

Fakultät für Physik und Astronomie

Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg

Bachelorarbeit

Im Studiengang Physik

vorgelegt von

Viktor Adam

geboren in

Wolodarskoje, Kasachstan

Mai 2016

Design und Charakterisierung einer Wasserclusterquelle für den Einsatz an FLASH

Diese Bachelorarbeit wurde am
Max-Planck-Institut für Kernphysik Heidelberg
in der Arbeitsgruppe „Quantendynamik und -Kontrolle“ und am
Freie-Elektronen-Laser in Hamburg unter Betreuung von
Priv.-Doz. Dr. Robert Moshammer
durchgeführt.

Abstract

The creation of a supersonic gas jet happens at the adiabatic expansion of a gas from a region with high pressure ($p_R \approx 1$ bar) into a region with low pressure ($p_B \approx 10^{-6}$ bar). In this process almost all the undirected thermal velocity of the gas particles is translated into directed velocity through **impacts** amongst the gas particles. This leads to the production cold gas beam which can serve as target for impact spectroscopy in reaction microscopes. In the course of this bachelor thesis a new cluster source which is able to produce water dimers was developed with regard to researches of proton transfer dynamics at FLASH in Hamburg. Aside from the commissioning of the new cluster source, results of past experiments with water clusters will be presented.

Zusammenfassung

Zur Erzeugung eines Überschallgasjets wird Gas aus einem Reservoir mit hohem Druck ($p_R \approx 1$ bar) durch eine Düse in einen Bereich mit geringem Druck ($p_B \approx 10^{-6}$ bar) adiabatisch expandiert. Dabei wird die nahezu die Gesamte ungerichtete thermische Geschwindigkeit der Gasteilchen im Bereich der Düse durch Stöße in eine gerichtet Geschwindigkeit übersetzt. Der so erzeugte kalte Gasstrahl kann als Target für Impulsspektroskopie in Reaktionsmikroskopen verwendet werden. Im Rahmen dieser Bachelorarbeit wurde eine neue Cluster-Quelle entwickelt, die in Hinsicht auf Untersuchungen von Protonentransferprozessen an FLASH in Hamburg, geeignet ist Wasserdimere zu produzieren. Neben der Inbetriebnahme dieser neuen Cluster-Quelle werden auch Ergebnisse von vergangenen Experimenten mit Wasserclustern vorgestellt.

Inhaltsverzeichnis

1 Motivation	9
2 Experimentelle Realisierung	11
2.1 Reaktionsmikroskop	11
2.1.1 Spektrometer	12
2.1.2 Detektor	13
2.2 Cluster	17
2.2.1 Definition	17
2.2.2 Überschallexpansion	18
2.2.3 Clusterbildung	22
3 Technische Umsetzung	27
3.1 Design der Cluster-Quelle	27
3.2 Skimmer	32
3.3 Jetstufen	34
4 Experiment	37
4.1 Messungen an FLASH	37
4.1.1 Alte Wasserdüse	37
4.1.2 Flugzeitspektren	38
4.1.3 Ortsbild	40
4.1.4 Auswertung	42
4.2 Testmessungen der neuen Wasserdüse	43
4.2.1 Ausrichtung der Jetdüse	45
4.2.2 Heiztest	48
5 Zusammenfassung	51
6 Anhang	53

1 Motivation

Wasser ist auf der Erde ein allgegenwärtiges Molekül, das den Grundstein des Lebens darstellt. Obwohl es nur aus drei Atomen besteht, ein Sauerstoff- und zwei Wasserstoffatome, ist es noch lange nicht wissenschaftlich verstanden. Um Effekte wie die zahlreichen Anomalien von Wasser [WAS] zu verstehen, ist es hilfreich nicht nur isolierte Moleküle in gasförmigen, flüssigem oder festem Zustand zu untersuchen, sondern auch in Zwischenzuständen wie sie in Wasserclustern vorkommen. Die Eigenschaften von Wasserclustern gehen über die der einzelnen Wassermoleküle hinaus, aber unterscheiden sich auch von den Eigenschaften flüssigen Wassers. Bereits gewonnenes Wissen über die Vorgänge in Wasser finden Anwendung in Bereichen, die von medizinischer Strahlentherapie, bis hin zu Kernkraftwerktechnologien reichen.

Bei Experimenten über die Fragmentation von Wasserclustern wurde beobachtet, dass sich oft protonisierte Wassercluster bilden. Der kleinste Repräsentant davon ist das Oxonium-Ion (H_3O^+). Grundlegend für dessen Entstehung ist der sogenannte Protonentransfer, über dessen Dynamik noch nicht viel bekannt ist. Es existiert allerdings eine Vielzahl von theoretischen Studien und Vorhersagen über die Protonentransferdynamik für verschiedene Größen von Wasserclustern. Dabei steigt die Genauigkeit der Berechnungen mit sinkender Komplexität der Cluster. Es bietet sich an den Protonentransfer in Wasser an den kleinsten Clustern, den Wasserdimeren, zu untersuchen. Die Ionisation von Wasserdimeren führt über einen Protonentransfer zur Entstehung von einem Oxoniumion und einem Hydroxylradikal (OH).



hier sollte ich was mit Remi erwähnen. Ein Reaktionsmikroskop ist ein präzises Impulsspektrometer, das geeignet ist diese Reaktion vollständig kinematisch zu untersuchen. Schnorr *et al.* vom MPIK Heidelberg **hat in einem aktuellen Proposal vorgeschlagen**, diese Messung an FLASH in Hamburg durchzuführen. Die Zeitskala des Protonentransfers wird auf wenige 10 fs **erwartet**. Das DESY stellt den Freie-Elektronen-Laser

1 Motivation

in Hamburg (FLASH) zur Verfügung, der kurze XUV-Pulse mit einer Pulsdauer in der selben Größenordnung erzeugen kann und damit in der Lage ist, die Protonentransferdynamik aufzulösen.

Das Ziel dieser Bachelorarbeit ist es eine neue Cluster-Quelle für Flüssigkeiten zu konstruieren, die für das vorgestellte Experiment geeignet ist.

Das erste Kapitel **arbeitet** die physikalischen Grundlagen der Funktionsweise eines Reaktionsmikroskopes und der Entstehung von Clustern in einer Überschallexpansion **auf**.

Die technische Umsetzung der Grundlagen wird im zweiten Kapitel behandelt. Die neu entwickelte Cluster-Quelle wird in Bezug auf die an sie gestellten Anforderungen und ihre Möglichkeiten vorgestellt. Des weiteren wird erläutert welche technischen Komponenten im experimentellen Aufbau die Erzeugung eines kalten Targetjets ermöglichen.

Das letzte Kapitel befasst sich mit experimentellen Ergebnissen aus vergangenen Versuchen mit Wasserclustern und der Inbetriebnahme der neu gebauten Cluster-Quelle.

2 Experimentelle Realisierung

2.1 Reaktionsmikroskop

Die Interaktion von starken Lasern mit Atomen oder Molekülen führt zu deren Ionisation und der Entstehung von geladenen Fragmenten ([HS11]). Um die Kinematik dieser Reaktionen im Detail verstehen zu können, müssen die Impulsvektoren aller beteiligten Fragmente bekannt sein. Reaktionsmikroskope (REMs) sind hochauflösende Impulsspektrometer, mit denen die dreidimensionalen Impulsverteilungen der Fragmente vermessen werden können und somit ein kinematisch vollständiges Verständnis der Reaktion liefern.

Das folgende Kapitel wird das Funktionsprinzip und die einzelnen Komponenten des REMs erklären und sich dabei an den Doktorarbeiten von Schnorr [Sch14] und Fechner [Fec14] orientieren.

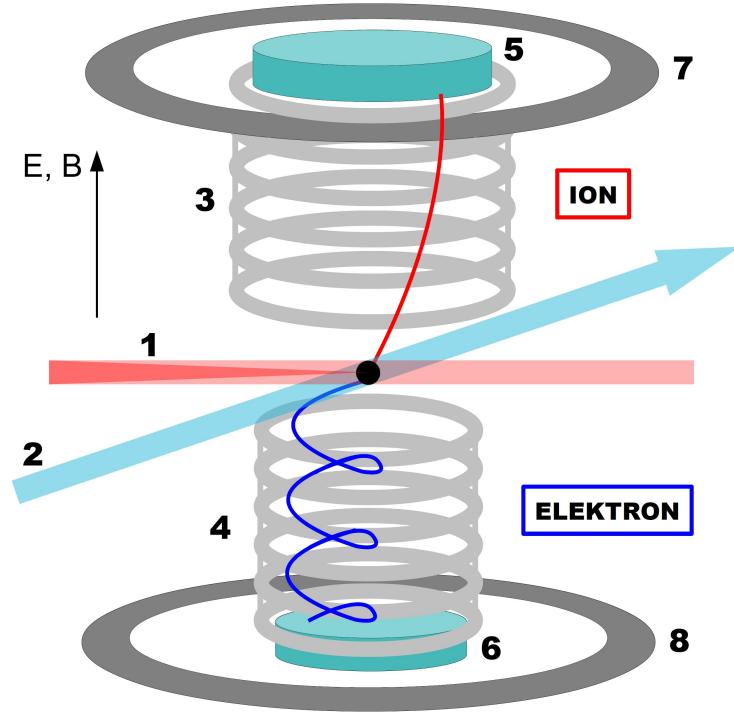


Abbildung 2.1: Schematischer Aufbau eines Reaktionsmikroskopes: 1: Fokussierter Laserstrahl. 2: Kalter Überschallgasjet. (siehe Kapitel 2.2.2) 3: Spektrometer Ionenseite. 4: Spektrometer Elektronenseite. (siehe Kapitel 2.1.1) 5: Ionendetektor. 6: Elektronendetektor. (siehe Kapitel 2.1.2) 7 und 8: Helmholtz-Spulenpaar. [Sch11] (schöne Verweise überlegen)

2.1.1 Spektrometer

In der Mitte einer Ultrahochvakuumkammer ($p \approx 10^{-12}$ mbar) wird ein stark fokussierter Laser¹ im 90° Winkel mit einem kalten Gasjet gekreuzt. Im Laserfokus werden Targetatome/-moleküle ionisiert und es entstehenden positive Ionen und Elektronen. Das Spektrometer besteht aus mehreren koaxial angebrachten und äquidistant angeordneten Metallringen, die über eine Widerstandskaskade leitend verbunden sind. Legt man an den Enden eine Spannung an, entsteht ein sehr homogenes elektrisches Feld im Inneren. Das elektrische Feld beschleunigt die Ionen und Elektronen in entgegengesetzte Richtungen

¹Außer Photonen werden auch Elektronen und Ionen als Projektilen verwendet. [UMD⁺03]

auf einen zeit- und ortsauflösenden Detektor.

Da bei einer Ionisation Elektronen und Ionen aus dem gleichen Target stammen ist der Impuls erhalten. Ionen und Elektronen besitzen eine enorme Massendifferenz und das wirkt sich in sehr verschiedenen Energien und Geschwindigkeiten der Elektronen, verglichen mit den Ionen aus. Um die leichteren und schnelleren Elektronen auf den Detektor zu lenken, ist ein sehr viel stärkeres elektrisches Feld vonnöten, als dies bei Ionen der Fall ist. Die Ortsauflösung des Detektors wird aber mit zunehmendem **E-Feld** schlechter, weil dann die Flugzeiten und die Auftrefforte von verschiedenen Ionen zu ähnlich werden. Um alle Ionen und Elektronen mit hoher Auflösung zu detektieren, wird im REMI, mit einem externen Helmholtzspulenpaar, ein Magnetfeld erzeugt. Dieses zwingt die Elektronen auf Spiralbahnen um die Spektrometerachse, während der Effekt für Ionen klein ist. Trotz der somit komplizierteren Flugbahnen, kann aus dem Auftreffort und der Flugzeit der dreidimensionale Impuls der Fragmente berechnet werden.

2.1.2 Detektor

Der orts- und zeitauflösende Detektor besteht aus zwei Komponenten, dem(?) Micro-Channel Plate (kurz: MCP) und der Delayline-Anode. Das MCP detektiert den Auftreffzeitpunkt des geladenen Teilchens und verstärkt das Signal für die Delayline-Anode. Die Delayline-Anode detektiert im Anschluss den Auftreffort des Teilchens. **In Abbildung (2.2) ist der Detektor schematisch dargestellt.**

In den Folgenden beiden Abschnitten wird die Funktionsweise der beiden Komponenten näher besprochen.

2 Experimentelle Realisierung

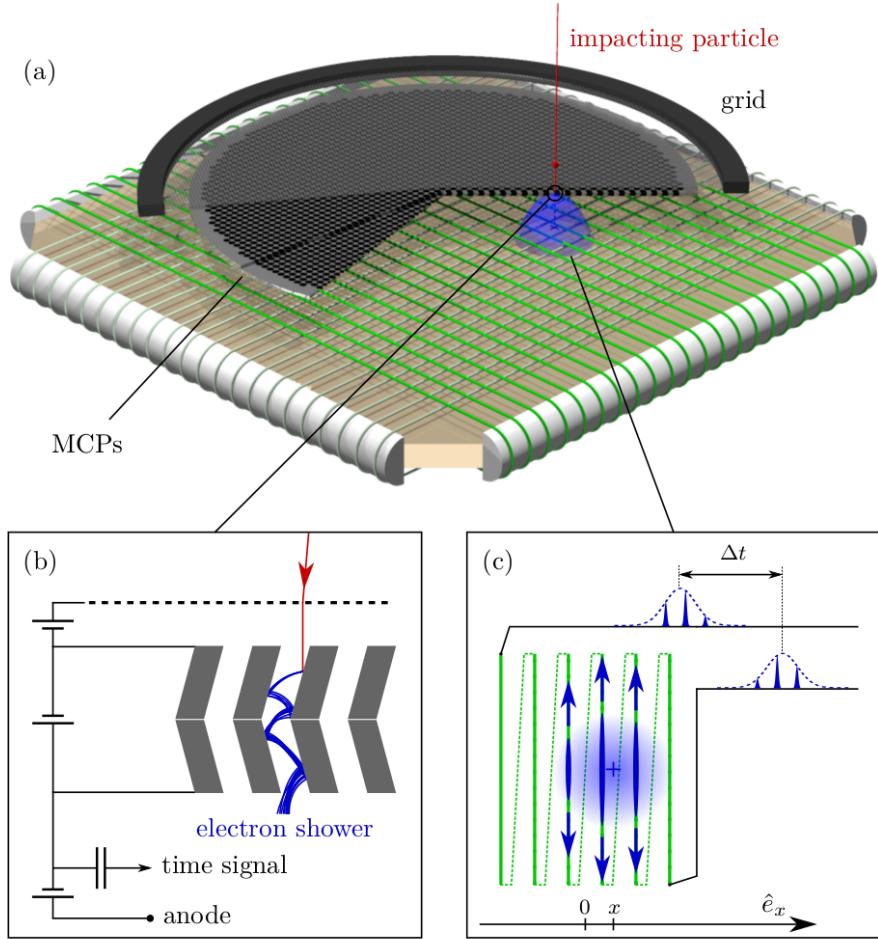


Abbildung 2.2: a) Orts- und Zeitauflösender Detektor eines Reaktionsmikroskopies. b) Zwei gestapelte MCPs. Geladenes Teilchen (roter Pfeil) trifft auf die MCP Innenwand und löst Sekundärelektronen aus. Durch die anliegende Spannung beschleunigt, lösen diese Elektronen bei Kontakt mit der Innenwand weitere Elektronen aus, bis der Elektronenschauer aus dem MCP austritt c) Prinzip der Positionsbestimmung der Delay-Line-Anode. Elektronenschauer trifft auf den Kupferdraht und sorgt für eine lokal erhöhte Ladungsdichte. Diese breitet sich entlang des Drahtes aus und kann an beiden Drahtenden nachgewiesen werden. Die Zeitdifferenz dieser Signale ist eindeutig mit dem Auftreffort verknüpft. [Fec14]

Micro-Channel Plate

Ein MCP ist eine ca. 1mm dünne Glasplatte, die homogen mit mikroskopisch kleinen Kanälen (Innendurchmesser $\approx 25\mu\text{m}$) versehen ist. Die Kanäle auf dem MCP sind typischerweise um 8° gegen die Oberflächennormale geneigt, um zu gewährleisten, dass eintretende Teilchen die Innenwand treffen. Zwischen den beiden Oberflächen der MCP wird eine Hochspannung von typischerweise 1200V angelegt. Trifft ein geladenes Teilchen auf die Innenwand eines solchen Kanals, werden Sekundärelektronen ausgelöst. Durch die Spannung werden die Elektronen in Richtung Delayline-Anode beschleunigt und treffen dabei weitere Male auf die Innenwand, sodass kaskadenartig ein Elektronenschauer entsteht (siehe Abb. 2.2.b). **Die Oberflächen des MCP sind mit einem geeigneten Halbleiter beschichtet, der die Austrittsarbeit von Elektronen verringert und damit die Effizienz erhöht.** Warum auf Oberfläche?

