aller beschädigten Proben weisen Querschnittsprünge auf. Die übrigen Sprünge verlaufen entweder senkrecht zu den Grundflächen durch die Aerogelprobe, oder das gesamte Aerogel ist von kurzen, gekrümmten Sprünge durchsetzt.

Bei den unversehrten Proben, deren Volumen sich gegenüber dem Alkogelvolumen nicht geändert hat, stimmt die Streuung des Brechungsindex sehr gut mit dem im vorhergegangenen Abschnitt bestimmten systematischen Fehler überein ($\approx 2\%$). Es ist jedoch auffällig, daß der Brechungsindex von der Grundfläche, daß heißt vom Boden des Gefäßes, in dem das Gel gebildet wurde, zur Deckfläche abnimmt (Abbildung 38).

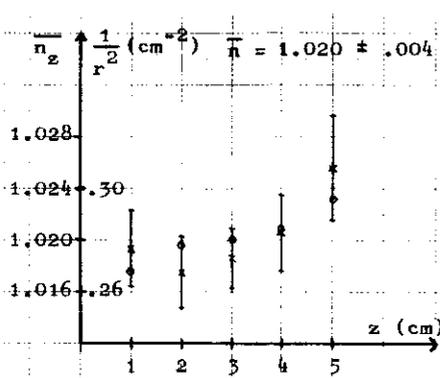
Abbildung 38: Der Brechungsindex in einer unversehrten Aerogelprobe



Die Abbildung zeigt den Brechungsindex \bar{n}_z entlang der z-Achse und die relative Abweichung $\delta n / (n-1)$ des Brechungsindex vom Mittelwert der zylindrischen Aerogelprobe P1, die 7.5 cm lang ist. Jeder Wert von \bar{n}_z wurde über 6 radiale Meßpunkte gemittelt, die Streuung jedes Werts ist kleiner als der geschätzte systematische Fehler (vergleiche Abschnitt IV.1); der über alle 30 Meßpunkte gemittelte Brechungsindex \bar{n} ist mit seinem statistischen Fehler angegeben. Der Brechungsindex \bar{n}_z nimmt mit wachsendem z ab, sein mittlerer Gradient dn/dz beträgt $4.6 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$.

Im Gegensatz dazu hat der Gradient dn/dz des Brechungsindex n bei den über 5% geschrumpften Aerogelen das entgegengesetzte Vorzeichen, vermutlich ist die Volumenänderung an der

Abbildung 39: Der Brechungsindex in einer unverzerrten, stark geschrumpften Aero-gelprobe



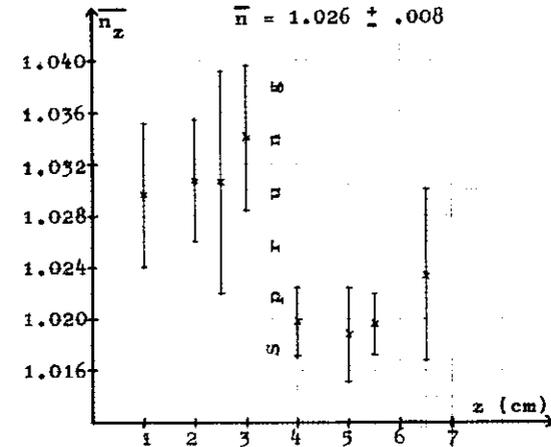
Die Abbildung zeigt den Brechungsindex \bar{n}_z entlang der z-Achse der um 5% - 10% geschrumpften, zylindrischen Aero-gelprobe KMPMV 43, die 5.5 cm lang ist. Jeder Wert \bar{n}_z ist über 3 radiale Meßpunkte gemittelt worden; der mittlere Brechungsindex \bar{n} ist mit dem statistischen Fehler angegeben. Die Zunahme des Brechungsindex mit wachsendem z entspricht der Volumenschrumpfung des Aero-gels senkrecht zur Zylinderachse, die durch die

Kreise markiert ist. Allerdings zeigt eine quantitative Rechnung mit den Formeln des Blocks 11 (Abschnitt IV), daß der Brechungsindex nicht alleine durch die Volumendifferenz zwischen dem Alkogel und dem Aero-gel erklärbar ist.

Deckfläche am größten; dies konnte in Bezug auf die Schrumpfung senkrecht zur Zylinderachse der Probe KMPMV 43 nachgewiesen werden (Abbildung 39).

Aussagen über eine Kopplung von Dichteschwankungen und Sprüngen parallel zur Zylinderachse sind nicht möglich, da dies im allgemeinen eine Messung des Brechungsindex nahe der Zylinderachse erfordert, was zu großen systematischen Fehlern führt (vergleiche Abschnitt IV.1). Die Querschnittsprünge sind hinsichtlich der Brechungsindexschwankungen wesentlich einfacher zu untersuchen, weil der systematische Fehler unabhängig von z ist. Die größte auftretende Schwierigkeit bei diesen Messungen ist, daß nahe der Sprungstellen das Aero-gel meist so inhomogen ist, daß der LASERstrahl zu stark aufgefächert wird,

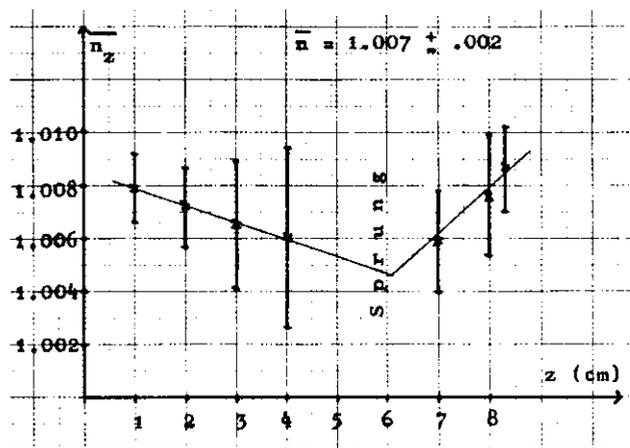
Abbildung 40: Die Änderung des Brechungsindex an einer radialen Sprungstelle im Aero-gel



Die Abbildung zeigt den Brechungsindex \bar{n}_z entlang der z-Achse der zylindrischen Aero-gelprobe KMPVT 22, die 7. cm lang ist. Jeder Wert von \bar{n}_z wurde über 4 radiale Meßpunkte gemittelt, der mittlere Brechungsindex \bar{n} der Probe ist mit seinem statistischen Fehler angegeben. An der Sprungstelle ändert sich der Brechungsindex $(\bar{n}_z - 1)$ um das 1.8fache seines statistischen Fehlers.

um eine ausreichende Genauigkeit der Messung zu erzielen. Daher ist eine Bestimmung des Brechungsindex in den meisten Fällen nur in einem senkrechten Abstand von mindestens .5 cm bis 1 cm von den radialen Sprüngen möglich. Aus diesem Grund war eine deutliche Schwankung im Brechungsindex selbst nur bei einer, kleinere Schwankungen jedoch bei 11 von 22 untersuchten Schadstellen feststellbar. Es ist zu vermuten, daß nahe der Sprungstelle die Variation des Brechungsindex am größten ist (Abbildung 40).

Abbildung 41: Vorzeichenwechsel des Gradienten dn/dz des Brechungsindex an einer radialen Sprungstelle im Aerogel

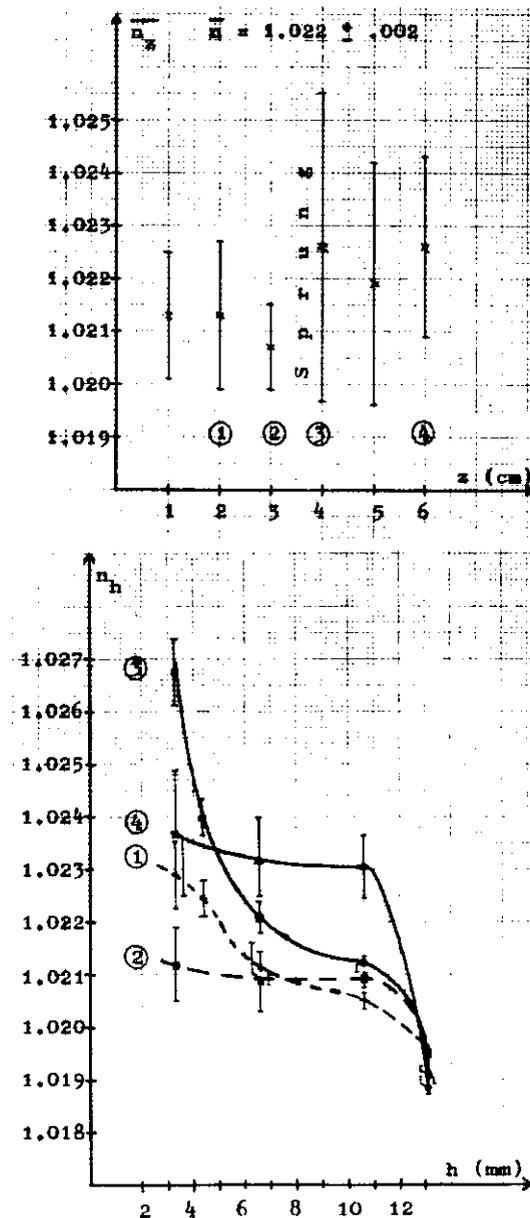


Die Abbildung zeigt den Brechungsindex \bar{n}_z entlang der z-Achse der zylindrischen Aerogelprobe V 33. Ihr außergewöhnlich niedriger Brechungsindex ist oben angegeben, ihre Länge beträgt 12. cm. Jeder Wert \bar{n}_z wurde über 5 radiale Meßpunkte gemittelt. An der Sprungstelle ändert sich das Vorzeichen des Gradienten dn/dz des Brechungsindex \bar{n}_z , dessen Verlauf durch die dünnen Linien angedeutet ist.

Bei der Hälfte der 22 untersuchten Sprünge wurde ein Vorzeichenwechsel des Gradienten dn/dz des Brechungsindex festgestellt, was ebenfalls auf eine Dichteschwankung hinweist, die an der Schadensstelle sehr beträchtlich sein kann (Abbildung 41).

Zusätzlich konnte bei 12 von 22 Sprüngen eine starke Änderung der Variation σ_{n_z} des Brechungsindex gemessen werden, die mit einem unterschiedlichen Verlauf des Brechungsindex senkrecht zur Zylinderachse auf beiden Seiten der Sprungstelle verbunden war. Dies zeigt, daß sich auch radiale Inhomogenitäten im Aerogel bilden, die zu Sprüngen führen können (Abbildung 42).

Abbildung 42: Änderung der Streuung σ_{n_z} des Brechungsindex an einer radialen Sprungstelle



Oben ist der Brechungsindex \bar{n}_z entlang der z-Achse, unten die radialen Meßpunkte für die Mittelwerte 1 bis 4 dargestellt. Der mittlere Brechungsindex \bar{n} der zylindrischen Aerogelprobe KMPVT 33 ist mit dem statistischen Fehler σ_n angegeben. Die Probe ist 7.2 cm lang, ihr Radius beträgt 21.6 mm. In der oberen Abbildung erkennt man an der zur Grundfläche parallelen Sprungstelle eine starke Vergrößerung der radialen Streuung des Brechungsindex um einen Faktor $\sigma_z/\sigma_n = 3.6$, verbunden mit einer Erhöhung des Brechungsindex um etwa σ_n . In der unteren Abbildung, in der die systematischen und statistischen Fehler berücksichtigt sind, sieht man, wie der Brechungsindex zum Rand der Probe deutlich abfällt. Besonders auffällig ist, daß der Verlauf des Brechungsindex auf beiden Seiten der Sprungstelle unterschiedlich ist (gestrichelte bzw. durchgezogene Kurven). Direkt an der Sprungstelle (Kurve 3) nimmt der Brechungsindex zur Achse des Zylinders sehr stark zu, während er am Rand offenbar für alle z konstant ist. Dies zusammen weist auf radiale Inhomogenitäten im Aerogel hin.

Tabelle 10: Brechungsindexschwankungen an Sprungstellen parallel zu den Grundflächen des Aerogels

Art der Schwankung	Zahl der Querschnittssprünge
Summe	22
Vorzeichenwechsel im Gradienten dn/dz des Brechungsindex n_z	11
Änderung der Streuung ϵn_z um einen Faktor ϵ_z/ϵ_z :	
> 1.5	7
> 2.0	4
> 3.0	1
Änderung des Brechungsindex $(\bar{n}_z - 1)$ um:	
$> .5 \epsilon n$	10
$> 1. \epsilon n$	1
ohne nachgewiesene Schwankung	4

Die Tabelle gibt eine Übersicht der in diesem Abschnitt beschriebenen Eigenschaften aller untersuchten Proben mit Querschnittssprüngen. Es ist jede einzelne Schadstelle aufgeführt. Bei nur 18% der Schadstellen konnte keine Brechungsindexschwankung nachgewiesen werden. Die Proben, die einen Vorzeichenwechsel in dn/dz aufweisen, wurden im Abschnitt III als mit nachgewiesenen Dichteschwankungen deklariert. Viele dieser Proben weisen an der Sprungstelle zusätzlich eine plötzliche, sehr große Änderung im Brechungsindex n_z selbst oder in der Variation ϵn_z auf.

Faßt man alle Messungen zusammen, dann ist bei 50% der radialen Sprünge im Aerogel ein Vorzeichenwechsel des Gradienten dn/dz des Brechungsindex \bar{n}_z nachgewiesen worden. Relativ viele Schadstellen sind mit Schwankungen des Brechungsindex selbst oder der radialen Streuung des Brechungsindex verbunden (Tabelle 10). Diese Merkmale zeigen, daß ein großer Teil der Sprünge mit Inhomogenitäten im Aerogel gekoppelt ist, deren Ursache bereits in der Alkogerherstellung zu suchen ist (vergleiche Abschnitt III.2b).

V. Testmessungen mit Aerogel als Cerenkov-Radiator

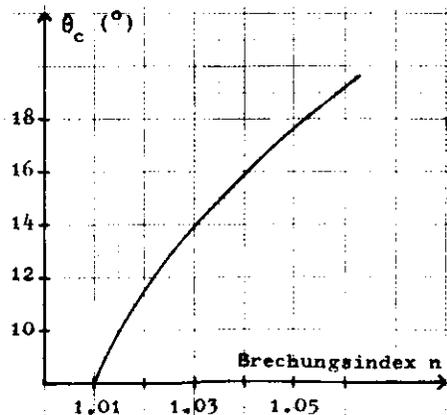
Der Einsatz von Aerogel als Cerenkov-Radiator ist vor allem schwierig, weil der große Cerenkovwinkel von 11.4° (Brechungsindex $n = 1.02$) die Lichtsammlung erschwert und außerdem die Lichtstreuung im Aerogel die optischen Eigenschaften weiter verschlechtert. Technische Probleme entstehen dadurch, daß der Radiator bausteinweise zusammengesetzt werden muß, weil die erreichbare Qualität des Aerogels mit der Größe der produzierten Stücke abnimmt und weiterhin das Autoklavvolumen die Größe limitiert.

In diesem Abschnitt sind die Untersuchungen bezüglich der Eigenschaften des Aerogels als Cerenkov-Radiator und einiger einfacher Optiken von Cerenkovzählern beschrieben. Für diese Messungen stand uns im DESY ein Elektronenstrahl mit Impulsen im GeV/c-Bereich zur Verfügung. Neben Plan- und ellipsoiden Spiegeln wurden im Cerenkovzähler eine Winston-Lichttüte (28), einfache Luft-Lichtleiter und reflektierende Folien zur Sammlung diffusen Lichts eingesetzt. Dabei dienten uns als Cerenkov-Radiator zunächst zwei hexagonale Aerogelproben aus Saclay (27) (Radiatorlängen: 3.3 cm und 4.4 cm, mittlere Brechungsindizes: 1.048 und 1.060). Mit einem einfacheren Aufbau wurden schließlich die von uns hergestellten Radiatoren miteinander und mit den Proben aus Saclay verglichen. Besonderes Interesse galt dabei der Abhängigkeit des Wirkungsgrades von der Radiatorlänge und seinem Brechungsindex, der Lichtstreuung und Absorption im Aerogel und dem Einfluß von Fugen in einem Radiator, der aus mehreren Proben zusammengesetzt ist.

V.1 Die Erzeugung von Cerenkovlicht in Aerogel

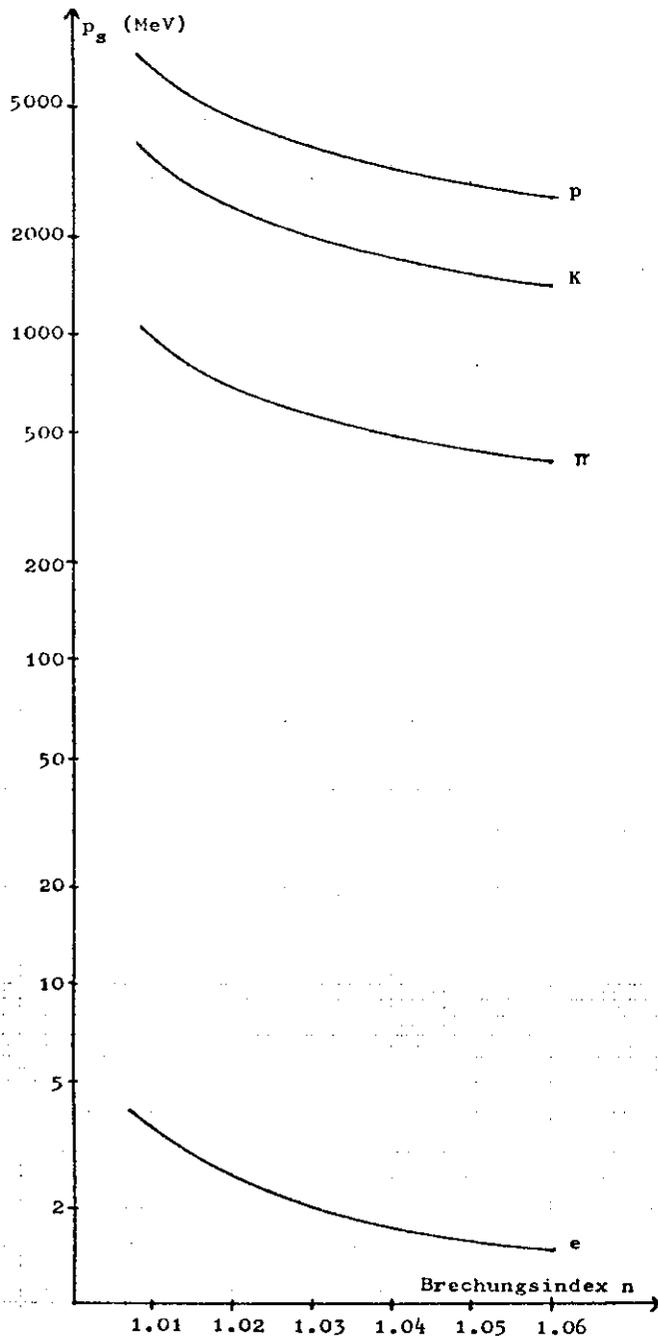
Mit den im Abschnitt II.1 beschriebenen Grundlagen des Cerenkoeffekts kann man wichtige Aussagen über das zu erwartende Verhalten des Aerogels als Cerenkov-Radiator gewinnen. Neben der bereits im Kapitel II.1 gezeigten Zahl von Photonen pro Zentimeter Weglänge eines geladenen Teilchens im Radiator (Abbildung 3) sind der Cerenkovwinkel (Abbildung 43, vergleiche Abschnitt II.1, Block 1) und der Schwellenimpuls (Abbildung 44, vergleiche Abschnitt II.2, Block 2) im Aerogel berechenbar. Die Zahl der erzeugten Photonen nimmt mit $\sin^2 \theta_c$ zu (Abschnitt II.1, Block 1), jedoch wird es mit wachsendem Cerenkovwinkel θ_c immer schwieriger, die Photonen auf die Photovervielfacherröhren des Cerenkovzählers abzubilden.

Abbildung 43: Der Cerenkovwinkel θ_c für Teilchen mit Vakuum-Lichtgeschwindigkeit



Bereits im vorhergegangenen Abschnitt wurde auf die Streuung und Absorption des Cerenkovlichts im Aerogel hingewiesen. Da diese beiden Effekte im Cerenkovzähler nicht vollständig getrennt werden können, ist es am einfachsten, die Transmission zu betrachten. Die Transmissionslänge des Aerogels liegt für den mit den Photovervielfacherröhren nachweisbaren Wellenlängenbereich in der Größenordnung

Abbildung 44: Der Cerenkov-Schwellenimpuls p_s



Die Abbildung zeigt den Schwellenimpuls p_s im Arbeitsbereich des Aerogels. Er ist für Elektronen (e) wegen ihrer kleinen Masse um 3 Größenordnungen niedriger als für Pionen (π), Kaonen (K) und Protonen (p).

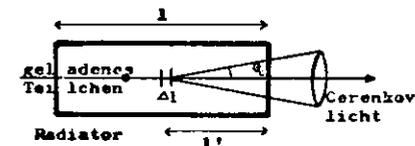
von 2 cm und ist daher in den meisten unserer Versuchsmessungen kleiner als die Radiatorlänge. Man erwartet deshalb eine Sättigung der Zahl der nachgewiesenen Photonen. Ein großer Teil des gestreuten Lichts erfährt nur eine geringe Richtungsänderung und kann daher zum Teil noch auf die Photovervielfacherröhren des Zählers gelangen (vergleiche Abschnitt VI). Daher hängt die im Cerenkovzähler gemessene Sättigung außer von den Aerogeleigenschaften noch von der Optik des Zählers ab und stimmt nur größenordnungsmäßig mit der effektiven Transmissionslänge $T(\lambda)$ des Aerogels überein (Block 13).

Block 13: Streuung und Absorption des Cerenkovlichts im Aerogel

Ein geladenes Teilchen erzeugt längs der Wegstrecke Δl im Radiator ΔN Photonen (siehe Abbildung). Nimmt man an, daß die Zahl der davon nachgewiesenen Photonen ΔN_g exponentiell mit ihrer Weglänge $l'/\cos\theta_c$ im Radiator abnimmt, gilt:

$$\Delta N_g = \Delta N \exp\left(-\frac{l'}{\cos\theta_c T_c}\right) \quad (1)$$

T_c = Transmissionslänge des Aerogels für den Nachweis der Photonen im Cerenkovzähler
 θ_c = Cerenkovwinkel



Integriert man die Formel (1) über die Radiatorlänge l , erhält man für die Zahl N_g der nachgewiesenen Photonen:

$$N_g = N T_c \cos\theta_c \left(1 - \exp\left(-\frac{l}{\cos\theta_c T_c}\right)\right) \quad (2)$$

N = Zahl der im Cerenkovradiator pro Einheitsweglänge erzeugten Photonen
 l = Radiatorlänge

Näherungen:

a) $T_c \gg l$:

$$N_g \Big|_{T_c \gg l} = N l \quad (3)$$

b) $l \gg T_c$:

$$\lim_{l \rightarrow \infty} N_g = N T_c \quad (4)$$

Aus den Näherungsformeln (3) und (4) folgt für die Transmissionslänge T_c :

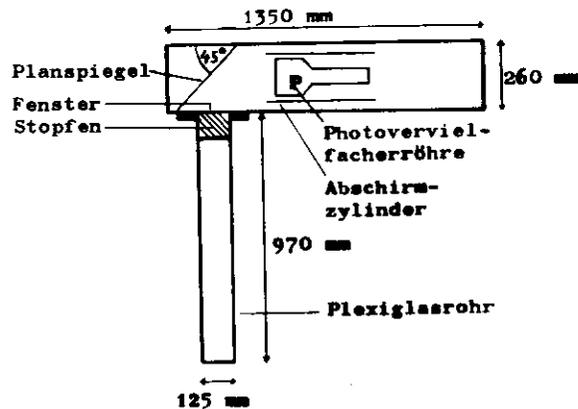
$$T_c = \frac{l}{N_g} \Big|_{l \ll T_c} \cdot \lim_{l \rightarrow \infty} N_g \quad (5)$$

Man kann also die Transmissionslänge T_c des Aerogels für den Photonennachweis im Cerenkovzähler bestimmen, indem man das bei sehr großen und bei sehr kleinen Radiatorlängen gemessene Cerenkovlicht miteinander vergleicht. Allerdings wurde in dieser Betrachtung die Wellenlängenabhängigkeit der Streuung und Absorption vernachlässigt. Daher sind aufgrund des kontinuierlichen Cerenkovspektrums nur Abschätzungen über die effektive Transmission $T(\lambda)$ des Aerogels möglich.

V.2 Der Versuchsaufbau der Testmessungen

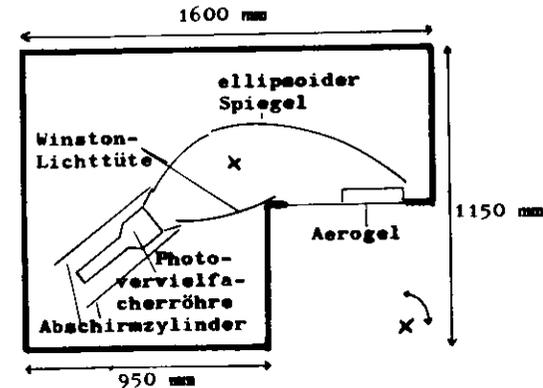
Die Messungen wurden im Elektronen-Teststrahl 26 des DESY durchgeführt. Die Impulse der Elektronen lagen bei 3 GeV/c, die Rate der im Cerenkovzähler ohne Strahldefinierung nachgewiesenen Elektronen (Einzelzählrate) lag bei 15 kHz. Für unsere Testmessungen standen uns 2 Cerenkovzähler zur Verfügung. Der kleinere Zähler (Abbildung 45) diente, neben dem Test einfacher Optiken, vor allem zur Untersuchung der von uns hergestellten Aerogelproben; im großen Zähler (Abbildung 46) wurden mit den Verhältnissen im TASSO-Detektor vergleichbare Optiken getestet.

