

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

This thesis deals with the design and the assembly of a new cluster source which is intended to produce water clusters that can be used as a target in a reaction microscope. The production of these clusters is based on thermodynamical supersonic expansion. Therefore, gas is expanded adiabatically from a region of high pressure ($p_R \approx 1$ bar) into a region of low pressure ($p_B \approx 10^{-6}$ bar). Besides the production of clusters, one gets an intrinsically cold gas target that is suited to do momentum spectroscopy with a reaction microscope. The new cluster source will allow to produce water dimers which are needed for experiments on the dynamics of proton transfer processes performed with the reaction microscope at the free-electron laser in Hamburg (FLASH).

Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Bachelorarbeit wurde eine neue Cluster-Quelle entwickelt und gebaut, die es ermöglicht Wassercluster zur Verwendung in einem Reaktionsmikroskop herzustellen. Die Erzeugung dieser Cluster beruht auf dem thermodynamischen Effekt der Überschallexpansion, bei dem Gas aus einem Reservoir hohen Drucks ($p_R \approx 1$ bar) durch eine kleine Öffnung in einen Bereich geringen Drucks ($p_B \approx 10^{-6}$ bar) adiabatisch expandiert wird. Des Weiteren erhält man hierdurch ein kaltes Gastarget, welches für Impulsspektroskopie mit einem Reaktionsmikroskop geeignet ist. Mit der neuen Cluster-Quelle wird es möglich sein Wasserdimere herzustellen, die für Untersuchungen der Dynamik von Protonentransferprozessen mit dem Reaktionsmikroskop am Freie-Elektronen-Laser in Hamburg (FLASH) benötigt werden.

Inhaltsverzeichnis

1 Motivation	9
2 Experimentelle Grundlagen	11
2.1 Reaktionsmikroskop	11
2.1.1 Spektrometer	11
2.1.2 Detektor	12
2.2 Cluster	15
2.2.1 Definition	15
2.2.2 Überschallexpansion	16
2.2.3 Clusterbildung	19
3 Technische Umsetzung	23
3.1 Design der Cluster-Quelle	23
3.2 Skimmer	27
3.3 Jetstufen	28
4 Experiment	31
4.1 Messungen an FLASH	31
4.1.1 Alte Wasserdüse	31
4.1.2 Flugzeitspektren	32
4.1.3 Ortsbild	34
4.1.4 Auswertung	35
4.2 Testmessungen der neuen Wasserdüse	37
4.2.1 Ausrichtung der Jetdüse	37
4.2.2 Heiztest	41
5 Zusammenfassung	43
Literaturverzeichnis	45

1 Motivation

Wasser ist auf der Erde ein allgegenwärtiges Molekül, das den Grundstein des Lebens darstellt. Obwohl es nur aus drei Atomen besteht, ein Sauerstoffatom und zwei Wasserstoffatome, ist es noch nicht vollständig verstanden. Um Effekte wie die zahlreichen Anomalien von Wasser [WAS] zu analysieren, ist es hilfreich nicht nur isolierte Moleküle in gasförmigen oder flüssigem 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 zur Fragmentation von Wasserclustern wurde beobachtet, dass sich häufig protonisierte Wassercluster bilden. Der kleinste Repräsentant davon ist das Oxoniumion (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 daher 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).



Ein Reaktionsmikroskop ist ein präzises Impulsspektrometer, das geeignet ist diese Reaktion vollständig kinematisch zu untersuchen. Schnorr *et al.* vom MPIK Heidelberg haben in einem aktuellen Proposal vorgeschlagen, dieses Experiment am Freie-Elektronen-Laser in Hamburg (FLASH) zeitaufgelöst durchzuführen. Die erwartete Dauer des Protonentransfers liegt bei einigen 10 fs. FLASH kann kurze extrem-ultraviolette (XUV) Pulse mit einer Pulsdauer in der selben Größenordnung erzeugen und mit einem XUV-XUV Pump-Probe-Experiment ist man in der Lage die Protonentransferdynamik aufzulösen.

1 Motivation

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

Das erste Kapitel befasst sich mit der Funktionsweise eines Reaktionsmikroskopes und der Entstehung von Clustern durch Überschallexpansion.

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, wie 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 Grundlagen

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 erklärt den Aufbau und das Funktionsprinzip der einzelnen Komponenten des REMs. Es folgt dabei den Darstellungen in den Doktorarbeiten von Schnorr [Sch14] und Fechner [Fec14].

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 auf einen zeit- und ortsauf lösenden Detektor. Da bei einer Ionisation Elektronen und Ionen aus dem gleichen Target stammen ist können alle Impulse über die Impulserhaltung bestimmt werden. 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 elektrischem Feld schlechter, weil dann die Flugzeiten und die Auftrefforte von verschiedenen Ionen zu ähnlich werden.

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

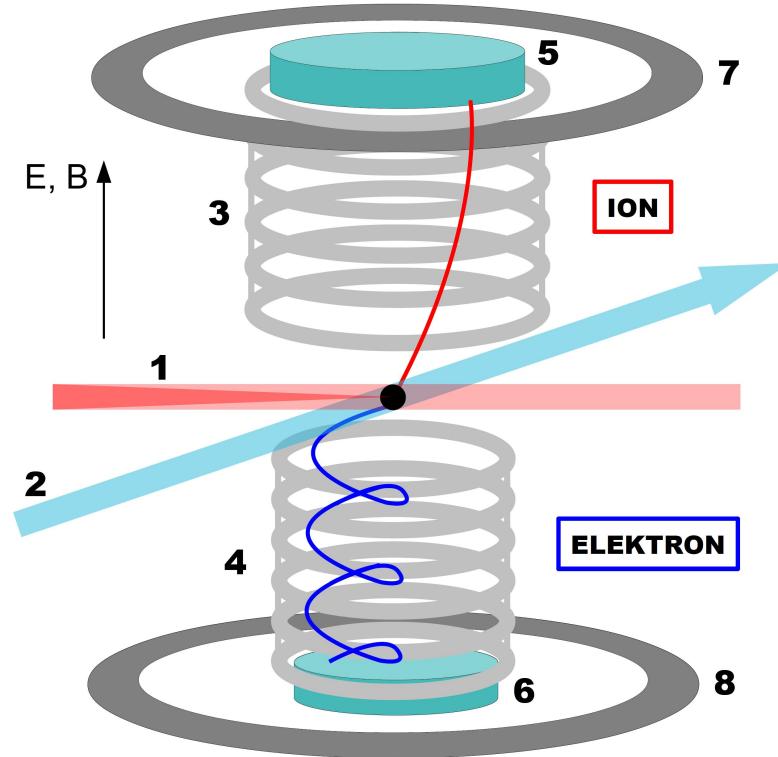


Abbildung 2.1: Schematischer Aufbau eines Reaktionsmikroskopes: 1: Fokussierter Laserstrahl. 2: Kalter Überschallgasjet. (Kap. 2.2.2) 3: Spektrometer Ionenseite. 4: Spektrometer Elektronenseite. (Kap. 2.1.1) 5: Ionendetektor. 6: Elektronendetektor (Kap. 2.1.2). 7 und 8: Helmholtz-Spulenpaar. [Sch11]

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.

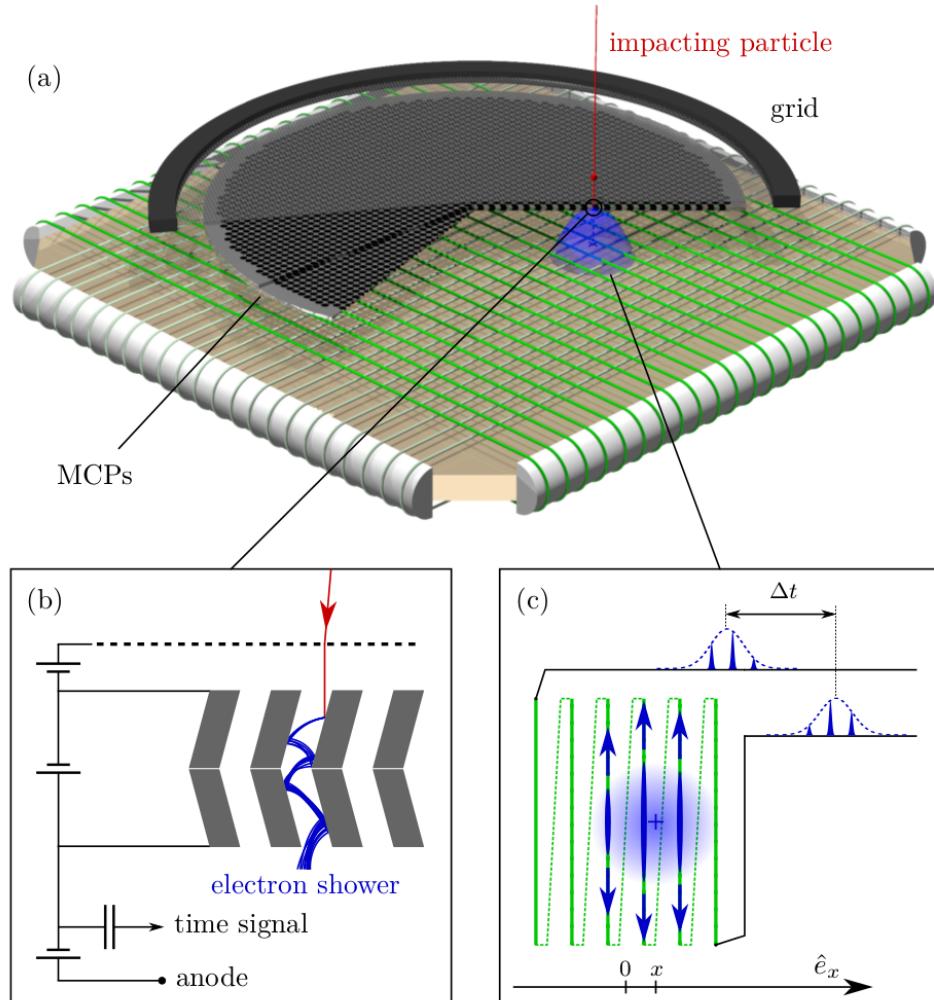
Micro-Channel Plate


Abbildung 2.2: a) Orts- und Zeitauf lösender Detektor eines Reaktionsmikroskopes.
 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]

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 der Kanäle sind mit einem geeigneten Halbleiter beschichtet, der die Austrittsarbeit von Elektronen verringert und damit die Effizienz erhöht. 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 Elektronenschauer aus dem MCP trifft auf die Delayline-Anode [SW88], während er 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 ist. 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 das Signal die gesamte Drahtlänge durchläuft, ist die Summe der beiden Zeitsignale an den Enden konstant. Mithilfe dieser Zeitsummenbedingung können auch mehrere Teilchen gleichzeitig ortsaufgelöst werden.