In der Regel werden mehrere MCPs gestapelt, um die Verstärkung zu erhöhen. Die Kanäle werden beim Stapeln verschieden orientiert angeordnet, um die Anzahl der Wandkontakte der Elektronen zu maximieren. Durch das Auslösen des Elektronenschauers fällt die Spannung über dem MCP schlagartig ab. Dieses Signal wird ausgelesen und stellt, durch die Differenz mit dem externen Triggersignal des Lasers, die Flugzeit des Teilchens dar.

Delayline-Anode

Der austretende Elektronenschauer trifft anschließend auf die Delayline-Anode [SW88], während sie sich durch die abstoßende Coulombkraft unter den Elektronen aufweitet. Eine solche Delayline-Anode besteht aus einem Kupferdraht, der in gleichmäßigen Abständen um eine isolierende Keramik gewickelt wurde. Trifft der Elektronenschauer auf das Kupferkabel der Delayline-Anode, entsteht eine lokal erhöhte Ladungsdichte, welche sich zu beiden Enden des Drahtes ausbreitet und dort detektiert wird. Die Zeitdifferenz Δt zwischen den Signalen hängt linear mit der Auftreffposition des Elektronenschauers zusammen (siehe Abb. 2.2.c). Um die Auftreffkoordinate zu bestimmen, nutzt man die Formel

$$x = c_{w,x} \Delta t , \quad (2.1)$$

wobei x die Position senkrecht zu den Wicklungen beschreibt und $c_{w,x} = \text{const}$ die effektive Signalausbreitungsgeschwindigkeit in diese Richtung ist. Um einen zweidimensionalen Auftreffort zu erhalten, wird eine zweite Kupferdrahtwicklung rechtwinklig zu der ersten orientiert angebracht (siehe Abb. 2.2 a)). **Da-**

2 Experimentelle Realisierung

durch, dass das (Ladungs-)Signal die gesamte Drahtlänge durchläuft, ist die Summe der beiden Zeitsignale an den Enden vordefiniert. Mithilfe dieser Zeitsummenbedingung können auch mehrere Teilchen gleichzeitig(?, oder $\pm 8\text{ns}$) ortsaufgelöst werden.
Könnte noch beschreiben, dass es einen zweiten Draht gibt, Hintergrund, und dann Spannung an der Anode anliegt, die die Elektronen beschleunigt.

2.2 Cluster

Da bei typischen Reaktionen liegen die zu messenden Impulse der erzeugten Ionen in der Größenordnung von einer atomaren Einheit, und damit die Energien im meV-Bereich. Um diese Vorgänge mit einem REMI aufzulösen ist ein kaltes Target essentiell, da die mittlere kinetische Energie von Gasen bei Raumtemperatur bei ca. 40 meV liegt [Kur07]. Ein Überschall-Gasjet² kann eine innere Temperatur der Teilchen von unter einem Kelvin erreichen. Der Prozess der Überschallexpansion fördert zudem die Entstehung von Clustern, wie sie für die in Kapitel 1 vorgestellten Experimente erforderlich sind.

In den folgenden **Abschnitten/Kapiteln** wird näher auf Cluster und deren Entstehung durch Überschallexpansion eingegangen.

2.2.1 Definition

Als Cluster bezeichnet man Agglomerate aus Atomen oder Molekülen. Diese können bei kleinen Exemplaren zwei bis mehrere Hundert Teilchen enthalten und bei großen Clustern aus bis zu ca. 10^6 Teilchen bestehen. Je nach Größe besitzen Cluster verschiedene Eigenschaften und bilden damit eine Brücke zwischen der Atomphysik, der Molekülphysik und der Festkörperphysik. Cluster können im Allgemeinen auf zwei Wege **produziert** werden. Einerseits kann man sie aus ihren einzelnen Bestandteilen zusammensetzen (z.B. **ultrakalte Stöße**, Kondensation aus der Gasphase), andererseits können sie durch Abspaltung von größeren Agglomeraten gewonnen werden (z.B. Abspaltung durch Teilchenbeschuss) [Bar07].

Bei kleinen Clustern lassen sich alle Eigenschaften anhand der Atom- und Molekülphysik beschreiben. Ähnlich wie beim Atom besitzen kleine Cluster diskrete Energieniveaus. Bis zu einer gewissen Größe strukturieren sich die Cluster beim Hinzukommen eines weiteren Atoms vollständig um und verändern auf diese Weise ihre physikalischen und chemischen Eigenschaften. Sobald das Cluster eine Größe von etwa 100 Atomen oder Molekülen erreicht, kann man allmählich die Anordnung in einer Gitterstruktur wie bei Festkörpern beobachten. Auch die anfangs diskreten Energieniveaus gehen langsam in ein kontinuierliches Energieband über ([BMP88] [Gen08]). Mikrokristalle sind Cluster, die aus ca 1000 Atomen oder Molekülen bestehen. Diese besitzen einige Eigenschaften von Festkörpern. Bei Clustern in der Größe von etwa 50000 Konstituenten kann man von Festkörpern sprechen, da sie diesen in allen Eigenschaften

²Als „Jet“ wird in der Physik ein gerichteter Teilchenstrom bezeichnet.

2 Experimentelle Realisierung

ähneln [Gen08]. Cluster können aus fast jeder Art von Atomen oder Molekülen erzeugt werden. Homogene **Aggregate** werden nach ihren Bindungstypen und mittleren Bindungsenergie (BE) pro Atom oder Molekül unterschieden [Jor84]. Zur Gruppe der schwachgebundenen Cluster zählen die durch van-der-Waals Wechselwirkung **stabilisierten** Cluster. Van-der-Waals Cluster sind mit einer mittleren Bindungsenergie von $\text{BE} \leq 0,3 \text{ eV}$, die am schwächsten gebundenen Cluster. Die Dipol-Wechselwirkung erlaubt es Moleküle ohne permanentes Dipolmoment oder Edelgase zu Clustern, wie z.B. He_n zu formen. Die Größe dieser Cluster bleibt wegen der schwachen Bindung meist bei $n < 10$.

Die Gruppe der moderat gebundenen Cluster enthält Molekülcluster und wasserstoffbrückengebundene Cluster. *Die höhere Energie erlaubt typische Clustergrößen von $n \approx 10^2$.* Cluster wie $(\text{HF})_n$ oder $(\text{H}_2\text{O})_n$ werden durch Wasserstoffbrückenbindungen realisiert. Die Dipol-Dipol-Anziehung hält diese Cluster mit einer mittleren Bindungsenergie von $\text{BE} \approx 0,3 - 0,5 \text{ eV}$ zusammen. Polare organische Moleküle bilden durch Van-der-Waals-Wechselwirkung und schwache kovalente Anteile sogenannte Molekülcluster mit einer mittleren Bindungsenergie von $\text{BE} \approx 0,3 - 1 \text{ eV}$. $(\text{I}_2)_n$ oder $(\text{As}_4)_n$ sind Repräsentanten molekularer Cluster.

Einen Übergang zwischen den moderat und den stark gebundenen Clustern stellen die metallischen Cluster dar. Diese bilden untereinander eine metallische Verbindung mit einem halbvollen Band delokalizierter Bindungselektronen. Die mittlere Bindungsenergie beträgt hierbei $\text{BE} \approx 0,5 - 3 \text{ eV}$.

Zu den stark gebundenen Clustern zählen kovalente und ionische Cluster. Kovalente Cluster sind auch als konventionelle Moleküle bekannt. Durch Elektronenpaarbindungen werden mittlere Bindungsenergien (**plural?**) von $\text{BE} \approx 1 - 4 \text{ eV}$ erreicht. Fullerene sind **namhafte** kovalente C_n -Cluster. Bei ionischen Clustern weisen die Bestandteile einen großen Unterschied in Elektronegativität auf. (**führt EN zu Coulomb-WW?**) Die resultierende Coulombwechselwirkung führt zu einer mittleren Bindungsgesnergie von $\text{BE} \approx 2 - 4 \text{ eV}$. Zu Vertretern dieser Cluster gehören $(\text{NaCl})_n$ und $(\text{CaF}_2)_n$.

Jortner ist die Referenz zu allen. Jedesmal wiederholen oder reicht am Anfang? Das Ziel der Arbeit ist Wassermikrocluster zu erzeugen.. Sollte in Motivation erwähnt werden

2.2.2 Überschallexpansion

Die Überschallexpansion ist ein adiabatischer Prozess, bei dem Gas durch eine kleine Öffnung von einem Bereich mit hohem Druck, in einen Bereich mit

niedrigem Druck strömt. Dabei wird auf Grund von Stößen untereinander der Translationsimpuls der Gaspartikel ausgerichtet. Die kinetische Energie der ungerichteten Bewegung (Wärme) wird in gerichtete Bewegungsenergie (Geschwindigkeit) umgewandelt. Da bei adiabatischen Prozessen kein Wärmeaustausch mit der Umgebung stattfindet, bedeutet dies eine Abkühlung des Gases [BS22]. Dieser thermodynamische Effekt ermöglicht Endgeschwindigkeiten von über 1000 m/s bei Endtemperaturen von unter 1 K [Mül12]. Solche niedrigen Temperaturen gestatten es schwache van-der-Waals Cluster, wie ${}^4\text{He}_2$ zu erzeugen, obwohl ein solches Heliumdimer mit einer Bindungsenergie von $1,013 \cdot 10^{-7}$ eV ($\text{BE} \hat{=} 1,176$ mK [LB07]) die bisher schwächste bekannte Molekülbinding besitzt [LMK⁺93].

Die nachfolgende genauere Betrachtung der Prozesse und Formeln, die bei der Clusterbildung durch Überschallexpansion eine Rolle spielen, folgt den Darstellungen von Miller [SBBL88] und Müller [Mül13].

Expandiert Gas mit Volumen V aus einem Reservoir mit Temperatur t_0 und Druck p_0 adiabatisch ($\delta S = 0$), folgt die Druckabnahme der thermodynamischen Gesetzmäßigkeit

$$pV^{\gamma/(1-\gamma)} = \text{const}, \text{ mit } \gamma = c_p/c_v = (f+2)/f. \quad (2.2)$$

Der Exponent γ hängt von der Anzahl der aktiven Freiheitsgrade³ f ab und kann als Quotient aus der isobaren und isochoren Wärmekapazität, c_p und c_v , experimentell bestimmt werden.

Nimmt man an, dass bei der Überschallexpansion die gesamte thermische Energie in kinetische Energie umgewandelt wird, erhält man folgende Formel für die Endgeschwindigkeit des Gasjets.

$$v_\infty = \sqrt{2 \int_{T_0}^{T_\infty \ll T_0} c_{p,\text{mol}} dT} = \sqrt{\frac{2R}{W} \left(\frac{\gamma}{\gamma-1} \right) T_0} \quad (2.3)$$

Wobei der Zusammenhang für ideale Gase

$$c_{p,\text{mol}} = \left(\frac{\gamma}{\gamma-1} \right) \left(\frac{R}{W} \right) \quad (2.4)$$

verwendet wurde. R steht für die universelle Gaskonstante, W kennzeichnet das Molekulargewicht des verwendeten Gases und T_0 steht für die Düsentemperatur.

³ $f = 3$ für einatomige Gase, $f = 5$ für zweiatomige Gase, $f = 6$ für Wasser [Mül13]

2 Experimentelle Realisierung

Bei Gasgemischen muss man die, nach ihrem atomaren Anteil gewichtetenen, Mittelwerte $\bar{c}_{p,mol}$ und \bar{W}_{mol} verwenden. Vergleicht man die Endgeschwindigkeit v_∞ mit der Schallgeschwindigkeit c für ideales Gas

$$v_\infty = \sqrt{\frac{R\gamma}{W} T_0 \left(\frac{2}{\gamma - 1} \right)} = c \sqrt{\left(\frac{2}{\gamma - 1} \right) \frac{T_0}{T}} \text{ mit } c = \sqrt{\frac{R\gamma}{W} T} \quad (2.5)$$

sieht man, dass v_∞ größer ist als c , weil die Temperatur des expandierten Gases T sehr viel kleiner ist, als die Düsentemperatur T_0 und der Faktor $\sqrt{(2/\gamma - 1)} = 2,45$ (mit $\gamma = 8/6$ bei Wasser) den Unterschied verstärkt.
Die Machzahl

$$M(\vec{r}) = v(\vec{r})/c(p(\vec{r})) \quad (2.6)$$

ist bei der Überschallexpansion eine wichtige Größe, die skalar in vielen thermodynamischen Rechnungen eine Rolle spielt und vektoriell betrachtet das Strömungsfeld an jedem Ort \vec{r} charakterisiert. Das Strömungsfeld in der „zone of silence“ ist in erster Näherung gleich dem einer Quellströmung. Das bedeutet die Teilchen breiten sich gleichmäßig in alle Richtungen aus. Die Teilchendichte verhält sich mit zunehmendem Abstand zur Düse wie x^{-2} [Hag81]. Sofern das Verhältnis von Stagnationsdruck zu Hintergrunddruck $p_0/p_b > 2,1$ beträgt breitet sich das Gas nach Austritt aus der Düse mit Überschallgeschwindigkeit aus, was eine Machzahl $M > 1$ bedeutet [SBBL88]. Das hat zur Folge, dass der Gasstrom zunächst unabhängig von jeglichen externen Randbedingungen ist. Dieser Effekt röhrt daher, dass sich Information „nur“ mit Schallgeschwindigkeit ausbreitet und der Teilchenstrom schneller als diese ist. Doch obwohl der Gasstrom nichts von Randbedingungen „weiß“, muss er sich nach ihnen richten. Deswegen bilden sich nach kurzer Zeit Schockwellen aus, die aus Teilchen bestehen, die an begrenzenden Wänden oder ähnlichen „Randbedingungen“ abprallen und auf ihrem Rückweg den Strom regulieren. Bei der Überschallexpansion bilden sich mehrere dieser Schockwellen aus (siehe Abbildung 2.3). Schockwellen sind nichtisentropische Gebiete und zeichnen sich durch starke Dichte-, Temperatur-, Geschwindigkeits- und Druckgradienten aus. Durch diese Eigenschaften kann man Schockwellen mit diversen Lichtstreutechniken sichtbar machen [MGG⁺09] (siehe Abbildung 2.4).