Abbildung 45: Cerenkovzähler zum Vergleich der Aerogelproben



Dieser Cerenkovzähler wurde zum Test einfacher Optiken und vor allem zur Untersuchung der von uns hergestellten Aerogel-Radiatoren eingesetzt. Das abnehmbare Plexiglasrohr diente in der 1. Meßreihe zu Kontrollmessungen mit Luft als Radiator, die Radiatorlänge war mit Hilfe des Stopfens variierbar. Die Aerogelproben befanden sich zwischen dem Fenster und dem Planspiegel, der das Cerenkovlicht auf die Photovervielfacherröhre lenkte. Der Abschirmzylinder aus Mumetall sorgte für ein hinreichend niedriges Magnetfeld in der Photovervielfacherröhre.

Abbildung 46: Cerenkovzähler mit einem ellipsoiden Spiegel

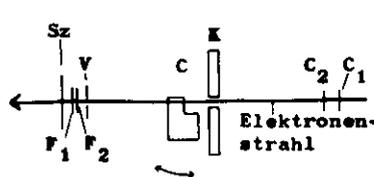


Dieser Cerenkovzähler diente zum ersten Test von Optiken, die mit den Verhältnissen im TASSO-Detektor vergleichbar waren. Der ellipsoide Spiegel hat die gleichen Eigenschaften wie die der Gas-Schwellencerenkovzähler im DASP-Detektor (2); als weitere optische Elemente wurden eine Winston-Lichttüte (28) und als Übergangselement

zur Photovervielfacherröhre ein konusförmiger Luftlichtleiter aus verspiegelter Mylarfolie eingesetzt. Um im Zähler die Weglänge der Elektronen durch Luft gering zu halten, wurde er in der dargestellten L-Form gebaut. Die Kreuze markieren die Brennpunkte des Spiegels. Der Zähler ist um die senkrecht durch den äußeren Brennpunkt gehende Achse drehbar, so daß dies als fiktiver Wechselwirkungspunkt eines Speicherrings betrachtet werden kann. Die verschiedenen Teilchenrichtungen wurden durch Drehung des Zählers um diese Achse simuliert.

Der Elektronenstrahl wird im Teststrahl 26 räumlich nur sehr grob durch Blei-Kollimatoren begrenzt, daher ist es für eine zeitliche und engere räumliche Eingrenzung notwendig, den Strahl durch eine Koinzidenzschaltung kleiner Szintillationszähler zu definieren. Neben den im Teststrahl fest aufgebauten Zählern C_1, C_2 haben wir mit verschiedenen Sätzen von zusätzlichen Szintillationszählern gearbeitet; dabei haben sich besonders gekreuzte Fingerzähler und sehr kleine Szintillationszähler (Querschnitt zum Strahl $1 \text{ cm}^2 - 2 \text{ cm}^2$) vor und hinter dem Cerenkovzähler, in Strahlrichtung gesehen, bewährt. (Abbildung 47)

Abbildung 47: Versuchsaufbau im Teststrahl 26



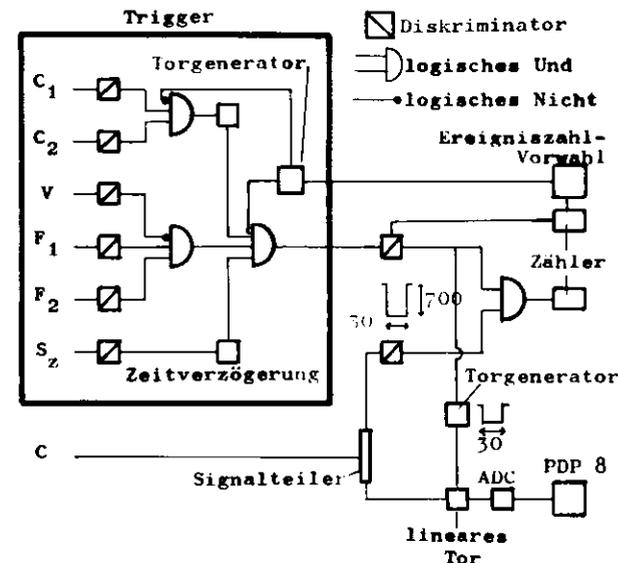
In der Abbildung ist als Beispiel der Versuchsaufbau der Meßreihe zum Test einer Optik mit ellipsoidem Spiegel dargestellt. Die Kollimatoren (K) haben einen so großen Durchmesser, daß zur engeren räumlichen Definition des durch den Cerenkov-

zählers (C) gehenden Elektronenstrahls Szintillationszähler notwendig sind, die außerdem den Zeitpunkt des Durchgangs eines Elektrons durch den Zähler festlegen. Neben den fest eingebauten Zählern (C_1, C_2) wurden in diesem Fall zwei gekreuzte Fingerzähler (F_1, F_2), ein großflächiger Szintillationszähler (Sz) und ein Vetozähler (V) mit einem Schlitz von 3 mm Breite eingesetzt. In diesem Aufbau war der Durchmesser des definierten Elektronenstrahls sehr klein, es konnte aber, zum Beispiel durch Herausnehmen des Vetozählers aus der Koinzidenz, mit einem breiter definierten Strahl gearbeitet werden. Der Doppelpfeil am Cerenkovzähler deutet seinen Drehbereich von etwa 15° an.

Die Signale der Szintillationszähler wurden zu Triggerimpulsen zusammengefaßt, die den Elektronenstrahl definierten. Die Koinzidenz von den Cerenkovzählersignalen mit den Triggerimpulsen wurden dann mit dem Trigger selbst verglichen. In den ersten beiden Meßreihen haben wir zusätzlich Impulshöhenspektren der Cerenkovzählersignale analysiert, wozu uns ein PDP 8-Rechner zur Verfügung stand (Abbildung 48). Es zeigte sich jedoch, daß, vermutlich wegen der langen Übertragungswege, die Signale zu breit waren, um die Spektren gut auswerten zu können (vergl. Abschn. V.4).

Zum Nachweis des Cerenkovlichts wurde in fast allen Meßreihen die Photovervielfacherröhre RCA 8854 eingesetzt, deren Katode einen Durchmesser von

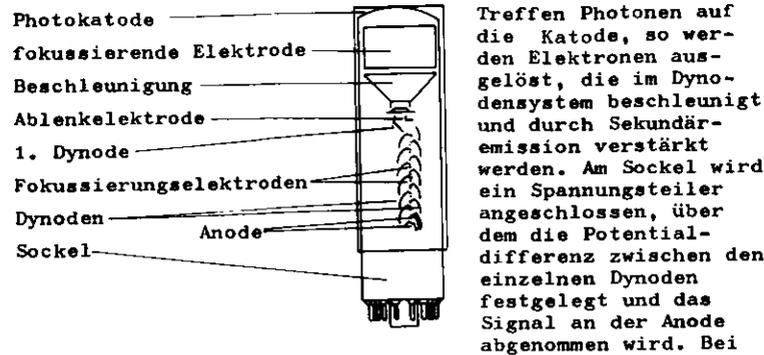
Abbildung 48: Das Schaltbild zum Versuchsaufbau im Teststrahl



Es ist das zum Versuchsaufbau der Abbildung 47 gehörende Schaltbild dargestellt. Mit dem Vorwahlzähler wird die Trigger-Zählrate festgelegt. Die Diskriminatoren dienen zur Rauschunterdrückung und zur Erzeugung eines Rechtecksignals; ihre Pulsbreite ist in nsec, die Tiefe in mV angegeben. Das Signal des Cerenkovzählers (C) wird geteilt; ein Teil wird in Koinzidenz mit dem Trigger gesetzt und so die Rate der im Cerenkovzähler nachgewiesenen Elektronen gezählt; vom anderen Teil wird mit einem Analog-Digital-Umwandler (ADC) die Pulshöhe gemessen und das Pulshöhenspektrum mit Hilfe eines Rechners (PDP 8) aufgenommen.

114 mm hat. Dies ist eine sogenannte Quantacon-Röhre, die aufgrund des hohen Sekundäremissionskoeffizienten ihrer 1. Dynode einzelne, an der Photokatode durch das Cerenkovlicht ausgelöste Photoelektronen nachweisen kann. (29) (Abbildung 49)

Abbildung 49: Typischer Aufbau einer Photovervielfacherröhre (5)

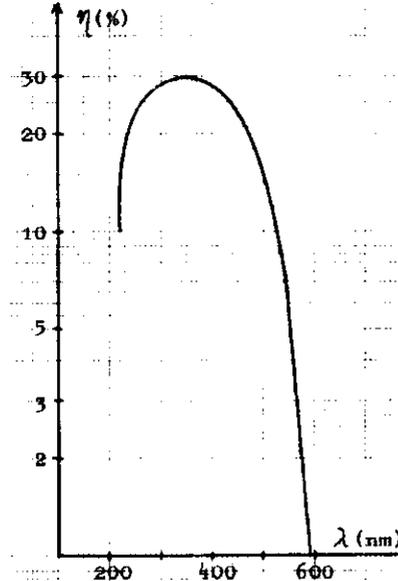


der RCA 8854-Röhre besteht die Kathode aus einer Cs-K-Sb-Legierung; aufgrund des großen Sekundäremissionskoeffizienten ihrer 1. Dynode (GaP mit Cs dotiert) sind einzelne, aus der Katode ausgelöste Photoelektronen nachweisbar. Sie hat einen Arbeitsbereich von 1,5 kV bis 3,0 kV; bei einer angelegten Spannung von 2,4 kV beträgt ihre Stromverstärkung $4 \cdot 10^8$ (29).

Die Quantenausbeute der RCA 8854 hat ihr Maximum bei einer Wellenlänge von 350 nm, ihre Halbwertsbreite erstreckt sich von 230 nm bis 500 nm (Abbildung 50). Der benutzte Spannungsteiler (Abbildung 51) war so ausgelegt worden, daß eine große Verstärkung und eine kurze Ansprechzeit der Photovervielfacherröhre gewährleistet war.

Als optische Elemente des Cerenkovzählers dienten uns Plan- und ellipsoide Spiegel, eine Winston-Lichttüte, aus verspiegelter Mylarfolie hergestellte Luftlichtleiter sowie die verspiegelte Mylarfolie selbst und Millipore-Papier zur Sammlung des im Aerogel gestreuten, diffusen Cerenkovlichts.

Abbildung 50: Die Quantenausbeute $\eta(\lambda)$ der Photovervielfacherröhre RCA 8854 (29)



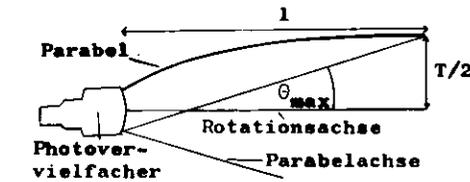
Die Quantenausbeute einer Photovervielfacherröhre hängt wesentlich von ihrem Katodenmaterial ab (2). Im allgemeinen sind Photovervielfacher mit einer guten Quantenausbeute im UV-Gebiet des elektromagnetischen Spektrums für Cerenkovzähler am geeignetsten, da die Intensität des Cerenkovlichts zu kurzen Wellenlängen λ hin zunimmt (Abschnitt II.1, Block 1). Andererseits ist die Lichtstreuung im Aerogel ebenfalls bei kurzen Wellenlängen λ am größten (vergleiche Abschnitt VI), so daß es wesentlich von den Eigenschaften des Aerogels abhängt, welche Photovervielfacherröhre im Aerogel-Cerenkovzähler einzusetzen ist.

Die Spiegel sind aus Plexiglas hergestellt und mit Aluminium bedampft worden. Der ellipsoide Spiegel hat die gleichen Maße wie der des DASP-Cerenkovzählers, seine Halbachsen betragen 2 mal 459 mm und 629 mm. (2)

Wegen des relativ großen Cerenkovwinkels des Aerogels war das Cerenkovlicht in der Ebene der Kathode der Photovervielfacherröhre, die im großen Cerenkovzähler einen Abstand vom Aerogel von etwa 65 cm hatte, über eine wesentlich größere Fläche als die Katodenfläche verteilt. (vergleiche Abschnitt V.4) Daher mußte

in diesem Fall das Licht mit einer Winston-Lichttüte konzentriert werden. Der von uns benutzte Lichtsammler hatte eine Öffnung von 280 mm, daß heißt dem 2.5fachen des Kathodendurchmessers, und eine Akzeptanz von 26° ; (Abb. 52) er war ebenfalls aus Plexiglas hergestellt und mit Aluminium bedampft worden. (28)

Abbildung 52: Die Winston-Lichttüte (9)



Die von Hinterberger und Winston entwickelte Lichttüte ist die Rotationsform einer Parabel, deren Achse gegen die Rotationsachse geneigt ist. Die Rotationsachse stimmt mit der Photovervielfacher-

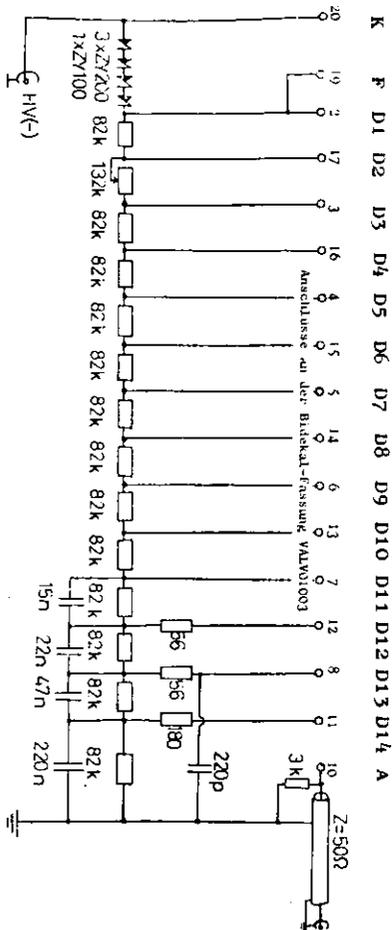
achse überein. Die Öffnung T, die Länge l und die Akzeptanz θ_{max} der Lichttüte sind über die Beziehung

$$l = \frac{T}{2} (\cos \theta_{max} + \cot \theta_{max})$$

miteinander verknüpft.

Das innerhalb der Akzeptanz in den Lichtsammler einfallende Licht wird an seiner Innenfläche mehrfach reflektiert, bevor es auf die Photovervielfacherröhre gelangt (Abbildung 53). Die dabei entstehenden Verluste hängen vom Reflexionskoeffizienten der Lichtsammler-Oberfläche, der Zahl der Reflexionen und dem Winkel ab, unter dem das Licht auf die Photokatode gelangt. Letzteres führt bei einer gekrümmten Kathodenoberfläche zu Verlusten von etwa 10% des einfallenden Lichts (9).

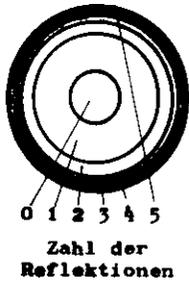
Abbildung 51: Der Spannungsteiler für die Photovervielfacherröhre RCA 8854 (2,29)



Die Abbildung zeigt den in unseren Meßreihen eingesetzten Spannungsteiler, der in (2) detaillierter beschrieben ist. Die Spannung zwischen der Kathode (K) und der Fokussierungselektrode (F) bzw. der 1. Dynode (D1) ist durch Zenerdioden auf 670 V stabilisiert. Die Widerstände zwischen den letzten Dynoden (D11 - D14) sind mit Kondensatoren überbrückt, um auch für größere Anodensignale und hohe Zählfrequenzen eine stabile Stromverstärkung zu erreichen.

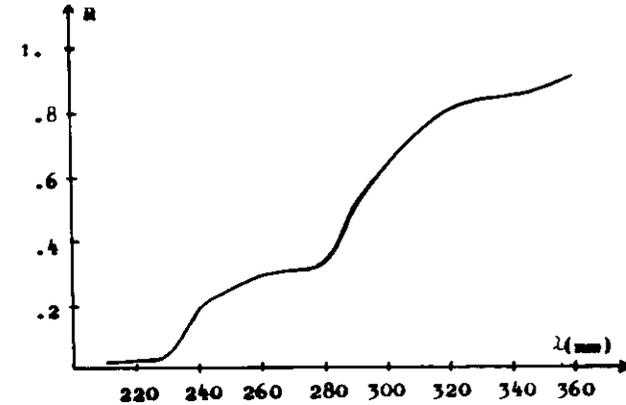
Schließlich standen uns als optische Elemente noch mit Aluminium bedampfte Mylarfolie und Millipore-Papier zur Verfügung. Das Millipore-Papier reflektiert Licht isotrop, sein Reflexionskoeffizient liegt im Bereich des sichtbaren (Wellenlänge $\lambda > 400$ nm) bis ins infrarote Licht bei 98%. Im UV-Bereich des elektromagnetischen Spektrums fällt er sehr rasch ab (30) (Abbildung 54), daher kann nur ein Teil des Cerenkovlichts, für das die Photovervielfacherröhre empfindlich ist, mit Hilfe des Millipore-Papier ausgenutzt werden (vergleiche Abbildung 50). Aufgrund seiner isotropen Reflexionsverteilung ist das Millipore-Papier vor allem zur Ausnutzung des im Aerogel gestreuten, diffusen Cerenkovlichts geeignet.

Abbildung 53: Die Zahl der Reflexionen in einer Winston-Lichttüte (9)



Die Abbildung zeigt den Querschnitt einer Winston-Lichttüte senkrecht zu ihrer Rotationsachse. Mit zunehmendem Abstand von der Rotationsachse wird das in diesem Beispiel parallel zur Achse einfallende Licht häufiger reflektiert, bevor es auf die Photovervielfacherröhre gelangt. Mit wachsender Zahl der Reflexionen sinkt der Wirkungsgrad im Nachweis des Cerenkovlichts.

Abbildung 54: Der Reflexionskoeffizient R des Millipore-Papiers (30,31)



Der Reflexionskoeffizient R des Millipore-Papiers fällt bei kurzen Wellenlängen λ sehr rasch ab, während er für sichtbares Licht nahezu 1 ist.

V.3 Die Auswertungsmethoden der Testmessungen

In den durchgeführten Messungen wurde untersucht, wieviel Cerenkovlicht auf die Photovervielfacherröhre eines Aerogel-Cerenkovzählers gelangt. Dabei ist die Zahl N_k der aus der Photokatode ausgelösten Photoelektronen direkt proportional zu der Zahl der aufgetroffenen Photonen. Allerdings treten bei der Beschleunigung der Photoelektronen zwischen der Katode und der 1. Dynode Verluste auf, die durch den spektralen Überföhrungsgrad $F(\lambda)$ berücksichtigt werden. Die am Ausgang der Photovervielfacherröhre gemessene Zahl N_e von Photoelektronen hängt außerdem von den Sekundäremissionskoeffizienten der Dynoden ab, wobei die 1. Dynode entscheidend ins Gewicht fällt (2). (Block 14)

Die mittlere Photoelektronenzahl $\overline{N_e}$ läßt sich aus dem Wirkungsgrad des Teilchennachweises bestimmen. Dabei wird durch den Trigger registriert, wann ein Teilchen durch den Cerenkov-Radiator geflogen ist, und durch eine Koinzidenzschaltung mit dem Cerenkovzähler überprüft, ob dieses Teilchen im Cerenkovzähler nachgewiesen wurde (Block 15). Dieser Meßwirkungsgrad ϵ_m wurde als Funktion der Spannung U an der Photovervielfacherröhre gemessen und aus dem Sättigungswert der Hochspannungskurve die mittlere Photoelektronenzahl $\overline{N_e}$ gemäß Block 15 errechnet (Abbildung 55).

Eine weitere Möglichkeit der Ermittlung der mittleren Photoelektronenzahl $\overline{N_e}$ bietet die Analyse der Impulshöhenspektren. Dabei wird die Impulshöhe des an der Anode entnommenen Signals mit einem Analog-Digital-Umwandler gemessen, wenn die Triggerzähler ein Teilchen registriert haben. Das gesamte Spektrum wird mit Hilfe eines Rechners aufgenommen.

Block 14: Die gemessene mittlere Photoelektronenzahl $\overline{N_e}$ (2)

Die Zahl N_k der an der Katode der Photovervielfacherröhre durch N Photonen ausgelösten Photoelektronen kann durch eine Binominal-Verteilung beschrieben werden:

$$\text{Mittelwert: } \overline{N_k} = \eta(\lambda) N \quad (1a)$$

$$\text{Varianz: } V = \eta(\lambda) (1 - \eta(\lambda)) N \quad (1b)$$

Für die Quantenausbeute $\eta(\lambda)$ gilt dabei in Abhängigkeit der Wellenlänge λ (vergleiche Abbildung 50):

$$\eta(\lambda) = \frac{S_k(\lambda) h c}{\lambda e 10^3} \quad (2)$$

$S_k(\lambda)$ = spektrale Empfindlichkeit der Photovervielfacherröhre

$h \cdot 2\pi$ = Planck'sches Wirkungsquantum
 c = Vakuum-Lichtgeschwindigkeit
 e = Elementarladung

Die mittlere Zahl $\overline{N_{1.Dyn}}$ der auf der 1. Dynode auftretenden Photoelektronen reduziert sich zu:

$$\overline{N_{1.Dyn}} = \overline{N_k} F(\lambda) \quad (3)$$

$F(\lambda)$ = spektraler Überföhrungsgrad

Für $\eta \ll 1$ kann die Wahrscheinlichkeit $W(N_e, \overline{N_{1.Dyn}})$, daß N_e Photoelektronen bei einem Mittelwert von $\overline{N_{1.Dyn}}$ die 1. Dynode erreichen, durch eine Poisson-Verteilung beschrieben werden:

$$W(N_e, \overline{N_{1.Dyn}}) = \frac{\overline{N_{1.Dyn}}^{N_e}}{N_e!} e^{-\overline{N_{1.Dyn}}} \quad (4)$$

Aufgrund von Verstärkungsschwankungen der Photovervielfacherröhre wird an der Anode ein kleinerer Mittelwert $\overline{N_e}$ gemessen. Unter der Annahme, daß die Nachweiswahrscheinlichkeit $P(N_e)$ gleich 1 ist für $N_e \geq 1$ Photoelektronen, gilt:

$$\overline{N_e} = \text{const} \cdot \overline{N_{1.Dyn}} \quad (5)$$

const = .96 für die RCA 8854-Röhre

Die gemessene Photoelektronenzahl N_e gehorcht weiterhin einer Poisson-Statistik analog zur Formel (4), aber mit dem Mittelwert $\overline{N_e}$.

Block 15: Der Meßwirkungsgrad ξ_m (2)

Der Meßwirkungsgrad ξ_m ist die Wahrscheinlichkeit, mit der ein auf die Katode der Photovervielfacherröhre auftreffender Lichtimpuls nachgewiesen wird. Er ist entscheidend durch die mittlere Zahl $N_{1,Dyn}$, der auf die 1. Dynode auftreffenden Photoelektronen bestimmt, bzw. dem an der Anode registrierten kleineren Mittelwert \bar{N}_e . Wenn $P(N_e)$ die Wahrscheinlichkeit ist, mit der ein Lichtimpuls registriert wird, der N_e Photoelektronen entspricht, so gilt für den Meßwirkungsgrad ξ_m :

$$\xi_m = \sum_{N_e=0}^{\infty} W(N_e, \bar{N}_e) P(N_e) \quad (1)$$

Nimmt man an, daß alle Pulse von $N_e > 1$ Photoelektronen nachgewiesen werden, gilt:

$$P(N_e=0) = 0 \quad (2)$$

$$P(N_e=1) = 1$$

$$\Rightarrow \xi_m = \sum_{N_e=1}^{\infty} W(N_e, \bar{N}_e) \quad (3)$$

Mit der Formel (4) aus Kasten 15 folgt:

$$\xi_m = 1 - e^{-\bar{N}_e} \quad (4)$$

Damit erhält man aus dem gemessenen Wirkungsgrad ξ_m den an der Anode registrierten Mittelwert \bar{N}_e der Photoelektronenzahl:

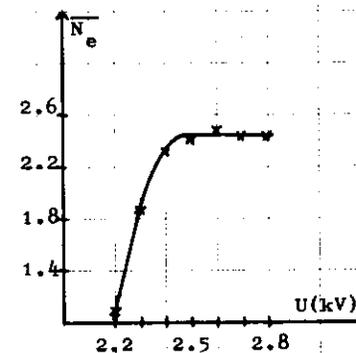
$$\bar{N}_e = -\ln(1-\xi_m) \quad (5)$$

Für den mittleren quadratischen Fehler G_{ξ_m} des Meßwirkungsgrades gilt:

$$G_{\xi_m} = \sqrt{\frac{\xi_m(1-\xi_m)}{N_T}} \quad (6)$$

N_T = Zahl der Triggerimpulse

Abbildung 55: Beispiel einer Hochspannungskurve



Als Beispiel ist die Hochspannungskurve des 7.2 cm langen, zylindrischen Aerogel-Radiators KMPVT 33 dargestellt. Die Messung wurde im kleinen Cerenkovzähler (Abbildung 45) durchgeführt. Die mittlere Photoelektronenzahl \bar{N}_e wurde für jeden Hochspannungswert U aus dem Meßwirkungsgrad ξ_m nach der Formel (5), Block 15 berechnet.