2.2 Cluster

Bei typischen Reaktionen liegen die Ionenimpulse in der Größenordnung einer atomaren Einheit, was Energien im meV-Bereich entspricht. Man verwendet deshalb einen kalten Targetstrahl, um die Auflösung der Reaktionsenergien im REMI zu ermöglichen. [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 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 Molekülphysik und der Festkörperphysik. Cluster können im Allgemeinen auf zwei Wege produziert werden. Einerseits können sie durch Abspaltung von größeren Agglomeraten gewonnen werden (z.B. Abspaltung durch Teilchenbeschuss), andererseits kann man sie aus ihren einzelnen Bestandteilen zusammensetzen (z.B. ultrakalte Stöße, Kondensation aus der Gasphase) [Bar07].

Bei kleinen Clustern lassen sich alle Eigenschaften anhand der Atom- und Molekülphysik beschreiben. Ähnlich wie bei Atomen 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 ähneln [Gen08]. Cluster können aus fast jeder Art von Atomen oder Molekülen erzeugt werden. Homogene Aggregate werden nach ihren Bindungstypen und mittleren Bindungsenergien (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 $BE \leq 0,3$ eV, die am schwächsten gebundenen Cluster. Die Dipol-Wechselwirkung erlaubt es Moleküle ohne permanentes Dipolmoment oder

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

Edelgase zu Clustern, wie z.B. He_n zu formen. Die Größe dieser Cluster bleibt wegen der schwachen Bindung meist bei $n < 10$. [Jor84]

Die Gruppe der moderat gebundenen Cluster enthält Molekülcluster und wasserstoffbrückengebundene Cluster. Die höhere Energie erlaubt typische Clustergrößen von $n \approx 100$. 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. [Jor84] 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. [Jor84]

Einen Übergang zwischen den moderat und den stark gebundenen Clustern stellen die metallischen Cluster dar. Diese bilden untereinander eine metallische Verbindung mit einem halvollen Band delokalizierter Bindungselektronen. Die mittlere Bindungsenergie beträgt hierbei $\text{BE} \approx 0,5 - 3 \text{ eV}$. [Jor84]

Zu den stark gebundenen Clustern zählen kovalente und ionische Cluster. Kovalente Cluster sind auch als konventionelle Moleküle bekannt. Durch Elektronenpaarbindungen werden mittlere Bindungsenergien von $\text{BE} \approx 1 - 4 \text{ eV}$ erreicht. Fullerene sind namhafte kovalente C_n -Cluster. [Jor84] Die Coulombwechselwirkung führt bei ionischen Clustern zu einer mittleren Bindungsenergie von $\text{BE} \approx 2 - 4 \text{ eV}$. Zu Vertretern dieser Cluster gehören $(\text{NaCl})_n$ und $(\text{CaF}_2)_n$. [Jor84]

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 aufgrund von Stößen untereinander der Translationsimpuls der Gaspartikel ausgerichtet. Die thermische 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

$1,013 \cdot 10^{-7} \text{ eV}$ ($\text{BE} \hat{=} 1,176 \text{ mK}$ [LB07]), die bisher schwächste bekannte Molekülbindung 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. Bei Gasgemischen muss man die, nach ihrem atomaren Anteil gewichteten, Mittelwerte $\bar{c}_{p,\text{mol}}$ 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 zu einer Machzahl $M > 1$ führt [SBBL88]. Das hat zur Folge, dass der Gasstrom zunächst unabhängig

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

von jeglichen externen Randbedingungen ist. Dieser Effekt führt 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.

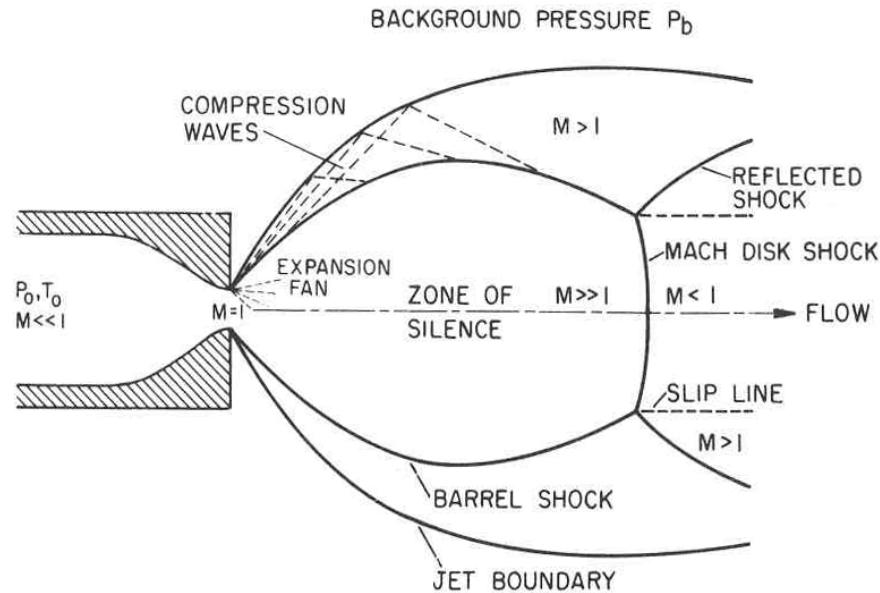


Abbildung 2.3: Übersicht der Überschallexpansion mit Schockwellenstruktur. [SBBL88]

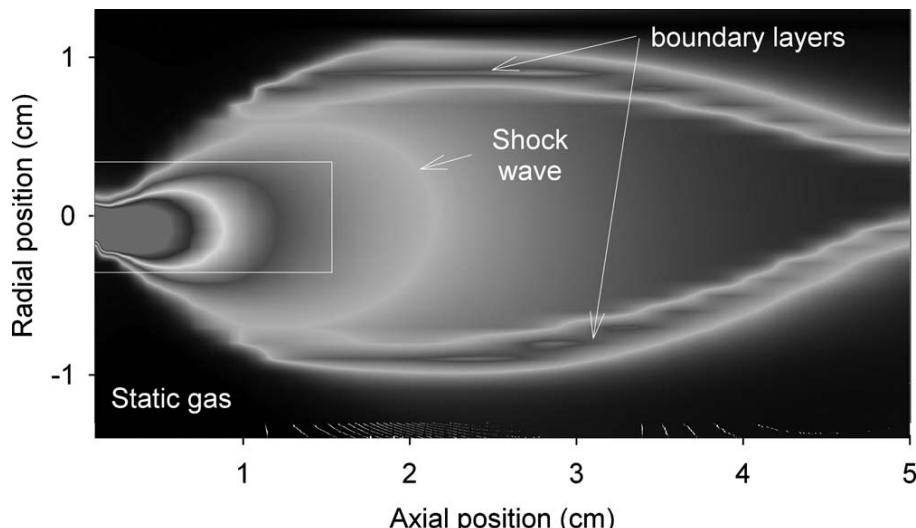


Abbildung 2.4: Druckverteilung bei einem Argon-Jet mit einer $20 \mu\text{m}$ breiten schlitzförmigen Düsenöffnung. Die gekennzeichnete Schockwelle in der Mitte begrenzt den isentropen Bereich, also die „zone of silence“. [MGG⁺09]

Bei der Überschallexpansion bilden sich mehrere dieser Schockwellen aus (siehe Abbildung 2.3). Schockwellen sind nichtisentropische Gebiete und zeichnen sich durch starke Dichte-, Temperatur- und Druckgradienten aus. Durch diese Eigenschaften kann man Schockwellen mit diversen Lichtstreutechniken sichtbar machen [MGG⁺09] (siehe Abbildung 2.4). 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 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

Die Clusterbildung durch Überschallexpansion wird in diesem Kapitel anhand des idealen Gases erläutert. Zusätzlich wird das Modell 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. Die Entstehung der Cluster 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 wirken 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 Beschreibung mittels der Kondensationstheorie erfolgt thermodynamisch. 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 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]

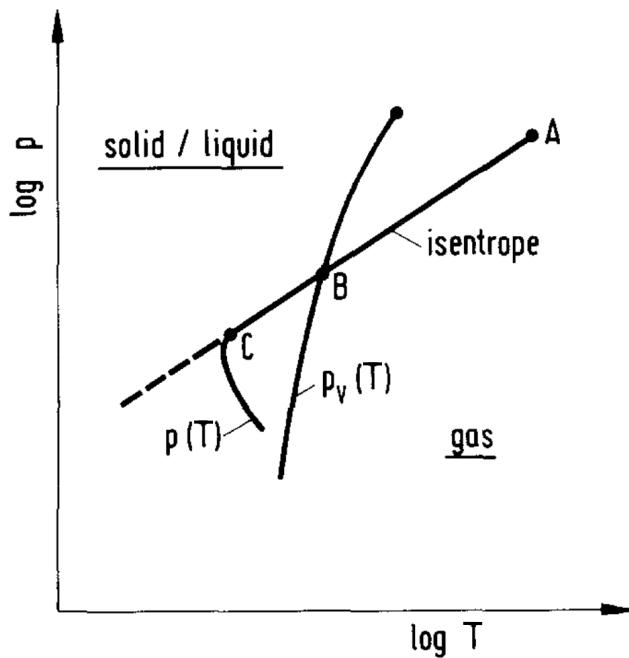


Abbildung 2.5: Schematisches p - T -Diagramm von idealem Gas bei der Überschallexpansion. $p(T)$ stellt die isentrope Expansionslinie und $p_v(T)$ die flache Dampfdrucklinie eines kondensierenden Gases dar. [Hag81]

Mittels der thermodynamischen Beschreibung leitete Hagena *et al.* in den 80er Jahren empirische Gleichungen her, welche die Messergebnisse zu Clustern 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. Um verschiedene typischen Düsenformen (siehe Abbildung 2.6) mit denselben Gleichungen behandeln zu können, wurde die „äquivalente 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 äquivalente Düsendurchmesser entspricht bei Lochdüsen der Düsenöffnung, $d_{eq} \equiv d$.