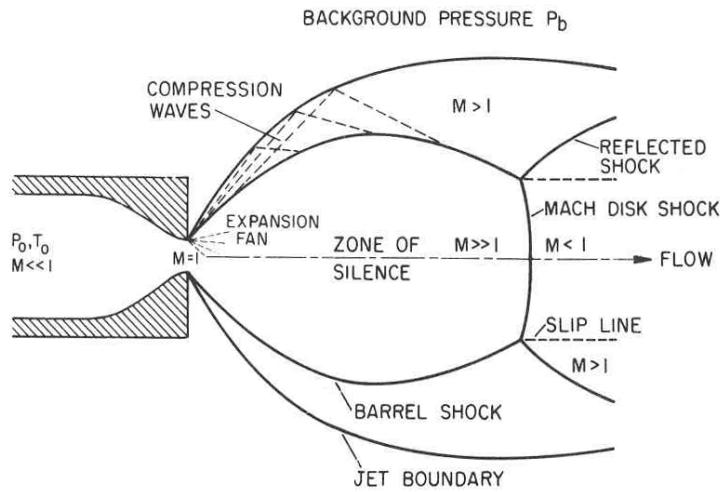


Abbildung 2.3: Übersicht der Überschallexpansion mit Schockwellenstruktur [SBBL88]

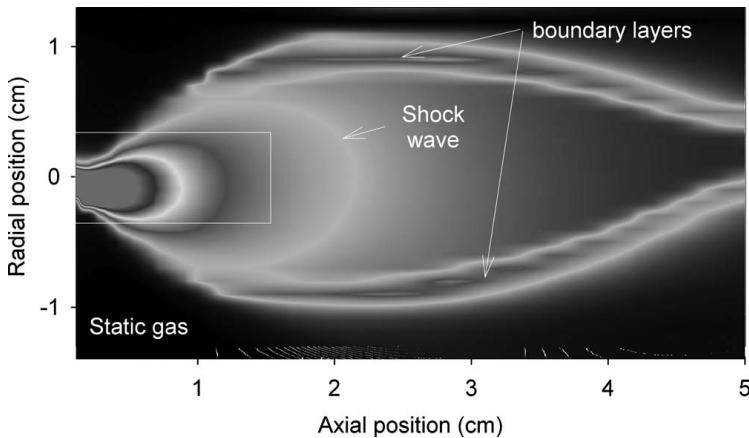


Abbildung 2.4: Druckverteilung bei einem Argon-Jet mit einer 20 μm breiten schlitzförmigen Düsenöffnung. Die gekennzeichnete Schockwelle in der Mitte begrenzt den isentropen Bereich, also die zone of silence [MGG⁺09]

Der von den Schockwellen eingegrenzte Bereich wird *zone of silence* genannt, weil er von Randbedingungen unbeeinflusst ist und sich die Teilchen in diesem Bereich überschallschnell fortbewegen. Die Lage der Schockstrukturen wird maßgeblich durch das Verhältnis von Stagnationsdruck p_0 zu Hintergrunddruck p_b der Kammer bestimmt. Eine wichtige Schockstruktur ist die sogenannte

2 Experimentelle Realisierung

Mach-Scheibe, die normal zur Ausbreitungsrichtung des Gases liegt. Trifft der Jet auf eine Schockstruktur, wird ein enormer Druck auf dessen **Konstituenten** ausgeübt. Enthält der Gasstrom z.B. empfindliche Cluster, besteht die Gefahr, dass diese zerstört werden. Das kann verhindert werden, indem man den gewünschten Teil des Teilchenstroms mit einem Skimmer (siehe Kapitel 3.2) vor der Machscheibe herausschält.

Die Position der Mach-Scheibe lässt sich mittels der empirischen Formel

$$\frac{x_m}{d} = 0.67 \sqrt{\left(\frac{p_0}{p_b}\right)} \quad (2.7)$$

bestimmen, wobei x_m die besagte Mach-Scheibenposition, ausgehend von der Düse und d die Größe der Düsenöffnung ist.

2.2.3 Clusterbildung

Wie es bei der Überschallexpansion zur Clusterbildung, wird in diesem Kapitel allgemein an idealem Gas erklärt. Zusätzlich werden die Modelle auf Wasser angewandt um eine Abschätzung der zu erwartenden Jeteigenschaften zu erhalten.

Im vorigen Kapitel wurde erwähnt, dass die Gasteilchen sich im Bereich der Düse stoßen und dabei abkühlen. In diesem Zeitfenster entstehen auch die Cluster. Der Clusteringprozess kann auf zwei Weisen beschrieben werden. Die erste Beschreibung ist mechanischer Natur und geht davon aus, dass es über Dreikörperstöße zur Agglomeration zweier Atome oder Moleküle kommt, sobald die thermische Energie der Teilchen unter die Bindungsenergie eines Dimers sinkt. Der dritte Körper transportiert dabei überschüssige Energie ab und **dient** somit der Energie- und Impulserhaltung. Die entstandenen Dimere **dienen** dann als Kondensationskeime, an die sich weitere Atome oder Moleküle anlagern. Je größer das Cluster ist, desto mehr innere Freiheitsgrade besitzt es um die freiwerdende Bindungsenergie der sich anlagernden Teilchen vorübergehend aufzunehmen. Daher wird die Anlagerung wahrscheinlicher, je größer das Cluster ist. [DFF⁺05]

Die zweite Beschreibung erfolgt thermodynamisch und wird die Kondensationstheorie genannt. Abbildung 2.5 zeigt ein beispielhaftes p-T-Phasendiagramm, anhand dessen die Theorie veranschaulicht wird. Der Punkt A repräsentiert die Anfangsbedingungen, also ein ideales Gas bei Temperatur T_0 und Druck p_0 . Das Gas expandiert bei dem Austritt aus der Düse entlang der Isentropen bis

zum Punkt B, auf der Dampfdrucklinie $p_v(T)$. Die weitere Expansion folgt, aber nicht der Gleichgewichtskurve $p_v(T)$, sondern setzt sich entlang der „trockenen“ Isentrope fort, sodass sich das Gas in einem übersättigten Zustand befindet. An Punkt C kollabiert die „trockene“ Expansion. Das Gas kondensiert zu Clustern und die Isentrope kehrt dadurch zur Gleichgewichtskurve $p_v(T)$ zurück. [Hag81]

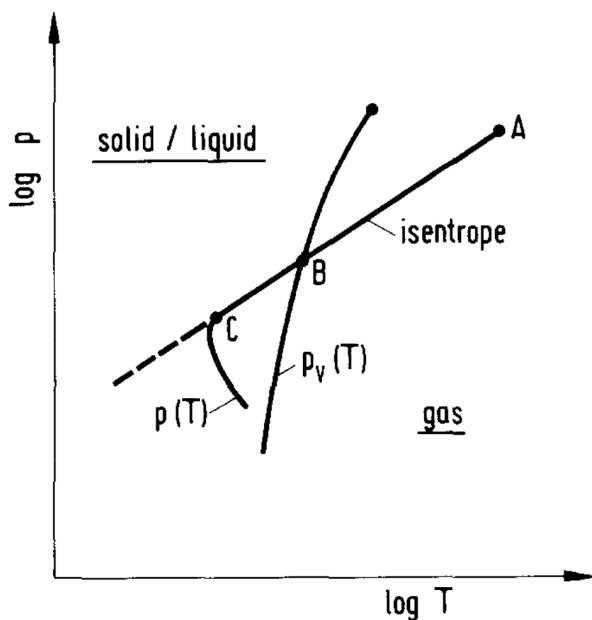


Abbildung 2.5: Schematisches p - T -Diagramm von idealem Gas bei der Überschallexpansion. $p(T)$ stellt die isentrope Expansionslinie und $p_v(T)$ die flache Dampfdrucklinie eines kondensierenden Gases dar. [Hag81]

Mittels der thermodynamischen Beschreibung wurden von Hagena *et al.* in den 80er Jahren Gleichungen hergeleitet, die, mit empirischen Skalierungsparametern ergänzt, Messergebnisse zu Clustergrößen gut beschreiben. Interessant ist, dass die Düsenform bei der Clusterentstehung eine wichtige Rolle spielt [HO72]. Je länger die Düse die Expansion des Gases, bei gleichen Anfangsbedingungen (d , p_0 , T_0) einschränkt, desto größer sind die entstehenden Cluster.

2 Experimentelle Realisierung

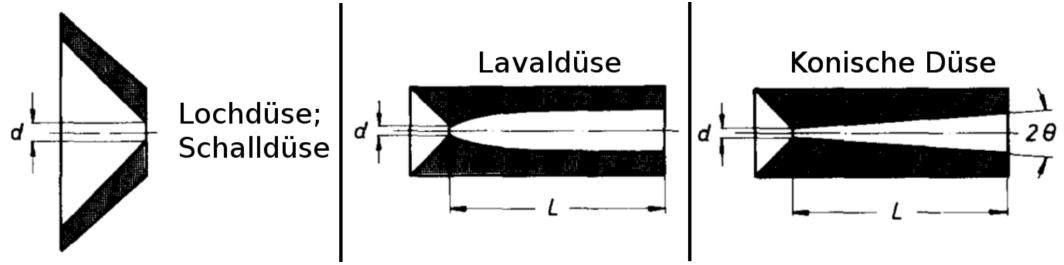


Abbildung 2.6: Typische, bei der Überschallexpansion verwendete Düsen mit charakteristischen Größen. [HO72]

Um verschiedene typischen Düsenformen (siehe Abbildung 2.6) mit denselben Gleichungen behandeln zu können, wurde die „equivalente Düsenöffnung“ d_{eq} eingeführt. Da in dieser Arbeit der Fokus darauf liegt Wasserdimere zu produzieren wird eine Lochdüse verwendet, weil diese die Expansion des Gases am wenigsten einschränkt. Der equivalente Düsendurchmesser entspricht bei Lochdüsen der Düsenöffnung, $d_{eq} \equiv d$. Eine geringere Anfangstemperatur T_0 und ein höherer Stagnationsdruck p_0 begünstigen ebenfalls die Bildung größerer Cluster. Da die Anfangsbedingungen im Reservoir extern festgelegt werden, $\delta_t T_0 = \delta_t p_0 = \delta_t V_0 = 0$, bedeutet eine externe Erhöhung von T_0 oder Verminderung von p_0 aufgrund der idealen Gasgleichung, $pV = nk_bT$, eine Erhöhung der Teilchenzahl n im System. **Mehr Teilchen im System führen mehr Stöße aus und begünstigen damit die Entstehung von Kondensationskeimen und größeren Clustern.**

Die Größenverteilung der entstehenden Cluster lässt sich durch eine Boltzmannverteilung beschreiben, deren Breite proportional zur mittleren Clustergröße $\langle N \rangle$ ist. Um auf die Clustergrößenverteilung in idealen Gasen zu schließen, benutzt man den empirischen Skalenparameter Γ von Hagena [Hag87]:

$$\Gamma = N_0 \ d_{eq}^q \ T_0^{sq-f/2} \quad (0 < q \leq 1). \quad (2.8)$$

Für axialsymmetrische Flüsse gilt $s = (f - 2)/4$. q ist ein empirischer Parameter, $N_0 = \frac{n_0}{V_0}$ die Teilchendichte im Reservoir, T_0 die Anfangstemperatur und d_{eq} der equivalente Düsendurchmesser. **muss ich hier alle wieder erklären? Die Hälfte kennt man doch schon..**

Um Γ einheitenunabhängig zu machen wird der reduzierte Skalenparameter

$$\Gamma^* = \Gamma / (r_{ch}^{q-3} \ T_{ch}^\alpha) \quad (2.9)$$

eingeführt mit $\alpha = q - 3$. Dabei gilt

$$r_{ch} = \frac{m}{\rho^{1/3}} \quad \text{und} \quad T_{ch} = \frac{\Delta h_0}{k_B} \quad (2.10)$$

Der charakteristische Radius r_{ch} setzt sich aus der Teilchenmasse m und der Festkörperdichte ρ zusammen. T_{ch} ist die charakteristische Temperatur mit der Sublimationsenthalpie Δh_0 bei 0 K und der Boltzmannkonstante k_B . Die mittlere Clustergröße $\langle N \rangle$ ergibt sich nach Hagena zu

$$\langle N \rangle = D \left(\frac{\Gamma^*}{1000} \right)^a. \quad (2.11)$$

a und D sind empirische Parameter, abhängig vom expandierenden Gas.

Fügt man die Formeln 2.8 bis 2.11 zusammen, erhält man den folgenden Ausdruck für $\langle N \rangle$.

$$\langle N \rangle = D \left(\frac{p_0 d_{eq}^q T_0^{q-3}}{1000 k_B T_0 (r_{ch} T_{ch})^{q-3}} \right)^a \quad (2.12)$$

$$\text{mit} \quad N_0 = \frac{n_0}{V_0} = \frac{p_0}{k_B T_0}.$$

Um diese Formel auf Wasser anzuwenden müssen lediglich die materialabhängigen Größen in Erfahrung gebracht werden. Die charakteristischen Größen r_{ch} und T_{ch} haben Werte von 3,19 Å bzw. 5684 K. Die Werte $q = 0,634$, $a = 1,886$ sowie der Vorfaktor $D = 11,6$ stammen aus einer Kurvenanpassung experimenteller Daten [BSSB02]. Die verwendeten Lochdüsen haben eine Düsenöffnung von $d_{eq} = 30$ bzw. 50 µm. Der Stagnationsdruck p_0 entspricht dem Wasserdampfdruck im Reservoir bei der Reservoirtemperatur T_0 . Der Zusammenhang $p(T)$ hat einen exponentiellen Verlauf der Form (siehe Abbildung 2.7)

$$p(T) = 2,445,1 \text{ Pa} \cdot \exp(-0,0376 \frac{1}{^\circ\text{C}} \cdot T[^\circ\text{C}]) - 2847,6 \text{ Pa.} \quad (2.13)$$

2 Experimentelle Realisierung

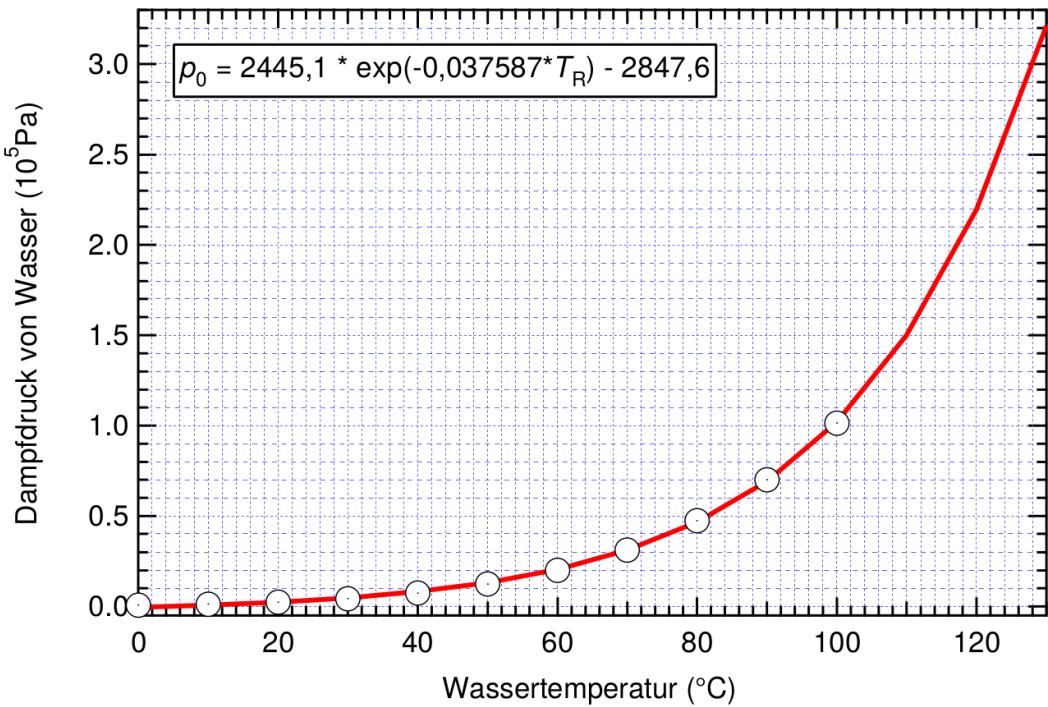


Abbildung 2.7: Dampfdruckkurve von Wasser in Abhangigkeit der Temperatur. **Kurve selbst machen!**