Block 16: Das Impulshöhenspektrum

Die Verstärkungsschwankungen der RCA 8854-Röhre sind so gering, daß die Auflösung einzelner Photoelektronenzahlen N_e bis zu Mittelwerten von $\bar{N}_e \approx 5$ möglich ist (2). Die mittlere Photoelektronenzahl kann dann direkt aus der Wahrscheinlichkeit W für die Zahl N_e der Photoelektronen nach der Poisson-Verteilung ermittelt werden. Dabei gilt nach Formel(4), Block 14 für das Verhältnis der Wahrscheinlichkeiten zwischen dem Auftreten von N_1 und N_2 Photoelektronen beim Mittelwert von \bar{N}_e :

$$\frac{W(N_1, \bar{N}_e)}{W(N_2, \bar{N}_e)} = \frac{N_2!}{N_1!} \bar{N}_e^{(N_1-N_2)} \quad (1)$$

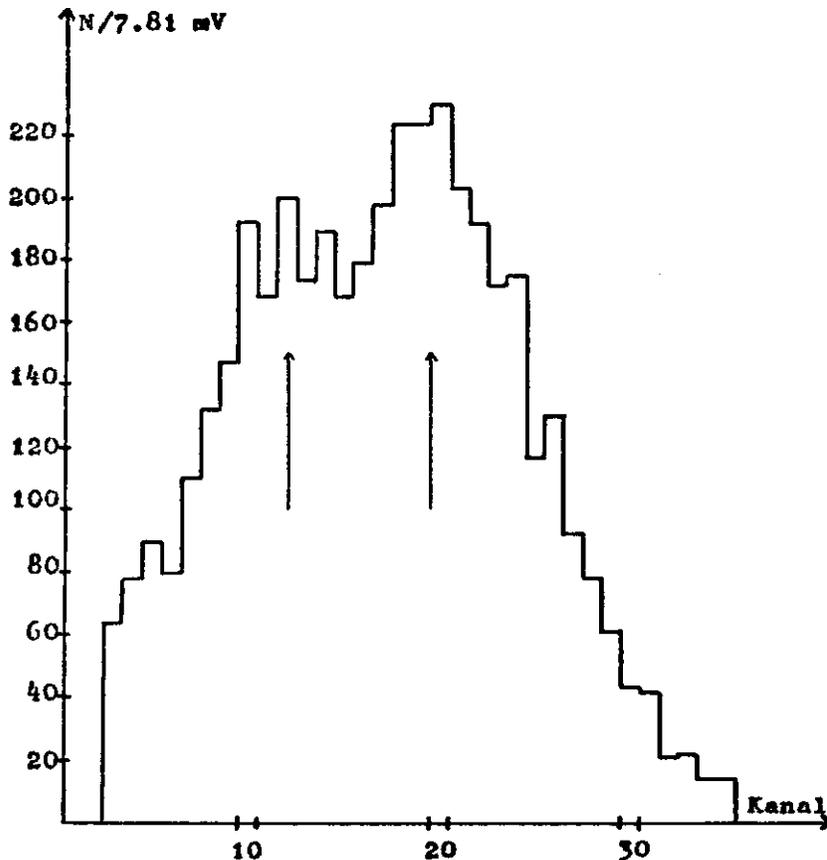
$$\Rightarrow \bar{N}_e = \left(\frac{N_1!}{N_2!} \frac{W(N_1, \bar{N}_e)}{W(N_2, \bar{N}_e)} \right)^{1/(N_1-N_2)} \quad (2)$$

Dabei lassen sich die Wahrscheinlichkeiten W aus den Flächen der Häufigkeitsverteilung der zu den einzelnen Photoelektronenzahlen N_e gehörenden Impulshöhen im Impulshöhenspektrum ermitteln (vergleiche Abbildung 56).

Wegen des großen Sekundäremissionskoeffizienten der 1. Dynode der RCA 8854-Röhre sind die von der Zahl der Photoelektronen N_e abhängigen Impulshöhen bis zu einer mittleren Photoelektronenzahl $\overline{N_e} \approx 5$ auflösbar (2) (Block 16). Allerdings waren in unserem Fall die Schwankungen der Cerenkovzähler-signale zu groß, um die aufgenommenen Impulshöhen-spektren vernünftig auswerten zu können (Abbildung 56). Da der Analog-Digital-Umwandler eine gute Linearität besaß, dürfte die Ursache im langen Übertragungsweg von etwa 75 m vom Cerenkovzähler zum Analog-Digital-Umwandler liegen.

Der Impuls der Elektronen im Teststrahl 26 ist mit etwa 3 GeV/c wesentlich größer als ihr Schwellenimpuls in Luft (22 MeV/c). Um ausschließlich das im Aerogel erzeugte Cerenkovlicht zu berücksichtigen, muß entweder gewährleistet sein, daß die Elektronen im Cerenkovzähler nicht durch Luft fliegen, oder es muß das in Luft erzeugte Cerenkovlicht von den Meßwerten abgezogen werden. Bei gleicher Radiatorlänge wird in Aerogel mit einem Brechungsindex von 1,02 zwar 70 mal soviel Cerenkovlicht wie in Luft erzeugt (Abschnitt II.1, Block 1, Formel 4a), doch ist wegen des großen Cerenkovwinkels und der Lichtstreuung im Aerogel der Wirkungsgrad im Nachweis des in Aerogel erzeugten Cerenkovlichts wesentlich niedriger als der des in Luft erzeugten Lichts. Immerhin lagen die notwendigen Korrekturen zwischen 10% und 30%, obwohl die Weglänge der Elektronen in Luft so gering wie möglich gehalten wurde. Diese Luft-Korrektur wurde in den ersten Meßreihen so vorgenommen, daß die Abhängigkeit der mittleren Zahl $\overline{N_e}$ von Photoelektronen, die durch das in Luft erzeugte Cerenkovlicht ausgelöst wurden, von der Weglänge der Teilchen in Luft gemessen wurde (Abb. 57).

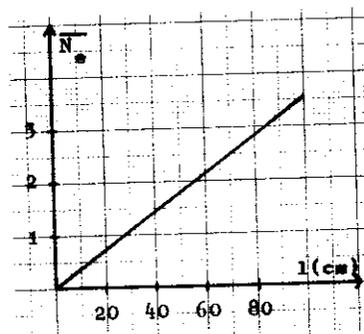
Abbildung 56: Beispiel eines Impulshöhenspektrums



Die Abbildung zeigt das Impulshöhenspektrum einer hexagonalen Aerogelprobe (27) (mittlerer Brechungsindex = 1.048, Länge = 3.3 cm). Das Spektrum wurde in einer Meßreihe im grossen Cerenkovzähler (Abbildung 46) mit einem ellipsoiden Spiegel und einer Winston-Lichttüte (28) als optische Elemente aufgenommen. Die Hochspannung an der Photovervielfacherröhre betrug 2.8 kV. Die Impulshöhen der Anodensignale wurde im Analog-Digital-Umwandler einzelnen Kanälen zugeordnet, deren Breite in diesem Fall einer Impulshöhendifferenz von 7.81 mV entsprach. Mit Hilfe eines Rechners (PDP 8) wurde die Zahl der Ereignisse jedes Kanals aufsummiert; die Summe aller Ereignisse betrug in diesem Fall $N = 5074$. Deutet man die Maxima (Pfeile) des Spektrums als durch 1 bzw. 2 Photoelektronen N_e verursacht, so erhält man nach Formel (2), Block 16 eine mittlere Photoelektronenzahl $N_e = 2.66$, was einigermaßen mit dem aus dem Meßwirkungsgrad ermittelten Wert von 2.25 verträglich ist. Allerdings würde man bei diesem Mittelwert $N_e = 2.66$ ein Wahrscheinlichkeitsverhältnis des Auftretens von 2 zu 3 Photoelektronen von 1.13 erwarten (Formel (1), Block 16); ein solches Maximum ist aber im Impulshöhenspektrum nicht erkennbar. Viele aufgenommenen Spektren zeigten wesentlich schlechtere Ergebnisse, so daß auf ihre weitergehende Analyse verzichtet werden mußte.

Entsprechend dieser Kurve wurde für jede Testmessung der Teil der durch Luft verursachten mittleren Photoelektronenzahl errechnet und vom Meßwert abgezogen. In der letzten Meßreihe wurde dieses Verfahren insofern verändert, als die mittlere Zahl der in Luft verursachten Photoelektronen direkt für die in den Aerogel-Testmessungen vorliegenden Weglängen der Elektronen in Luft gemessen wurde.

Abbildung 57: Die mittlere Photoelektronenzahl \bar{N}_e mit Luft als Cerenkov-Radiator



Die experimentellen Ergebnisse zeigen den erwarteten linearen Zusammenhang zwischen der mittleren Photoelektronenzahl \bar{N}_e und der Weglänge l der Elektronen in Luft (Abschnitt V.1, Block 13, Formel (3)). Dies erleichtert eine Extrapolation auf die jeweiligen Verhältnisse zur Korrektur der Aerogel-Testmessungen.

V.4 Die Ergebnisse der Aerogel-Testmessungen

Die Eigenschaften des Aerogels als Cerenkov-Radiator wurden in 5 Meßreihen untersucht. Die ersten zwei dienten zum Test verschiedener Optiken im Cerenkovzählern, wozu uns die beiden Aerogel-Proben aus Saclay (27) zur Verfügung standen. In den letzten drei Versuchsreihen wurden die von uns hergestellten zylindrischen Aerogel-Radiatoren getestet.

In der ersten Meßreihe wurden im kleinen Cerenkovzähler (Abbildung 45) Optiken mit einem Planspiegel und verschiedenen Luftlichtleitern untersucht; es standen uns zylindrische und konische Lichtleiter unterschiedlicher Öffnung zur Verfügung. Weiterhin wurde getestet welcher Wirkungsgrad mit einem vollständig mit Millipore-Papier ausgekleidetem Aerogel-Cerenkovzähler erreichbar ist. Bei diesen Messungen konnte die Radiatorlänge durch unterschiedliche räumliche Orientierung des Radiators in beschränktem Maße variiert werden.

Mit den gleichen Proben wurden in der 2. Meßreihe Optiken untersucht, die den Verhältnissen eines Detektors in einem Speicherring nahekommen; der Wechselwirkungspunkt wurde durch Drehung des Zählers simuliert. Es wurde im großen Cerenkovzähler (Abbildung 46) der Wirkungsgrad verschiedener Kombinationen vom ellipsoiden Spiegel mit einer Winston-Lichttüte (28) und verspiegelter Mylarfolie bzw. Millipore-Papier als Funktion der Teilchenrichtung ermittelt. Weiterhin wurde der vollständig mit Millipore-Papier ausgekleidete Zähler untersucht und schließlich eine Messung mit einem 70 cm langen zylindrischen Lichtleiter durchgeführt.

Die Meßreihen 3 bis 5 dienten hauptsächlich zum Test der von uns hergestellten Aerogelproben. Um die einzelnen Meßreihen miteinander vergleichen zu können, wurden die Meßwirkungsgrade von jeweils mindestens zwei Proben in mindestens zwei Meßreihen ermittelt. Als Optik diente im wesentlichen ein Planspiegel; weiterhin wurden in der 3. und 4. Meßreihe verspiegelte Mylarfolie und Milipore-Papier eingesetzt, um das im Aerogel gestreute Cerenkovlicht besser ausnutzen zu können. Im Gegensatz dazu haben wir in der letzten Meßreihe versucht, dieses Streulicht zu absorbieren, um weitere Aufschlüsse über die Größenverhältnisse von gestreutem und ungestreutem Licht zu erhalten. In diesen drei Meßreihen wurde der Meßwirkungsgrad, bzw. die mittlere Photoelektronenzahl \bar{N}_e , als Funktion der Länge und des Brechungsindex des Radiators untersucht.

Schließlich wurde in der 2. und in der 5. Meßreihe die räumliche Intensitätsverteilung des Cerenkovlichts in der Ebene der Photokathode gemessen. Dies sollte ebenfalls Aufschlüsse über das Verhältnis vom gestreuten, isotrop verteilten, zum ungestreuten Cerenkovlicht liefern; außerdem kann über den Cerenkovwinkel der Brechungsindex des Aerogels berechnet werden, wodurch eine Überprüfung der Brechungsindexmessungen des Abschnitts IV möglich wird.

V.4a Einfache Optiken in einem kleinen Cerenkovzähler

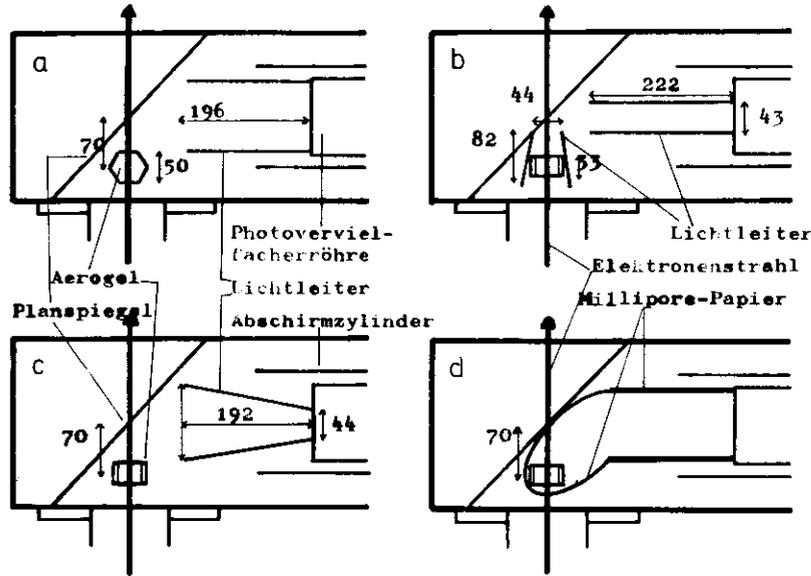
In dieser Meßreihe wurde die Wirkung verschiedener Lichtleiter (Tabelle 11) und des Millipore-Papiers untersucht, um zunächst eine grobe Vorstellung über die Eignung des Aerogels als Cerenkov-Radiator zu erhalten. Da in diesem Aufbau das Verhältnis von der Katodenfläche zur Querschnittsfläche des Aerogels senkrecht zum Elektronenstrahl (≈ 5) wesentlich größer und außerdem der Abstand der Photovervielfacherröhre vom Aerogel ($\approx 30\text{cm}$) wesentlich kleiner war als es im TASSO-Cerenkovzähler realisiert werden kann, galt unser Interesse besonders der Abbildung des Cerenkovlichts auf eine kleinere Kathodenfläche. Dazu wurde die Photokathode auf etwa 14% abgedunkelt.

Tabelle 11: Die Luftlichtleiter der 1. Meßreihe

Aufbau	Form	Material	Länge (mm)	Durchmesser (mm)	
				maximal	minimal
58a	Zylinder	Mylarfolie mit Al bedampft	196	110	110
58b	Konus + Zylinder	Kaptonfolie mit Al bedampft	82	65	44
			222	43	43
58c	Konus	Mylarfolie mit Al bedampft	192	114	44

Die Versuchsaufbauten, in denen die Luftlichtleiter eingesetzt wurden, sind in der Abbildung 58 dargestellt. In einem Aerogel-Cerenkovzähler können ausschließlich Luftlichtleiter eingesetzt werden, da in festen Dielektrika als Lichtleiter, wie zum Beispiel Plexiglas, wesentlich mehr Cerenkovlicht erzeugt wird als in Aerogel und zusätzlich der Schwellenimpuls wesentlich niedriger ist.

Abbildung 58: Der experimentelle Aufbau



Die Daten der Lichtleiter der Testmessungen a bis c sind in der Tabelle 11 zusammengefaßt. In der Testreihe a wurde der Meßwirkungsgrad für 2 Radiatorlängen ermittelt, indem die räumliche Orientierung der hexagonalen Aerogelprobe variiert wurde. Die Längenmaße in der Abbildung sind in mm angegeben.

Es wurden die erreichbaren Meßwirkungsgrade der verschiedenen Testaufbauten (Abbildung 58) aus den Hochspannungskurven bestimmt und daraus die mittlere Photoelektronenzahl \bar{N}_e errechnet (Abschnitt V.3, Block 15). Als Radiator diente eine hexagonale Aerogelprobe mit einer Länge von 3.3 cm und einem Brechungsindex $\bar{n} = 1.048$. Die erreichten Ergebnisse sind in der Tabelle 12 zusammengefaßt.

Tabelle 12: Die mittlere Photoelektronenzahl \bar{N}_e in den einzelnen Testmessungen

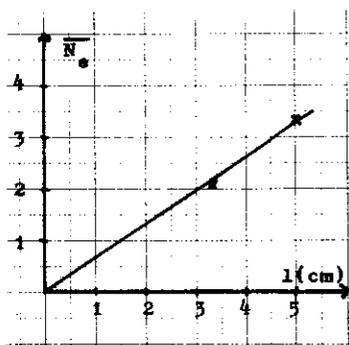
Aufbau	\bar{N}_e	$\sigma(\bar{N}_e)$	$\frac{\bar{N}_e}{l} \text{ (cm}^{-1}\text{)}$	$N_o = \frac{\bar{N}_e}{1(1-\frac{1}{n^2})} \text{ (cm}^{-1}\text{)}$
58o	.20	.03	.06	.68
58a	2.08	.14	.63	7.04
58b	.05	.02	.02	.2
58c	.12	.03	.04	.4
58d	.86	.04	.28	2.91

Die Tabelle zeigt die Luft-korrigierte mittlere Photoelektronenzahl \bar{N}_e selbst, normiert auf die Radiatorlänge l , normiert auf die Radiatorlänge und den Brechungsindex n , und ihren mittleren quadratischen Fehler $\sigma(\bar{N}_e)$. Die Größe N_o ermöglicht den Vergleich von Testmessungen mit Radiatoren unterschiedlicher Länge und Brechungsindizes (vergleiche Abschnitt II.1, Block 1); sie ist gewissermaßen ein Gütefaktor für den Aerogel-Radiator und die aufgebaute Optik. In dieser Meßreihe wurde ein hexagonaler Aerogel-Radiator mit einer Länge von 3.3 cm und einem mittleren Brechungsindex von 1.048 eingesetzt. Die Versuchsaufbauten sind in der Abbildung 58 skizziert, der Aufbau 58o entspricht den Aufbauten 58a-c ohne Lichtleiter. Man sieht deutlich, daß die Konzentrierung des Lichts auf kleinere Kathodenflächen (58b,c) nicht einfach ist; ebenso ist der Wirkungsgrad des Millipore-Papiers (58d) wesentlich niedriger als der des zylindrischen Lichtleiters (58a). Die Notwendigkeit fokussierender Optiken erkennt man deutlich am schlechten Ergebnis der Messung ohne Lichtleiter (58o).

Bereits bei diesem kleinen Zähler ist wegen des großen Cerenkovwinkels von 17.4° der Einsatz von fokussierenden Optiken notwendig. Die Konzentrierung des Lichts auf eine kleinere Kathodenfläche scheint mit so einfachen Mitteln nicht möglich zu sein; so wird zum Beispiel im konischen Lichtleiter ein großer Teil des einfallenden Lichts zurück reflektiert.

Der vollständig mit Millipore-Papier ausgekleidete Zähler war nicht so wirkungsvoll wie der große zylindrische Lichtleiter; offenbar eignete sich Millipore-Papier zwar zur Optimierung dieses Aerogel-Cerenkovzählers, jedoch nicht als einziges optisches Element. Dies zeigt, daß zumindest bei kleinen Aerogel-Radiatoren das Cerenkovlicht nicht vollständig isotrop emittiert wird.

Abbildung 59: Die mittlere Photoelektronenzahl \bar{N}_e in Abhängigkeit der Radiatorlänge l



Die Messung wurde mit dem Aufbau 58a durchgeführt, die Radiatorlänge durch unterschiedliche räumliche Orientierung der hexagonalen Aerogelproben variiert. Die durch die beiden Meßpunkte gelegte Gerade verläuft annähernd durch den Nullpunkt; die nachgewiesene Lichtmenge ist also in dieser Messung proportional zur Radiatorlänge. Offenbar ist die Akzeptanz dieses Aufbaus für das emittierte Cerenkovlicht sehr groß; eventuell könnte

auch die mit wachsender Länge verkleinerte Ausdehnung des Radiators senkrecht zum Elektronenstrahl zu diesem Ergebnis beigetragen haben.

Der gute Wirkungsgrad des zylindrischen Lichtleiters zeigt sich auch im linearen Ansteigen der mittleren Photoelektronenzahl \bar{N}_e mit der Radiatorlänge l (Abbildung 59). Allerdings kann man daraus nicht schließen, daß die Lichtstreuung im untersuchten Radiator vernachlässigbar ist (vergleiche Abschnitt IV.b); wesentlich entscheidender für dieses Ergebnis dürften die große Akzeptanz des für diese Messung benutzten Aufbaus (Abbildung 58a) und die kleinen Radiatorabmessungen senkrecht zum Elektronenstrahl gewesen sein.

V.4b Test von Optiken eines großen Aerogel-Cerenkovzählers

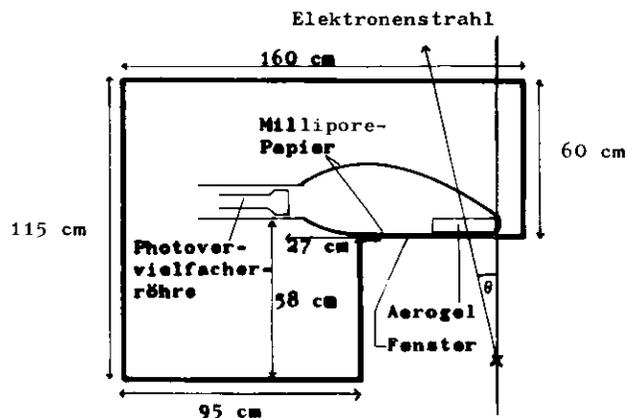
Der für diese Testmessungen eingesetzte Cerenkovzähler ist im Abschnitt V.2, Abbildung 46 beschrieben. Das Ziel dieser Meßreihe war, für verschiedene Optiken den Meßwirkungsgrad als Funktion der Teilchenrichtung θ zu messen. Über die Variation der Teilchenrichtung (Drehung des Zählers) wurden Speicherring-Verhältnisse simuliert. Als Radiatoren wurden wieder die beiden Aerogelproben aus Saclay (27) (Länge = 3.3 cm bzw. 4.4 cm, mittlerer Brechungsindex = 1.048 bzw 1.060) eingesetzt.

Tabelle 13: Die untersuchten Optiken

Aufbau	ellipsoider Spiegel	Winston-Lichttüte (28)	mit Aluminium bedampfte Mylarfolie	Millipore-Papier
13a	X	X		
13b	X	X	X	
13c	X	X		X
13d		X		X
13e				X

Die Kreuze in der Tabelle geben an, welche optische Elemente in den einzelnen Meßreihen eingesetzt worden sind. Der Aufbau 13e ist in der Abbildung 60 dargestellt, die Anordnung des Spiegels und der Winston-Lichttüte entspricht der der Abbildung 46 im Abschnitt V.2. In den Aufbauten 13b bis 13d wurde die Mylarfolie bzw. das Millipore-Papier im wesentlichen vor dem Fenster des Zählers sowie horizontal über und unter dem Aerogel angebracht.

Abbildung 60: Der Aufbau zum Test des Millipore-Papiers

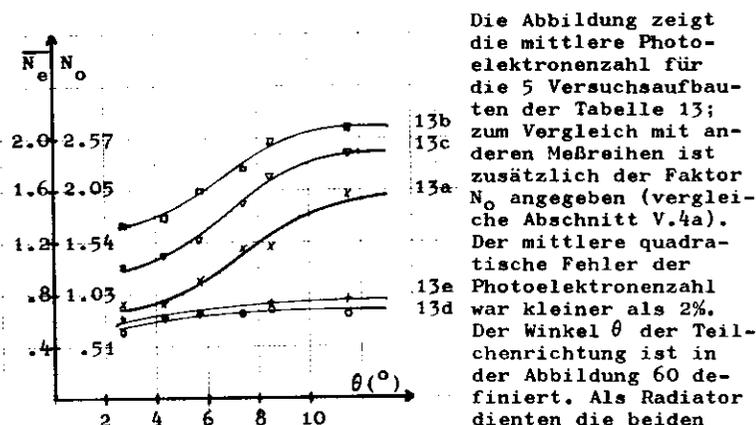


Der Aerogelradiator und die Photovervielfacherröhre waren vollständig mit Millipore-Papier umhüllt. Zusätzlich zu dem in der Abbildung Dargestellten war der Zähler horizontal über und unter dem Aerogel mit Millipore-Papier ausgekleidet. Der Winkel θ der Teilchenrichtung ist relativ zu der durch den Brennpunktlaufenden, zum Zählergehäuse parallelen Geraden definiert.