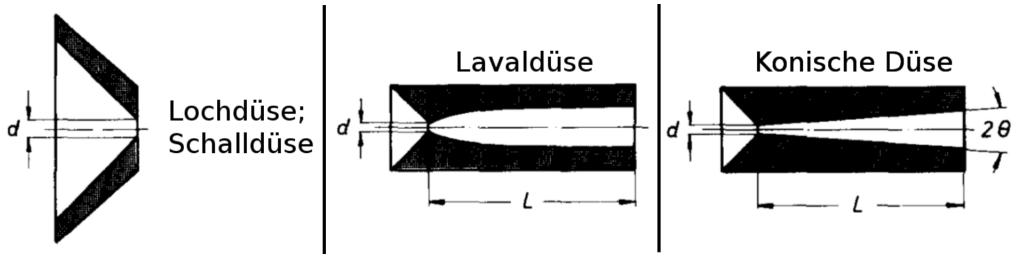


Abbildung 2.6: Typische bei der Überschallexpansion verwendete Düsen mit charakteristischen Größen. [HO72]

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 äquivalente Düsendurchmesser. 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 Festkörperfiedichte 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 $\langle N \rangle$.

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

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

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)

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

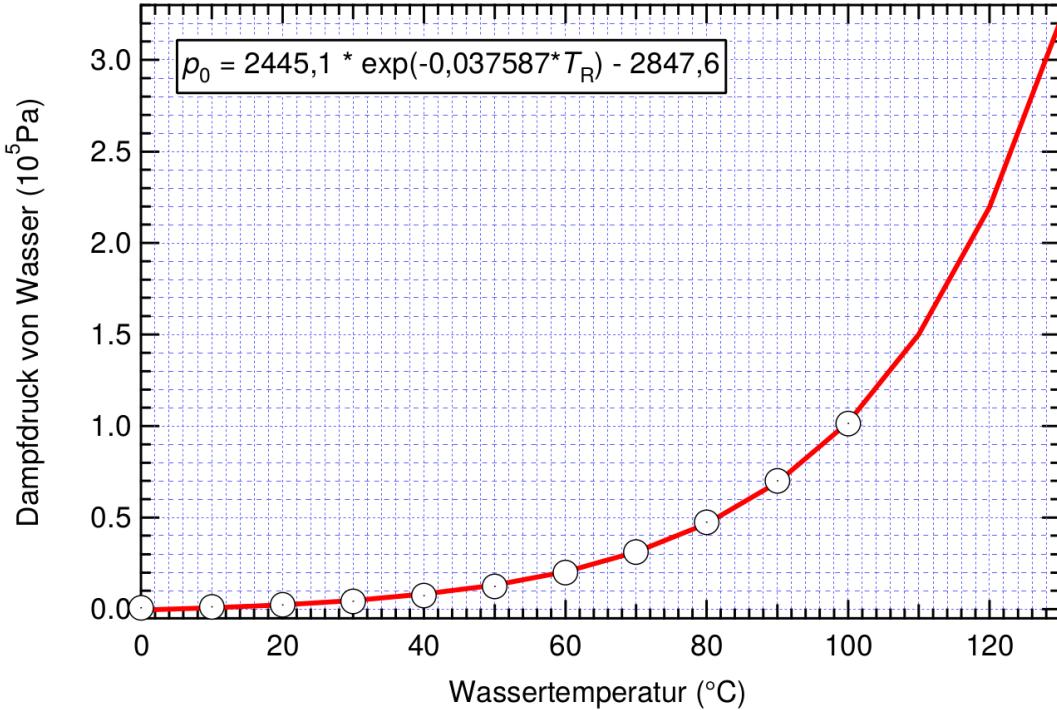


Abbildung 2.7: Dampfdruckkurve von Wasser in Abhängigkeit der Temperatur. [Dam]

Das Ziel dieser Arbeit ist es Wasserdimere herzustellen, folglich ist eine mittlere Clustergröße von $\langle N \rangle = 2$ gesucht. Gemäß Formel 2.13 erreicht man

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

3 Technische Umsetzung

3.1 Design der Cluster-Quelle

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.

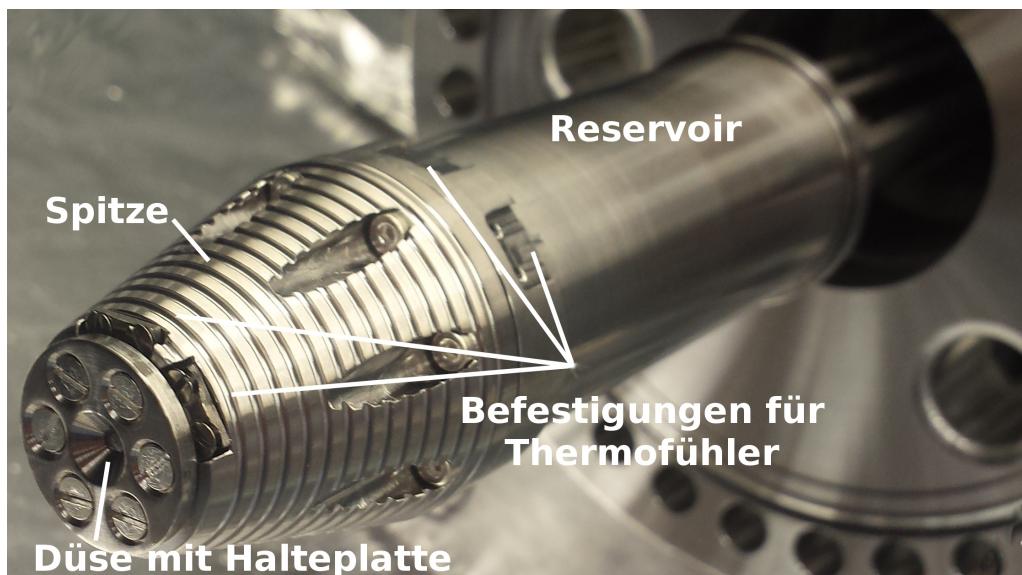


Abbildung 3.1: Foto der Cluster-Quelle für Flüssigkeiten. Die Heizdrahtwicklungen und Temperaturfühler sind nicht angebracht.

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

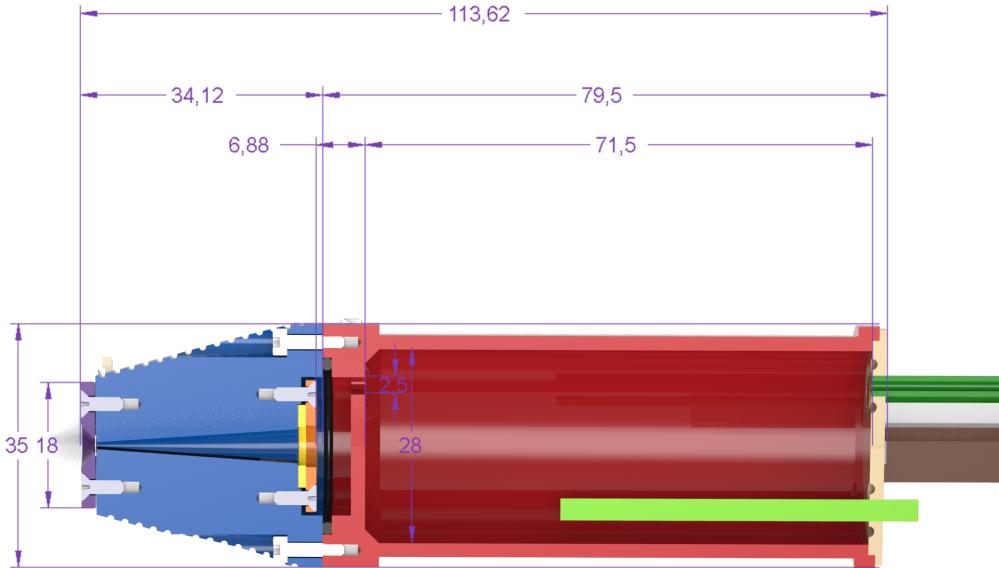


Abbildung 3.2: Querschnitt der Cluster-Quelle ohne Heizdraht und Thermofühler. Maße in mm. Die einzelnen Komponenten sind farbig hervorgehoben: lila: Düsenhalteplatte, blau: Spitze, gelb: Filter aus gesintertem Edelstahl, orange: Filterhalteplatte, schwarz: Viton O-Ring, rot: Reservoirkammer, hellgrün: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

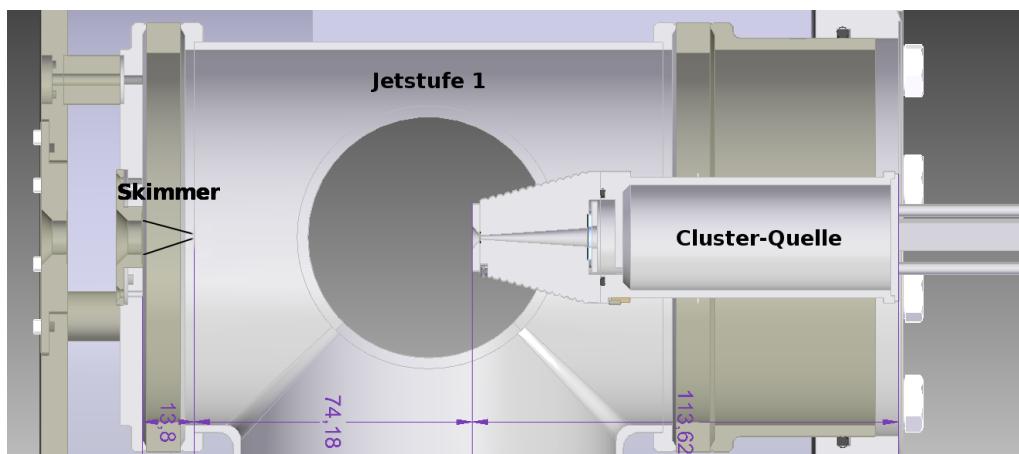


Abbildung 3.3: Maßstabsgetreue Darstellung der Konfiguration von Skimmer und Cluster-Quelle in der ersten Jetkammer bei 210 mm Haltestangenlänge und eingefahrenem Manipulatorhub ($Z = 0 \text{ mm}$). In Anbetracht der in der Realität 30 mm längeren Haltestangen und 50 mm Hub des Manipulators in Z-Richtung,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