Das Ziel dieser Arbeit ist es Wasserdimere herzustellen, folglich ist eine mittlere Clustergroe von $\langle N \rangle = 2$ gesucht. Gema Formel 2.13 erreicht man

$$\langle N(T) \rangle = 2,0 \text{ fur } \begin{cases} T = 76,0 \text{ }^{\circ}\text{C mit } d = 50 \text{ } \mu\text{m} \\ T = 86,3 \text{ }^{\circ}\text{C mit } d = 30 \text{ } \mu\text{m} \end{cases}.$$

3 Technische Umsetzung

Bestandteil der Vorbereitungen **auf** die geplanten Experimente an FLASH war die Konstruktion einer Cluster-Quelle für Flüssigkeiten. Um auch Flüssigkeiten wie Wasser in die Gasphase überführen zu können, ist die Implementierung von Heizelementen erforderlich. Weitere Ansprüche waren ein möglichst großes vakuumseitiges Reservoir und die Möglichkeit dieses während des Betriebes zu befüllen. *Das folgende Kapitel behandelt neben der neuen Cluster-Quelle, die Komponenten die in der Praxis notwendig sind, um den kalten Teilchenstrom unter optimalen Bedingungen in die Hauptkammer des Reaktionsmikroskopos zu führen. Brauch ne bessere Überleitung*

3.1 Design der Cluster-Quelle

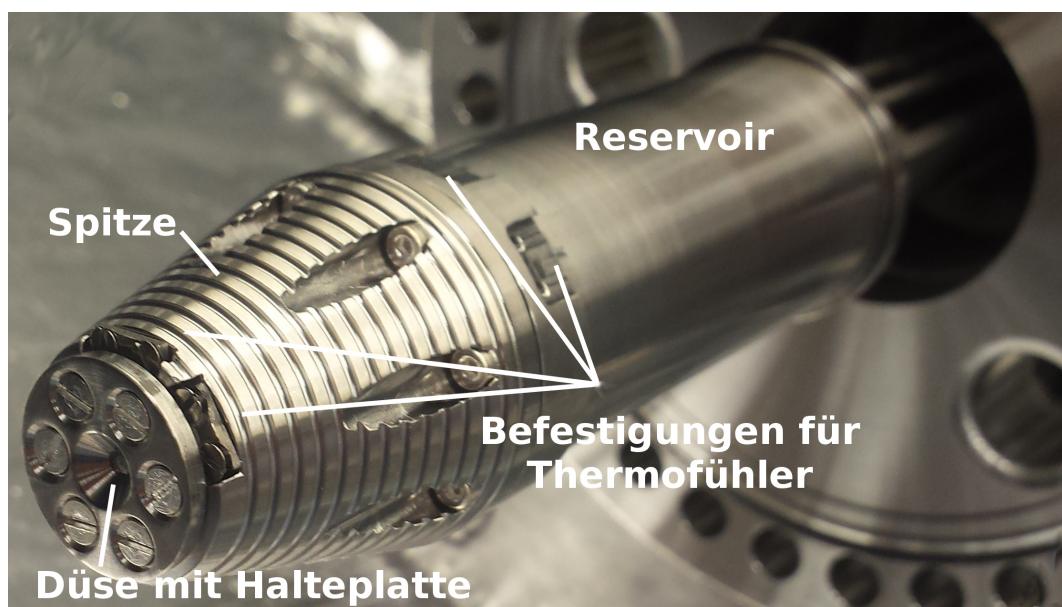


Abbildung 3.1: Foto der Cluster-Quelle für Flüssigkeiten. Die Heizdrahtwicklungen und Temperaturfühler sind nicht angebracht.

3 Technische Umsetzung

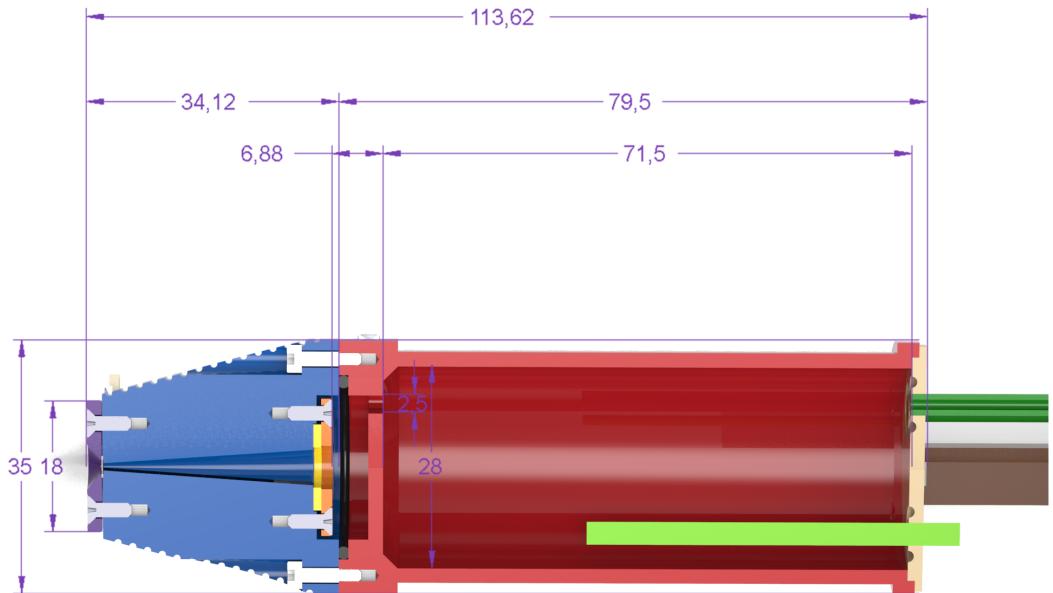


Abbildung 3.2: Querschnitt der Cluster-Quelle ohne Heizdraht und Thermofühler. Maße in mm. Die einzelnen Komponenten sind farbig hervorgehoben: lila: Düsenhalteplatte, blau: Spitze, gelb: Filter aus gesintertem Edelstahl, orange: Filterhalteplatte, schwarz: Viton O-Ring, rot: Reservoirkammer, hellgrün: Heizpatrone, beige: Reservoirrückwand, dunkelgrün: Rohrleitungen, braun: Haltestangen. Die Lochdüse (siehe Kapitel 2.2.3) ist zwischen der Spitze und der Düsenhalteplatte zu erkennen.

Die Cluster-Quelle ist in Abbildung 3.2 im Querschnitt dargestellt. Die Quelle besteht aus Edelstahl 1.4301 und hat eine Länge von 114 mm und einen Außendurchmesser von 35 mm. Die in braun angedeuteten Haltestangen sorgen für eine starre Verbindung zwischen Quelle und CF DN40 Halteflansch. Gleichzeitig entlasten sie die Rohrleitungen (dunkelgrün), die von der Reservoirrückwand (beige), durch den Halteflansch hindurch, bis nach außen führen. Der Halteflansch wird auf einem XYZ-Manipulator (siehe Kapitel 4.2.1) mit 50 mm Hub in Z-Richtung montiert. Der XYZ-Manipulator ermöglicht es später die Position des Targetjets in alle Raumrichtungen zu justieren. Die Haltestangen haben eine Länge von 240 mm. Diese Länge wurde so gewählt, dass die

3.1 Design der Cluster-Quelle

Düse beliebig nahe an den Skimmer in der ersten Jetkammer herangefahren werden kann (siehe Abbildung 3.3).

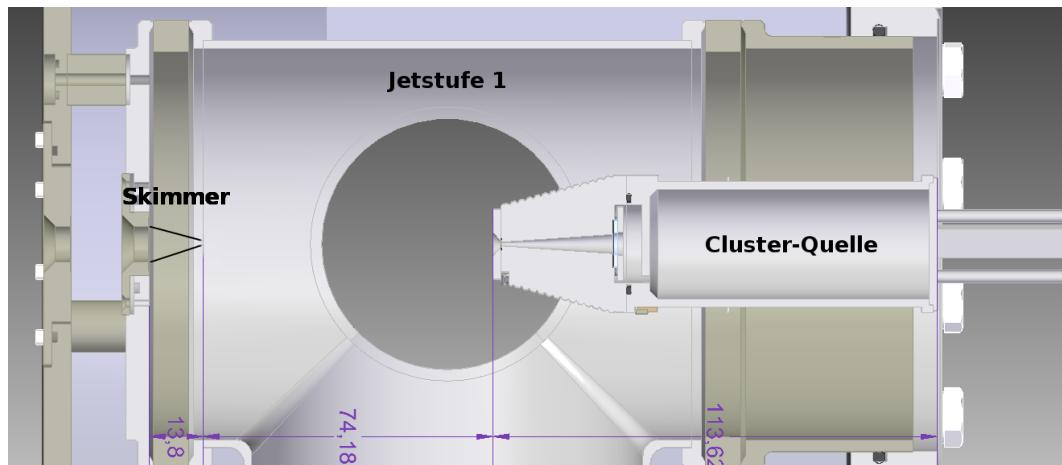


Abbildung 3.3: Maßstabsgetreue Darstellung der Konfiguration von Skimmer und Cluster-Quelle in der ersten Jetkammer bei 210 mm Haltestangenlänge und **eingefahrenem Manipulatorhub** ($Z = 0 \text{ mm}$). In Anbetracht der in der Realität 30 mm längeren Haltestangen und 50 mm Hub des Manipulators in Z-Richtung, ist der Kontakt mit dem Skimmer theoretisch möglich. Alle Abmessungen in mm.

3 Technische Umsetzung

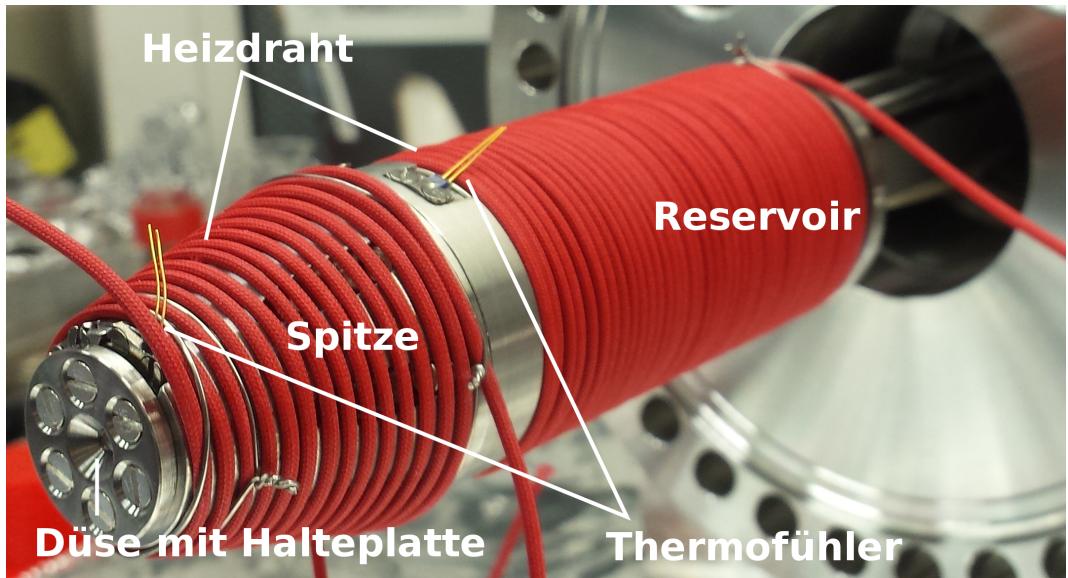


Abbildung 3.4: Foto der Cluster-Quelle für Flüssigkeiten mit angebrachten Heizdrahtwicklungen und Temperaturfühlern.

Von außen wird die ganze Oberfläche der Jetdüse mit Heizdrähten geheizt (siehe Abbildung 3.4). Da die Spitze konisch zuläuft wurde eine Spiralmutter eingefräst, um dem Heizdraht darin Halt zu bieten. Die Spitze und das Reservoir können separat auf unterschiedliche Temperaturen geheizt werden. Eine 50 W Heizpatrone („Firerod“) im Inneren des Reservoirs (siehe Abbildung 3.2, hellgrün) dient dazu die Flüssigkeit effizient zu erhitzen. Dadurch ist die Mithilfe des Reservoirheizdrähtes nicht zwingend notwendig, aber dennoch sinnvoll, um die Kondensation des **verdampften Gases** an den Reservoirwänden zu verhindern. Im Gegensatz dazu ist die Heizdrahtwicklung an der Spitze sehr wichtig für die Stabilität der Quelle. Sollte es im Bereich der Düse zur Kondensation kommen, würde das schubartigen Ausstoßen oder sogar die Vereisung der Düse zur Folge haben. Um das zu verhindern wird die Düsenter temperatur so hoch gewählt, dass die Kondensation des Dampfes, unter Berücksichtigung des Stagnationsdruckes, nicht stattfindet. Im Normalfall ist das gewährleistet, wenn die Düse 10 - 20 K wärmer ist, als das Reservoir. Zwischen Reservoir und Spitze befindet sich eine Trennwand mit einem Loch, das höher liegt als der Maximalfüllstand. Durch das Loch gelangt das bei Reservoirtemperatur T_0 entstehende Gas mit Stagnationsdruck p_0 von dem Reservoir zur Düse. Da Flüssigkeit in das Reservoir gefüllt wird, welches nicht durch das Loch austreten darf, ist die Orientierung der Düse beim Einbau zu beachten. Die drei

3.1 Design der Cluster-Quelle

Rohrenden (Durchmesser = 3 mm) in der Reservoirrückwand sind so angeordnet, dass die erste Öffnung über dem Maximalfüllstand liegt, die Zweite auf Höhe des Maximalfüllstands und die Dritte unter dem Maximalfüllstand liegt. Die zwei unteren Rohre dienen der Wiederbefüllung des Reservoirs. Dabei wird je eine 50 ml- Einwegspritze über einen durchsichtigen PVC-Schlauch an die Ausgänge der Rohre angeschlossen. Entnimmt man bei Betrieb mit der oberen Spritze ein Volumen aus dem Reservoir, wird im Ausgleich dazu dasselbe Volumen aus der unteren Spritze in das Reservoir gefüllt. Sobald kleine Flüssigkeitsmengen in den PVC-Schlauch der oberen Spritze fließen, ist der Befüllvorgang abgeschlossen. Das Reservoir fasst bis zu 36 ml Flüssigkeit. Das höchstgelegene Rohr eröffnet die Möglichkeit Experimente mit koexpandierendem Gas durchzuführen. Dieses Vorgehen beeinflusst die Expansionsbedingungen und kann verwendet werden diese auf bestimmte Clustergrößen zu optimieren. **Wenn ich gemischte Cluster erwähne muss ich erklären was das ist, oder? Und das will ich hier nicht wirklich.** Am vorderen Ende des Reservoirs und der Spitze sind von außen jeweils zwei Pt-100-Thermofühler angebracht mit denen die Außentemperatur der Cluster-Quelle gemessen werden kann. Die Parameter Düsen- und Reservoirtemperatur sowie der Expansionskammerdruck sind wichtige Überwachungsgrößen, um die Stabilität einer Expansion einschätzen zu können. In Abbildung 3.5 sieht man die Spitze der Clusterquelle etwas mehr im Detail. Die Spitze wird gegenüber dem Reservoir mit einem O-Ring gedichtet und ringsum verschraubt. In der Spitze befindet sich eine konische Aussparung, die das Gas zur Düse führt. Vor dieser Aussparung befindet sich ein bleigedichteter, gesinterter Filterring mit 5 bzw. 10 μm Porenweite. Nachdem das Gas die konische Aussparung durchquert hat, passiert es die Lochdüse und expandiert ins Vakuum (siehe Abbildung 3.5 - Detailaufnahme). Als Lochdüse werden Platinblenden mit 3 mm Außen- und 30 bzw. 50 μm Lochdurchmesser verwendet, die mit einem dünnen Bleiring gedichtet und mit einer Halteplatte fest angepresst wird.