In einer ersten Übersichtsmessung zeigte sich, daß mit einem ellipsoiden Spiegel als einziges optisches Element kein ausreichender Meßwirkungsgrad zu erreichen war; die gemessene mittlere Photoelektronenzahl $\overline{N_e}$ lag unter .2. Der Meßwirkungsgrad wurde anschließend für 5 Versuchsaufbauten in Abhängigkeit der Teilchenrichtung θ und der Radiatorlänge l gemessen, die Aufbauten sind in der Tabelle 13 zusammengefaßt, die Abbildung 60 zeigt den Aufbau 13e.

Bei den abbildenden Optiken mit dem ellipsoiden Spiegel nimmt der Meßwirkungsgrad mit geringer werdendem Abstand der Teilchenbahn von der Photovervielfacherröhre (größeres θ) zu, während er in

Abbildung 61: Die mittlere Photoelektronenzahl $\overline{N_e}$ in Abhängigkeit der Teilchenrichtung



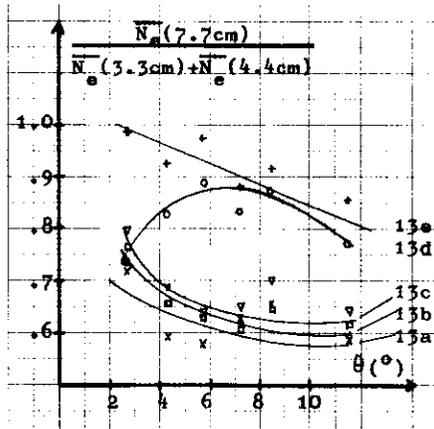
Die Abbildung zeigt die mittlere Photoelektronenzahl für die 5 Versuchsaufbauten der Tabelle 13; zum Vergleich mit anderen Meßreihen ist zusätzlich der Faktor N_0 angegeben (vergleiche Abschnitt V.4a). Der mittlere quadratische Fehler der Photoelektronenzahl war kleiner als 2%. Der Winkel θ der Teilchenrichtung ist in der Abbildung 60 definiert. Als Radiatordienten die beiden hintereinander gelegten hexagonalen Aerogelproben aus Saclay (27); die Radiatorlänge betrug 7.7 cm, der mittlere Brechungsindex 1.055. Die Optiken mit dem ellipsoiden Spiegel (13a bis 13c) erreichen wesentlich höhere Photoelektronenzahlen $\overline{N_e}$ als die mit Millipore-Papier ausgekleidete Zähler (13d,e). Offenbar ist bei der Verwendung des Millipore-Papiers ein zusätzlicher Winston-Konus nicht sehr effektiv. Der Vorteil des mit Millipore-Papier ausgekleideten Zählers besteht darin, daß sein Meßwirkungsgrad unabhängig von der Teilchenrichtung ist. Wurde der Cerenkovzähler mit eingebauter abbildender Optik (ellipsoider Spiegel + Winston-Konus (28)) zusätzlich mit Millipore-Papier bzw. verspiegelter Mylarfolie ausgekleidet, konnte die mittlere Photoelektronenzahl um über 18% bzw. über 30% gesteigert werden.

den Millipore-Aufbauten nahezu konstant ist. Man sieht allerdings deutlich, daß der Meßwirkungsgrad vom mit Millipore-Papier ausgekleideten Zähler wesentlich schlechter ist als der einer abbildenden Optik; ein ähnliches Ergebnis hatten Bourdinaud et. al. am CERN erhalten (32). Weiterhin ist in diesem Aufbau die mit Aluminium bedampfte Mylarfolie offenbar besser als zusätzliches Hilfsmittel einer Optik geeignet als das Millipore-Papier (Abbildung 61), was vermutlich durch die Geometrie

der Optik und die schlechte Qualität des Aerogels bedingt ist. Bei Verwendung des Millipore-Papiers wird in diesem Aufbau ein wesentlicher Teil des Cerenkovlichts in das Aerogel zurück reflektiert und dort absorbiert.

Die Vorzüge des Millipore-Papiers liegen darin, daß bei zunehmenden Radiatorlängen der Meßwirkungsgrad stärker anwächst als bei den abbildenden Optiken (Abbildung 62). Dies zeigt, daß ein großer Teil des erzeugten Cerenkovlichts im Aerogel gestreut wird; die Streulänge der getesteten Radiatoren liegt also in der Größenordnung ihrer Länge (3.3 cm bis 7.7 cm), während die Absorption offenbar vernachlässigbar ist.

Abbildung 62: Verluste an Cerenkovlicht im Aerogel für verschiedene Teilchenrichtungen



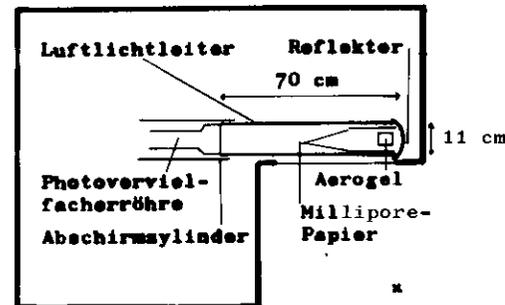
Der Meßwirkungsgrad wurde für die 5 Versuchsaufbauten der Tabelle 13 für 3 Radiatorlängen (3.3 cm, 4.4 cm und 7.7 cm) gemessen; es wurden die 2 hexagonalen Aerogelproben einzeln und hintereinander liegend eingesetzt. Der Quotient

$$\frac{N_e(7.7\text{cm})}{N_e(3.3\text{cm}) + N_e(4.4\text{cm})}$$

aus der erhaltenen Photoelektronenzahl bei hintereinander gelegten Radiatoren und der Summe

der in den Einzelmessungen erhaltenen Photoelektronenzahlen ist ein direktes Maß für die Verluste an Cerenkovlicht im Aerogel. Diese Verluste sind im mit Millipore-Papier ausgekleideten Zähler (13d,e) geringer als bei Verwendung abbildender Optiken (13a-c). Dies deutet darauf hin, daß die Absorption einen wesentlich geringeren Beitrag zu den Verlusten liefert als die Streuung des Cerenkovlichts.

Abbildung 63: Der Lichtleiter-Versuchsaufbau



Der 70 cm lange Luftlichtleiter ist aus mit Aluminium bedampfter Mylarfolie hergestellt worden; ein Reflektor aus dem gleichen Material wurde an seinem offenen Ende angebracht. In einigen Messungen war der Lichtleiter teilweise mit Millipore-Papier ausgekleidet worden (vergleiche Tabelle 14)

Schließlich wurde in dieser Meßreihe ein 70 cm langer, zylinderischer Luftlichtleiter aus verspiegelter Mylarfolie getestet; sein Durchmesser betrug 11.0 cm. Den Aufbau zeigt die Abbildung 63; die Messung wurde mit verschiedenen Radiatorlängen bei fester Teilchenrichtung von $\theta = 2.7^\circ$ durchgeführt. Der Lichtleiter wurde teilweise mit Millipore-Papier ausgekleidet, womit sich aber keine Verbesserung der Ergebnisse erzielen ließ (Tabelle 14). Die mittlere Photoelektronenzahl war, insbesondere bei einer Radiatorlänge von 7.7 cm, deutlich höher als bei den zuvor beschriebenen Optiken (vergleiche Abbildungen 60,61).

Diese Testreihe hat gezeigt, daß es schwierig ist, mit Aerogel-Radiatoren der vorliegenden Qualität bei großem Abstand der Photovervielfacherröhre vom Aerogel (≈ 65 cm) einen ausreichenden Meßwirkungsgrad zu erzielen. Das Millipore-Papier kann allenfalls zur Optimierung eines Zählers beitragen, eventuell sind hierfür sogar verspiegelte Mylarfolie oder - hier nicht untersuchte - gut reflektierende weiße Farbe (30)

besser geeignet. Die mit dem Luftlichtleiter erzielten Ergebnisse liegen zwar bereits in brauchbaren Größenordnungen, eine entsprechende Optik ist jedoch bei größeren Aerogel-Radiatoren schwer zu verwirklichen.

Tabelle 14: Die Ergebnisse des Lichtleitertests

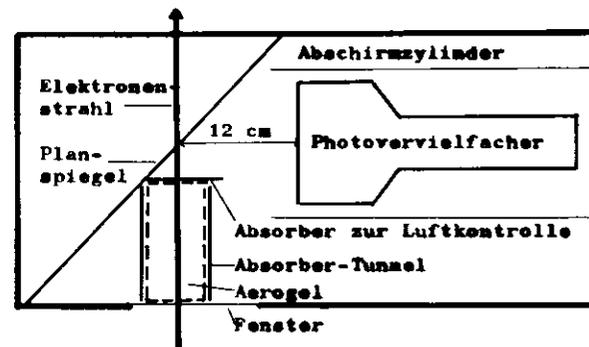
Radiatorlänge(cm)	Länge der Millipore-Papier-Auskleidung (cm)	mittlere Photoelektronenzahl $\frac{N}{e}$
7.7	0	4.0 ± .1
3.3	0	2.30 ± .05
3.3	10	2.27 ± .04
3.3	18	2.19 ± .04
3.3	31.5	1.80 ± .03

In der Tabelle sind die erhaltenen mittleren Photoelektronenzahlen \bar{N} mit ihrem mittleren quadratischen Fehler angegeben. Die an der Aerogelseite des Luftlichtleiters angebrachte Millipore-Papier-Auskleidung (Abbildung 63) erhöhte den Meßwirkungsgrad des Zählers nicht. Insgesamt ist die mit dem Lichtleiter erreichte Photoelektronenzahl größer als die der Optiken mit einem ellipsoiden Spiegel.

V.4c Untersuchung der Aerogelproben eigener Herstellung

In den Meßreihen 3 bis 5 wurde zum Test der von uns hergestellten Aerogel-Radiatoren der kleine Cerenkovzähler eingesetzt (Abbildung 64); der mittlere quadratische Fehler der Photoelektronenzahl lag bei allen Messungen unter 5%. Die Meßreihe 3 diente zum Vergleich der ersten von uns hergestellten Aerogelproben P1,P2 mit denen aus Saclay (vergleiche Abschnitt V.4a,b). Da sich die Proben sowohl in der Länge als auch im Brechungsindex unterscheiden, kann als Vergleichsmaßstab nur die Größe N_0 dienen (Tabelle 15), die bei den zylindrischen Proben um einen

Abbildung 64: Der Versuchsaufbau zum Test der zylindrischen Aerogelproben



Es wurde der kleine Cerenkovzähler (vergleiche Abbildung 45) eingesetzt. In der 5. Meßreihe ist die Photovervielfacherröhre näher am Planspiegel als in der 3. und 4. Meßreihe (Abstand = 30 cm) eingebaut worden. Es sind ebenfalls der Absorber-Tunnel für das Streulicht und der Absorber zur Luft-Kontrollmessung der 5. Meßreihe eingezeichnet. Die hier nicht dargestellte, mit Aluminium bedampfte Mylarfolie ist in der 3. und 4. Meßreihe entsprechend der Abbildung 58d (Abschnitt V.4a) angeordnet worden.

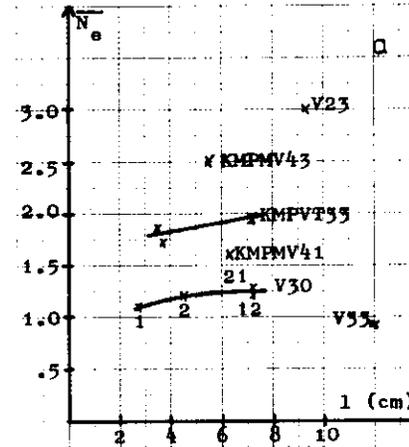
Tabelle 15: Vergleich zwischen einer hexagonalen (Saclay) und den zylindrischen Aerogelproben P1,P2 (Meßreihe 3)

Aerogel-probe	\bar{n}	l (cm)	Aufbau	\bar{N}_e	$N_o = \frac{\bar{N}_e}{1(1-1/n^2)}$ (cm ⁻¹)
Saclay	1.048	3.3	PS MF	.70 1.62	2.4 5.5
P1	1.018	7.5	PS MF	.94 1.96	3.6 7.5
P2	1.018	7.6	PS MF	.93 2.10	3.5 8.0

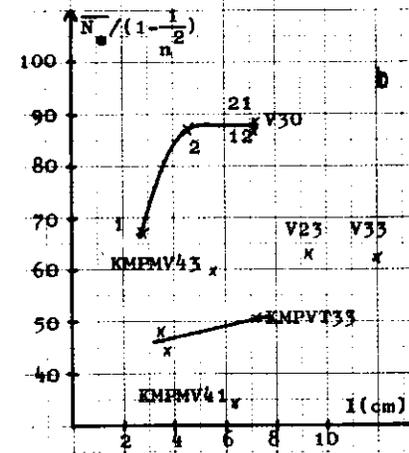
Die Tabelle zeigt die mittlere Photoelektronenzahl \bar{N}_e und den Gütefaktor N_o einer hexagonalen Aerogelprobe aus Saclay (27) und von 2 bei uns hergestellten zylindrischen Aerogel-Radiatoren P1, P2 (25) mit dem mittleren Brechungsindex \bar{n} und der Länge l. Die Ergebnisse wurden in der 3. Meßreihe mit einem Planspiegel (PS) bzw. mit zusätzlicher verspiegelter Mylarfolie (MF) als optische Elemente erhalten. Offenbar besitzen die Proben P1, P2 eine etwas bessere Qualität als die uns aus Saclay zur Verfügung gestellte.

Faktor von etwa 1.4 größer als bei den Saclay-Proben war. Die Größe N_o ist allerdings außer von den Aerogeleigenschaften auch von der Optik des Zählers abhängig. Es ist dabei durchaus möglich, daß der Wirkungsgrad der Optik für die Saclay-Proben wegen ihres großen Cerenkovwinkels $\theta_c = 17.4^\circ$ schlechter ist als für die zylindrischen Proben ($\theta_c = 10.8^\circ$). Da aber auch nach der Auskleidung des Zählers mit verspiegelter Mylarfolie ähnliche Verhältnisse vorlagen, dürfte die Transparenz der zylindrischen Proben etwas besser sein als die der hexagonalen, deren Oberfläche sich durch häufiges Handhaben mit der Zeit verschlechtert hatte (27).

Abbildung 65: Die mittlere Photoelektronenzahl \bar{N}_e in Abhängigkeit der Radiatorlänge l



Diese Meßergebnisse wurden in der 5. Meßreihe unter Einsatz des Absorber-Tunnels gewonnen. Es ist also vorwiegend Licht nachgewiesen worden, das unter kleinen Winkeln zur Richtung des Elektronenstrahls emittiert wurde. Die Abbildung a zeigt die erhaltene mittlere Photoelektronenzahl \bar{N}_e , in der Abbildung b ist die auf den Brechungsindex n normiert worden. Bei 2 Proben konnte die Radiatorlänge variiert werden. Man sieht deutlich, daß bereits bei wenigen Zentimetern eine Sättigung in der Photoelektronenzahl eintritt. Die Probe V30 eignet sich zur Abschätzung der Transmissionslänge T_c gemäß Abschnitt V.1, Block 13, Formel (5), wobei allerdings der unterschiedliche Brechungsindex der Bruchstücke (1.0070 und 1.0084) berücksichtigt werden muß (Abbildung b). Nimmt man für den 1. Meßpunkt an, daß die Photoelektronenzahl \bar{N}_e noch proportional zur Radiatorlänge l ist, erhält man als Transmissionslänge T_c für den Nachweis des Cerenkovlichts 3.5 cm. Da diese Annahme aber offenbar selbst bei diesen kleinen Radiatordimensionen nicht ganz erfüllt ist, kann dieser Wert nur als obere Grenze betrachtet werden. Zum Vergleich dazu beträgt die von Bourdinaud et. al. mit optischen Methoden gemessene Transmissionslänge von in Saclay hergestellten Aerogelproben 1.25 cm bei der Wellenlänge der maximalen spektralen Empfindlichkeit der RCA 8854-

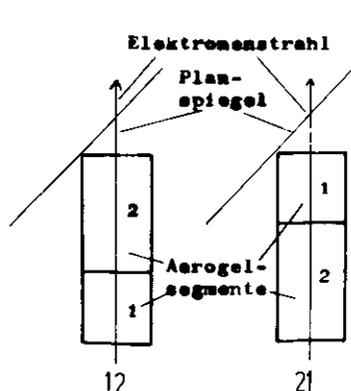


Röhre (400 nm) (32). Ebenso zeigt die Probe V30, daß Brüche senkrecht zur Teilchenrichtung offenbar keinen Einfluß auf den Meßwirkungsgrad des Cerenkovzählers haben. Die unterschiedlichen Anordnungen (12,21) der Radiatorsegmente sind in der Abbildung 66 skizziert.

In der 4. und 5. Meßreihe wurde zunächst die Abhängigkeit der Photoelektronenzahl \bar{N}_e von der Radiatorlänge l untersucht. Dazu dienten vor allem Proben, die radial in mehrere Stücke zerbrochen waren. Typische Ergebnisse sind in der Abbildung 65 dargestellt, die zeigt, daß die Photoelektronenzahl \bar{N}_e wesentlich langsamer ansteigt als die Radiatorlänge l . Die Transmissionslänge der von uns hergestellten Aerogelproben liegt nach diesen Meßwerten im Bereich der maximalen spektralen Empfindlichkeit der Photovervielfacherröhre (um $\lambda = 400 \text{ nm}$) unter 3.5 cm .

An Hand der Probe V30 wurde der Einfluß von Bruchstellen im Aerogel senkrecht zur Teilchenrichtung untersucht, indem die räumliche Anordnung der Bruchstücke verändert wurde (Abbildung 66). Dies ist insofern von Interesse,

Abbildung 66: Anordnung der Aerogelsegmente zur Untersuchung einer Bruchstelle im Aerogel

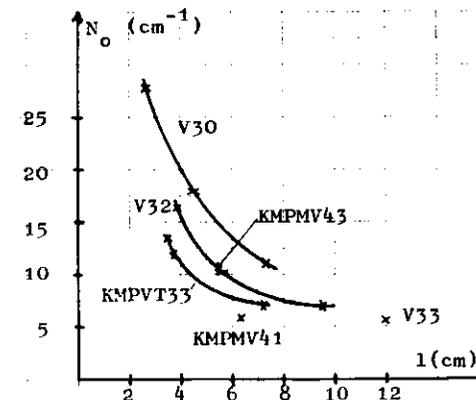


Um den Einfluß einer senkrecht zum Elektronenstrahl orientierten Bruchstelle im Aerogel auf den Meßwirkungsgrad des Cerenkovzählers zu untersuchen, bot sich die in zwei verschiedenen lange Segmente zerbrochene Probe V30 an. Würde an der Bruchstelle sehr viel Cerenkovlicht verloren gehen, sollte man in der Anordnung 12 wesentlich mehr Photoelektronen erwarten als in der Anordnung 21. Die Ergebnisse der Messung sind in der Abbildung 65 diskutiert.

als große Aerogel-Radiatoren, wie sie zum Beispiel im TASSO-Cerenkovzähler eingesetzt werden sollen, aus kleineren Einheiten zusammengesetzt werden müssen. Besonders deutlich zeigt die Abbildung 65b, daß die räumliche Lage der Bruchstücke keinen Einfluß auf den Wirkungsgrad des Cerenkovzählers hatte. Allerdings ist der Anstieg der \bar{N}_e/l -Kurve dieser Probe sehr gering (Abbildung 65a), so daß zu dieser Fragestellung weitere Experimente notwendig sind.

Die Ausnutzung des erzeugten Cerenkovlichts sinkt erwartungsgemäß mit der Radiatorlänge l . Es fällt der Gütefaktor N_0 sehr rasch ab (Abbildung 67) und der Anteil des gestreuten Cerenkovlichts nimmt deutlich zu (Abbildung 68).

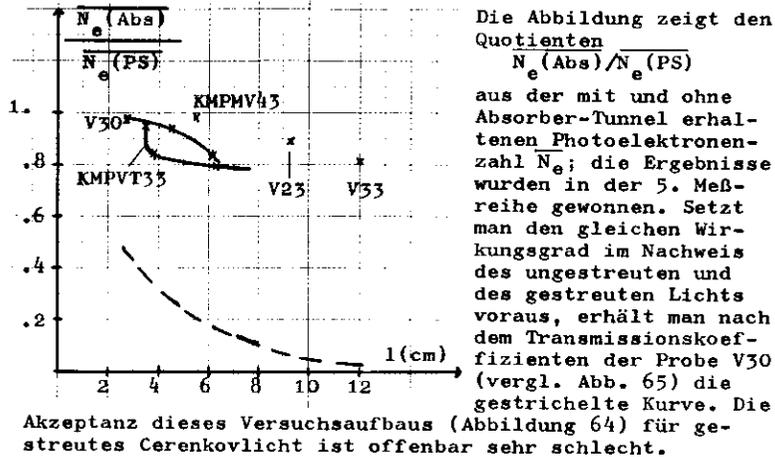
Abbildung 67: Der Gütefaktor N_0 in Abhängigkeit der Radiatorlänge l



In der Abbildung sind einige Ergebnisse der 5. Meßreihe, gewonnen mit dem Absorbertunnel, dargestellt. Erwartungsgemäß fällt N_0 mit wachsender Radiatorlänge ab. Die Probe KMPMV 43 hat gegenüber KMPMV 41 ein um den Faktor 1.8 größeres N_0 . Leider ist der direkte Vergleich mit dem für die Transparenz des Aerogels verantwortlichen Nachreaktionsquotienten nicht möglich,

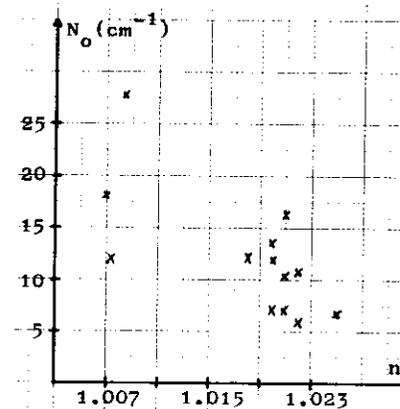
da er in beiden Fällen zu ungenau bestimmt wurde (vergleiche Abschnitt III.2b, Abb. 26 und Tabelle 8). Doch sollte dieser Quotient für die Probe KMPMV 43 aufgrund der um den Faktor 3 größeren zugegebenen Wassermenge bei sonst gleichen Verhältnissen deutlich größer sein als für die Probe KMPMV 41.

Abbildung 68: Die Lichtstreuung in Abhängigkeit der Radiatorlänge l



Leider ist ein Vergleich der erhaltenen Gütefaktoren N_0 bzw. der Absorptionsquotienten der Abbildung 67 für die im Abschnitt III beschriebenen Proben (KMPMV 41,43, KMPVT 33) mit ihren Nachreaktionsquotienten schwierig, da er gerade bei den KMPMV 4-Proben nur sehr ungenau bestimmt werden konnte (vergleiche Abschnitt III.2b, Abbildung 26). Es sollte aber festgehalten werden, daß der Nachreaktionsquotient der Probe KMPMV 43 wegen der großen zugegebenen Wassermenge deutlich größer sein sollte als der der Probe KMPMV 41, was die besseren Ergebnisse der Probe KMPMV 43 verständlich machen würde.

Abbildung 69: Der Gütefaktor N_0 in Abhängigkeit des Brechungsindex n

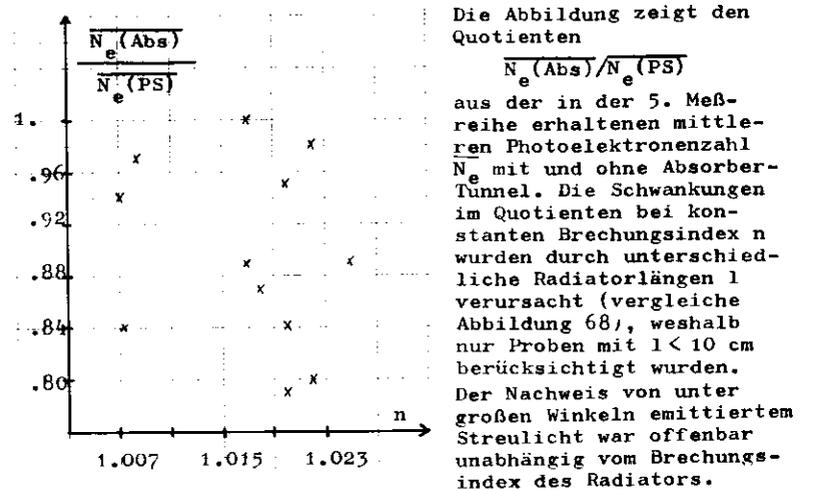


Diese Ergebnisse wurden in der 5. Meßreihe mit dem Absorber-Tunnel gewonnen. Man erkennt eine deutliche Abnahme des Gütefaktors N_0 mit wachsenden Brechungsindex n . Die Schwankungen in N_0 bei gleichem Brechungsindex werden durch unterschiedliche Radiatorlängen verursacht, weshalb nur Proben mit $l < 10$ cm berücksichtigt worden sind (vergleiche Abbildung 67). Offenbar wird bei Proben mit niedrigem Brechungsindex ein größerer Teil des erzeugten Cerenkovlichts nachgewiesen als bei Proben mit hohem Brechungsindex.

Unsere Testmessungen ergaben weiterhin, daß die Größe N_0 für Proben mit niedrigem Brechungsindex ($n < 1.01$) höher liegt als für Proben mit hohem Brechungsindex ($n > 1.015$) (Abbildung 69). Je kleiner der Brechungsindex ist, desto größer ist offenbar der Teil des nachgewiesenen Lichts am emittierten Cerenkovlicht.