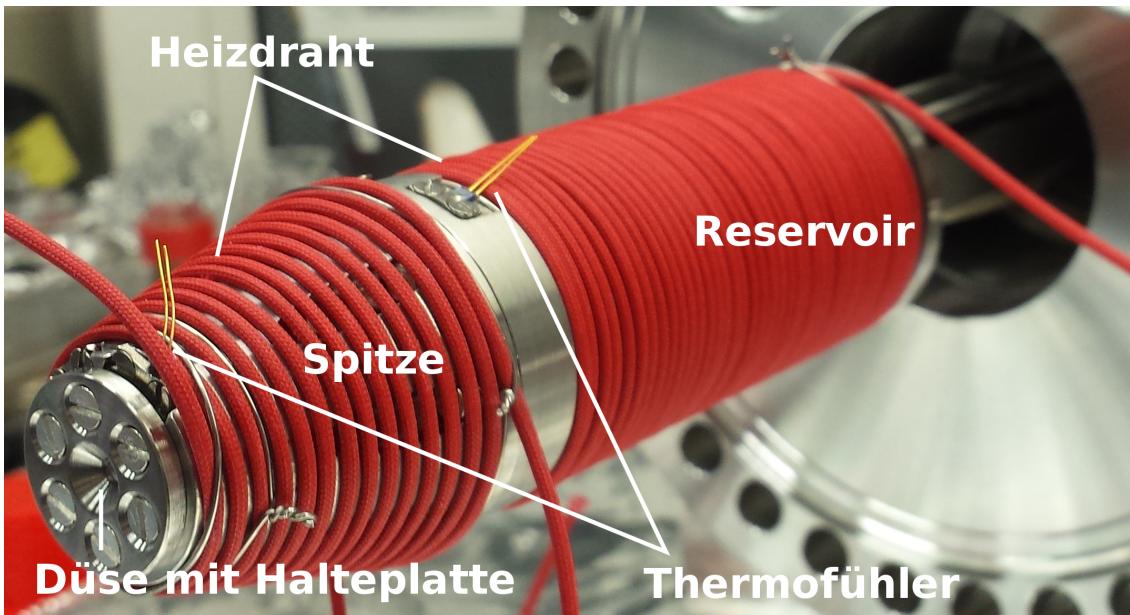


Abbildung 3.4: Foto der Cluster-Quelle für Flüssigkeiten mit angebrachten Heizdrahtwicklungen und Temperaturfühlern.

Von außen wird die ganze Oberfläche der Jetdüse mit Heizdrähten geheizt (siehe Abbildung 3.4). Da die Spitze konisch zuläuft wurde eine Spiralfutter 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 Düsenteratur 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 ausfließen darf, ist die Orientierung der Düse beim Einbau zu beachten. Die drei 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. 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.

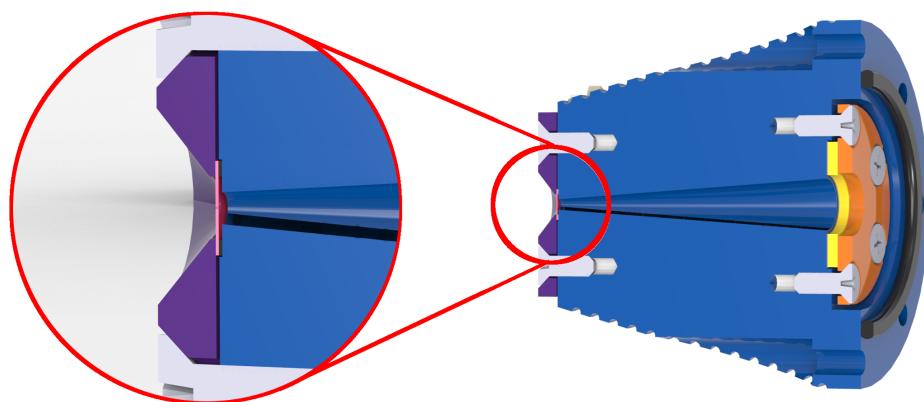


Abbildung 3.5: Detailansicht der Spitze. lila: Düsenhalteplatte, pink: Düse, blau: Spitze, gelb: Filter, orange: Filterhalteplatte, schwarz: O-Ring

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. Der Manipulator mit der Cluster-Quelle werden als Einheit an die ersten Jetstufe montiert.

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.

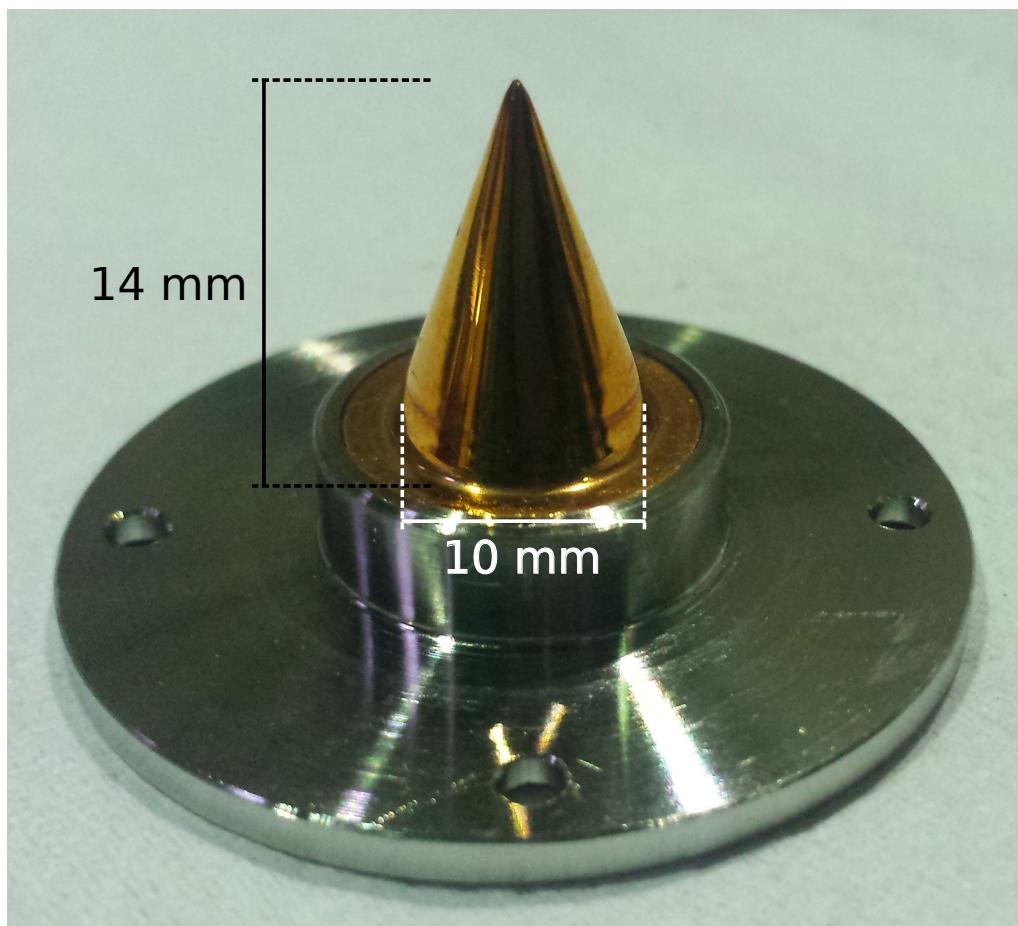


Abbildung 3.6: Foto eines Skimmers aus Kupfer. Der Skimmer ist auf eine verschraubbare Halterung geklebt mit der er in der ersten Jetkammer befestigt wird. Das ermöglicht es den Skimmer zu wechseln, ohne ihn zu beschädigen.

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 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 z. B. 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 Innenwandung des Skimmers zu einem Kegel fort, so gibt die Kegelspitze die maximale Naheposition an. Da der Skimmer einen Öffnungswinkel von 25° bei $200\mu\text{m}$ Öffnungs durchmesser 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.

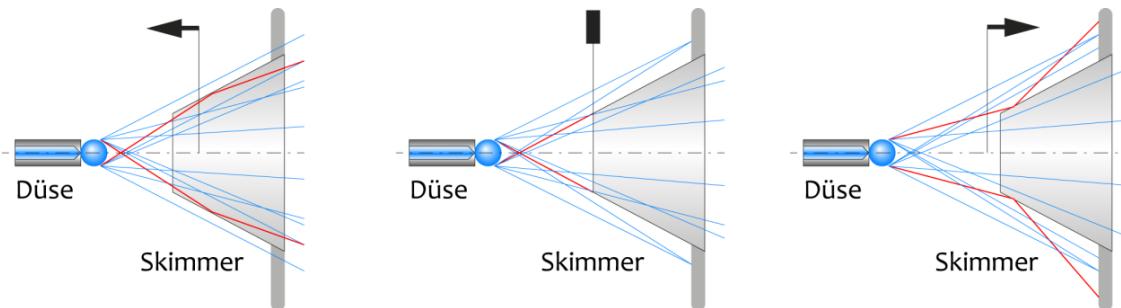


Abbildung 3.7: Strahlverlauf bei verschiedenen Entfernungen zum Skimmer. links: Reflektionen an der Skimmerinnenwand. mitte: Maximale Naheposition. rechts: Verringerung der Strahlintensität. [Mül12]

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. Die Jetdüse wird direkt in die erste Jetkammer gebaut und auf den Skimmer ausgerichtet. In der zweiten Jetstufe befindet sich ein weiterer Skimmer. Diese Apertur ist mit $400 \mu\text{m}$ 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 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.