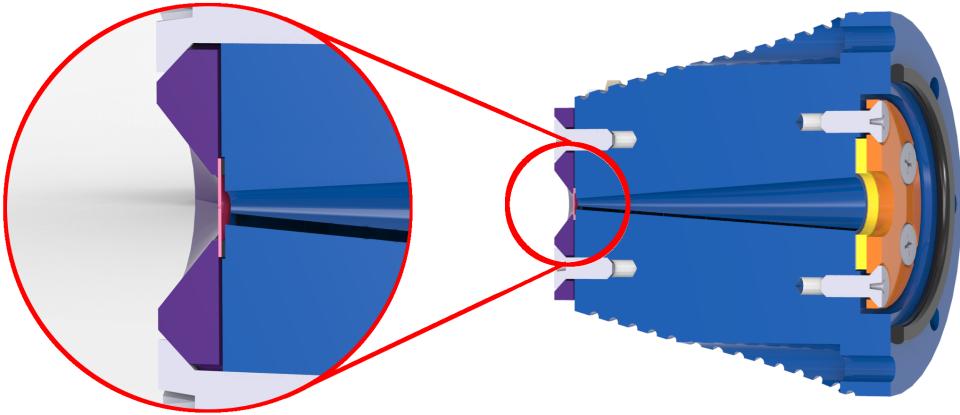


Abbildung 3.5: Detailansicht der Spitze.

lila: Düsenhalteplatte, pink: Düse, blau: Spitze, gelb: Filter, orange: Filterhalteplatte, schwarz: O-Ring

Die Spitze wird durch den Heizdraht von außen gleichmäßig erhitzt. Dadurch, dass sich in Richtung Düse immer weniger Edelstahl zwischen Heizdraht und Gas befindet, stellt sich ein Wärmegradient ein, der die Kondensation zunehmend **verhindert (Verhindern kann man nicht steigern, aber mir fällt keine bessere Formulierung ein.)**. Der Manipulator und die Cluster-Quelle werden als Einheit an die ersten Jetstufe montiert. Technische Konstruktionszeichnungen der Düse sind im Anhang beigelegt.

3.2 Skimmer

Der Gasstrom einer Überschallexpansion unterteilt sich in den Bereich der „zone of silence“ und den von Schockwellen und turbulenten Strömungen dominierten Restbereich (siehe Kapitel 2.2.2). Für Experimente geeignete Cluster müssen aus der „zone of silence“ extrahiert werden. Ein Skimmer ist eine konische Apertur, die an der Spitze eine kleine Öffnung besitzt. Die Düse wird mit der X- und Y-Einstellung am Manipulator so auf den Skimmer ausgerichtet, dass der mittig liegende Kernstrahl vom restlichen Strom separiert wird. Damit wird die Zerstörung der Stahlintensität und Clusterbeschaffenheit des

Kernstrahls durch Schockstrukturen verhindert.

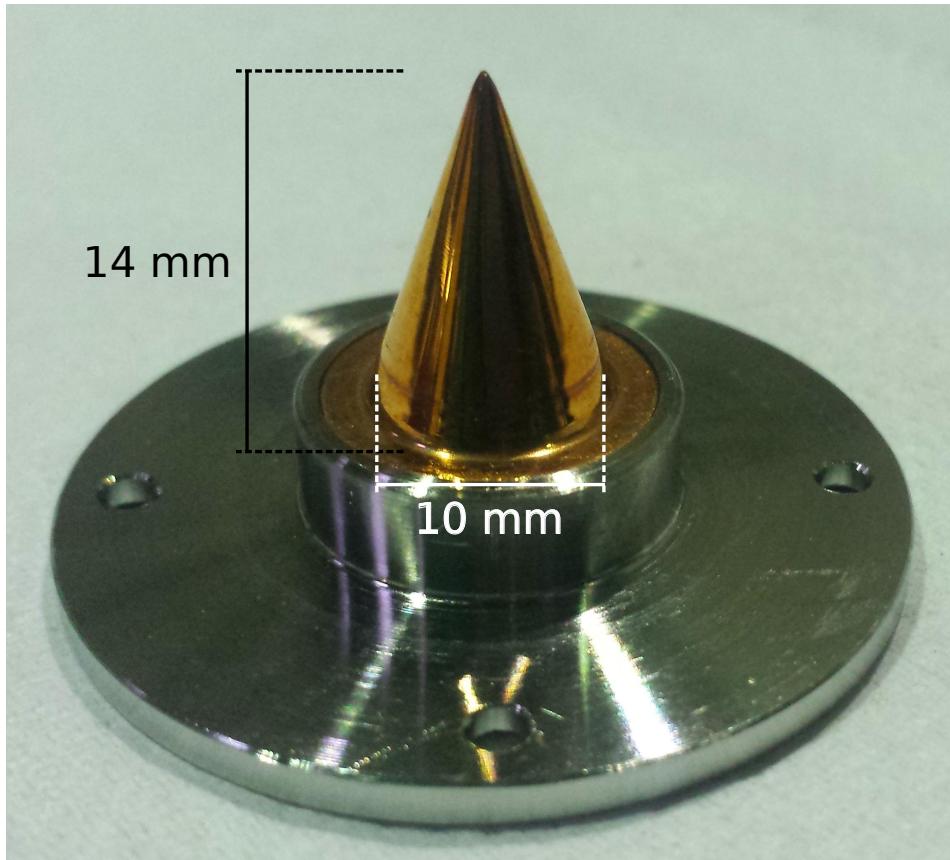


Abbildung 3.6: Foto eines Skimmers aus Kupfer. Der Skimmer ist auf eine verschraubbare Halterung geklebt mit der er in der ersten Jetkammer befestigt wird. Das ermöglicht es den Skimmer zu wechseln ohne ihn zu beschädigen.

Der verwendete Kupfer-Skimmer ist baugleich zu dem in Abbildung 3.6. Die Wandstärke des aus Kupfer bestehenden Skimmers beträgt an der Spitze laut Hersteller maximal $10 \mu\text{m}$. Der flache Winkel des Skimmers lenkt den abgeschälten Gasstrom sanft ab, damit er nicht in den Kernstrahl zurückreflektiert. Die optimale XY-Positionierung der Düse spiegelt sich an einem Druckmaximum im Jetdump (siehe Kapitel 3.3) wieder, weil dieses ein Zeichen dafür ist, dass der Teilchenstrahl die Apparatur unbeeinträchtigt durchquert. Die Entfernung der Düse zum Skimmer richtet sich nach den gewünschten Drücken in den folgenden Druckstufen. Da die Strahldichte mit dem Abstand x zur

3 Technische Umsetzung

Düse um x^{-2} abnimmt, ist ein kleines x für hohe Strahlintensitäten notwendig ([Hag81]). Befindet sich die Düse allerdings zu nahe an dem Skimmer, werden Teilchen an der Skimmerinnenwand reflektiert (siehe Abb. 3.7, links). Die reflektierten Teilchen vergrößern durch Stöße die Geschwindigkeitsverteilung der Strahls und zerstören sensible Strukturen **wie Cluster**. Die Entfernung an der keine radial austretenden Teilchen mehr an der Skimmerinnenwand streuen können ist die maximale Naheposition (siehe Abb. 3.7, mitte). In dieser Position ist die maximale Strahlintensität erreicht. Setzt man die Innenwandunge des Skimmers zu einem Kegel fort, so gibt die Kegelspitze die maximale Naheposition an. Da der Skimmer einen Öffnungswinkel von 25° bei $200\mu\text{m}$ Öffnungsdurchmesser hat, wäre die optimale Position bei $x = 46 \mu\text{m}$. Diese Position wird in der Praxis nicht angefahren, weil die Gefahr zu groß ist den Skimmer zu beschädigen. Meist sind die Strahlintensitäten in der Hauptkammer auch bei Entferungen von einigen Millimetern zum Skimmer ausreichend hoch, sodass die Düse in sicherer Entfernung positioniert werden kann.

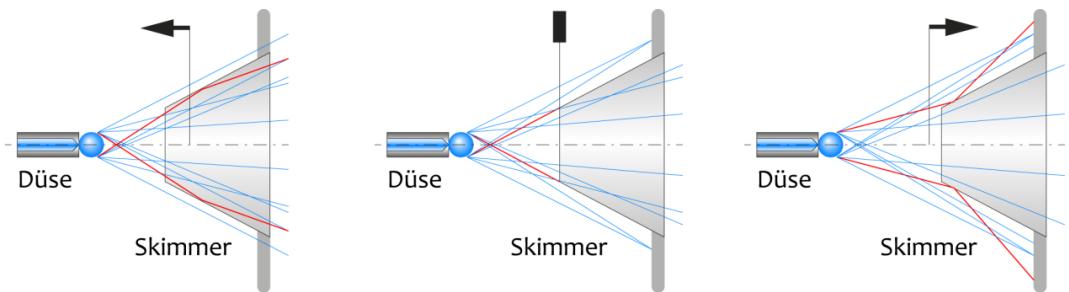


Abbildung 3.7: Strahlverlauf bei verschiedenen Entfernungen zum Skimmer.
links: Reflektionen an der Skimmerinnenwand. mitte: Maximale Naheposition. rechts: Verringerung der Strahlintensität.
[Mül12]

3.3 Jetstufen

Bei Betrieb der Jetdüse herrscht in der ersten Jetkammer üblicherweise ein Druck von $p_b \approx 10^{-3} \text{ mbar}$. Um den hohen Druckgradienten zwischen Düse und Hauptkammer ($p \approx 10^{-11} \text{ mbar}$) halten zu können, wird über sechs Druckstufen differentiell gepumpt.

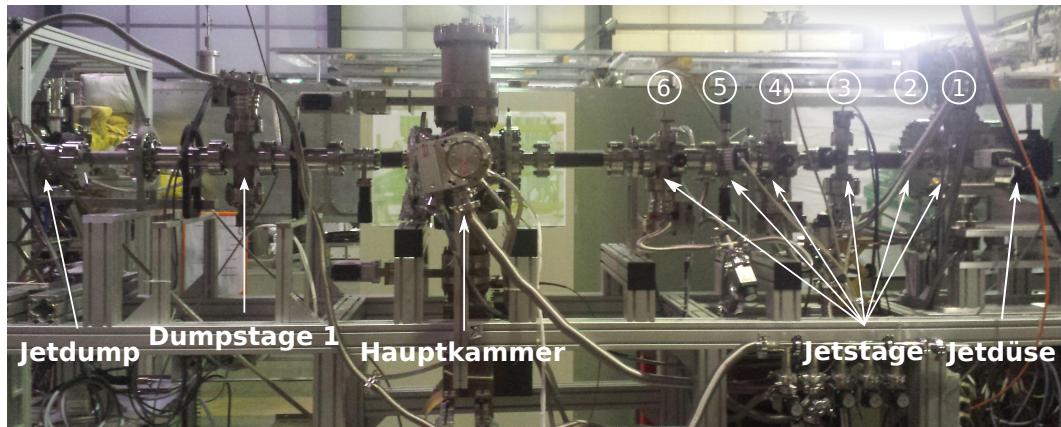


Abbildung 3.8: Teststand in Heidelberg. Die Struktur entspricht, bis auf den Quadrupoldetektor in der Hauptkammer, dem Schema in Abbildung 3.9.

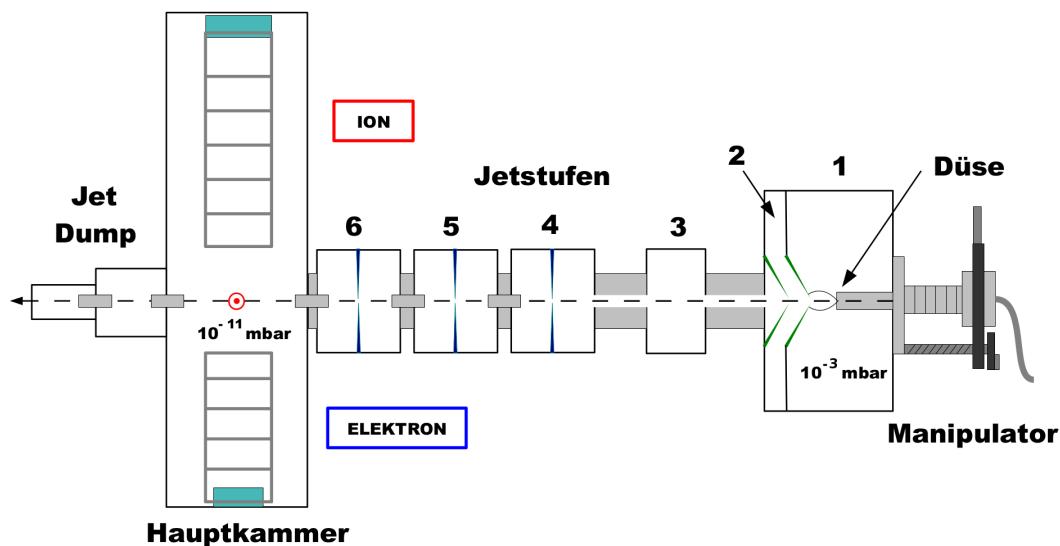


Abbildung 3.9: Schema einer experimentellen REMI-Ausbau mit Jetstufen. Die Nummern 1-6 kennzeichnen die Jetstufen. Der Jetstrahl ist als graue gestrichelte Linie gekennzeichnet. Die Skimmer und Schlitze sind in grün bzw. blau angedeutet. In der Hauptkammer des REMI ist der Laserfokuspunkt mit einem roten Punkt gekennzeichnet und die Detektoren in türkis markiert. [Sch11]

3 Technische Umsetzung

Wie schon erwähnt, wird die Jetdüse direkt in die erste Jetkammer gebaut und auf den Skimmer ausgerichtet. In der zweiten Jetstufe befindet sich ein weiterer Skimmer. Diese Apertur ist mit $400\text{ }\mu\text{m}$ Öffnungs durchmesser größer als die Erste. Beide Skimmer sind aufeinander ausgerichtet. Der zweite Skimmer schält Teilchen mit zu großem transversalem Impuls ab und sorgt damit für eine bessere Fokussierung. Die folgenden vier Jetstufen sind jeweils über Aperturen mit 2mm Durchmesser voneinander getrennt. Wenn die Düse perfekt mit den Skimmern und Aperturen ausgerichtet ist, beträgt der Durchmesser des Jets in der Reaktionskammer etwa $1,2\text{ mm}$. Die Jetstufen 4-6 sind zusätzlich mit verstellbaren Schlitten ausgestattet, welche es erlauben den Strahl weiter in seiner räumlichen Ausdehnung zu beschneiden. Nachdem der Strahl die Reaktionskammer passiert hat wird er nach zwei weiteren differentiellen Pumpstufen im Jetdump abgepumpt. Die letzten zwei Pumpstufen verhindern das Zurückstreuen von Teilchen aus dem Jetdump.