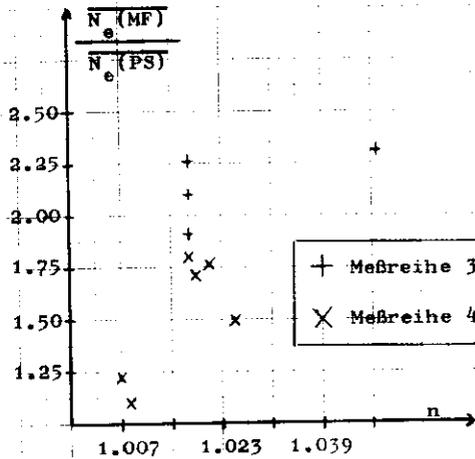
Um zu untersuchen, wodurch die Verluste des Cerenkovlichts verursacht werden, wurde in der 3. und 4. Meßreihe der Zähler mit verspiegelter Mylarfolie ausgekleidet. Das Ergebnis dieser Messungen ist, daß sich die mittlere Photoelektronenzahl \bar{N}_e bei den Proben mit hohem Brechungsindex durch die Mylarfolie im größeren Maße steigern läßt als bei Proben mit niedrigem Brechungsindex (Abbildung 70). Die Ursache ist vor allem die schlechte Akzeptanz dieses Aufbaus für unter großem Cerenkovwinkel emittiertes Licht.

Abbildung 71: Die Lichtstreuung in Abhängigkeit des Brechungsindex n



Die Abbildung zeigt den Quotienten $\frac{N_e(\text{Abs})}{N_e(\text{PS})}$ aus der in der 5. Meßreihe erhaltenen mittleren Photoelektronenzahl N_e mit und ohne Absorbertunnel. Die Schwankungen im Quotienten bei konstanten Brechungsindex n wurden durch unterschiedliche Radiatorlängen l verursacht (vergleiche Abbildung 68), weshalb nur Proben mit $l < 10$ cm berücksichtigt wurden. Der Nachweis von unter großen Winkeln emittiertem Streulicht war offenbar unabhängig vom Brechungsindex des Radiators.

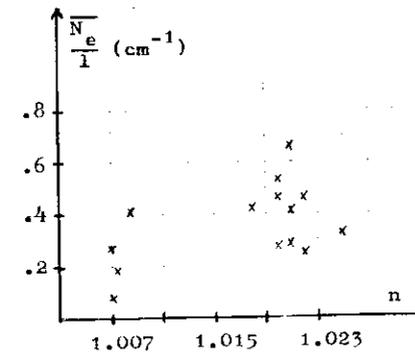
Abbildung 70: Die Steigerung der mittleren Photoelektronenzahl N_e durch verspiegelte Mylarfolie



Die Abbildung zeigt den in der 3. und 4. Meßreihe erhaltenen Quotienten $\frac{N_e(\text{MF})}{N_e(\text{PS})}$

der mittleren Photoelektronenzahl N_e , die mit einem Planspiegel (PS) bzw. mit zusätzlicher verspiegelter Mylarfolie (MF) als optische Elemente erhalten wurde. Der Wirkungsgrad des Cerenkovzählers ließ sich insbesondere bei Proben mit großem Brechungsindex n durch die verspiegelte Mylarfolie steigern. Dies zeigt die mit dem Brechungsindex n wachsende Schwierigkeit, das Cerenkovlicht auf die Photovervielfacherröhren zu sammeln.

Abbildung 72: Die mittlere Photoelektronenzahl N_e für Radiatoren verschiedener Brechungsindizes n



Die in der 5. Meßreihe mit dem Absorber-Tunnel gewonnenen mittleren Photoelektronenzahlen N_e sind auf die Radiatorlänge l normiert worden. Offenbar erreicht man mit zunehmendem Brechungsindex n einen wachsenden Wirkungsgrad des Cerenkovzählers. Dies ist durch die mit dem Faktor $(1-1/n^2)$ proportionale Zahl der im Cerenkov-Radiator erzeugten Photonen bedingt (Abschnitt II.1, Block 1, Formel (4a)).

Im Gegensatz dazu ist die Absorption des Cerenkovlichts im Absorber-Tunnel der 5. Meßreihe (Abstand Photovervielfacher-Aerogel = 14.5 cm, vergleiche Abbildung 64) nahezu unabhängig vom Brechungsindex (Abbildung 71). Dies zeigt, wie bereits Abbildung 68, daß die Akzeptanz dieses Zählers für das gestreute Cerenkovlicht sehr schlecht war.

Trotz ihres guten Wirkungsgrades in der Ausnutzung des erzeugten Cerenkovlichts liefern die Radiatoren mit niedrigem Brechungsindex weniger

Photoelektronen als die mit hohem Brechungsindex n (Abbildung 72), denn die erzeugte Lichtmenge ist proportional zu $(1-1/n^2)$ (Abschnitt II.1, Block 1, Formel 4a). Von den bei uns hergestellten Radiatoren sind die mit einem Brechungsindex um 1.02 in Hinblick auf den Wirkungsgrad für den Einsatz im Cerenkovzähler am geeignetsten.

Betrachtet man die erhaltenen Photoelektronenzahlen \overline{N}_e quantitativ, so befinden wir uns mit den hergestellten Radiatoren an der unteren Grenze dessen, womit ein Cerenkovzähler sinnvoll eingesetzt werden kann. In Bezug auf die Radiatorlänge, bei der eine Sättigung der Photoelektronenzahl eintritt, sind für den Einsatz im TASSO-Cerenkovzähler Verbesserungen um einen Faktor 2 bis 3 notwendig.

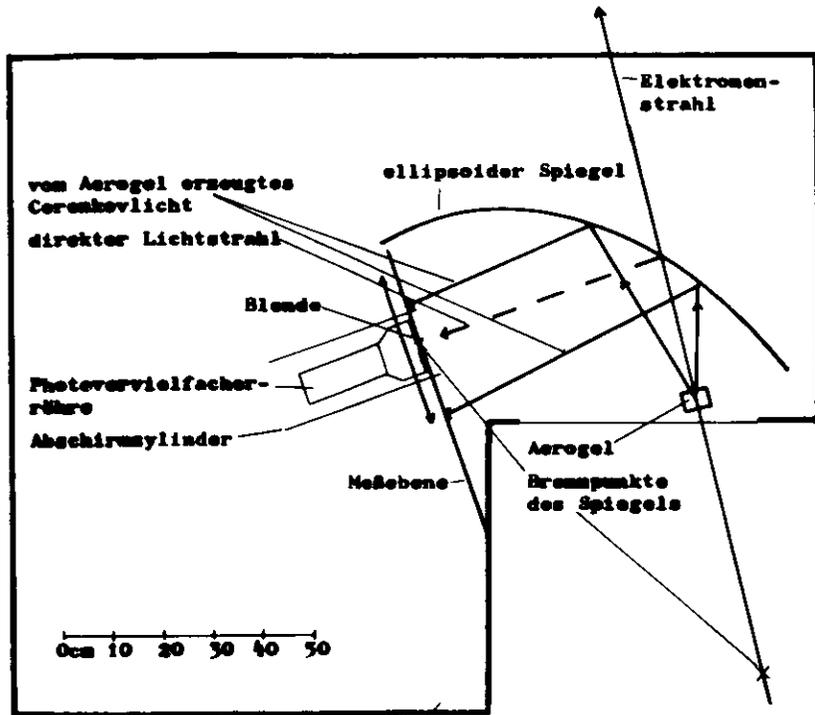
V.4d Die räumliche Intensitätsverteilung des Cerenkovlichts

In der 2. und 5. Meßreihe wurde mit geringfügig unterschiedlichen Methoden die Intensitätsverteilung des Cerenkovlichts in der Ebene der Photokathode gemessen. Damit konnten vor allem weitere Erkenntnisse über das Streuvermögen der Aerogelradiatoren gewonnen werden; außerdem war mit dem Ergebnis der 5. Meßreihe eine Kontrolle der Brechungsindexmessung des Abschnitts IV möglich. In beiden Meßreihen wurde die empfindliche Fläche der Photokathode auf 5% bis 12% verringert. Aufgrund des damit verbundenen niedrigen Meßwirkungsgrades mußte die Triggerzählrate auf 10,000 erhöht werden, damit der relative Fehler hinreichend klein wurde (2. Meßreihe: $\sigma(\overline{N}_e)/\overline{N}_e < 4\%$, 5. Meßreihe: $\sigma(\overline{N}_e)/\overline{N}_e < 2\%$).

Den Versuchsaufbau der 2. Meßreihe zeigt die Abbildung 73. Als Radiator wurde die Aerogelprobe aus Saclay (27) (Brechungsindex $n = 1.048$, Länge $l = 3.3$ cm) eingesetzt. Die Photovervielfacherröhre wurde bis auf eine Kreisfläche mit einem Durchmesser von 3 cm abgedunkelt und in der Ebene bewegt, die den inneren Brennpunkt des Zählers enthält und senkrecht auf dem Lichtstrahl steht, der vom äußeren Brennpunkt durch das Aerogel geht.

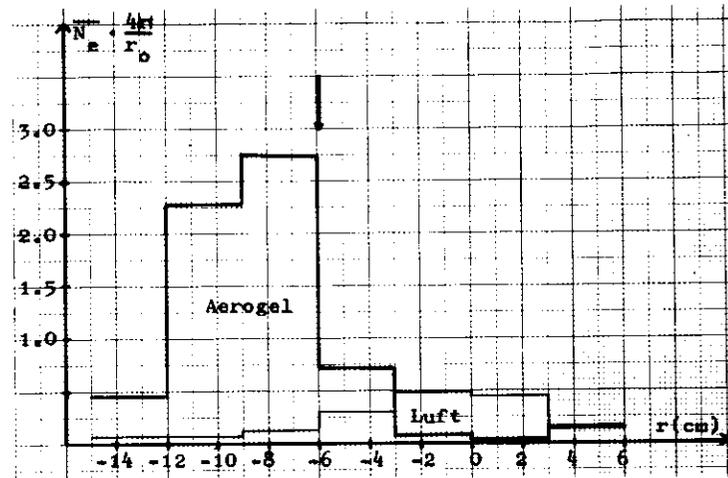
Die Meßergebnisse sind in der Abbildung 74 dargestellt, in der bereits über die entsprechende Ringfläche des Cerenkovlichtkegels integriert wurde (Abbildung 75); der Schnittpunkt der Kegelachse mit der Katodenebene wurde durch das Maximum des in Luft erzeugten Cerenkovlichts festgelegt.

Abbildung 73: Der Versuchsaufbau der 2. Meßreihe zur Messung der Intensitätsverteilung des Cerenkovlichts



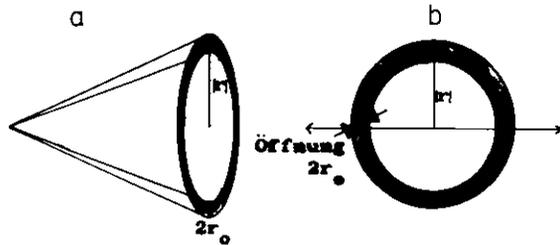
Die Intensitätsverteilung wurde innerhalb der Meßebene aufgenommen, die senkrecht auf dem Lichtstrahl steht, der vom äußeren Brennpunkt des Zählers durch das Aerogel läuft, und die den inneren Brennpunkt enthält. Die Photovervielfacherröhre ist durch eine Blende bis auf eine Kreisfläche mit einem Durchmesser von 30 mm abgedunkelt worden; sie wurde parallel zur Meßebene verschoben. Weiterhin sind die berechneten Schnittgeraden des Cerenkovlichtkegels mit der Zeichenebene dargestellt, bei deren Berechnung ein idealer ellipsoider Spiegel mit den Halbachsen $a=629$ mm und $b=459$ mm vorausgesetzt wurde.

Abbildung 74: Die Intensitätsverteilung des Cerenkovlichts (Meßreihe 2)



Die Abbildung zeigt die aus den Meßdaten berechnete Photoelektronenzahl ($N_e \cdot 4|r|/r_0$), die man in der Ringfläche der Abbildung 75 erhalten würde. Der Nullpunkt der Ortskala r wurde in das Maximum des durch Luft erzeugten Cerenkovlichts gelegt, da es mit einem Cerenkovwinkel von 1.36° kaum vom direkten Lichtstrahl aus dem äußeren Brennpunkt abweicht (gestrichelte Linie in der Abbildung 73). Die negativen Ortswerte entsprechen einer Bewegung der Photovervielfacherröhre zum Spiegel hin, die positiven vom Spiegel weg. Es wurde für jeden Ortswert r eine Messung ohne Aerogel durchgeführt und so die Luft-Kurve ermittelt, außerdem wurde mit Aerogel als Radiator gemessen und unter Berücksichtigung der Luft-Korrektur die Aerogel-Kurve aufgenommen. Der Pfeil deutet an, wo bei idealem ellipsoiden Spiegel das Maximum des im Aerogel erzeugten Cerenkovlichts zu erwarten gewesen wäre; im positiven Bereich der Ortsskala sollte es bei $+14.3$ cm liegen, es konnte aber kein Signal, daß deutlich über dem Rauschen der Photovervielfacherröhre liegt, nachgewiesen werden. Die Abweichung der Meßwerte vom theoretischen Verhalten dürften durch die nicht-ideale Form des Spiegels verursacht worden sein. Vergleicht man die Intensität des durch Aerogel erzeugten Cerenkovlichts mit der des durch Luft erzeugten Lichts, erhält man unter Berücksichtigung der verschiedenen Radiatorlängen gemäß Block 17 eine Transmissionslänge des Aerogels von $T_c = .7$ cm.

Abbildung 75: Die Berechnung der Intensität des Cerenkovlichts



Die auf eine Kreisfläche mit dem Radius $r_0 = 15$ mm abgedunkelte Photovervielfacherröhre wurde entlang des Doppelpfeils verschoben (b). Dabei wurde nur ein kleiner Teil des kegelförmig emittierten Lichts (a) nachgewiesen. Die gemessene Photoelektronenzahl \overline{N}_e mußte also auf die gesamte Ringfläche (Radius $|r|$) umgerechnet werden, die man unter der Annahme erhält, daß das Cerenkovlicht sich auch nach der Reflexion am ellipsoiden Spiegel nahezu kegelförmig ausbreitet (Kegelschnitt senkrecht zur Kegelachse). Man erhält damit gemäß Abbildung b für die gesamte Photoelektronenzahl \overline{N}_{eR} der Ringfläche:

$$\overline{N}_{eR} = \overline{N}_e \frac{4|r|}{r_0}$$

Vergleicht man die Intensität des im Aerogel emittierten, ungestreuten Cerenkovlichts mit der des in Luft erzeugten, so erhält man nach den im Block 17 beschriebenen Formeln eine Transmissionslänge T_c des Aerogelradiators von .7 cm. Dies stimmt größenordnungsmäßig mit dem von Bourdinaud et. al. mit optischen Methoden gemessenen Wert von 1.25 cm bei einer Wellenlänge von 400 nm überein. (32)

Eine Berechnung des Cerenkovwinkels aus diesen Daten erweist sich leider als kaum durchführbar. Da der Spiegel mit einem LASER nicht nur durch Verschieben sondern auch durch leichte Deformation einjustiert worden ist, sind seine Halbachsen

Block 17: Die Bestimmung der Transmissionslänge T_c in der 2. Meßreihe

Entsprechend der Formel (2) des Blocks 13 gilt für die Zahl \overline{N}_{eR} der in der Ringfläche der Abbildung 75 nachgewiesenen Elektronen:

$$\overline{N}_{eR} = \frac{\overline{N}_{eth}}{l_A} T_c \cos \theta_c \left(1 - \exp\left(-\frac{l_A}{\cos \theta_c} T_c\right) \right) \quad (1)$$

T_c = Transmissionslänge des Aerogels für den Nachweis des Cerenkovlichts

\overline{N}_{eth} = Zahl der Photoelektronen, die der Zahl der im Aerogel erzeugten Photonen entspricht

l_A = Aerogellänge
 θ_c = Cerenkovwinkel

Die Zahl \overline{N}_{eth} der den erzeugten Photonen entsprechenden Photoelektronen kann man aus der durch Luft verursachten Photoelektronenzahl \overline{N}_{eL} , den Brechungsindizes von Luft n_L und Aerogel n_A und den Radiatorlängen l_L bzw. l_A berechnen zu (vergleiche Abschnitt II.1, Block 1):

$$\overline{N}_{eth} = \overline{N}_{eL} \frac{1-1/n_A^2}{1-1/n_L^2} \frac{l_A}{l_L} \quad (2)$$

Mit der Näherung $T_c \ll l_A$ erhält man nach Block 13, Formel (4):

$$T_c = l_A \frac{\overline{N}_{eR}}{\overline{N}_{eth}} \quad (3)$$

Aus der Abbildung 74 erhält man die Werte:

$$\overline{N}_{eL} = 1.21 \quad \overline{N}_{eR} = 5.76$$

Mit den Radiatorlängen und den Brechungsindizes

$$l_L = 23 \text{ cm} \quad l_A = 3.3 \text{ cm}$$

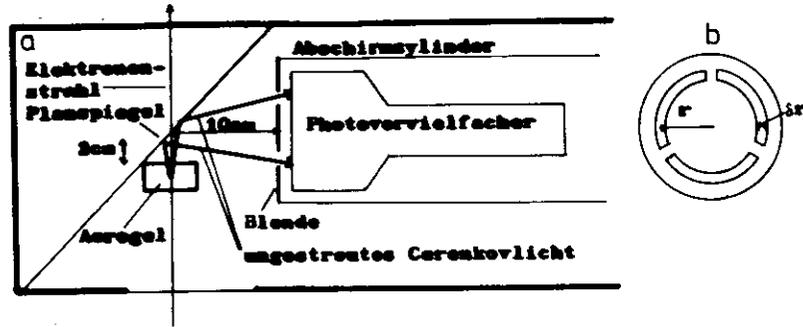
$$n_L = 1.00028 \quad n_A = 1.048$$

erhält man eine Transmissionslänge T_c von:

$$T_c = .68 \text{ cm}$$

Setzt man diesen Wert wieder in die Gleichung (1) ein, folgt $\overline{N}_{eR} = 5.58$, daß heißt der durch die Näherung der Formel (3) bedingte Fehler liegt in der gleichen Größenordnung wie der mittlere quadratische Fehler der Photoelektronenzahl \overline{N}_e ($\approx 4\%$).

Abbildung 76: Der Versuchsaufbau zur Messung der Intensitätsverteilung des Cerenkovlichts (Meßreihe 5)



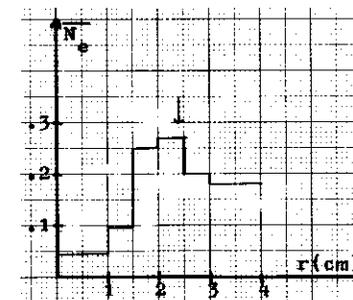
Die Intensitätsverteilung wurde bestimmt, indem die Photovervielfacherröhre durch Ringblenden abgedunkelt wurde (a), die einen unterschiedlichen Radius r aber ein konstante Breite δr hatten (b). Als Radiator diente ein Segment der Aerogelprobe KMPVT 33 mit der Länge $l = 3.5$ cm und dem Brechungsindex $n = 1.020$.

nicht genau genug bekannt, um den Cerenkovwinkel vernünftig berechnen zu können. Immerhin verdeutlicht der große Abstand des Maximums des im Aerogel erzeugten Cerenkovlichts von der Achse des Lichtkegels die mit dem großen Cerenkovwinkel verbundenen Schwierigkeiten beim Bau eines Aerogel-Cerenkovzählers.

In der 5. Meßreihe wurde die räumliche Intensitätsverteilung des Cerenkovlichts gemessen, indem die Photokathode durch ringförmige Blenden verschiedener Radien abgedunkelt wurde. Wegen der Krümmung der Photokathode wurden die Blenden an der Öffnung des Abschirmzylinders befestigt (Abbildung 76). Als Radiator wurde ein Segment der Probe KMPVT 33 eingesetzt, seine Länge betrug 3.5 cm, sein Brechungsindex 1.020.

Die Meßdaten sind in der Abbildung 77 dargestellt. Das Maximum ist recht breit und entspricht einem Cerenkovwinkel θ_c zwischen 7.1° und 11.7° ; der entsprechende Brechungsindex liegt im Intervall von 1.008 und 1.021, was mit dem Meßwert von 1.020 nach der Methode des Abschnitts IV gerade noch verträglich ist. Die Verschiebung des Maximums mag durch eine ungenaue Justierung des Spiegels bzw. des Elektronenstrahls bedingt sein. Vergleicht man die Intensität des Cerenkovlichts, bzw. die mittlere Photoelektronenzahl \bar{N}_e im Maximum mit der ohne Blende gemessenen, so erhält man daraus eine Transmissionslänge von .9 cm. Im Vergleich dazu erhielten wir für die Probe V30 im Abschnitt V.4c aus der Sättigung der Photoelektronenzahl (Abbildung 65)

Abbildung 77: Die Intensitätsverteilung des Cerenkovlichts (Meßreihe 5)



Die nach der Abbildung 76 mit einem Segment der Probe KMPVT 33 (Länge $l = 3.5$ cm, Brechungsindex $n = 1.020$) gemessene räumliche Intensitätsverteilung des Cerenkovlichts weist ein relativ breites Maximum und einen sehr langsamen Abfall zu größeren Blendenradien r auf. Der im Abschnitt IV gemessene Brechungsindex liegt gerade noch im Bereich dieser Messung (Pfeil). Vergleicht man die im Maximum gemessene Photoelektronenzahl (.52) mit der ohne Blende gemessenen (2.01), so erhält man mit der Formel (3) des Blocks 17 eine Transmissionslänge T_c von .9 cm.

eine obere Grenze der Transmissionslänge T_c von 3.5 cm; beide Werte sind also miteinander verträglich.

Diese Messungen der räumlichen Intensitätsverteilung des Cerenkovlichts stehen somit in einem recht guten Einklang mit den Ergebnissen der vorangegangenen Abschnitte.

VI Simulationsrechnungen zum Verhalten des Aerogels als Cerenkov-Radiator

Im Gegensatz zu einem idealen Cerenkov-Radiator, in dem sich das Cerenkovlicht ungestört ausbreitet, ist im Aerogel die Lichtstreuung und -absorption nicht zu vernachlässigen. Um Vorstellungen über die Voraussetzungen zu erhalten, unter denen Aerogel in einem Cerenkovzähler einsetzbar ist, wurden Simulationsrechnungen durchgeführt. Dabei ging man davon aus, daß geladene Teilchen von einem Wechselwirkungspunkt kommend durch einen endlichen Aerogel-Radiator fliegen und dabei Cerenkovlicht gemäß den Formeln (4) im Block 1, Abschnitt II.1 erzeugen. Jedes einzelne Photon wird im Aerogel verfolgt, bis es gegebenenfalls nach mehreren Streueignissen den Radiator verläßt oder in ihm absorbiert wird.

In diesem Programm werden die Streu- und Absorptionslänge als Eingangsgrößen vorgegeben und müssen vorher experimentell bestimmt werden. Da wir entsprechende Messungen an unseren Proben noch nicht durchführen konnten, wurden diese Parameter in Anlehnung an Messungen von Bourdinaud et. al. (32) gewählt. Ebenso ist die Richtungsverteilung des gestreuten Lichts vorgegeben worden.

In einem großen Aerogel-Cerenkovzähler, wie beispielsweise der für den TASSO-Detektor geplante, wird bei einer Lichtsammlung durch Spiegel hauptsächlich das ungestreute Licht nachweisbar sein. Daher wurde insbesondere die integrierte und die spektrale Intensität des nicht im Aerogel gestreuten Cerenkovlichts in Abhängigkeit der Radiatorlänge untersucht.

VI.1 Die Streuung des Cerenkovlichts im Aerogel

Die Streuung von Licht an einem Streukörper hängt wesentlich von der Wellenlänge im Ausbreitungsmedium und der Polarisationsrichtung des Lichts ab, sowie von der Polarisierbarkeit des Streuzentrums und damit von seiner Größe und seinem Brechungsindex n_s im Verhältnis zum Brechungsindex n_0 des Ausbreitungsmediums. Für sphärische Streuzentren ist 1908 von Gustav Mie eine geschlossene Theorie veröffentlicht worden. Ausgehend von den Maxwell'schen Gleichungen hat Mie über die Zerlegung des einfallenden Lichts in elektrische und magnetische Partialwellen die Intensität des gestreuten Lichts in Abhängigkeit von der Polarisationsrichtung berechnet (33).

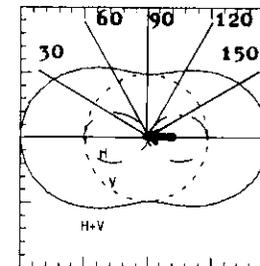
Das Cerenkovlicht ist so polarisiert, daß der Vektor der elektrischen Feldstärke \vec{E} senkrecht auf der Kegeloberfläche steht (3) (vergleiche Abschnitt II.1). Aufgrund der kegelförmigen Emission des Cerenkovlichts kann man aber bezüglich der Ebene, in der die Spur des einfallenden geladenen Teilchens und der Beobachter liegen, keine Polarisationsrichtung angeben. Daher wurde im Rahmen dieser Arbeit die Streuung unpolarisierten Lichts betrachtet. Unter diesen Voraussetzungen ist das gestreute Licht ebenfalls unpolarisiert.(34)

Die Abhängigkeit der Intensität I_s des gestreuten im Verhältnis zur Intensität I_0 des einfallenden Lichts vom Verhältnis der Brechungsindizes des Streuzentrums und des Ausbreitungsmediums macht verständlich, daß im Alkogel wesentlich weniger Licht als im Aerogel gestreut wird (vergleiche Abschnitt III.2). So ist zum Beispiel

in einem Alkogel mit Isopropanol als Lösungsmittel in 1. Näherung die Lichtstreuung um einen Faktor 3600 kleiner als in Aerogel, denn die Brechungsindizes von Isopropanol ($n = 1.38$) und amorphem Siliziumdioxid ($n = 1.45$) unterscheiden sich nur sehr geringfügig (vergleiche Block 18).