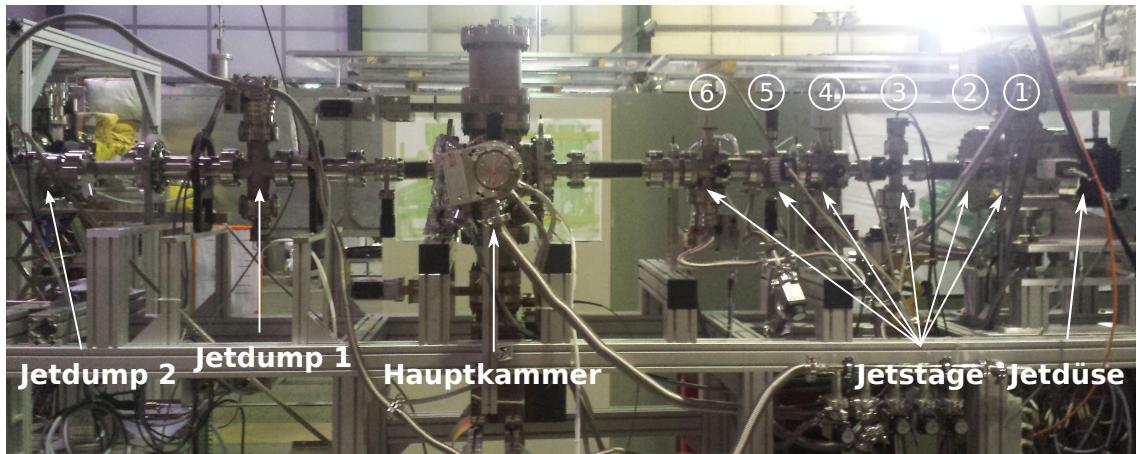


Abbildung 3.8: Teststand in Heidelberg. Die Struktur entspricht, bis auf den Quadrupoldetektor in der Hauptkammer, dem Schema in Abbildung 3.9.

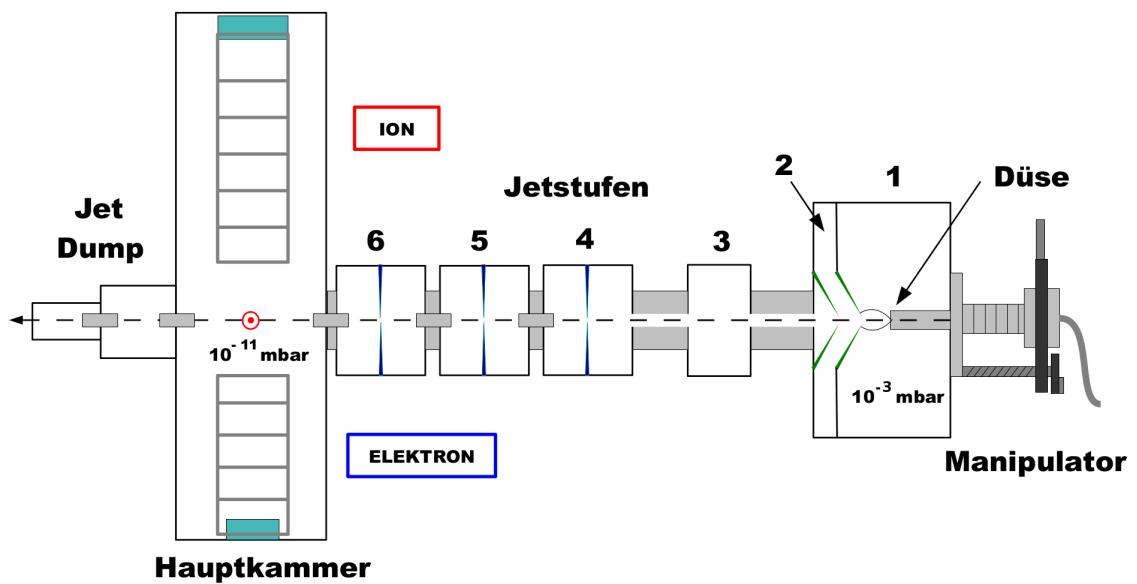


Abbildung 3.9: Schema eines experimentellen REMI-Ausbaus mit 6 Jetstufen. Die Nummern 1-6 kennzeichnen die Jetstufen. Der Jetstrahl ist als graue gestrichelte Linie gekennzeichnet. Die Skimmer und Schlitze sind in grün bzw. blau angedeutet. In der Hauptkammer des REMI ist der Laserfokus mit einem roten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

4 Experiment

4.1 Messungen an FLASH

4.1.1 Alte Wasserdüse

Im Juni 2014 wurden von der Gruppe um Moshammer vom MPIK Heidelberg bereits Messungen mit Wasserclustern an FLASH in Hamburg durchgeführt. Der Aufbau der verwendeten 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. 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 Ortsbilder in diesem Kapitel zeigen die Messdaten vom Juni 2014.

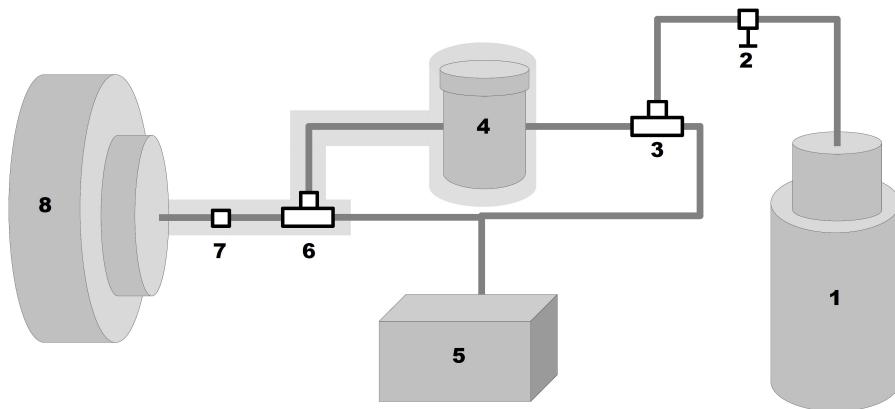


Abbildung 4.1: Schematische Darstellung der Quelle. 1: Reservoir des Trägergases. 2: Druckminderer. 3 und 6: Drewegehahn. 4: Reservoir zur Verdampfung von Feststoffen. 5: Pumpe zum Spülen von Feststoffreservoir und Trägergaszuleitung. 7: Filter. 8: Erste Jetstufe des REMI. Die Komponenten 4,6,7 und deren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

4.1.2 Flugzeitspektren

Flugzeitspektren (TOF-Spektren¹) treten die Häufigkeit detekтирter 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. Durch Auswertung des Flugzeitspektrums kann man 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.

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

²Freie Elektronen Laser

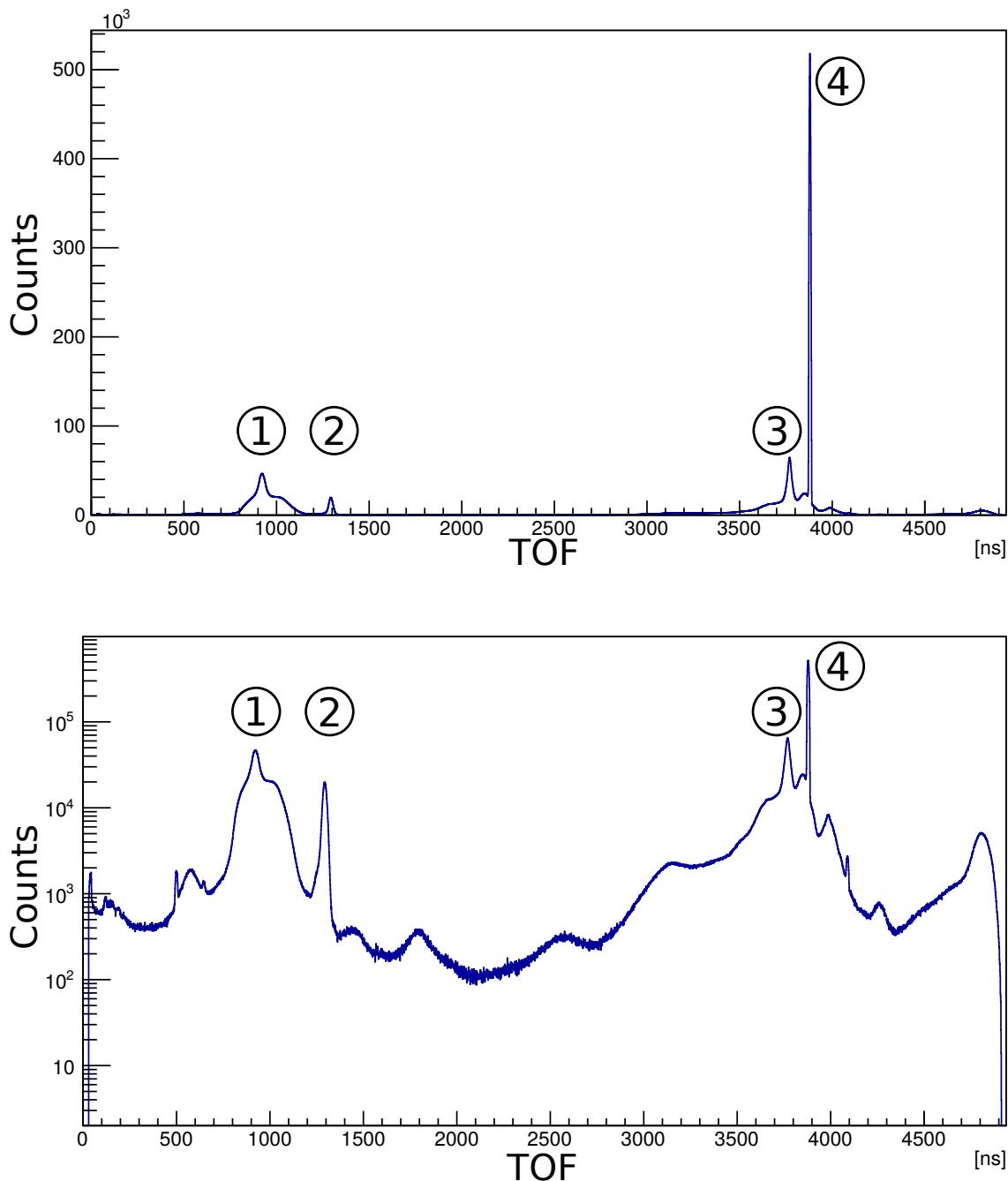


Abbildung 4.2: Häufigkeiten der gemessenen Flugzeiten mit einem Wasserjet in linearer (oben) und logarithmischer (unten) Darstellung. In der logarithmischen Darstellung sind auch schwache Peaks gut zu erkennen. Der dominierende Peak 4 wurde Wasser (H_2O^+) mit $m = 18$ u zugeordnet. Daraus folgt: Peak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

4.1.3 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.