4 Experiment

4.1 Messungen an FLASH

4.1.1 Alte Wasserdüse

Im Juni 2014 wurden von der Gruppe Moshammer am MPIK Heidelberg bereits Messungen mit Wasserclustern an FLASH in Hamburg durchgeführt. Der Aufbau der benutzten Wasserclusterquelle ist in Abbildung 4.1 zu sehen. Diese Quelle ist dafür ausgelegt Flüssigkeiten, als auch Feststoffe wie Iod im Reservoir 4 zu verdampfen und mit einem Trägergas aus Reservoir 1 in das Reaktionsmikroskop zu führen. Bei den Experimenten mit Wasser wurde ohne Trägergas gearbeitet. Das Wasser wurde im beheizbaren Reservoir 4 auf 100 °C erhitzt und der entstehende Wasserdampf in der ersten Jetstufe durch eine Düse ins Vakuum expandiert.

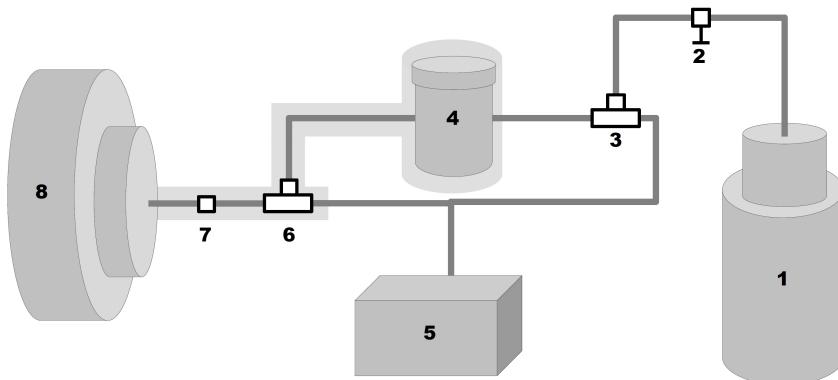


Abbildung 4.1: Schematische Darstellung der Quelle. 1: Reservoir des Trägergases. 2: Druckminderer. 3 und 6: Dreiegehähne. 4: Reservoir zur Verdampfung von Feststoffen. 5: Pumpe zum Spülen von Feststoffreservoir und Trägergaszuleitung. 7: Filter. 8: Erste Jetstufe des REMI. Die Komponenten 4,6,7 und deren Zu-leitung sind mit Heizband umwickelt (grau angedeutet).

4 Experiment

Zur Analyse der gemessenen Daten ist ein speziell auf Reaktionsmikroskope angepasster Analysecode in das Programm Go4 (GSI Object Oriented On-line Off-line system) eingebettet. **Die Flugzeitspektren und Detektorbilder in diesem Kapitel zeigen die Messdaten vom Juni 2014. Beschreiben was die nächsten Kapitel beinhalten**

4.1.2 Flugzeitspektren

Flugzeitspektren (TOF-Spektren¹) trennen die Häufigkeit detekterter Ionen gegen ihre Flugzeit im Spektrometer auf. Die Flugzeit eines geladenen Teilchens mit Masse m und Ladung Q ist abhängig von der Spektrometerlänge L_S und der angelegten Spannung U .

$$L_S = \frac{1}{2}at^2 \quad \rightarrow \quad t = \sqrt{\frac{2L_S}{a}}, \quad (4.1)$$

wobei die Beschleunigung im elektrischen Feld gegeben ist durch

$$F = m \cdot a = \frac{QU}{L_S} \quad (4.2)$$

Setzt man a in Gleichung 4.1 ein erhält man für die Flugzeit den Zusammenhang

$$t = L_S \sqrt{\frac{2m}{QU}} \sim \sqrt{\frac{m}{Q}}. \quad (4.3)$$

Die Flugzeit der Ionen ist proportional zu der Wurzel aus dem Verhältnis von Masse zu Ladung. Kann ein markanter Peak aus dem Spektrum einem Ion zugeordnet werden, so ist aufgrund der Proportionalität in Gleichung 4.3 die Berechnung der Flugzeiten unbekannter Peaks unter experimentellen Bedingungen möglich.

¹Häufig wird die ans Englische angelehnte Abkürzung **Time-Of-Flight-Spektrum** benutzt

4.1 Messungen an FLASH

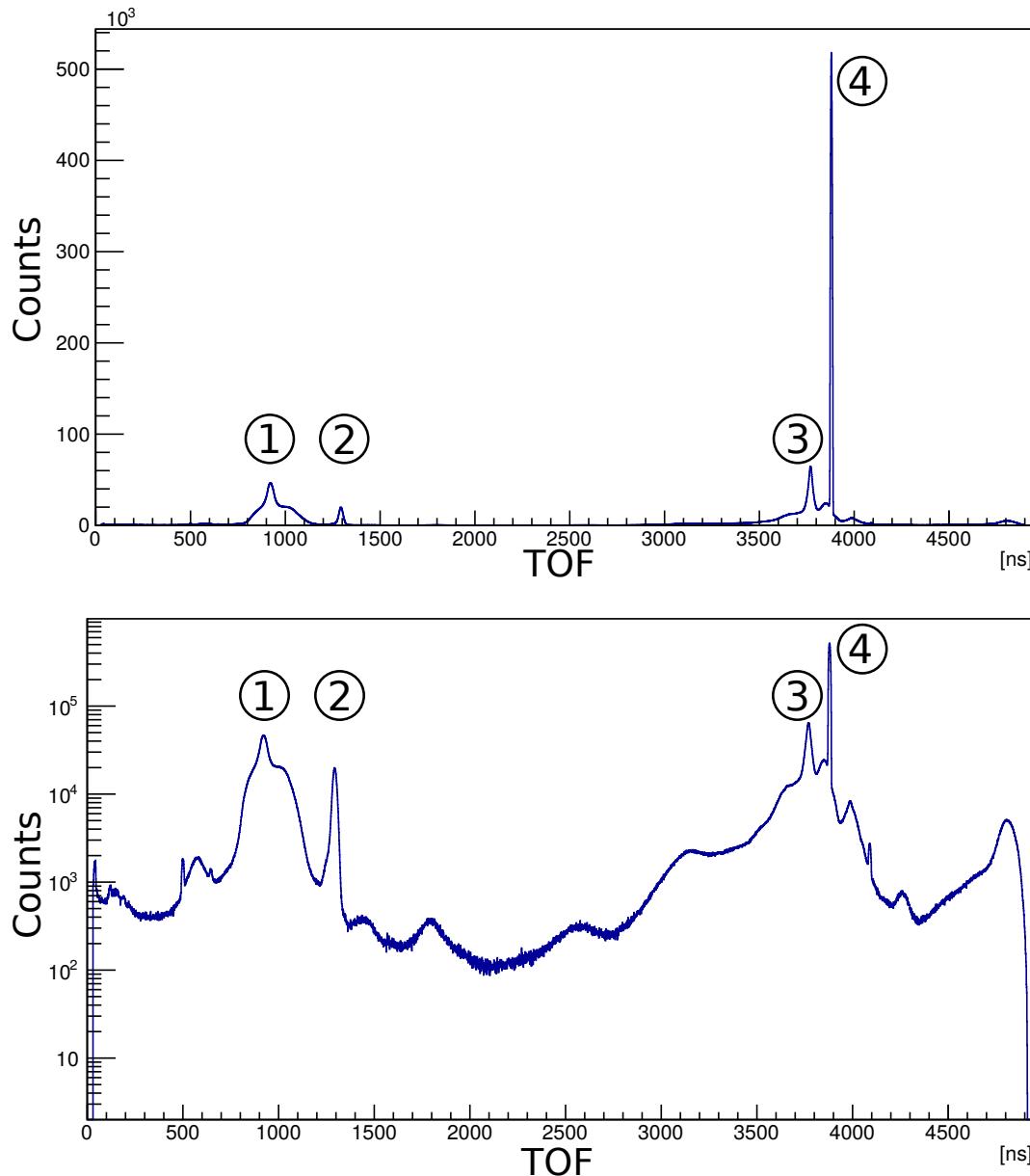


Abbildung 4.2: Häufigkeiten der gemessenen Flugzeiten mit einem Wasserjet in linearer (oben) und logarithmischer (unten) Darstellung. In der logarithmischen Darstellung sind auch schwache Peaks gut zu erkennen. Der dominierende Peak 4 wurde Wasser (H_2O^+) mit $m = 18$ u zugeordnet. Daraus folgt: Peak 3: OH^+ , Peak 2: H_2^+ , Peak 1: H^+ .

4 Experiment

Durch Auswertung des Flugzeitspektrums kann man also genau untersuchen, welche Teilchen sich im **Reaktionsvolumen** befinden. Betrachtet man das Spektrum aller detektierten Ionen, kann man zwischen scharfen Peaks aus dem Gasjet und einem breiten Untergrund von Restgasionen unterscheiden. Ionen die aus dem Gasjet entstehen haben aufgrund der Überschallexpansion eine geringe Temperatur und damit eine schmale Geschwindigkeitsverteilung (siehe Kapitel 2.2.2). Ionisiert der FEL² Restgas in der Spektrometerkammer, weisen die Restgasionen breitere Peaks im Spektrum auf, da diese sich auf Raumtemperatur befinden und somit eine breite Geschwindigkeitsverteilung besitzen. In Abbildung 4.2 kann man in linearer Darstellung vier deutliche Peaks erkennen. In logarithmischer Darstellung erkennt man neben den vier markanten Peaks noch viele breite und schwach ausgeprägte Peaks im Untergrund. Diese werden hauptsächlich von Restgasatomen verursacht.

4.1.3 Ortsbild

Trägt man alle Auftrefforte der detektierten Ionen in einem zweidimensionalen Histogramm auf (siehe Abbildung 4.3), erkennt man deutlich die Spur des FELs. Alle Teilchen aus dem Gasjet haben näherungsweise die gleiche Geschwindigkeit. Werden diese Teilchen am Laserfokuspunkt im Zentrum des Diagramms ionisiert treffen sie aufgrund ihrer gerichteten Anfangsgeschwindigkeit mit einem Offset in Jet-Richtung (hier negative x-Richtung) auf den Detektor.

²Freie Elektronen Laser

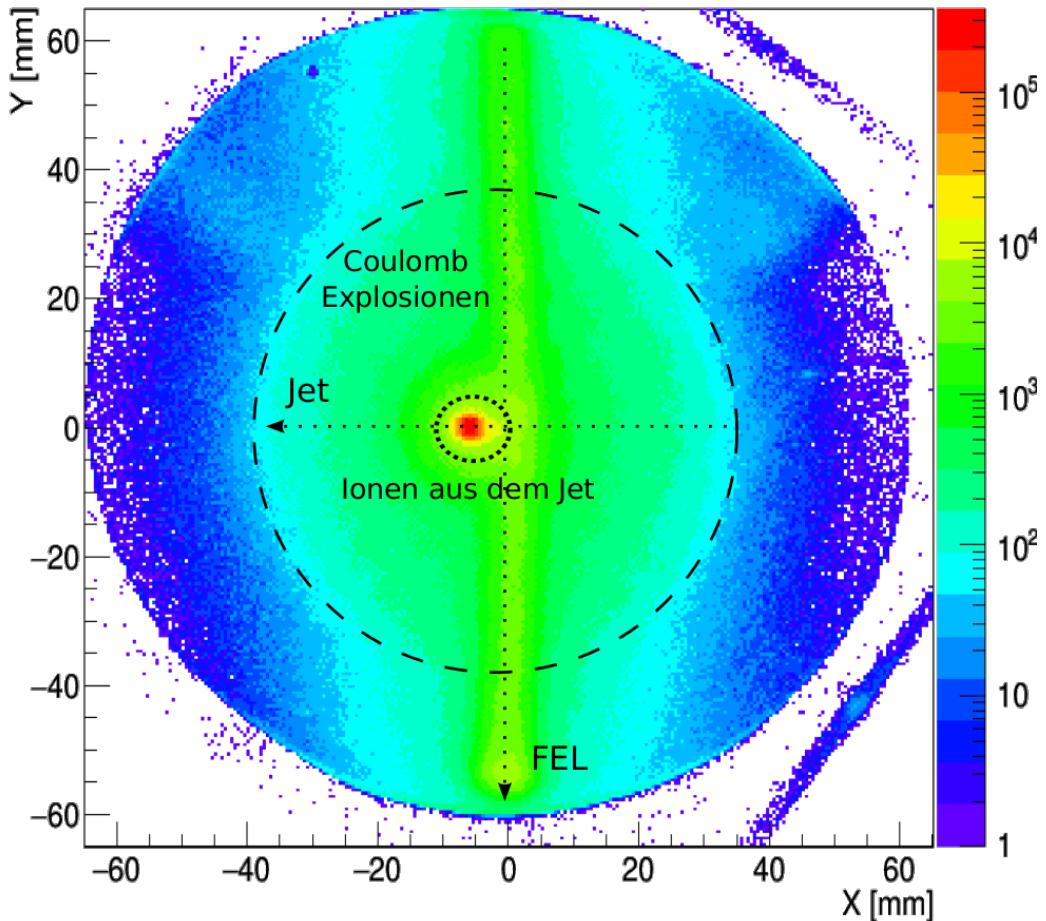


Abbildung 4.3: Detektorbild aus einer Messung mit H₂O. Die vertikale Linie in y-Richtung stammt **von dem vom FEL ionisierten Restgas**. Die hohen Zählraten in dem gepunktet markierten Bereich sind auf Ionen aus dem Düsenstrahl zurückzuführen. Moleküle die durch eine Coulomb Explosion in zwei geladene Ionen dissoziieren erhalten dabei große Impulse in alle Raumrichtungen. Aus diesem Grund sind sie innerhalb des gestrichelten Kreises auf dem Detektor verteilt.

Ich könnte aus dem Offset die Jetgeschwindigkeit berechnen, sofern Fokuspunkt wirklich im Zentrum des Detektors ist

4 Experiment

4.1.4 Auswertung

Untersucht man das Flugzeitspektrum aus dem Bereich der Jet-Ionen (siehe Abbildung 4.4), kann man nachvollziehen welche Ionen aus dem Teilchenstrahl entstehen. Um dabei den Untergrund von Messwerten zu trennen setzt man die Ortsbedingung der Analyse auf einen Ort an dem ähnlicher Untergrund herrscht.