Die wesentlichen Aussagen der Mie'schen Theorie sind, daß die Wellenlängenabhängigkeit des Streuvermögens und die Richtungscharakteristik des gestreuten Lichts vom Verhältnis des Radius r_s des Streuzentrums zur Wellenlänge λ bestimmt wird (33). Bei sehr kleinen Streuzentren ($q = \frac{D}{2\pi r_s} / \lambda \ll 1$) ist die Streuintensität proportional zu λ^{-4} und das gestreute (unpolarisierte) Licht wird gemäß einer $(1+\cos^2\theta)$ -Verteilung emittiert (Abbildung 78). Diese 1. Näherung der Mie-Streuung, in der nur die 1. elektrische Partialwelle des einfallenden Lichts berücksichtigt wird, stimmt mit der Rayleigh-Streuung überein (34).

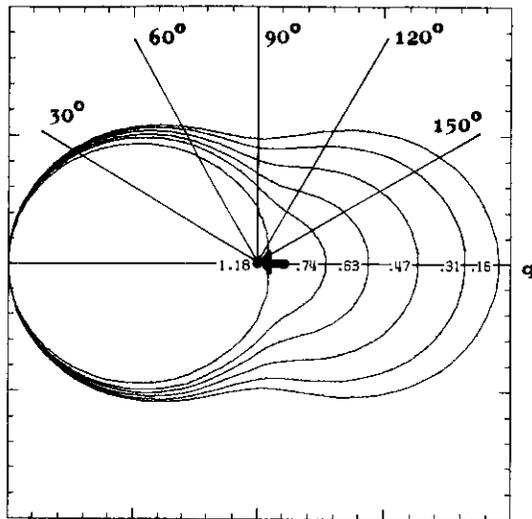
Abbildung 78: Die Lichtstreuung an kleinen Streuzentren



Die Abbildung zeigt die Richtungsabhängigkeit der Lichtstreuung an sehr kleinen Streuzentren ($q=2\pi r_s/\lambda = .016$), die nach der Näherungsformel (6a) des Blocks 18 berechnet wurde. Das einfallende Licht ist durch den Pfeil angedeutet, das Streuzentrum liegt an der Pfeilspitze im Zentrum des Bildes. Die Streuwinkel θ_s (°) laufen von der Richtung des einfallenden Lichts um das Streuzentrum herum. H bezeichnet horizontal, V

vertikal polarisiertes Licht; die Polarisationsrichtung bezieht sich dabei auf die Stellung des Vektors \vec{E} der elektrischen Feldstärke relativ zu der durch die Richtung des einfallenden Lichts und den Beobachter bestimmten Ebene. Das Streuverhalten des unpolarisierten Lichts (H+V) gibt die durchgezogene Linie wieder. Bei so kleinen Streuzentren weicht die Streuwinkelverteilung nur sehr geringfügig von der Rayleigh-Streuung ab ($(1+\cos^2\theta_s)$ für unpolarisiertes Licht).

Abbildung 79: Die Richtungsabhängigkeit der Streulicht-Intensität für verschiedenen große Radien r_s der Streuzentren



Die Abbildung zeigt die nach der Formel (6), Block 18 berechnete Richtungsabhängigkeit der Intensität von unpolarisiertem, gestreutem Licht in Abhängigkeit des Parameters $q = 2\pi r_s / \lambda$ (λ = Wellenlänge des Lichts im Ausbreitungsmedium). Als Streuzentrum (Punkt) wurde eine Kugel mit dem Radius r_s aus amorphem Siliziumdioxid und als Ausbreitungsmedium Luft angenommen. Die Streuwinkel θ_s ($^\circ$) laufen ausgehend von der Richtung des einfallenden Lichts (Pfeil) um das Streuzentrum (Punkt) herum. Die Abbildung veranschaulicht, wie bei zunehmendem q das Streulicht vorwiegend in Vorwärtsrichtung emittiert wird (Mie-Effekt).

Bei größeren Werten von q müssen auch die höheren Partialwellen einbezogen werden, wobei die l -te magnetische Partialwelle etwa die gleiche Amplitude wie die $(l+1)$ -te elektrische hat (34). Eine für große Streuzentren gültige Faustformel besagt, daß mindestens $l \gg q$ Partialwellen berücksichtigt werden müssen (33). Die für diese Arbeit wichtigsten Formeln sind im Block 18 zusammengestellt.

Block 18: Die Mie-Streuung

Die Theorie von Mie beschreibt die Streuung von Licht an sphärischen Streuzentren. Ausgehend von den Maxwell'schen Gleichungen erhält man über die Zerlegung des einfallenden Lichts in elektrische und magnetische Partialwellen für die Intensität des Streulichts die unendlichen Reihen (33,34):

$$I_V = \frac{1}{q^2} \left| \sum_{l=1}^{\infty} (-i)^l \left(B_l^e \frac{P_l^{(1)'(\cos\theta_s)}(\cos\theta_s)}{\sin\theta_s} - B_l^m P_l^{(1)}(\cos\theta_s) \sin\theta_s \right) \right|^2 \quad (1)$$

$$I_H = \frac{1}{q^2} \left| \sum_{l=1}^{\infty} (-i)^l \left(B_l^e P_l^{(1)}(\cos\theta_s) \sin\theta_s - B_l^m \frac{P_l^{(1)'(\cos\theta_s)}(\cos\theta_s)}{\sin\theta_s} \right) \right|^2$$

$I_{V,H}$ = Intensität des gestreuten Lichts bei vertikal (horizontal) polarisiertem einfallendem Licht. Die Beobachtungsebene ist durch die Richtung des einfallenden Lichts und die Beobachtungsrichtung festgelegt.

$q = 2\pi r_s / \lambda$

r_s = Radius des Streuzentrums

λ = Wellenlänge des einfallenden Lichts im Ausbreitungsmedium

$B_l^{1,m}$ = Koeffizienten der elektrischen (magnetischen) Partialwelle der Ordnung l (34, Kapitel 13.5.2)

θ_s = Richtung des gestreuten relativ zum einfallenden Licht

Dabei gilt für die Legendre-Funktionen (34):

$$P_l^{(1)}(\cos\theta_s) = \frac{1}{\sin\theta_s} (P_{l-1}(\cos\theta_s) - \cos\theta_s P_l(\cos\theta_s)) \quad (2)$$

$$P_l^{(1)'(\cos\theta_s)} = \frac{\cos\theta_s}{\sin^2\theta_s} P_l^{(1)}(\cos\theta_s) - l(l+1) \frac{P_l(\cos\theta_s)}{\sin\theta_s}$$

$P_l(\cos\theta_s)$ = Legendre-Polynome

Die über alle Raumwinkel integrierte Intensität I_s des Streulichts ist eine komplizierte Funktion $f(q)$ der Variablen q (35):

$$I_s \propto \pi r_s^2 f(q) \quad f(q) \begin{cases} \approx q^4 & \text{für } q \ll 1 \\ \approx q^2 & \text{für } q \approx 1 \\ \rightarrow 2 & \text{für } q \gg 1 \end{cases} \quad (3)$$

Betrachtet man für $q \ll 1$ nur die erste elektrische Partialwelle, erhält man die Formeln der Rayleigh-Streuung (35):

$$I_H = \frac{|a_1 \cos\theta_s|^2}{q^2} \quad I_V = \frac{|a_1|^2}{q^2} \quad (4a)$$

mit dem Koeffizienten

$$a_1 = q^3 \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \quad m = \frac{n}{n_0} \quad (4b)$$

n = Brechungsindex des Streuzentrums
 n_0 = Brechungsindex des Ausbreitungsmediums

Damit erhält man für die Rayleigh-Streuung unpolarisierten Lichts die Streuintensität I_s :

$$I_s = q^4 \left| \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right| (1 + \cos^2\theta_s) \quad (5)$$

Weiterhin ist die für $r_s/\lambda \leq 0.2$ gültige 2. Näherung der Mie-Streuung leicht zu handhaben, die außer der 1. elektrischen noch die 2. elektrische und die 1. magnetische Partialwelle berücksichtigt (35):

$$I_H = \frac{1}{q^2} \left| a_1 \cos\theta_s + a_2 \cos^2\theta_s + 2b_1 \right|^2 \quad (6a)$$

$$I_V = \frac{1}{q^2} \left| a_1 + (a_2 + b_1) \cos\theta_s \right|^2$$

Mit den Koeffizienten

$$a_2 = -\frac{1}{12} q^5 \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \quad b_1 = -\frac{1}{30} q^5 (m^2 - 1) \quad (6b)$$

Für größere Streuzentren gilt die Faustregel, daß man elektrische Partialwellen bis zur Ordnung $l \geq q$ und entsprechend $(l-1)$ magnetische Partialwellen berücksichtigen muß (35).

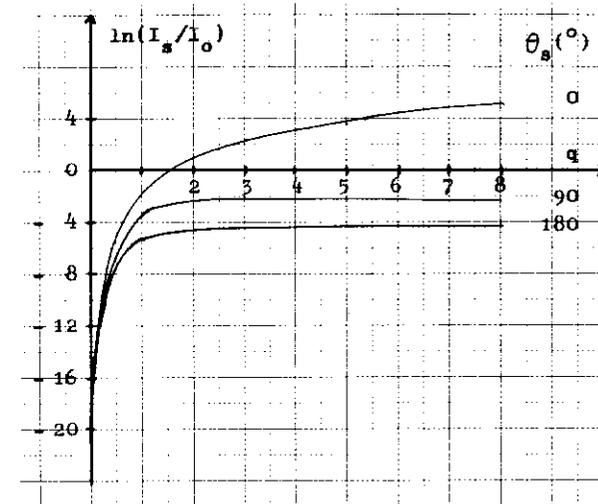
Die höheren Partialwellen führen bei großen Radien der Streuzentren zu einer entscheidenden Änderung der Richtungscharakteristik des Streulichts (Mie-Effekt). Die Abbildung 79 gibt einen Eindruck über die Zunahme der Streuung in Vorwärtsrichtung. An Streuzentren, die wesentlich größer als die Wellenlänge des Lichts sind, wird aufgrund geometrischer Effekte das meiste Licht reflektiert (34).

Die Intensität des gestreuten Lichts im Verhältnis zum einfallenden Licht nimmt dabei so stark zu (beispielsweise um einen Faktor 10^{11} bei einer Änderung von q von .01 auf 8), daß man aus der geänderten Richtungscharakteristik in Bezug auf den Nachweis des Cerenkovlichts nichts gewinnt. Die Abbildung 80 zeigt für ein Beispiel die Intensität des in Vorwärts- und Rückwärtsrichtung sowie senkrecht zum einfallenden Lichtstrahl gestreuten Lichts (34).

Weiterhin geht aus dieser Abbildung hervor, wie sich die Streuintensität mit der Wellenlänge des Lichts ändert. Bei kleinen Radien r_s (kleines q) nimmt die Streuintensität wesentlich schneller mit abnehmender Wellenlänge (wachsendem q) zu als bei großen Radien r_s (großes q) der Streuzentren.

Der milchig-weiße Schimmer des Aerogels legt nahe, daß im Aerogel Streuzentren existieren, deren Streuvermögen im Bereich des sichtbaren Lichts unabhängig von der Wellenlänge ist. Die Radien dieser Streuzentren müssen nach Block 18 in der Größenordnung der Wellenlänge des sichtbaren Lichts liegen (400 nm - 800 nm), weshalb

Abbildung 80: Die Intensität I_s des Streulichts in Abhängigkeit von q



Die Abbildung zeigt den mittleren Verlauf der Streu-Intensität I_s bezüglich der Intensität I_0 des einfallenden Lichts in Abhängigkeit des Parameters q (siehe Block 18, Formel (1)) für die Streuung in Vorwärts- und Rückwärtsrichtung sowie senkrecht zum einfallenden Licht. Als Streuzentrum wurde eine Kugel mit dem Brechungsindex 1.25 angenommen. In dieser Abbildung, der Berechnungen von H. Blumer zugrunde liegen (34), ist über Extrema, die ab $q > 1$ auftreten, gemittelt worden, um das prinzipielle Verhalten deutlicher zu zeigen. Man erkennt, daß die Intensität des Streulichts sehr stark mit q wächst und daß bei großem q die Vorwärtsrichtung um einen Faktor > 1000 gegenüber der Rückwärtsstreuung dominiert.

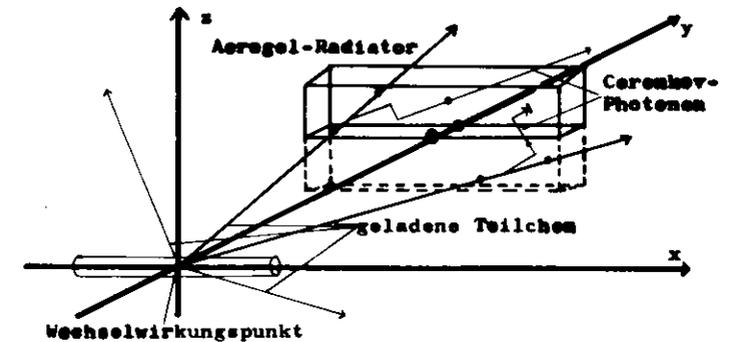
die Primärteilchen (Radius ≈ 10 nm) der Gelstruktur als Streuzentren hierfür nicht in Betracht gezogen werden können (vergleiche Abschnitt III.1a, Block 7). Der Schlüssel zur Erhöhung der Transparenz des Aerogels liegt damit im Erreichen kleinerer Streuzentren, also einer möglichst homogenen Gel-Struktur.

Dabei ist es durchaus von Bedeutung, ob das Licht an Siliziumdioxid oder Luft gestreut wird, da sich insbesondere die Wellenlänge des Lichts in diesen beiden Medien um das Verhältnis ihrer Brechungsindizes $n(\text{SiO}_2)/n(\text{Luft}) = 1,45$ unterscheidet. So ergibt sich zum Beispiel mit der Formel (5) des Blocks 18 für reine Rayleigh-Streuung, daß die Intensität des an Luft gestreuten Lichts um einen Faktor 6 kleiner ist als die des unter gleichen Bedingungen an amorphem Siliziumdioxid gestreuten Lichts.

VI.2 Die Beschreibung des Simulationsprogramms

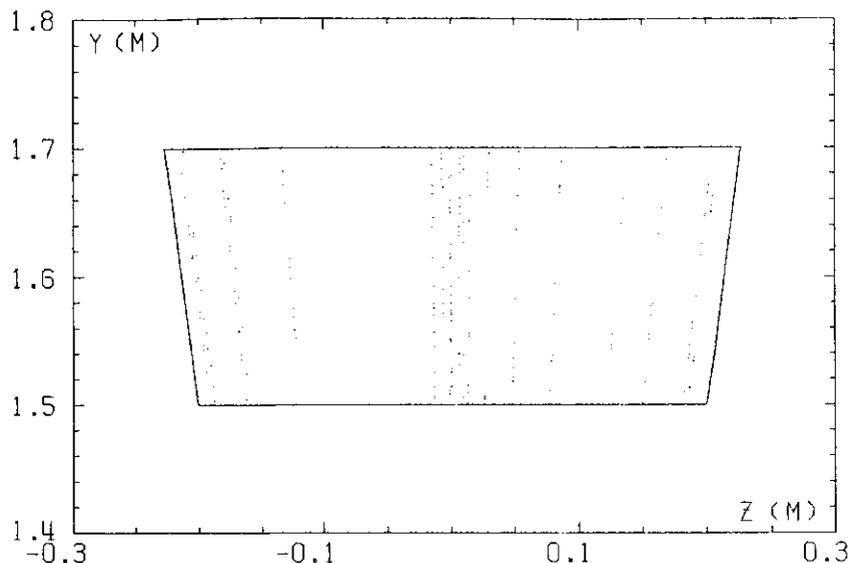
Das Simulationsprogramm berechnet die Streuung und Absorption von Cerenkovlicht in einem Aerogel-Radiator, dessen Abmessungen Eingangsgrößen des Programms sind. Dabei wird davon ausgegangen, daß geladene Teilchen von einem Punkt, der normalerweise als Ursprung des Koordinatensystems gewählt wird, mit Vakuum-Lichtgeschwindigkeit in beliebige Richtungen fliegen (Abbildung 81).

Abbildung 81: Die schematische Funktionsweise des Simulationsprogramms



Im Simulationsprogramm sind die Größe und die Lage des Aerogel-Radiators als Eingangsgrößen festzulegen. Der Radiator ist in der x-z-Projektion rechteckig und in der y-z-Projektion trapezförmig (vergleiche Abbildung 82). Es werden die Richtungen der vom Wechselwirkungspunkt ausgehenden Teilchenspuren über zwei Zufallsvariable bestimmt, aber nur die Teilchenspuren betrachtet, die den Radiator in seiner gesamten y-Ausdehnung durchkreuzen. Eine zur Weglänge der Teilchen im Aerogel proportionale Zahl von Emissionsorten von Cerenkovphotonen wird entlang der Teilchenspur gewürfelt. Jedes einzelne Photon (dünne, von der Teilchenspur ausgehende Pfeile) wird verfolgt, bis es nach eventuellen Streuprozessen entweder absorbiert oder aus dem Aerogel emittiert wird. In der Zeichnung sind die Durchstoßpunkte der Teilchen- bzw. Photonenspuren und der y-Achse mit der Aerogel-Oberfläche durch Kreise markiert; unterhalb der x-y-Ebene ist der Aerogel-Radiator der Anschaulichkeit halber gestrichelt dargestellt.

Abbildung 82: Die Emissionsorte von Cerenkovphotonen

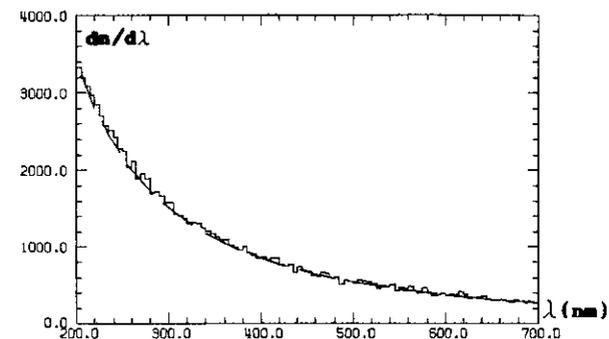


Die Abbildung zeigt den Aerogel-Radiator in der y-z-Projektion. Es sind die Emissionsorte der Cerenkovphotonen von 20 Teilchenspuren durch Punkte dargestellt. Die Zahl der Emissionsorte entspricht der zu einer ganzen Zahl auf- bzw. abgerundeten Länge der Teilchenspur in Zentimetern.

Es wird zunächst geprüft, ob das betrachtete Teilchen den Aerogel-Radiator in seiner gesamten Länge (Ausdehnung in y-Richtung) durchquert. Andernfalls wird eine neue Teilchen-Richtung gewürfelt.

Durchquert ein Teilchen den Aerogel-Radiator, dann wird seine Weglänge innerhalb des Radiators bestimmt, zu der die Intensität des erzeugten Cerenkovlichts proportional ist (Abschnitt II.1, Block 1, Formel (4)). Dies wird im Programm so gehandhabt, daß im Mittel pro Zentimeter Weglänge des Teilchens im Aerogel ein Cerenkov-Photon betrachtet wird. Die Emissionsorte des

Abbildung 83: Die Wellenlängenverteilung des erzeugten Cerenkovlichts



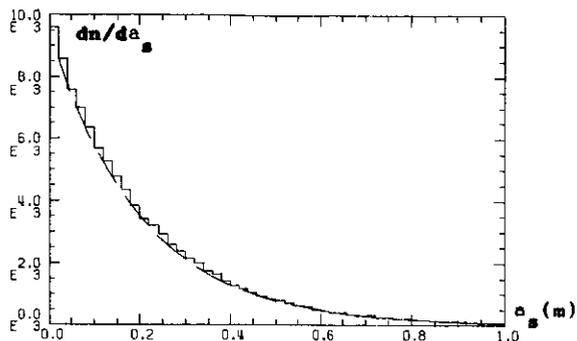
Die Abbildung zeigt die Zahl $dn/d\lambda$ der gewürfelten Photonen in Abhängigkeit der Wellenlänge λ . Die gestrichelte Kurve, die auf die Häufigkeit $dn/d\lambda$ der ersten beiden Intervalle $d\lambda$ normiert wurde, gibt den theoretischen Verlauf wieder ($dn/d\lambda \propto \lambda^{-2}$; Abschnitt II.1, Block 1, Formel (4b)). Die Intensität des erzeugten Cerenkovlichts nimmt sehr stark zu kurzen Wellenlängen λ hin zu.

Cerenkovlichts auf der Teilchenspur werden dabei über eine Zufallsvariable gewürfelt (Abbildung 82)

Die Wellenlängenverteilung $dn/d\lambda$ des Cerenkovlichts (Abbildung 83) und die Emissionsrichtung entsprechen den im Abschnitt II.1, Block 1 beschriebenen Verhältnissen; der Cerenkovwinkel Θ_c und das zu betrachtende Wellenlängenintervall müssen als Eingabegrößen festgelegt werden.

Für jedes Photon wird eine aktuelle Streulänge a_s und Absorptionslänge a_a gewürfelt, so daß die Intensität des Cerenkovlichts gemäß einer Exponentialfunktion $\exp(-a\mu)$ abfällt (a = Weglänge des Photons), wenn man die Streuung mit der Streulänge $l_s = 1/\mu_s$ bzw. die Absorption ($l_a = 1/\mu_a$) isoliert betrachtet (Abbildung 84).

Abbildung 84: Die aktuelle Streulänge a_s

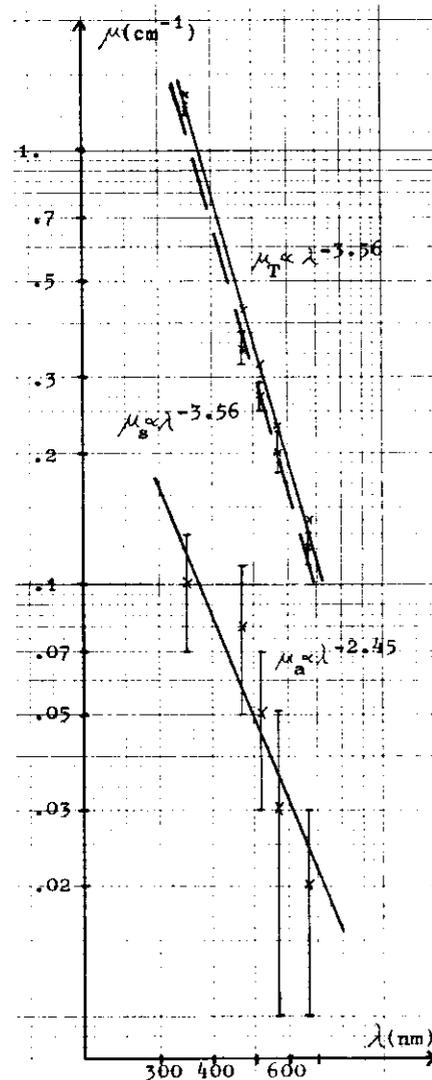


Die aktuelle Streulänge a_s ist die freie Weglänge eines Photons zwischen zwei Streuprozessen. Ihre Häufigkeit dn/da_s nimmt für eine feste Wellenlänge λ_B gemäß der Exponentialfunktion $\exp(-a_s/l_s)$ ab (gestrichelte Kurve). Dabei ist $l_s = 1/\mu_s$, die Streulänge des Aerogel-Radiators für eine Bezugswellenlänge λ_B , eine Eingabgröße des Programms und beträgt in diesem Beispiel $l_s = 20$ cm.

Die Streulänge l_s und die Absorptionslänge l_a des Aerogels sind für eine beliebige, anzugebende Bezugswellenlänge Eingabgrößen des Programms und müssen experimentell bestimmt werden. Da solche Untersuchungen an unseren Aerogelproben noch nicht möglich waren, dienten uns Messungen von Bourdinaud et. al. (32) als Richtwerte (Abbildung 85). Entsprechend den Anforderungen des TASSO-Cerenkovzählers wurden die Simulationsrechnungen allerdings mit Streu- und Absorptionslängen durchgeführt, die um einen Faktor 2 bzw. 4 größer waren als die von Bourdinaud gemessenen.