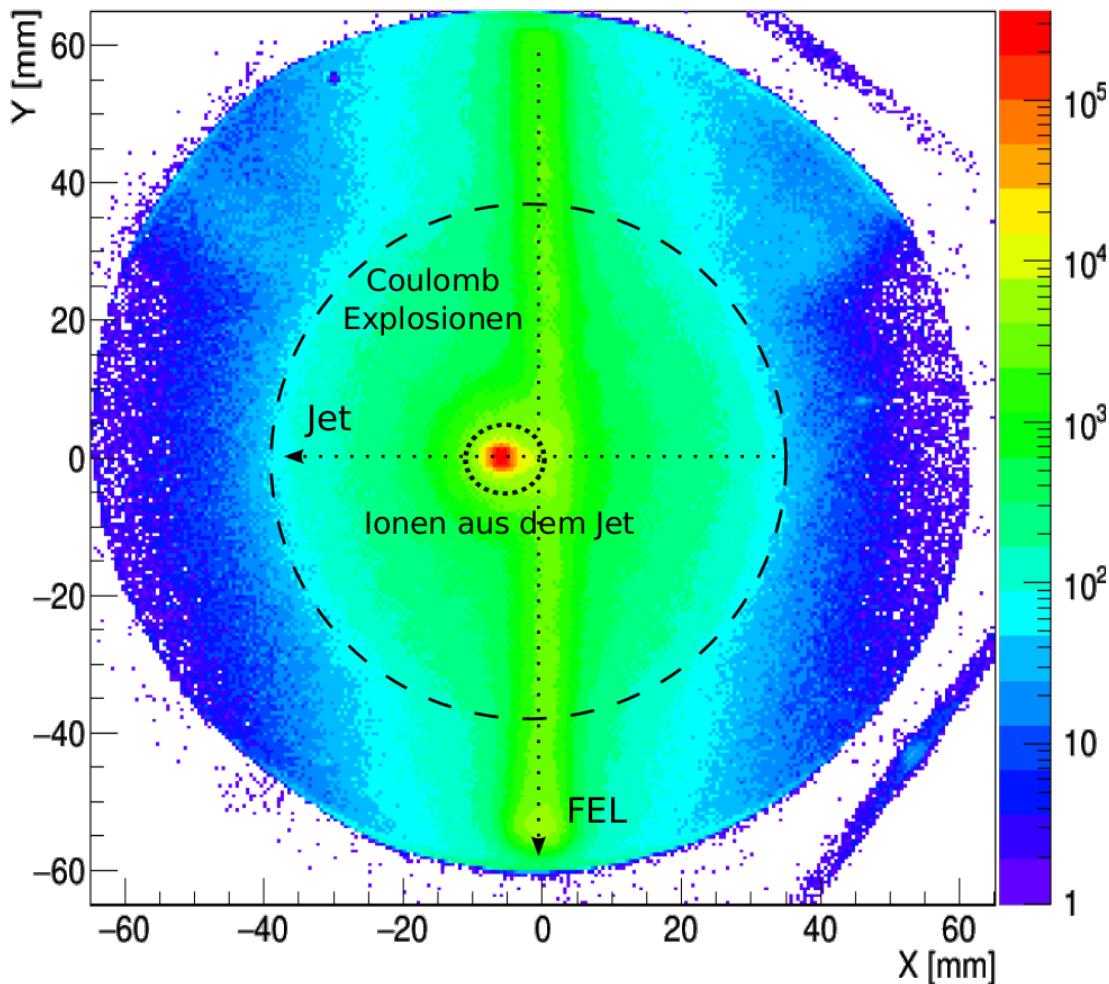


Abbildung 4.3: Detektorbild aus einer Messung mit H_2O . Die vertikale Linie in y-Richtung stammt von dem vom FEL ionisierten Restgas. Die hohen Zählraten in dem gepunktet markierten Bereich sind auf Ionen aus dem Düsenstrahl zurückzuführen. Moleküle die durch eine Coulomb Explosion in zwei geladene Ionen dissoziieren erhalten dabei große Impulse in alle Raumrichtungen. Aus diesem Grund sind sie innerhalb des gestrichelten Kreises auf dem Detektor verteilt.

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 trennen zu können setzt man die Ortsbedingung der Analyse auf einen Ort an dem ähnlicher Untergrund herrscht (siehe Abb 4.4, rechts). Da der FEL unabhängig von der Raumrichtung ionisiert, ist die Spiegelung der Ortsbedingung der Jetionen an der FEL-Achse ideal um den Untergrund zu messen.

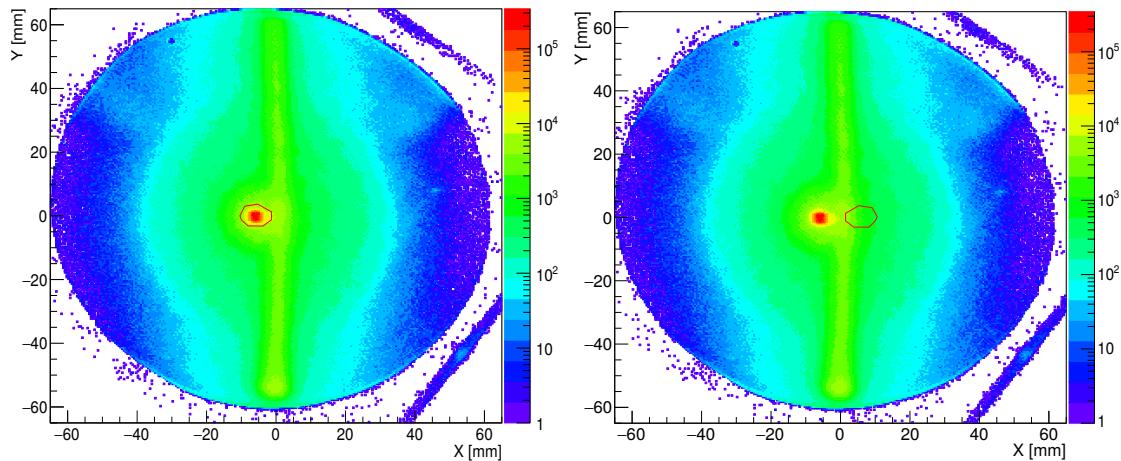


Abbildung 4.4: Zur Untersuchung der Ionen aus dem Jet wurden nur Zählraten innerhalb der linken Ortsbedingung berücksichtigt. Der Untergrund wurde aus der rechten Ortsbedingung ermittelt.

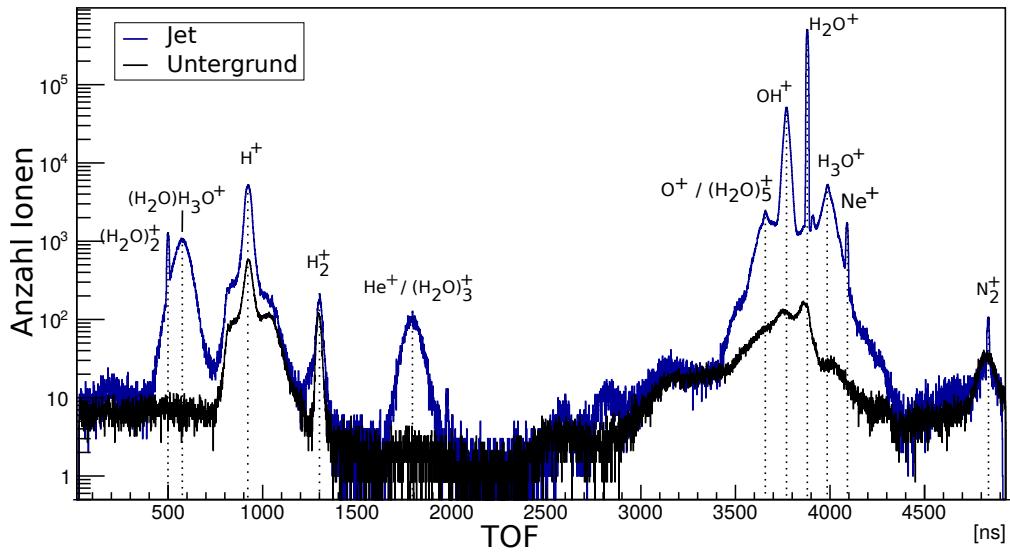


Abbildung 4.5: Flugzeitspektrum der Ionen aus dem Jet. Die eingetragenen Ionen wurden relativ zum dominierenden Wasserpeak bestimmt. Der Untergrund wurde auf N_2^+ und H_2^+ skaliert.

Nähert man die Peaks mit einer Gaußkurve und integriert über diese, erhält man die Zählraten der einzelnen Peaks. Ist das Gesamtintegral des TOF-Spektrums bekannt, kann man daraus die Anteile der verschiedenen Ionen an der Gesamtverteilung berechnen (siehe Tabelle 4.1). Die Peaks von Hintergrundgasen wie H_2^+ waren im Flugzeitspektrum mit Ortsbedingung auf dem Untergrund im unskalierten Zustand teilweise höher, als deren Peaks in dem Flugzeitspektrum mit Ortsbedingung auf den Jetionen. Das ist ein Indiz dafür, dass der Wasserpeak in dem TOF mit Ortsbedingung auf dem Jet in Sättigung gegangen ist und die Gesamtzahl der gemessenen Ionen somit nicht stimmt. Es wurde deswegen davon abgesehen die Zählraten der Untergrundpeaks abzuziehen, da man ohne richtigen Korrekturfaktor die Messwerte verfälscht hätte.