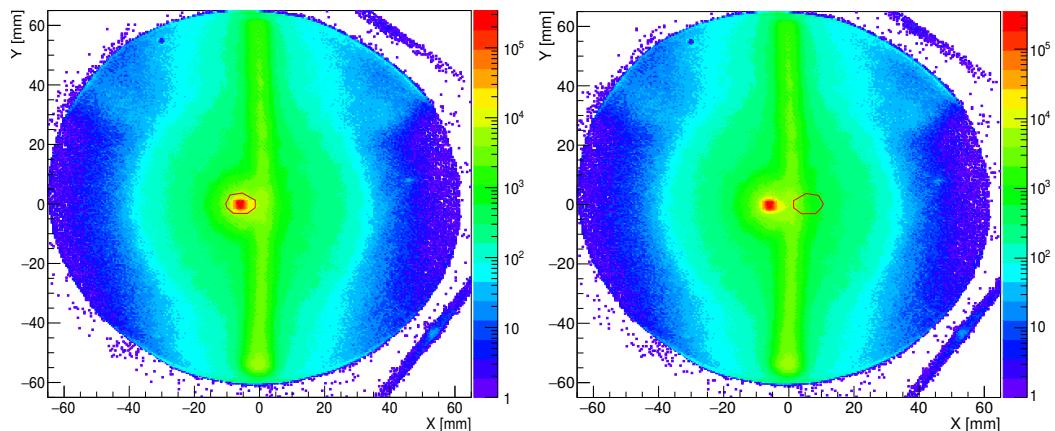


Abbildung 4.4: Zur Untersuchung der Ionen aus dem Jet wurden nur Zählraten innerhalb der linken Ortsbedingung berücksichtigt. Der Untergrund wurde aus der rechten Ortsbedingung ermittelt.

4.2 Testmessungen der neuen Wasserdüse

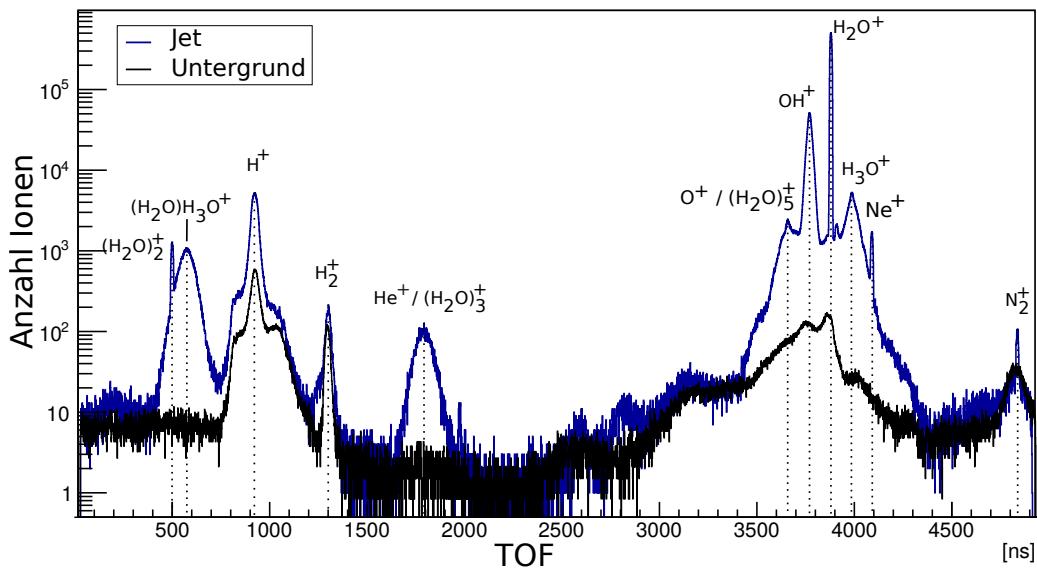


Abbildung 4.5: Flugzeitspektrum der Ionen aus dem Jet. Die eingetragenen Ionen wurden relativ zum dominierenden Wasserpeak bestimmt.

Nähert man die Peaks mit einer Gaußkurve und integriert über diese, erhält man die **Zählraten** der einzelnen Maxima. Ist das Gesamtintegral des TOF-Spektrums bekannt, kann man daraus die Anteile der verschiedenen Ionen an der Gesamtverteilung berechnen (siehe Tabelle 4.1).

Kurz auf Tabelle eingehen.. alles wie erwartet. Dominante Ionen sind aus O und H gebaut, kommen also wahrsch von Wasser. Dann Kurve zur neuen Düse kriegen. Wie man an der Zusammensetzung des Spektrums erkennen kann, ist die Wasserdimerausbeute bei diesem Experiment mit 0,21 % sehr gering. Diese Wasserclusterquelle ist somit ungeeignet für die geplanten Experimente mit Wasser (siehe Kapitel 1)

4.2 Testmessungen der neuen Wasserdüse

Im Kapitel 2.2 wurden die physikalischen Grundlagen zusammengefasst, die nun verwendet werden, um die in Kapitel 3.1 behandelte Cluster-Quelle aufzubauen. Bevor die Jetdüse für erste Tests in Betrieb genommen werden kann, müssen Heizdrahtwicklungen und Thermofühler angebracht werden. Die Stromleitungen der Thermofühler, Heizdrähte und der

4 Experiment

<i>TOF</i> [ns]	σ <i>TOF</i> [ns]	Ion	Masse <i>m</i> [u]	Integral	Anteil [%]
		Untergrund		1129882	12,27
4836	7	N_2^+	28	1656	0,02
1300	18	H_2^+	2	10608	0,07
1792	46	$\text{He}^+ / (\text{H}_2\text{O})_3^+?$	4 / 55	11079	0,12
500	7	$(\text{H}_2\text{O})_2^+$	36	19545	0,21
575	49	$(\text{H}_2\text{O})\text{H}_3\text{O}^+$	37	108612	1,12
923	20	H^+	1	314055	2,37
3988	20	$(\text{H}_3\text{O})^+$	19	206706	2,40
3770	15	$(\text{OH})^+$	17	1547230	16,95
3880	4	$(\text{H}_2\text{O})^+$	18	5784400	61,49
Gesamteinträge:					9205120

Tabelle 4.1: Auswertung der Ionenanteile aus Abbildung 4.5. Die Zeile „Untergrund“ fasst schwach ausgeprägte und/oder sehr breite Peaks (N^+ , O^+ , O_2^+ etc.) zusammen. Wie gehe ich hier mit sichtbaren Peaks um, die ich nicht zuordnen kann? Soll ich erwähnen, dass ich für die meisten der nicht genannten Peaks kein sinnvolles Ion gefunden habe? Kann Helium größeren Anteil als H_2 haben? Wassertrimere haben eigentlich $m=54\text{u}$ und sollten eine scharfe Verteilung haben! Kann noch erklären wieso bei einem Peak zwei Ionen in Frage kommen.

4.2 Testmessungen der neuen Wasserdüse

Heizpatrone werden durch mehrpolige Durchführungen im Manipulatorflansch, aus dem Vakuum nach Außen übersetzt.

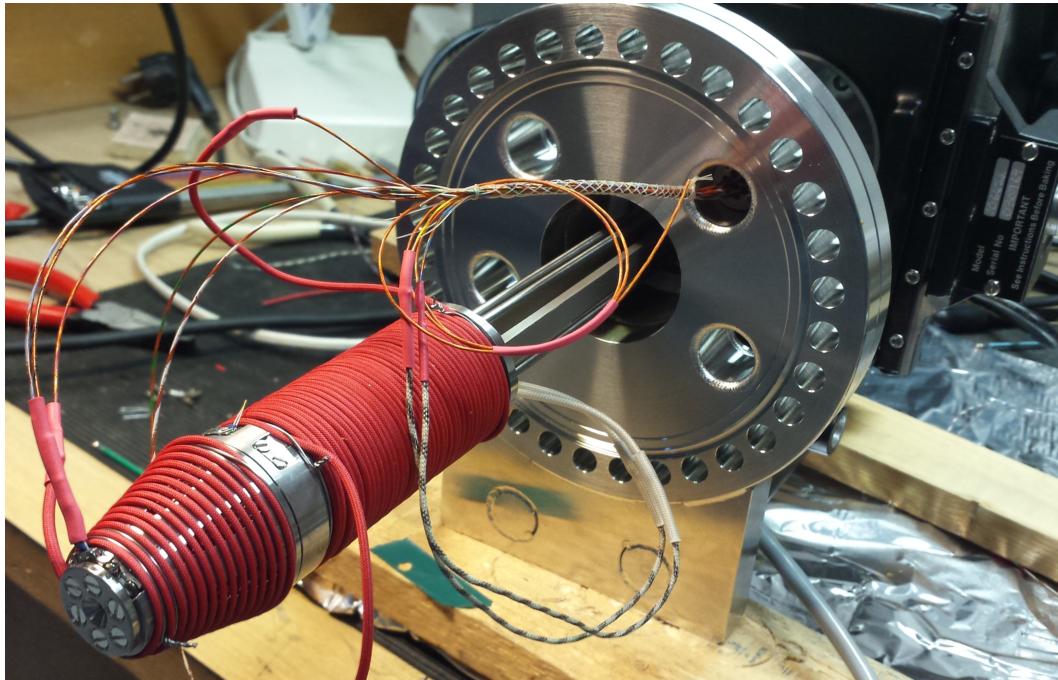


Abbildung 4.6: Einsatzbereite Jetdüse **im** Manipulator. An Spitze und Reservoir sind Heizdrahtwicklungen in roter Material-Isolierung zu erkennen.

4.2.1 Ausrichtung der Jetdüse

Der experimentelle Aufbau, in dem die Jetdüse getestet wird besitzt insgesamt acht Druckstufen (siehe Abbildung 3.9). In der ersten Jetstufe kann der Abstand in Austrittsrichtung (Z) und die Lage (X,Y) zwischen Düse und Skimmer, durch einen Manipulator während des Betriebes von außen verändert werden. Der Manipulator hat 50 mm Hub in Z-Richtung und Zunächst wird die Düse mit 2 bar Argon betrieben, da dieses unkomplizierter zu handhaben ist als Wasser und weniger Gefahr für die Turbomolekularpumpen am Aufbau darstellt.

Für optimale **experimentelle Bedingungen** wird der Kernstrahl der Expansion mit dem Skimmer extrahiert. Da sich der Jetdump in der Verlängerung der Symmetriearchse des Skimmers befindet, kann man an dem dort gemessenen Druck feststellen, wie gut der Gasstrahl den Teststand durchquert. Sobald

4 Experiment

der Druck im Jetdump ein Maximum erreicht ist die optimale Einstellung für die Position der Düse gefunden. Zunächst ist zu beachten, dass ein kalter Teilchenstrahl vor der Machscheibe, also in der zone of silence entnommen werden muss. Bei einem Argondruck von $p_0 = 2$ bar stellt sich in der ersten Jetstufe ein Hintergrunddruck von $p_b = 3,7 \cdot 10^{-3}$ mbar ein. Nach Formel 2.7 beträgt die Entfernung x_m zwischen Machscheibe und der Düse, je nach verwendetem Düsendurchmesser

$$\frac{x_m}{d} = 0,67 \sqrt{\left(\frac{p_0}{p_b}\right)} = 0,67 \sqrt{\left(\frac{2000 \text{ mbar}}{3,7 \cdot 10^{-3} \text{ mbar}}\right)}$$

$$\implies x_m = \begin{cases} 0,0246 \text{ m für } d = 50 \mu\text{m} \\ 0,146 \text{ m für } d = 30 \mu\text{m} \end{cases} \quad (4.4)$$

Solange die Z-Einstellung am Manipulator x_m unterschreitet, richtet sich die genaue Position nach der gewünschten Strahlintensität in der Hauptkammer. Es ist allerdings günstig die Expansion so lange nicht mit Kanten zu stören, wie noch eine Kühlung der Moleküle durch Stöße erfolgt. Wie man in Abbildung **ref** sehen kann, nehmen die Drücke in den einzelnen Druckstufen antiproportional zu Z zu.

4.2 Testmessungen der neuen Wasserdüse

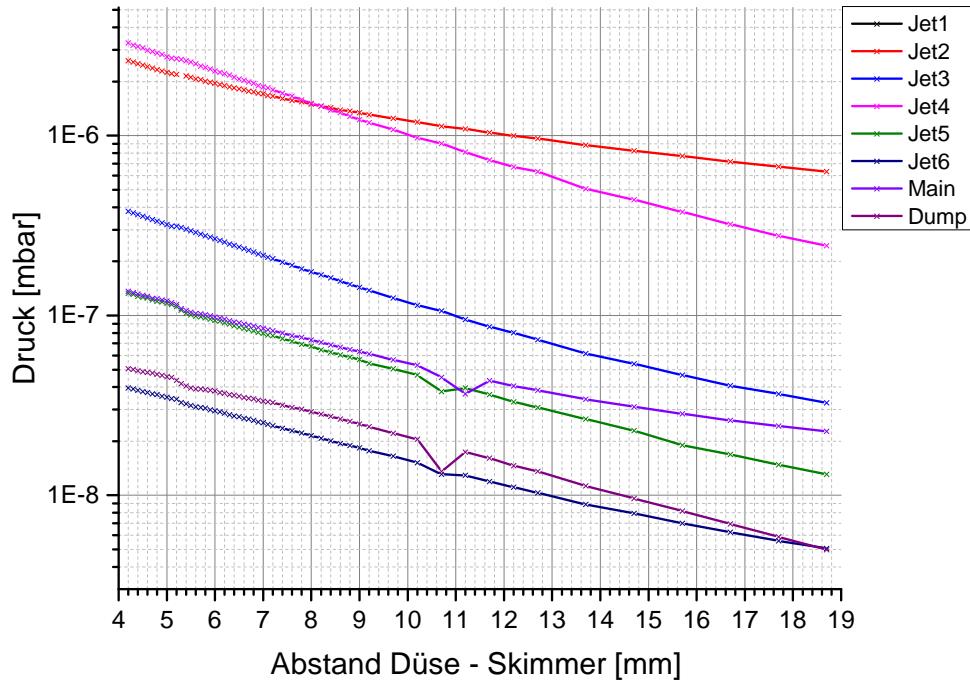


Abbildung 4.7: Der Graph zeigt den Druckverlauf am Dump in Abhängigkeit der Düsenposition in X- und Y-Richtung bei einem festen Abstand zum Skimmer von 15,2 mm. Die Nullposition wurde am Maximum ausgerichtet. Um die Symmetrie zu verdeutlichen wurde eine Lorentzkurve an die Messpunkte gefittet.

Setzt man die Düse auf eine feste Z-Position, hier 15,2 mm vor dem Skimmer bei einer Düsenöffnung von 50 µm, kann man die Druckverläufe am Dump für Düsenpositionen neben der Achse vermessen (siehe 4.8).

4 Experiment

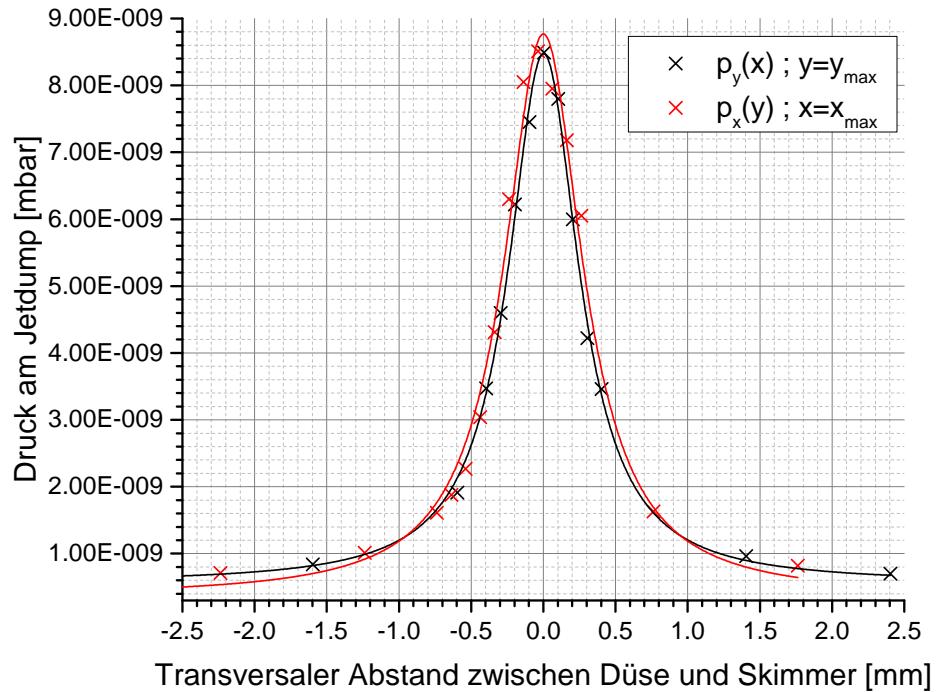


Abbildung 4.8: Der Graph zeigt den Druckverlauf am Dump in Abhängigkeit der Düsenposition in X- und Y-Richtung bei einem festen Abstand zum Skimmer von 15,2 mm. Die Nullposition wurde am Maximum ausgerichtet. Um die Symmetrie zu verdeutlichen wurde eine Lorentzkurve an die Messpunkte gefittet.