Die Wellenlängenabhängigkeit der Streulänge entspricht in den Meßergebnissen von Bourdinaud ($\propto \lambda^{3.5}$)

Abbildung 85: Die Transmissions-, Streu- und Absorptionskoeffizienten von Aerogel in Abhängigkeit von der Wellenlänge λ (32)



Die Abbildung zeigt Meßdaten, die von Bourdinaud et. al. an Aerogel-Radiatoren gewonnen wurden, die im Commissariat à l'Energie Atomique (Saclay) hergestellt worden waren (32). Die inverse Transmissionslänge μ_T wurde in einem Spektrometer, die inverse Absorptionslänge μ_a in einem mit Millipore-Papier ausgekleideten Kasten über eine Photodiode gemessen. Die inverse Streulänge μ_s berechnet sich aus diesen Werten zu

$$\mu_s = \mu_T - \mu_a$$

Die durch diese Meßdaten gelegten Geraden (in der doppel-logarithmischen Darstellung) zeigen die Wellenlängenabhängigkeit der Koeffizienten μ . Für die Absorption erhält man aufgrund der großen Fehler der Meßwerte nur einen relativ unsicheren Wert von

$$\mu_a \propto \lambda^{-2.45}$$

für die Streuung ergibt sich

$$\mu_s \propto \lambda^{-3.56}$$

was darauf hinweist, daß neben der reinen Rayleigh-Streuung bereits einige Partialwellen höherer Ordnung zu berücksichtigen sind (vergleiche Abschnitt VI.1). Dennoch wurde im Simulationsprogramm reine Rayleigh-Streuung mit

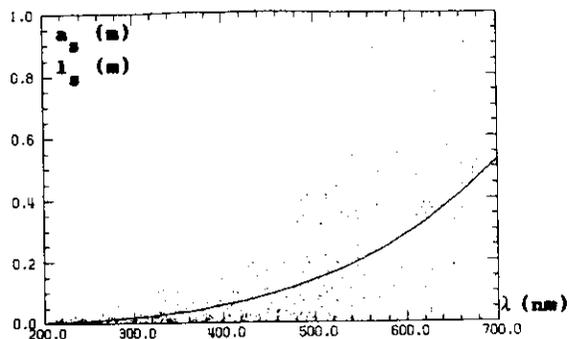
$$\mu_s \propto \lambda^{-4}$$

angenommen, die Wellenlängenabhängigkeit des Absorptionsvermögens wurde zu

$$\mu_a \propto \lambda^{-2}$$

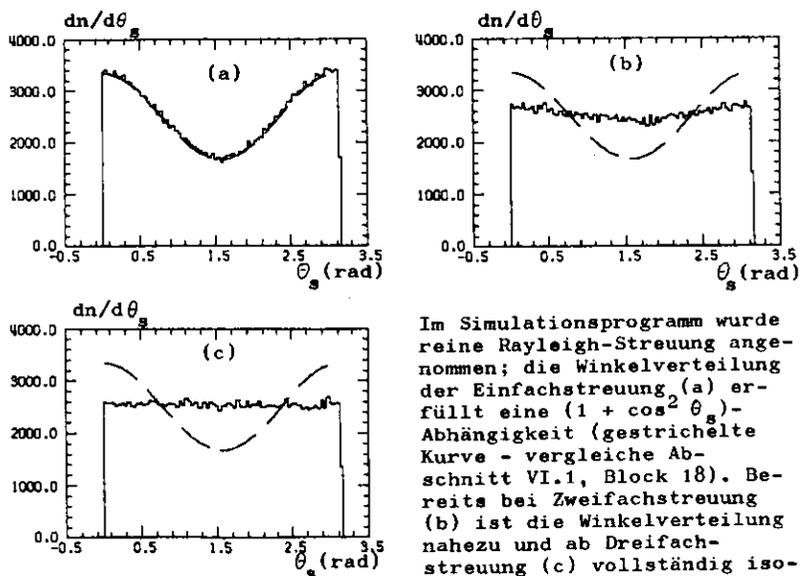
gewählt.

Abbildung 86: Die Lichtstreuung im Aerogel



Die Abbildung zeigt die aktuelle Streulänge a_s der Photonen (Punkte) und die Streulänge l_s des Aerogels (durchgezogene Kurve) in Abhängigkeit der Wellenlänge λ . Es ist reine Rayleigh-Streuung angenommen, daher nimmt die freie Weglänge der Photonen zwischen zwei Streuprozessen ($= a_s$) sehr stark mit der Wellenlänge zu.

Abbildung 87: Die Streuwinkelverteilung $dn/d\theta_s$



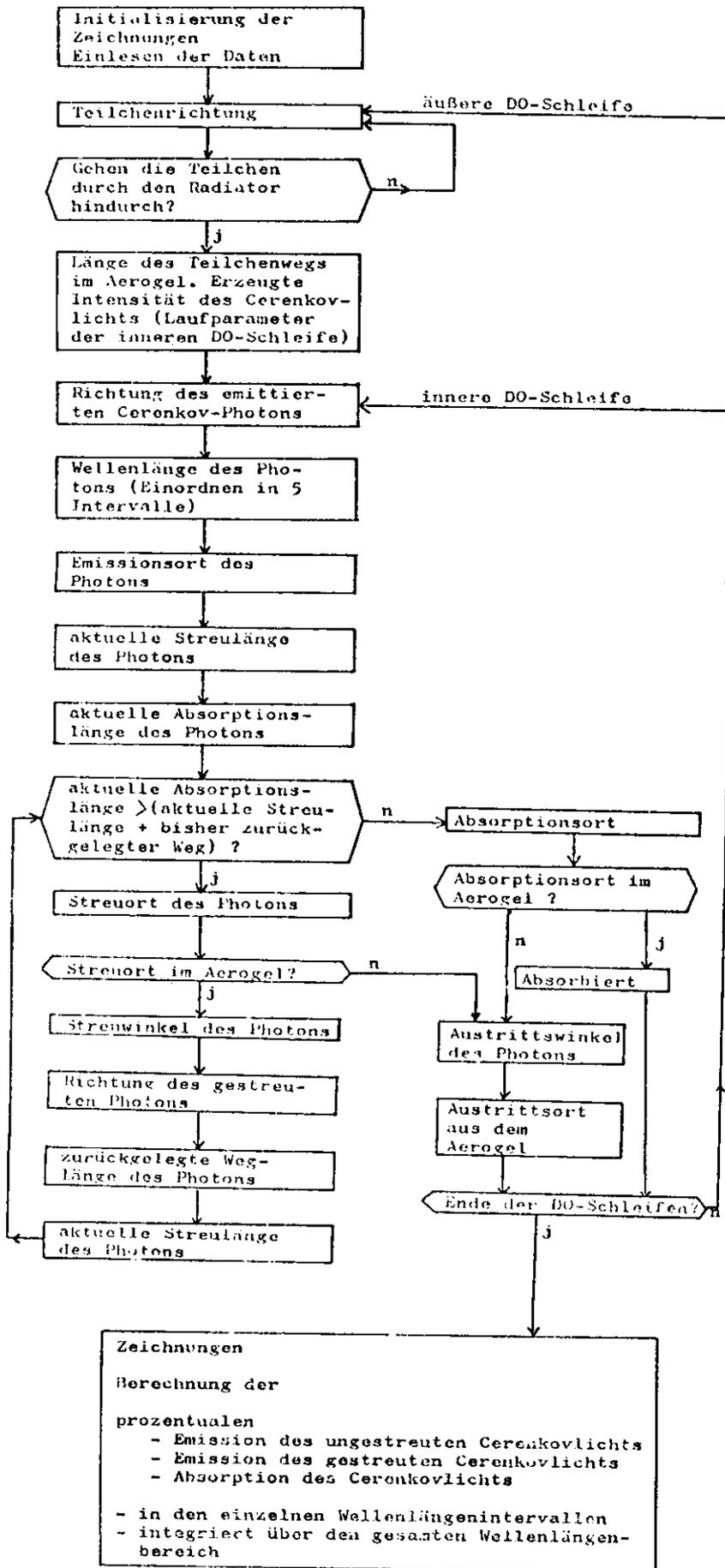
Im Simulationsprogramm wurde reine Rayleigh-Streuung angenommen; die Winkelverteilung der Einfachstreuung (a) erfüllt eine $(1 + \cos^2 \theta_s)$ -Abhängigkeit (gestrichelte Kurve - vergleiche Abschnitt VI.1, Block 18). Bereits bei Zweifachstreuung (b) ist die Winkelverteilung nahezu und ab Dreifachstreuung (c) vollständig isotrop.

etwa der Rayleigh-Streuung ($\propto \lambda^4$). Im Simulationsprogramm wurde daher sowohl in der Wellenlängenabhängigkeit als auch in der Richtungsverteilung von reiner Rayleigh-Streuung ausgegangen (Abbildungen 86,87) (vergleiche Abschnitt VI.1, Block 18).

Über die Absorption des Lichts im Aerogel ist recht wenig bekannt. Daher können zu vermutende Absorptionsbande im UV-Bereich des elektromagnetischen Spektrums nicht berücksichtigt werden. Das Simulationsprogramm geht in Anlehnung an den Messungen von Bourdinaud et. al. von einer λ^2 -Abhängigkeit der Absorptionslänge l_a aus (siehe Abbildung 85), wobei das Verhältnis der Streu- zur Absorptionslänge bei der frei wählbaren Bezugswellenlänge entsprechend dieser Messung bestimmt wurde.

Jedes Photon wird solange verfolgt, bis es nach eventuellen Streuprozessen, nach denen jeweils eine neue aktuelle Streulänge bestimmt wird, entweder absorbiert oder aus dem Aerogel emittiert wird. Dabei kann für 5 frei wählbare Wellenlängenintervalle und für den gesamten betrachteten Wellenlängenbereich die relative Intensität des gestreuten, des ungestreuten und des absorbierten Lichts ausgedrückt, sowie die Austrittsorte und -richtungen aus dem Aerogel-Radiator gezeichnet werden (Abbildung 88). Insgesamt benötigt das Programm für 20000 Photonen je nach der gewählten Radiatorlänge zwischen 2 und 5 Minuten Rechenzeit im Zentralprozessor des Computers (CPU-Zeit).

Abbildung 88: Das Flußdiagramm des Simulationsprogramms

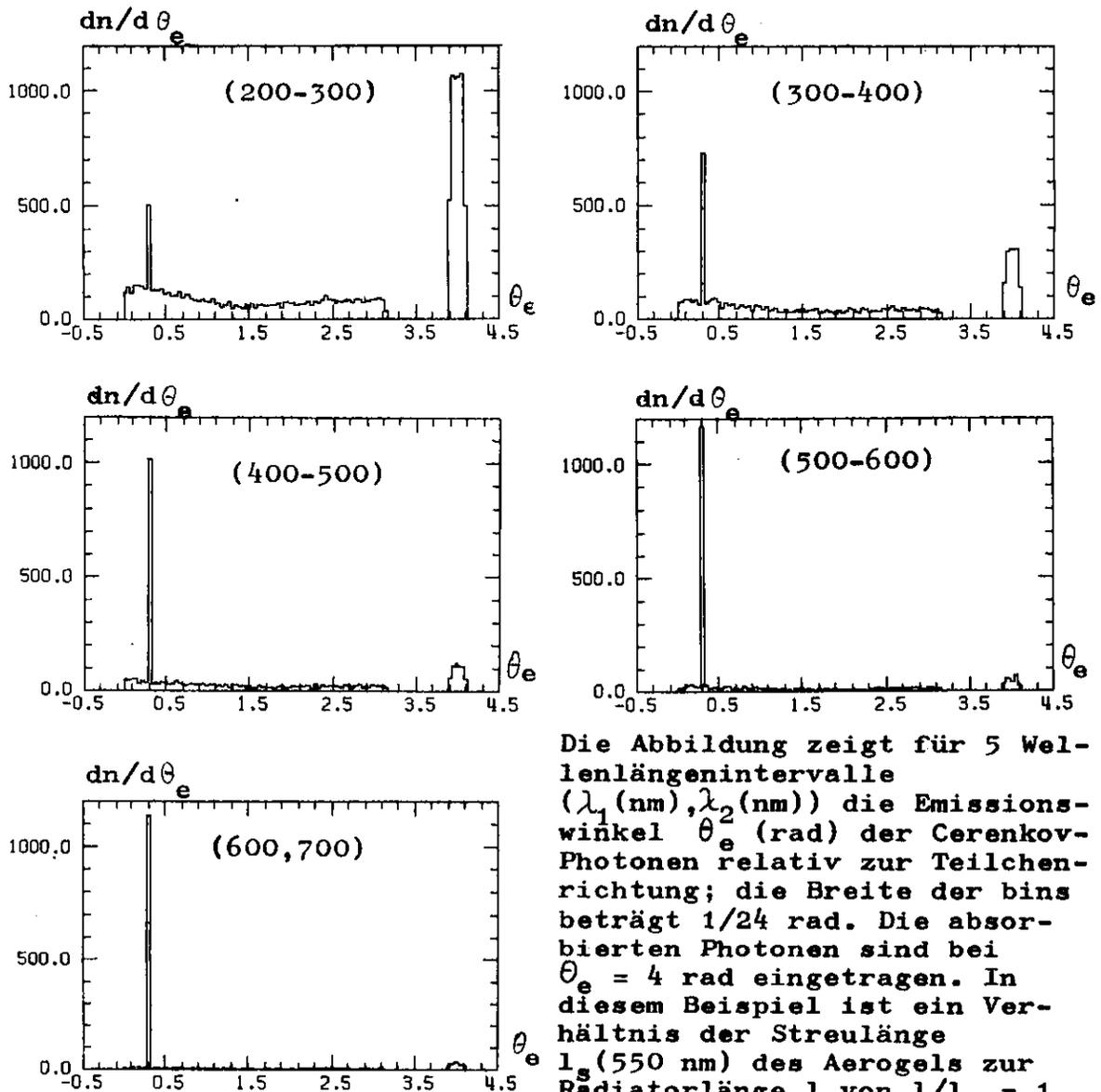


Der in diesem Abschnitt beschriebene Ablauf des Programms ist im Flußdiagramm graphisch dargestellt. Die vom Programm anzufertigenden Zeichnungen müssen zu Beginn initialisiert werden. Es können die Austrittsorte und -winkel aus jeder Aerogel-Oberfläche, das Spektrum $dn/d\lambda$ des erzeugten, des gestreuten, des absorbierten und des ungestreuten Cerenkovlichts, die Streu- und Absorptionslänge, die Streuwinkelverteilung und die Austrittswinkel in Abhängigkeit der Wellenlänge λ dargestellt werden. Der Laufparameter der äußeren DO-Schleife ist eine Eingabegröße und legt die Anzahl der zu betrachtenden Teilchen fest, die den Aerogel-Radiator durchqueren. Der vom Programm zu berücksichtigende Wellenlängenbereich und die oberen Grenzen von 5 Wellenlängenintervallen innerhalb dieses Bereichs müssen ebenfalls zu Beginn des Programms festgelegt werden. Das Programm benötigt für 20000 Photonen eine Rechenzeit im Zentralprozessor des Rechners (CPU-Zeit) von 2 min bis 5 min bei Radiatorlängen von 2 cm bis 30 cm.

VI.3 Die Ergebnisse der Simulationsrechnungen

Da in einem großen Aerogel-Cerenkovzähler, wie der des TASSO-Detektors, hauptsächlich das ungestreute Cerenkovlicht nachweisbar sein wird, wurde im Rahmen dieser Arbeit vor allem die Intensität und das Spektrum des ungestreuten Lichts untersucht. Es wirkt sich besonders nachteilig aus, daß das Streu- und Absorptionsvermögen des

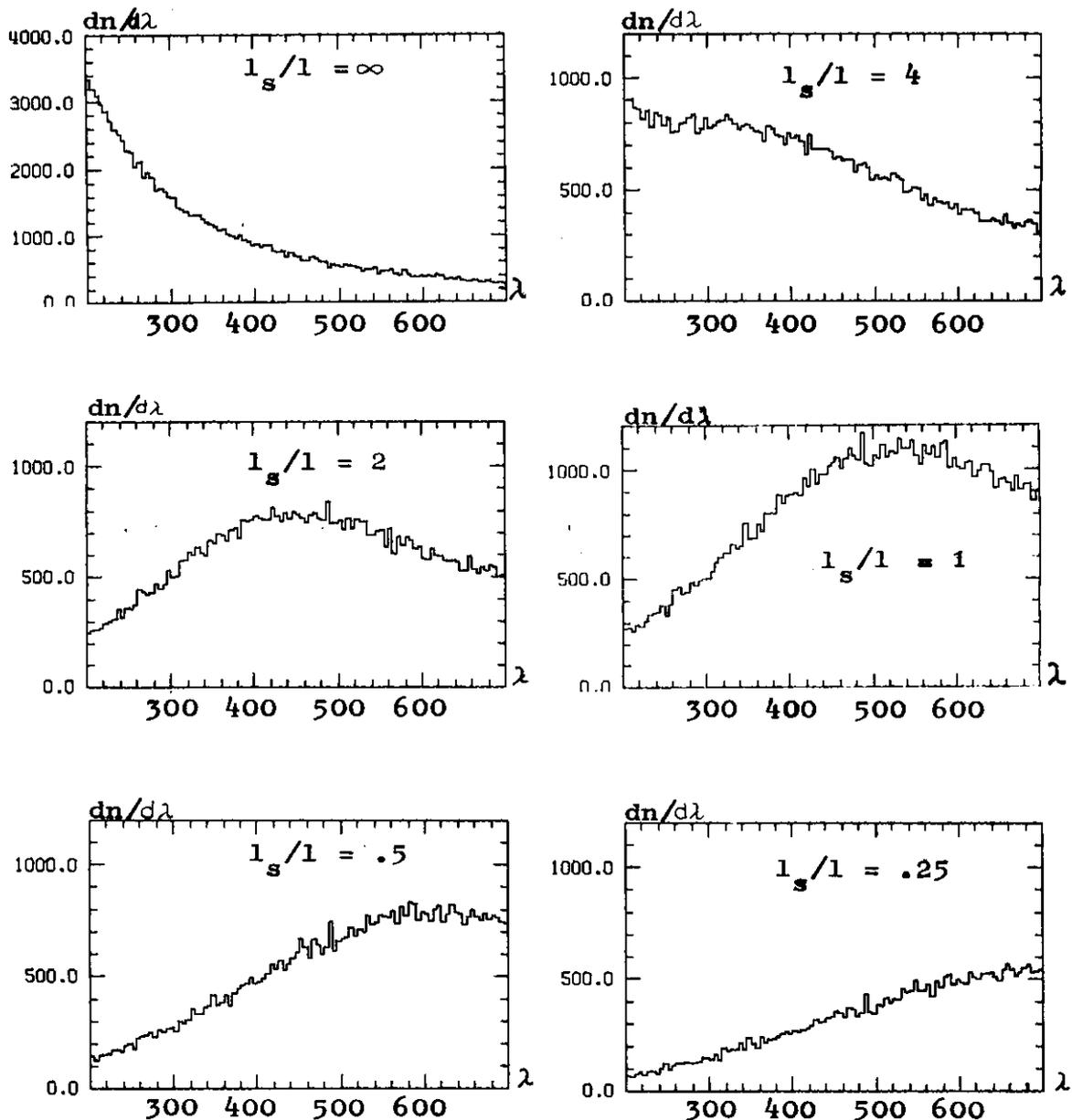
Abbildung 89: Die Emissionsrichtung des Cerenkovlichts aus dem Aerogel



Die Abbildung zeigt für 5 Wellenlängenintervalle (λ_1 (nm), λ_2 (nm)) die Emissionswinkel θ_e (rad) der Cerenkov-Photonen relativ zur Teilchenrichtung; die Breite der bins beträgt $1/24$ rad. Die absorbierten Photonen sind bei $\theta_e = 4$ rad eingetragen. In diesem Beispiel ist ein Verhältnis der Streulänge l_s (550 nm) des Aerogels zur Radiatorlänge l von $l/l_s = 1$

und entsprechend eine 6fache Absorptionslänge l_a (550 nm) angenommen worden. Es wird besonders gut sichtbar, wie die Bedeutung der Streuung und Absorption zu kurzen Wellenlängen hin zunimmt.

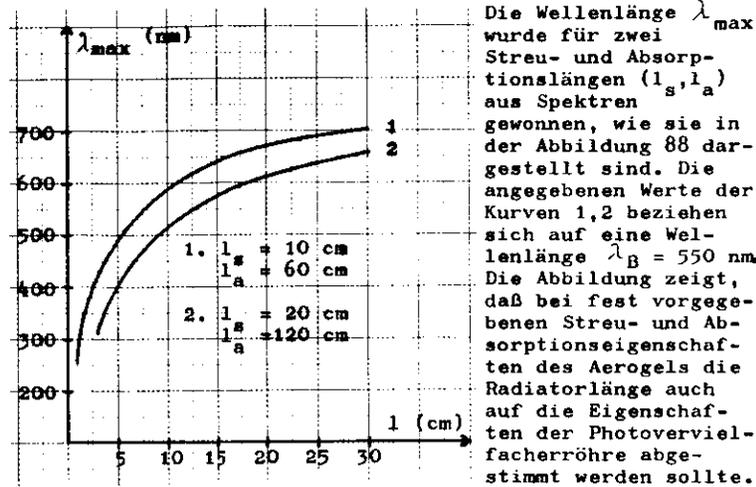
Abbildung 90: Spektren des ungestreuten Cerenkovlichts



Das Maximum λ_{\max} des Spektrums verschiebt sich mit abnehmendem Quotienten (Streulänge l_s / Radiatorlänge l) zu größeren Wellenlängen λ (nm) hin. Als Bezugswellenlänge λ_B für die Streulänge $l_s = 20$ cm des Aerogels wurde wieder $\lambda_B = 550$ nm gewählt; der Quotient aus Absorptionslänge l_a und Streulänge l_s betrug für diese Wellenlänge $l_a/l_s = 6$.

Aerogels zu kürzeren Wellenlängen hin stark zunimmt (Abbildung 89). Daher ist zu befürchten, daß in dem Wellenlängenbereich der maximalen spektralen Empfindlichkeit üblicher Photovervielfacherröhren relativ wenig ungestreutes Cerenkovlicht aus dem Radiator emittiert wird (vergleiche Abschnitt V.2, Abbildung 50).

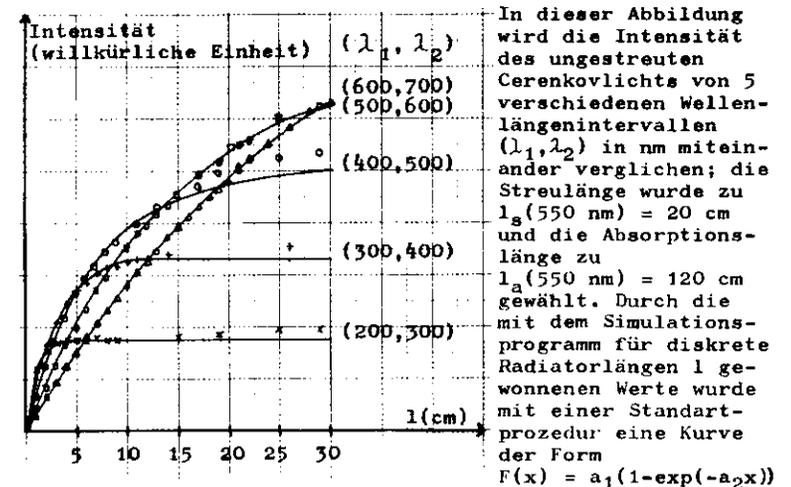
Abbildung 91: Das Maximum λ_{\max} des Spektrums des ungestreuten Cerenkovlichts in Abhängigkeit der Radiatorlänge l



Die Streuung und Absorption des Cerenkovlichts hat zur Folge, daß in Abhängigkeit des Verhältnisses von der Streu- bzw. der Absorptionslänge des Aerogels zur Radiatorlänge das Spektrum des ungestreuten Cerenkovlichts sich erheblich von dem des erzeugten Cerenkovlichts unterscheidet. Je kleiner diese Quotienten sind, desto stärker verschiebt sich das Maximum der spektralen Häufigkeitsverteilung zu größeren Wellenlängen hin (Abbildung 90).

Dieses Ergebnis ist in der Abbildung 91 noch einmal für zwei bestimmte Streu- und Absorptionslängen in Abhängigkeit der Radiatorlänge l dargestellt. Die Wellenlänge λ_{\max} des Maximums der Verteilung $dn/d\lambda$ des ungestreuten Cerenkovlichts verschiebt sich mit wachsender Radiatorlänge zunächst sehr rasch und schließlich kaum noch zu größeren Wellenlängen hin; sie ist etwa zu $l^{0.5}$ proportional.

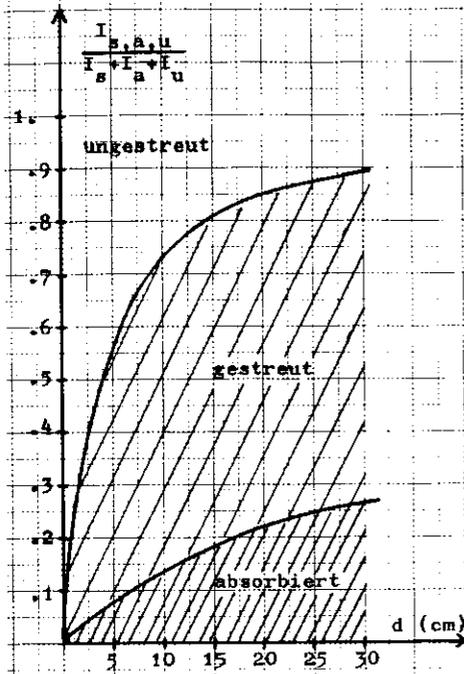
Abbildung 92: Die Intensität des ungestreuten Cerenkovlichts



gelegt. Die Abweichung im Sättigungsbereich der berechneten Daten von dieser Idealkurve ist geometrischen Ursprungs; die Weglänge der geladenen Teilchen nimmt schneller zu als die Radiatorlänge und aufgrund der endlichen Ausdehnung des Radiators verläßt ungestreutes Licht im geringen Maße den Radiator durch die Seitenflächen. Man erkennt die Auswirkung des von der Wellenlänge λ abhängigen Streu- und Absorptionsvermögens. Während im UV-Bereich des elektromagnetischen Spektrums bereits bei sehr kurzen Radiatoren eine Sättigung der Intensität des ungestreuten Cerenkovlichts eintritt ist sie im Infraroten nahezu proportional zur Radiatorlänge.