TOF [ns]	σ TOF [ns]	Ion	Masse m [u]	Integral	Verh. zu Wasser	Anteil [%]
		Untergrund		1129882	5,01	12,27
4836	7	N_2^+	28	1656	3666,3	0,02
1300	18	H_2^+	2	10608	907,0	0,07
1792	46	$He^+ / (H_2O)_3^+$	4 / 55	11079	522,8	0,12
500	7	$(H_2O)_2^+$	36	19545	297,7	0,21
4089	7	Ne^+	20	25123	225,3	0,27
575	49	$(H_2O)H_3O^+$	37	108612	55,0	1,12
923	20	H^+	1	314055	25,9	2,37
3988	20	$(H_3O)^+$	19	206706	25,6	2,40
3770	15	$(OH)^+$	17	1547230	3,6	16,95
3880	4	$(H_2O)^+$	18	5784400	1	61,49
Gesamteinträge:				9205120		100

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.) im Diagramm mit Ortsbedingung auf dem Jet zusammen.

Interessant sind die deutlichen Anteile von He^+ und Ne^+ , die nicht aus dem Waserjet stammen können. Es hat sich herausgestellt, dass vor der Wassermessung Experimente mit Helium und Neon ausgeführt wurden. Da beide Peaks aber nicht im Untergrund erkennbar sind, müssen diese aus der Jet-Quelle gespült worden sein. Ionisiertes Wasser ist der bei weitem dominierende Anteil des Gasjets. Die nächstgrößten Bestandteile sind Zerfallsprodukte von Wasser, wie $(H_3O)^+$, oder $(OH)^+$. Wie man an der Zusammensetzung des Spektrums erkennen kann, ist die Wasserdimerausbeute bei diesem Experiment mit 0,21 % sehr gering. Das Verhältnis von Wasser zu Wasserdimeren beträgt 297,7. Diese Wasserclusterquelle würde lange Messzeiten erfordern, um für die geplanten Wasserexperimente genügend Statistik zu sammeln (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 Heizpatrone werden durch mehrpolige Durchführungen im Manipulatorflansch, aus dem Vakuum nach Außen übersetzt.

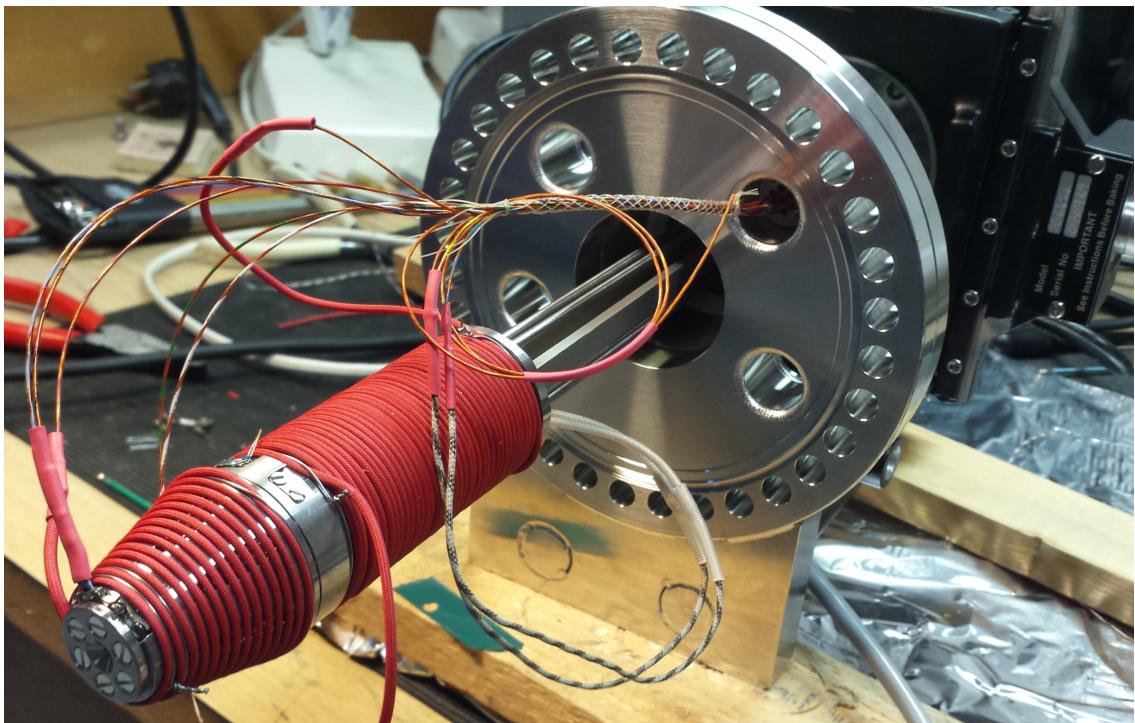


Abbildung 4.6: Einsatzbereite Jetdüse im Manipulator. An Spitze und Reservoir sind Heizdrahtwicklungen in roter Isolierung zu erkennen.

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.

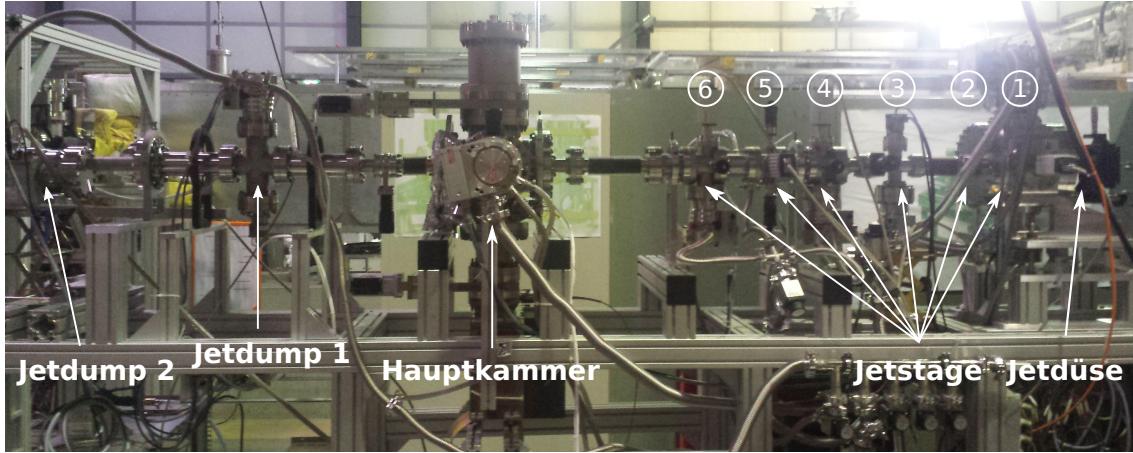


Abbildung 4.7: Teststand der Düse in Heidelberg

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

$$\frac{x_m}{d} = 0,67 \sqrt{\left(\frac{p_0}{p_b} \right)} = 0,67 \sqrt{\left(\frac{2000 \text{ mbar}}{3,7 \cdot 10^{-3} \text{ mbar}} \right)} \quad (4.4)$$

$$\Rightarrow x_m = \begin{cases} 0,0246 \text{ m für } d = 50 \mu\text{m} \\ 0,146 \text{ m für } d = 30 \mu\text{m} \end{cases}.$$

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. Der parallele Verlauf der Drücke in den einzelnen Druckstufen bei logarithmischer Skala (siehe Abb. 4.8), zeugt von einer exponentiellen Abhängigkeit der Drücke vom Abstand zwischen Düse und Skimmer. 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 für Düsenpositionen neben dem Optimum vermessen (siehe Abb. 4.10/4.9).

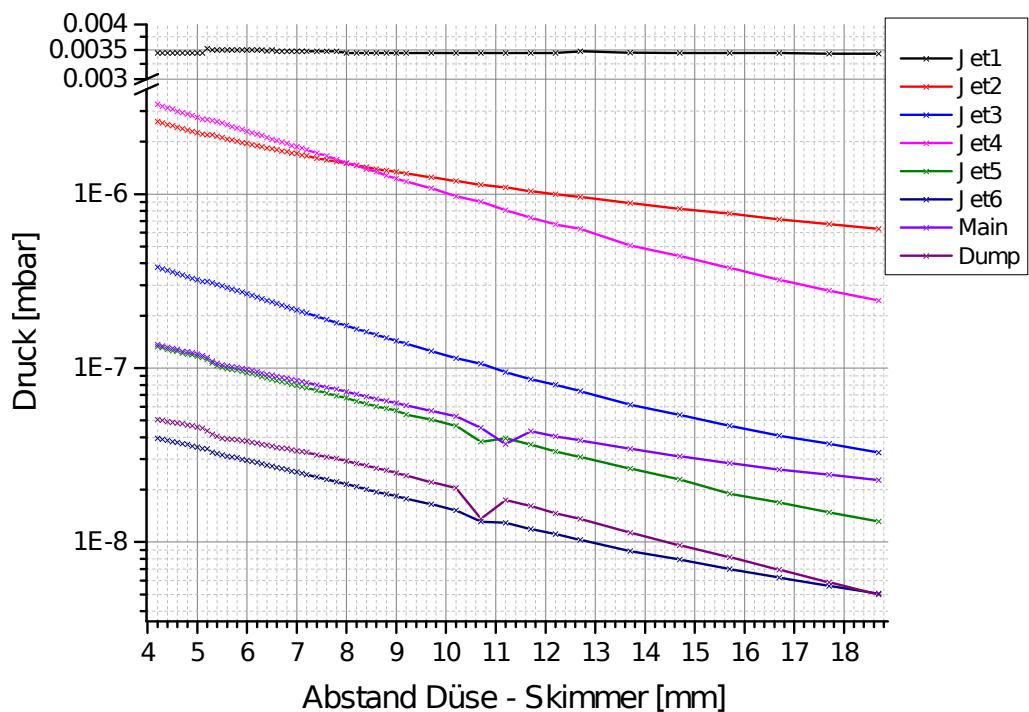


Abbildung 4.8: Der Graph zeigt die Druckverläufe der einzelnen Jetstufen in Abhängigkeit des Abstandes zwischen Düse und Skimmer in Z-Richtung mit logarithmischer Druckskala.