4.2.2 Heiztest

Die neue Jetdüse muss zur Wasserclusterproduktion mit stabilen Temperaturen betrieben werden können. Um ein Maß für die benötigen Zeitskalen beim Heizen und Abkühlen zu erhalten wurde die Düse ohne **Gaslast** beheizt und dabei der Temperaturverlauf an Spitze und Reservoir aufgezeichnet (siehe Abbildung 4.9) neu formulieren.

4.2 Testmessungen der neuen Wasserdüse

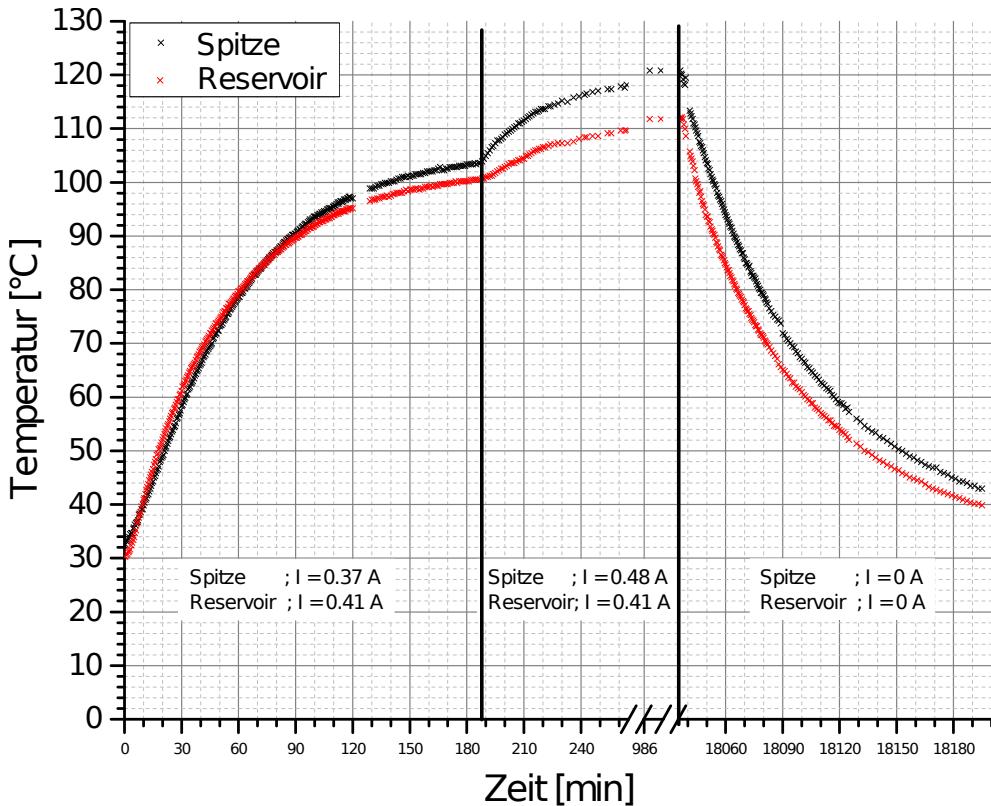


Abbildung 4.9: Der Graph zeigt den Temperaturverlauf an Spitze und Reservoir der Jetdüse zu definierten Heizströmen. Im ersten Abschnitt des Graphs wurde der Temperaturverlauf bei gleichen Heizströmen untersucht. Der zweite Abschnitt zeigt die Entwicklung der Temperatur bei gleichem Heizstrom am Reservoir, aber höherem Heizstrom an der Düse. Die Plateautemperatur beträgt bei dieser Konfiguration 121 °C an der Spitze und 112 °C am Reservoir (**erwähnen dass das sinnvolle Temperaturen für Wasserbetrieb sind?**). Der dritte Abschnitt löst die Abkühlung der Düse auf.

Der Heiz- und Abkühlvorgang wird gut durch beschränktes Wachstum beschrieben. Bei beiden Vorgängen ist nach drei Stunden etwa **90 % der End-**

4 Experiment

temperatur erreicht. Bei Heizbetrieb stellt sich ein Plateau ein, sobald sich die zugeführte Wärme der Heizwicklung und die abgestrahlte Wärme der Jetdüse im Gleichgewicht befinden. Bis dieser Zustand eintritt dauert es mehrere Stunden, da die Düse aus Edelstahl 1.4301 besteht. Dieses gehört mit einem niedrigen Wärmeleitkoeffizienten von $\alpha = 15 \frac{\text{W}}{\text{m}\cdot\text{K}}$ zu den am schlechtesten wärmeleitenden Metallen. Um die Wartezeit zu beschleunigen müssen die Heizströme reguliert werden. Heizt man mit einem Strom von $I = 0,8 \text{ A}$ an beiden Komponenten, misst man bereits nach 15 Minuten $100 \text{ }^{\circ}\text{C}$ am Reservoir und $90 \text{ }^{\circ}\text{C}$ an der Spitze. Wechselt man nun auf niedrigere Heizströme von $I_{\text{Spitze}} = 0,45 \text{ A}$ und $I_{\text{Reservoir}} = 0,41 \text{ A}$ erreicht man in innerhalb einer Stunde über 98 % der Plateautemperatur aus Abbildung 4.9. (**klingt ganz cool aber ist auf nur 2 Messungen mit genau diesen Parametern bezogen**)

5 Zusammenfassung

Das wesentliche Ziel dieser Arbeit war die Konstruktion einer beheizbaren Clusterquelle für Flüssigkeiten. Die Quelle wird im Rahmen von Experimenten mit Wasserdimeren an FLASH in Hamburg benötigt.

Die vorliegende Arbeit ist in drei Teile gegliedert.

In einem einführendem Kapitel sind die Grundlagen der Entstehung von Clustern in einer Überschallexpansion dargestellt. Darüberhinaus wurde in diesem Kapitel das Reaktionsmikroskop vorgestellt, das zur Analyse der Experimente mit Wasserdimeren verwendet wird. Dabei wurden Aufbau und Funktionsweise der wichtigsten Komponenten des Reaktionsmikroskopes, sowie die physikalischen Zusammenhänge der Clusterbildung ausführlich behandelt.

Das zweite Kapitel begleitet den Leser von der Expansion von Gas ins Vakuum bis zur Entstehung eines experimentell nutzbaren kalten Teilchenstroms (?) Das zweite Kapitel erläutert die technische Umsetzung der theoretischen Grundlagen in ein tatsächliches Experiment. In diesem Zusammenhang wird die neu **entwickelte** Cluster-Quelle in Hinsicht der an sie gestellten Anforderungen und Möglichkeiten **präsentiert/eingehend besprochen**. Weiterhin werden die technischen Komponenten des experimentellen Ausbaus erläutert, die notwendig sind um einen kalten Targetjet (zu erzeugen/ in der Reaktionskammer zu erhalten/ zu leiten).

Das letzte Kapitel befasst sich mit Ergebnissen aus früheren Experimenten mit Wasserclustern an FLASH in Hamburg und der Inbetriebnahme der neu entwickelten Cluster-Quelle. Im ersten Teil des Kapitels wurden die experimentellen Daten in Form von Flugzeitspektren und Ortbildern dargestellt. Die Analyse der Flugzeitspektren ergab, wie zu erwarten, eine deutliche Dominanz von Wasserionen. Relativ zur Flugzeit der Wasserionen, konnten alle relevanten Peaks aus dem Spektrum Ionen zugeordnet werden. Der Anteil der erzeugten Wasserdimere beschränkte sich hierbei auf 0,21 % der aus dem Jet entstandenen Ionen. Der zweite Teil des Kapitels veranschaulicht die Vorbereitungen auf den experimentellen Einsatz der Cluster-Quelle. **Auswirkungen der (Positionierung der Düse zum Skimmer/ der Lage von Düse zu Skimmer)**

5 Zusammenfassung

auf die Strahlqualität werden quantitativ untersucht. Zusätzlich wurde eine Charakterisierung der Quelle in Hinsicht auf ihr Heizverhalten durchgeführt. Dabei stellte sich heraus, dass bei konstanter Heizleistung nach drei Stunden 90 % der Betriebstemperatur erreicht werden. Beginnt man jedoch mit hoher Heizleistung und reguliert diese nach erreichen einer Schwelltemperatur nach unten, kann nach weniger als 60 Minuten 98 % der Zieltemperatur erreicht werden. Das Abkühlen der Quelle von Betriebstemperatur kann nicht beschleunigt werden. Diese verhält sich gleich wie das Heizen mit konstanter Leistung, sodass nach drei Stunden 90 % der Temperaturdifferenz zur Raumtemperatur überwunden wurden.

Für den Einsatz der neuen Clusterquelle an FLASH gilt es den Heizvorgang weiter zu optimieren und das Verhalten der Quelle im Einsatz mit Wasser zu untersuchen.

6 Anhang

Hier alle Konstruktionszeichnungen und Bilder der Düse

Literaturverzeichnis

- [Bar07] Silko Barth. *Untersuchung des interatomaren Coulomb-Zerfalls in schwach gebundenen Systemen*. PhD thesis, 2007.
- [BMP88] Giorgio Benedek, Thomas Patrick Martin, and Gianfranco Pacchioni. *Elemental and molecular clusters*. Springer-Verlag Berlin, 1988.
- [BS22] L. Bergmann and C. Schaefer. *Vielteilchensysteme*. Walter de Gruyter (Berlin, 1922).
- [BSSB02] C Bobbert, S Schütte, C Steinbach, and U Buck. Fragmentation and reliable size distributions of large ammonia and water clusters. *The European Physical Journal D-Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics*, 19(2):183–192, 2002.
- [DFF⁺05] Thomas Dorfmüller, Manfred Faubel, Peter Fischer, Helmut Grubmüller, Hellmut Haberland, Gerd Hauck, Gerd Heppke, Siegfried Hess, Karl Kleinermanns, Martin Kröger, et al. *Gase, Nanosysteme, Flüssigkeiten*. Walter de Gruyter, 2005.
- [Fec14] Lutz Fechner. *High resolution experiments on strong-field ionization of atoms and molecules*. PhD thesis, Heidelberg, Univ., Diss., 2014, 2014. Mit Zsfassungen in dt. und engl. Sprache.
- [Gen08] Stephan General. Massenspektroskopische untersuchung von waserstoffclustern am münsteraner cluster-jet-target, 2008.
- [GKKC14] Kirill Gokhberg, Přemysl Kolorenč, Alexander I Kuleff, and Lorenz S Cederbaum. Site-and energy-selective slow-electron production through intermolecular coulombic decay. *Nature*, 505(7485):661–663, 2014.
- [Hag81] Otto F Hagena. Nucleation and growth of clusters in expanding nozzle flows. *Surface Science*, 106(1):101–116, 1981.

Literaturverzeichnis

- [Hag87] Otto F Hagena. Condensation in free jets: Comparison of rare gases and metals. *Zeitschrift für Physik D Atoms, Molecules and Clusters*, 4(3):291–299, 1987.
- [HO72] OF Hagena and W Obert. Cluster formation in expanding supersonic jets: effect of pressure, temperature, nozzle size, and test gas. *The Journal of Chemical Physics*, 56(5):1793–1802, 1972.
- [HS11] I.V. Hertel and C.P. Schulz. *Atome, Moleküle Und Optische Physik 2: Moleküle Und Photonen- Spektroskopie Und Streuphysik*. Springer-Lehrbuch. Springer-Verlag GmbH, 2011.
- [Jor84] Joshua Jortner. Level structure and dynamics of clusters. *Berichte der Bunsengesellschaft für physikalische Chemie*, 88(3):188–201, 1984.
- [Kur07] Moritz Kurka. Zwei-und drei-photonen doppelionisation von helium und neon am freie-elektronen-laser in hamburg, 2007.
- [LB07] Lawrence Lohr and S M Blinder. The weakest link: Bonding between helium atoms. *Journal of Chemical Education*, 84(5):860, 2007.
- [LMK⁺93] Fei Luo, George C. McBane, Geunsik Kim, Clayton F. Giese, and W. Ronald Gentry. The weakest bond: Experimental observation of helium dimer. *The Journal of Chemical Physics*, 98(4), 1993.
- [MGG⁺09] A. Moudens, R. Georges, M. Goubet, J. Makarewicz, S. E. Lokshtanov, and A. A. Vigasin. Direct absorption spectroscopy of water clusters formed in a continuous slit nozzle expansion. *The Journal of Chemical Physics*, 131(20), 2009.
- [Mül12] Walter Müller. Entwicklung, aufbau und test einer molekülstrahlapparatur zur ausrichtung von molekülen, 2012.
- [Mül13] Jan Philippe Müller. *Ultraschnelle Dynamik in dotierten und reinen Wasserclustern*. PhD thesis, Freie Universität Berlin, 2013.
- [SAS⁺] K. Schnorr, S. Augustin, G. Schmid, S. Meister, H. Lindenblatt, A. Rudenko, C.D. Schröter, T. Pfeifer, and R. Moshammer. Inter-molecular coulombic decay in mixed water–rare-gas clusters.

Literaturverzeichnis

- [SBBL88] Giacinto Scoles, Davide Bassi, Udo Buck, and Derek Lainé. *Atomic and molecular beam methods*, volume 1. Oxford university press New York, 1988.
- [Sch11] Georg Schmid. Charakterisierung eines iod-Überschallgasjets für ein reaktionsmikroskop am freie-elektronen-laser in hamburg, 2011.
- [Sch14] Kirsten Schnorr. *XUV pump-probe experiments on electron rearrangement and interatomic coulombic decay in diatomic molecules*. PhD thesis, Heidelberg, Univ., Diss., 2014, 2014. Mit Zsfassungen in dt. und engl. Sprache.
- [SSA⁺] K. Schnorr, G. Schmid, S. Augustin, A. Rudenko, D. Rolles, M. Kübel, C. Jendrzejewski, M.F. Kling, B. Erk, R. Boll, C.D. Schröter, T. Pfeifer, and R. Moshammer. On the dynamics of proton transfer through a hydrogen bond.
- [SW88] Stanley E Sobottka and Mark B Williams. Delay line readout of microchannel plates. *Nuclear Science, IEEE Transactions on*, 35(1):348–351, 1988.
- [UMD⁺03] Joachim Ullrich, Robert Moshammer, Alexander Dorn, Reinhard Dörner, L Ph H Schmidt, and H Schmidt-Böcking. Recoil-ion and electron momentum spectroscopy: reaction-microscopes. *Reports on Progress in Physics*, 66(9):1463, 2003.
- [WAS] Anomalien in wasser.

Eigenständigkeitserklärung

Ich versichere, dass ich diese Arbeit selbständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe.

Heidelberg den,

Viktor Adam