Die Auswirkungen der durch die von der Wellenlänge abhängigen Streuung und Absorption des Cerenkovlichts verursachten Verschiebung des Spektrums des ungestreuten Lichts zeigt die Abbildung 92. Der betrachtete Wellenlängenbereich ist in 5 Intervalle eingeteilt und jeweils die Intensität des ungestreuten Cerenkovlichts in Abhängigkeit der Radiatorlänge berechnet worden. Trotz der relativ optimistischen eingegebenen Streu- und Absorptionslänge setzt bei kurzwelligem Licht schon nach wenigen Zentimetern

Abbildung 93: Die Intensität des absorbierten I_a , gestreuten I_s und ungestreuten I_u Cerenkovlichts

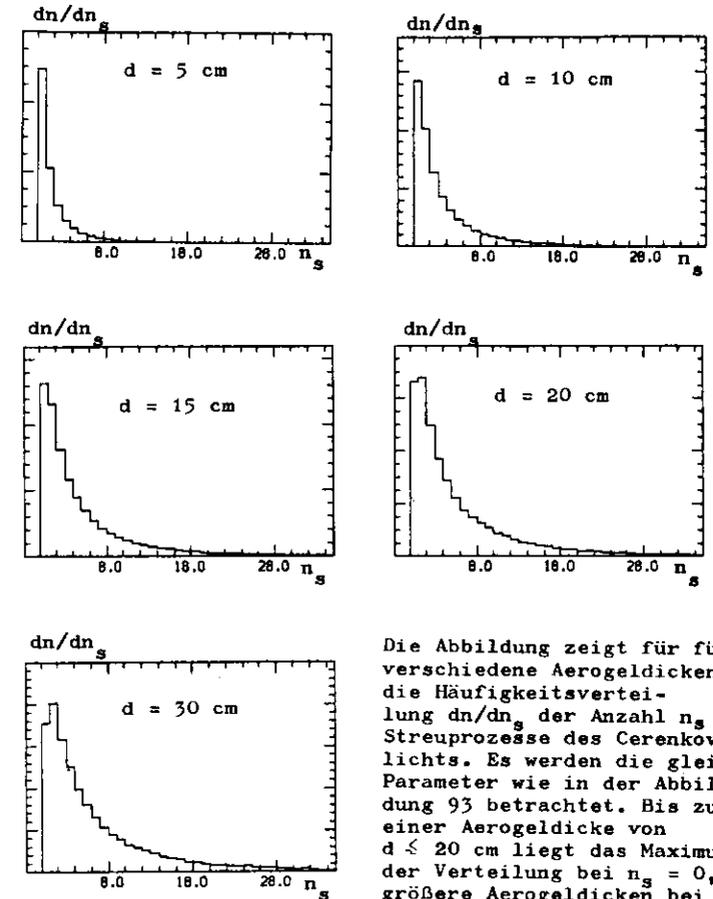


Die Abbildung zeigt die Anteile des absorbierten (eng schraffiert), des gestreuten (weit schraffiert) und des ungestreuten Cerenkovlichts in Abhängigkeit von der Aerogeldicke d . Es wird Cerenkovlicht im Wellenlängenintervall (300 nm, 500 nm) betrachtet, die Streulänge beträgt $l_s(550 \text{ nm}) = 20 \text{ cm}$ und für die Absorptionslänge gilt $l_a(550 \text{ nm}) = 120 \text{ cm}$. Man sieht sehr deutlich, wie schnell die Streuung des Cerenkovlichts mit der Aerogeldicke an Bedeutung zunimmt.

eine Sättigung ein. Im Vergleich zu den im Abschnitt V.4c,d erhaltenen Transmissionslängen T_c von etwa 1 cm (Wellenlänge um 400 nm) ist die im Simulationsprogramm angenommene Streulänge etwa um einen Faktor 5 zu groß.

Die Eigenschaften des Aerogels als Cerenkov-Radiator wurden weiterhin für den Wellenlängenbereich von 300 nm bis 500 nm betrachtet, in dem die maximale Quantenausbeute vieler Photovervielfacherröhren liegt (vergleiche Abschnitt V.2, Abbildung 50). Die Abbildung 93 verdeutlicht noch

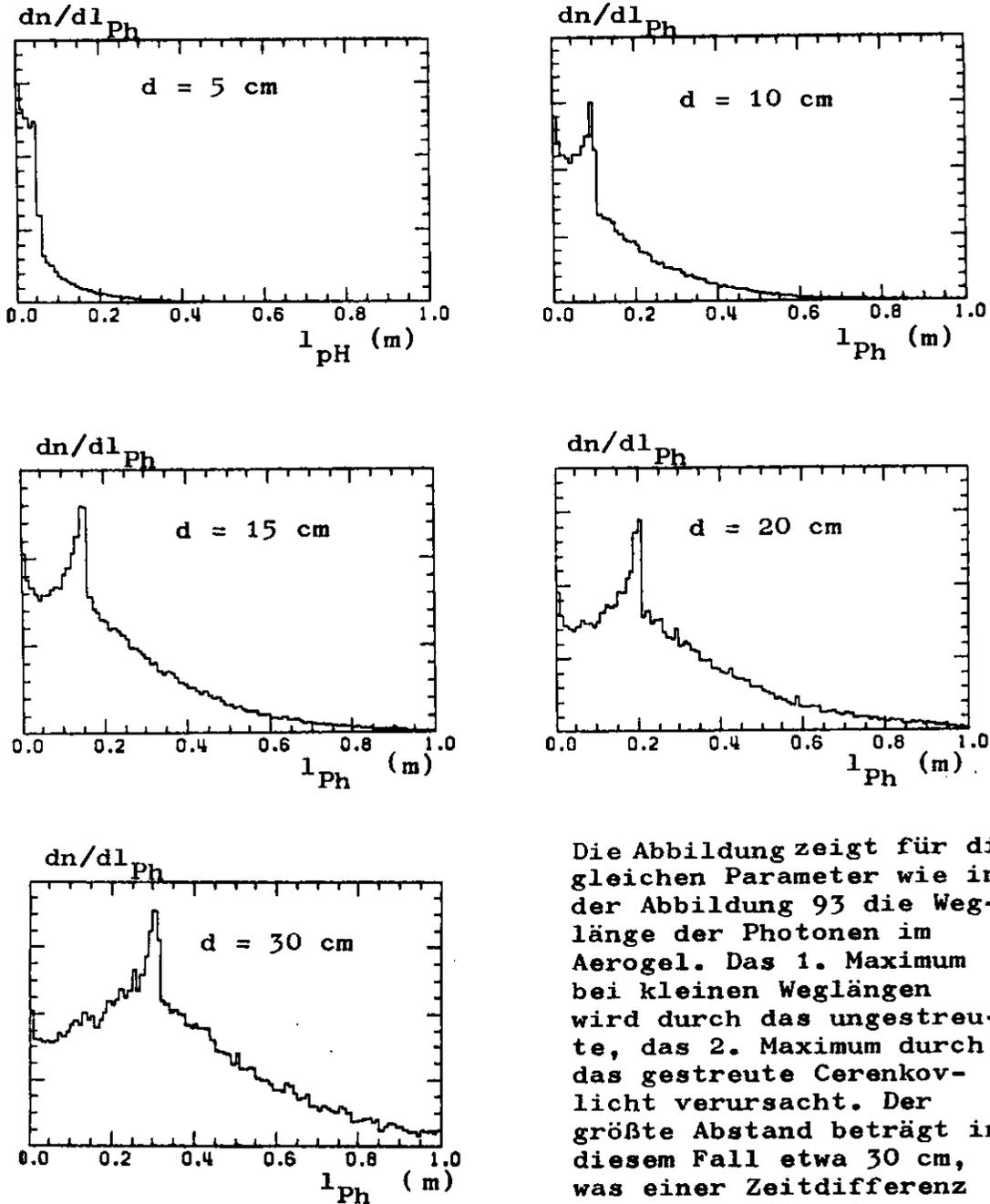
Abbildung 94: Die Anzahl der Streuprozesse von Cerenkovlicht im Aerogel



Die Abbildung zeigt für fünf verschiedene Aerogeldicken d die Häufigkeitsverteilung dn/dn_s der Anzahl n_s der Streuprozesse des Cerenkovlichts. Es werden die gleichen Parameter wie in der Abbildung 93 betrachtet. Bis zu einer Aerogeldicke von $d \leq 20 \text{ cm}$ liegt das Maximum der Verteilung bei $n_s = 0$, für größere Aerogeldicken bei $n_s = 1$.

einmal die große Bedeutung der Lichtstreuung. Für die in diesen Berechnungen eingesetzten Parameter (Streulänge $l_s(550 \text{ nm}) = 20 \text{ cm}$, Absorptionslänge $l_a(550 \text{ nm}) = 120 \text{ cm}$) wird im nutzbaren Wellenlängenbereich bereits bei einer Radiatorlänge von etwa 5 cm die Hälfte des erzeugten Cerenkovlichts gestreut.

Abbildung 95: Die Weglänge l_{Ph} der Cerenkov-Photonen im Aerogel



Die Abbildung zeigt für die gleichen Parameter wie in der Abbildung 93 die Weglänge der Photonen im Aerogel. Das 1. Maximum bei kleinen Weglängen wird durch das ungestreute, das 2. Maximum durch das gestreute Cerenkovlicht verursacht. Der größte Abstand beträgt in diesem Fall etwa 30 cm, was einer Zeitdifferenz der beiden Signale von etwa 1 nsec entspricht.

In den Abbildungen 94 und 95 wird gezeigt, wie die Zahl der Streuprozesse und die Weglänge der Cerenkov-Photonen im Aerogel mit der Radiatorlänge zunehmen. Interessant ist, daß aufgrund der angenommenen Radiatorabmessungen (vergleiche Abbildung 96) zwei Maxima in der Weglängenverteilung auftreten (Abbildung 95), von denen das erste vom ungestreuten und das zweite vom gestreuten Cerenkovlicht verursacht wird. Ihr Abstand ist jedoch so gering, daß selbst bei gleichem Wirkungsgrad im Nachweis des gestreuten und des ungestreuten Cerenkovlichts keine Doppelzählungen von nachzuweisenden Teilchen auftreten dürften.

Der Wirkungsgrad eines Aerogel-Cerenkovzählers läßt sich verbessern, wenn es gelingt, einen großen Teil des im Radiator gestreuten Lichts zum Teilchen-Nachweis auszunutzen. Aufgrund der Vorwärts-Rückwärts-Symmetrie der Rayleigh-Streuung (vergleiche Abschnitt VI.1, Abbildung 78) wird relativ viel Streulicht aus der Rückseite des Radiators emittiert (Abbildung 96, Tabelle 16). Man müßte also vor allem die Rückseite des Aerogels mit reflektierenden Folien beschichten. Es sei aber betont, daß die Ergebnisse der Testmessungen im Elektronenstrahl (Abschnitt V.4) zeigen, daß eine vollständige Auskleidung des Cerenkovzählers mit reflektierenden Folien, verbunden mit dem Verzicht auf eine abbildende Optik, nur dann sinnvoll ist, wenn die Streulänge des Radiators wesentlich kleiner als seine eigene Länge ist.

Abbildung 96: Die Radiator-Oberflächen

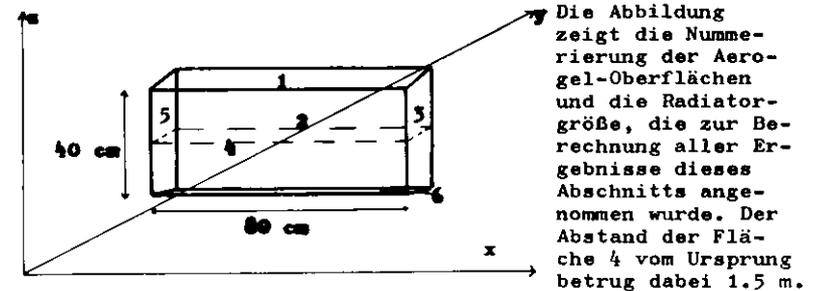


Tabelle 16: Die Emission des Cerenkovlichts

Streulänge	$l_s = 20$ cm
Absorptionslänge	$l_a = 120$ cm
Radiatorlänge	$l = 20$ cm
Fläche	Anteil des emittierten Cerenkovlichts
1 - oben	.076
2 - hinten	.23
3 - rechts	.019
4 - vorne	.58
5 - links	.020
6 - unten	.075

Die Tabelle zeigt für ein Beispiel, dessen Parameter oben angegeben sind, die Emission des Cerenkovlichts durch die einzelnen Aerogel-Oberflächen. Der Radiator ist zur Veranschaulichung in der Abbildung 96 dargestellt. Die große Intensität (23%) des aus der Radiator-Rückseite emittierten Cerenkovlichts wird durch die Vorwärts-Rückwärts-Symmetrie der Rayleigh-Streuung verursacht.

VII Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurden verschiedene Variationen des von Cantin et. al. entwickelten Verfahrens der Aerogelherstellung (11) untersucht. Die Transparenz der Aerogelproben wies eine deutliche Abhängigkeit von einzelnen Herstellungsparametern auf (Abschnitt III.2b). Weitere Verbesserungen konnten in unserer Gruppe inzwischen erzielt werden, indem besonders reine Ausgangssubstanzen verwendet wurden. Weiterhin deutet die Abhängigkeit der Transparenz vom Nachreaktionsquotienten (Abschnitt III.2b, Abbildung 26) die Möglichkeit an, durch einen Entzug des Katalysators aus dem Gel, beispielsweise mit Ionenaustauscher-Harzen, vor dem Lösungsmittelentzug die Aerogelqualität weiter zu verbessern. Auf diese Weise könnten chemische Reaktionen im Gel während des Lösungsmittelentzugs bei den hohen Temperaturen im Autoklaven (bis zu 300 °C) verhindert werden. So berichtete eine Gruppe der Universität Lund von guten Erfolgen, wenn die Alkogelee vor dem Lösungsmittelentzug einige Wochen mit Alkohol gespült wurden (36).

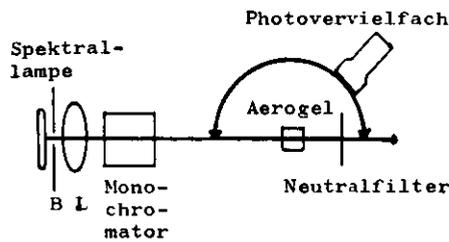
Ein weiteres Problem der Aerogelherstellung waren die über die Messung des Brechungsindex (Abschnitt IV) festgestellten Inhomogenitäten im Aerogel, die, abgesehen vom veränderten Schwellenverhalten des Aerogel-Radiators im Cerenkovzähler (vergleiche Abschnitt II.2, Block 2), leicht zu Sprüngen führen können. Letzteres Problem sollte sich jedoch über eine Optimierung der Geliertdauer lösen lassen (Abschnitt III.2b, Abbildung 28). So konnte unsere

Gruppe in einem Autoklaven mit 50 l Volumeninhalt inzwischen sprunghaft und wesentlich größere als die hier beschriebenen Aerogel-Radiatoren herstellen.

Die Messungen mit den Cerenkovzählern (Abschnitt V) haben vor allem eine Abschätzung über die Qualität der hergestellten Aerogel-Radiatoren ermöglicht. Vergleicht man diese Ergebnisse mit den Annahmen des Simulationsprogramms (Abschnitt VI), die sich an den Anforderungen des TASSO-Cerenkovzählers orientieren, dann ist eine Vergrößerung der Streulänge um einen Faktor 2 bis 3 erforderlich. Dennoch wird bereits von den im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Aerogel-Radiatoren so viel ungestreutes Cerenkovlicht emittiert, daß eine abbildende Optik einer vollständigen Auskleidung des Zählers mit einer diffus reflektierenden Beschichtung vorzuziehen ist. Allerdings sind mit den hier gewonnenen Daten nur grobe Abschätzungen hinsichtlich des Streu- und Absorptionsverhaltens des Aerogels möglich; sie können notwendige optische Messungen nicht ersetzen. Es wäre besonders wichtig, die Streu- und Absorptionslänge des Aerogels in Abhängigkeit der Wellenlänge des Lichts sowie die Winkelabhängigkeit des Streuvermögens zu bestimmen. Einen möglichen Meßaufbau, der diese Eingabegrößen des Simulationsprogramms liefern könnte, zeigt die Abbildung 97.

Es sei darauf hingewiesen, daß das Aerogel im TASSO-Cerenkovzähler eingesetzt werden soll, um Protonen, Kaonen und Pionen zu identifizieren (Abschnitt II.3), im Rahmen dieser Arbeit jedoch nur Testmessungen in einem Elektronenstrahl möglich waren. Es wäre daher sinnvoll, das Verhalten des Aerogels in einem Pionen- oder Protonenstrahl insbesondere in Hinblick auf das Schwellenverhalten

Abbildung 97: Schematischer Aufbau zur Messung des Streu- und Absorptionsverhaltens von Aerogel



Der Aufbau besteht im wesentlichen aus einer Quelle eines eng gebündelten, parallelen Lichtstrahls - beispielsweise einer Spektrallampe und einem System aus Blenden (B) und

Linse (L) -, einem Monochromator und einer um die Aerogelprobe drehbar gelagerten Photovervielfacherröhre. Dies erlaubt die Bestimmung der Richtungsabhängigkeit des Streuvermögens, wozu allerdings Radiatoren möglichst kleiner Abmessungen notwendig sind. Das nahezu punktförmige Streuzentrum verursacht nur eine geringe Intensität des Streulichts, weshalb zum Vergleich mit der Intensität des einfallenden Lichts Neutralfilter notwendig sind, um es definiert abzuschwächen. Solche Filter sind mit Abschwächungsfaktoren bis zu 10^{-4} erhältlich (37). Über die Streulänge und die Transmissionslänge, die man durch einen Vergleich der mit und ohne Aerogelprobe gemessenen Lichtintensität erhalten kann, ist die Absorptionslänge berechenbar. Der Monochromator erlaubt die Untersuchung der Absorption und Streuung in Abhängigkeit der Wellenlänge des Lichts.

zu untersuchen. Solche Messungen sind mit Aerogel-Radiatoren aus Saclay (Commissariat à l'Énergie Atomique) im CERN mehrfach durchgeführt worden und ergaben recht gute Ergebnisse (26,32,38).

Die Simulationsrechnungen (Abschnitt VI) waren bisher hilfreich, um Vorstellungen über die Auswirkung der Lichtstreuung und -absorption im Aerogel auf seine Einsatzmöglichkeit in einem Cerenkovzähler zu erhalten. Wenn die Eigenschaften des im TASSO-Cerenkovzähler einzusetzenden Aerogels genauer bestimmt sind, wird ein solches Programm notwendig sein, um die Optik des Zählers zu entwerfen und zu optimieren.

Literatur und Anmerkungen

- (1) W. Braunschweig et. al.; Proposal for a large 4π Magnetic Detector for PETRA; DESY, TASSO-Note 1; Hamburg 1977
- (2) O. Römer; Entwurf und Bau von Gas-Schwellen-Cerenkovzählern mit sehr großer Winkelakzeptanz für das Doppelspektrometer DASP der DESY-Speicherringe DORIS (Diplomarbeit); DESY F35-76/01, interner Bericht; Hamburg 1976
- (3) B. Bröcker; dtv-Atlas zur Atomphysik; Deutscher Taschenbuch Verlag; München 1976
- (4) S. Lahoti, G. Takwale; Cerenkov Radiation and its Polarisation; Pranama; Vol. 9, No 2; Bangalore, Indien 1977
- (5) O. Allkofer; Teilchen-Detektoren; Verlag Karl Thieme KG; München 1971
- (6) P. Stoll; Experimentelle Methoden der Kernphysik; Springer-Verlag; Berlin-Heidelberg-New York 1966
- (7) P. Joos; Hochenergiephysik; Verlag Karl Thieme KG; München 1977
- (8) TASSO-Collaboration; TASSO-Status Report September 1977; DESY; TASSO-Note No. 20; Hamburg 1977
- (9) H. Hinterberger, R. Winston; Efficient Light Coupler for Threshold Cerenkov Counters; EFINS 66-181; Fermi Institute, University of Chicago, USA 1966
- (10) O. Römer; DESY, F35; persönliche Mitteilung
- (11) H. Blume; Bau und Test eines Schwellencerenkovzählers mit polykondensierter Kieselsäure als optischem Medium (Diplomarbeit); Physikalisches Institut der Universität Bonn; Bonn 1976
- (12) L. Koch; New Developments in Cerenkov Counters (Vortrag); Frascati 1974
- (13) R. Iler; The Colloid Chemistry of Silica and Silicates; London 1955
- (14) W. Noll; Chemie und Technologie der Silicone; Verlag Chemie; Weinheim/Bergstraße 1968
- (15) R. Aelion et. al.; Hydrolysis of Ethyl Silicate; Journal of the American Chemical Society; Vol 52; 1950
- (16) R. Bode et. al.; Aerosil, Grundlagen und Anwendungen; Degussa; Frankfurt 1967
- (17) R. Becker; Theorie der Wärme; Springer-Verlag; Berlin-Heidelberg-New York 1966

- (18) C. Weissmantel u. a.; Kleine Enzyklopädie Atom, Struktur der Materie; Verlag Chemie; Weinheim/Bergstraße 1970
- (19) Dynamit Nobel AG; Chemikalien; Firmenmitteilung; Troisdorf
- (20) Handbook for Chemistry and Physics 1976/77; R. C. West; CRC-Press; Cleveland, USA 1976
- (21) Landolt, Börnstein; Zahlenwerte und Funktionen aus Physik, Chemie, Astronomie, Geophysik, Technik; Bd IV.4.a; Springer-Verlag; Berlin-Heidelberg-New York 1967
- (22) Merck; Reagenzien, Diagnostica, Chemikalien 1976 (Katalog); Darmstadt 1976
- (23) R. Riethmüller; DESY, F35; Diplomarbeit; Fertigstellung voraussichtlich Mitte 1978
- (24) G. Poelz; DESY, F35; persönliche Mitteilung
- (25) Die Proben nach dem Verfahren von Cantin et. al. wurden von G. Poelz (DESY, F35) hergestellt.
- (26) Baracat et. al.; Étude d'un Compteur à Gel de Silice; Saclay 1977
- (27) Die hexagonalen Aerogelproben wurden uns freundlicherweise von Herrn Cantin (Commissariat à l'Energie Atomique, Saclay) zur Verfügung gestellt.
- (28) Die Winston-Lichttüte wurde uns freundlicherweise von der Gruppe F21 (DESY) zur Verfügung gestellt.
- (29) RCA, Electronic Components; Photodetector 8854; Firmenmitteilung; 1971
- (30) J. Schutt et. al.; Highly Reflecting Stable White Paint for the Detection of Ultraviolet and Visible Radiations; Applied Optics; Vol. 13, No. 10; New York 1974
- (31) Hersteller: Millipore Filter, Type GS; Millipore GmbH, Neu-Isenburg
- (32) M. Bourdinaud et. al.; Use of Silica Aerogel for Cherenkov Radiation Counter; Nuclear Instruments and Methods; Vol. 136; Amsterdam 1976
- (33) G. Mie; Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloider Metallösungen; Analen der Physik 25; Heft 3; Leipzig 1908
- (34) M. Born; Optik; Springer-Verlag; Berlin-Heidelberg-New York 1965
- (35) U. Condon, H. Odishow; Handbook of Physics; Mc Graw-Hill Book Company; New York, USA 1967
- (36) S. Hennig, G. Jarlskog, G. Damgaard; University of Lund; persönliche Mitteilung

- (37) Ealing GmbH; Ealing 76/77 (Katalog); South Natic, Mass., USA
- (38) M. Basile et. al.; Test of a Silica Aerogel Cerenkov Counter; CERN; Genf 1977

Danksagung

Diese Arbeit wurde im Rahmen des Experimenteprogramms der Gruppe F35 am DESY (Deutsches Elektronen-Synchrotron) in Hamburg verwirklicht. Die Mitglieder der Gruppe F35 haben mir durch wertvolle Hinweise und Diskussionen sehr geholfen. Insbesondere danke ich Herrn Prof. Dr. P. Schmüser und Herrn Prof. Dr. B. Wiik für die Ermöglichung und Förderung, Herrn Dr. G. Poelz für die Betreuung dieser Arbeit und für wertvolle Hilfen und Diskussionen beim Schreiben des Manuskripts, Frau Dr. M.J. Schachter und Herrn Dipl.-Phys. O. Römer für ihre Unterstützung bei Experimenten im Elektronen-Teststrahl. Nicht zuletzt gilt mein Dank den Technikern der Gruppe F35, von denen Frau Stötzer und die Herren Brauer, Krohn, Balszuweit und Sellmer genannt seien, deren Hilfe erst die Durchführung der Experimente ermöglichte.