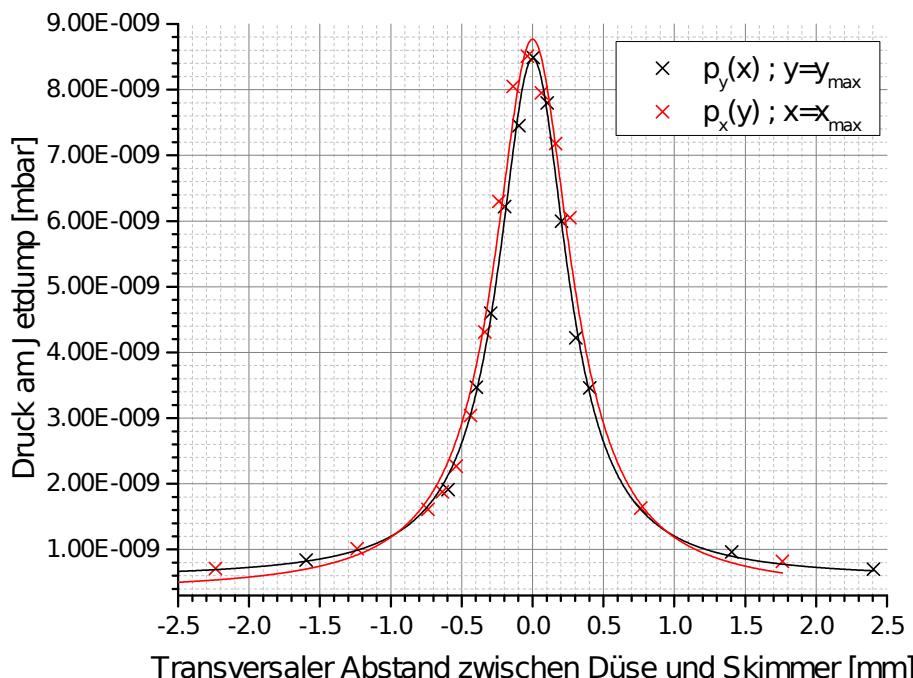


Abbildung 4.9: Der Graph zeigt den Druckverlauf am Dump in Abhängigkeit der Düsenposition in X- und Y-Richtung bei einem festen Abstand zum Skimmer von 15,2 mm. Die Nullposition wurde am Maximum ausgerichtet.

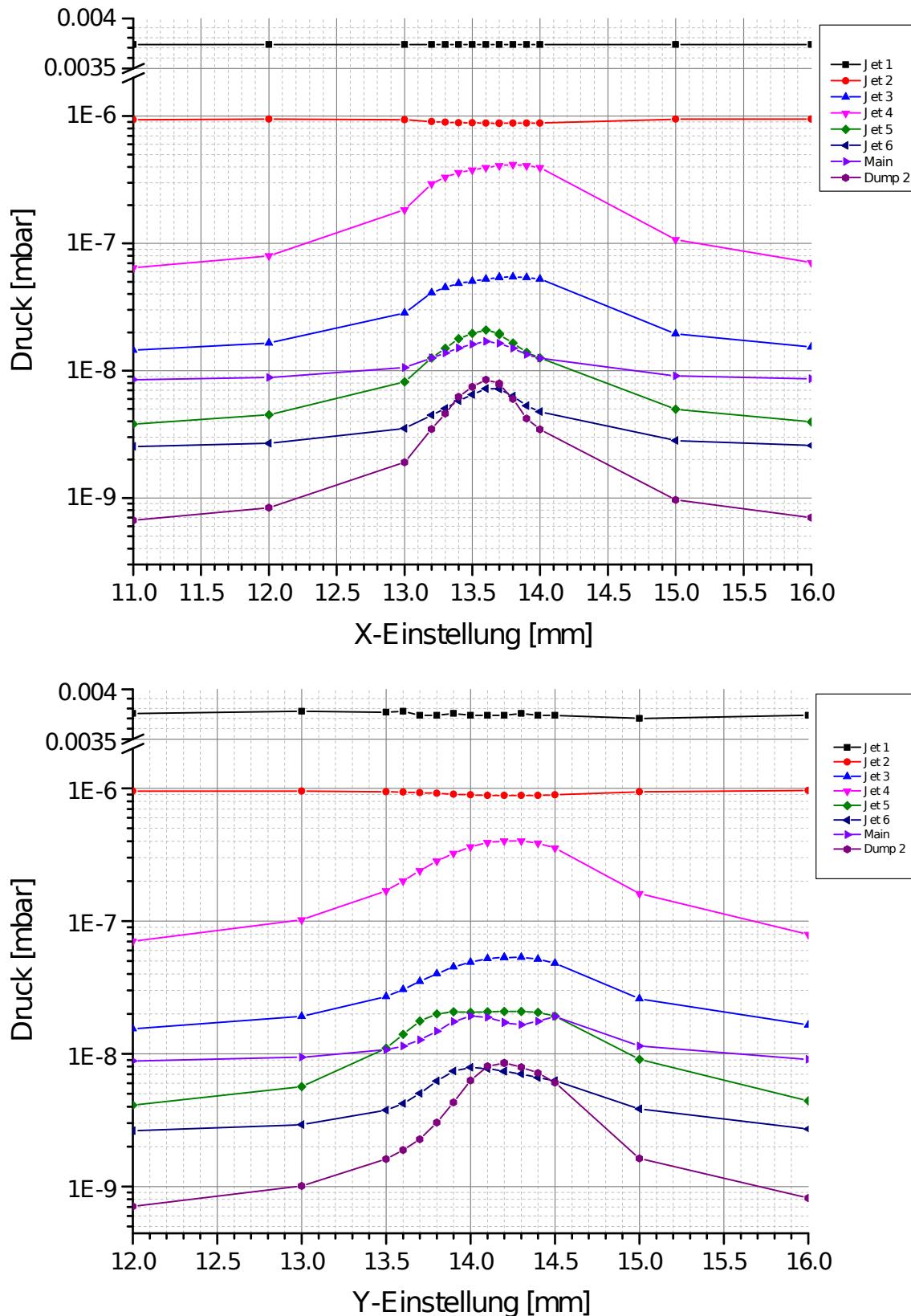


Abbildung 4.10: Die Graphen zeigen den Druckverlauf an den verschiedenen Druckstufen in Abhängigkeit der transversalen Düsenposition in X- und Y-Richtung bei einem festen Abstand zum Skimmer von 15,2 mm.

4.2.2 Heiztest

Die neue Jetdüse muss zur Wasserclusterproduktion mit stabilen Temperaturen betrieben werden können. Um ein Maß für die benötigten Zeitskalen beim Heizen und Abkühlen zu erhalten, wurde die Düse ohne Gaslast oder Wasser beheizt und dabei der Temperaturverlauf an Spitze und Reservoir aufgezeichnet (siehe Abbildung 4.11).

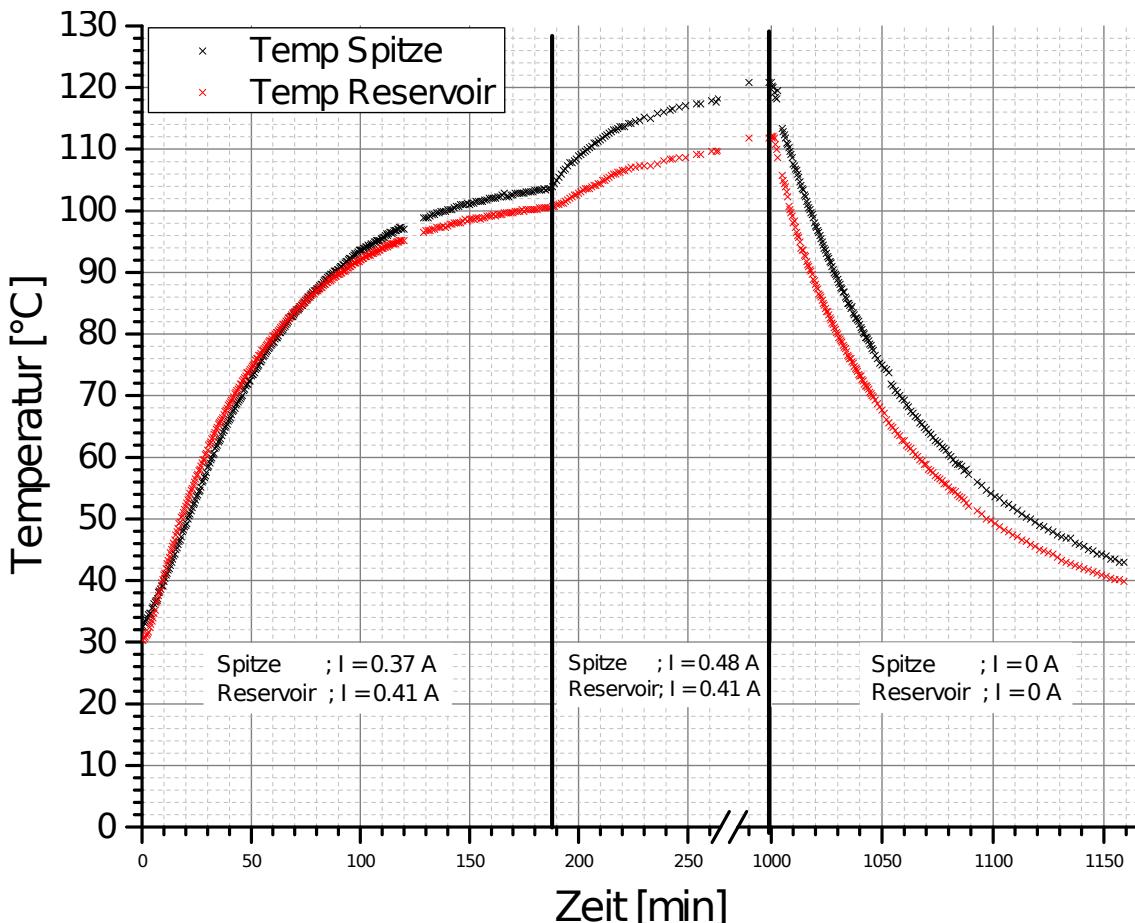


Abbildung 4.11: Der Graph zeigt den Temperaturverlauf an Spitze und Reservoir der Jetdüse zu moderaten Heizströmen. Im ersten Abschnitt des Graphs wurde der Temperaturverlauf bei gleichen Heizströmen untersucht. Der zweite Abschnitt zeigt die Entwicklung der Temperatur bei gleichem Heizstrom am Reservoir, aber höherem Heizstrom an der Düse. Die Plateautemperatur beträgt bei dieser Konfiguration 121 °C an der Spitze und 112 °C am Reservoir, was geeignete Temperaturen für den Einsatz mit Wasser 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 Endtemperatur 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 $I_{Spitze} = 0,82 \text{ A}$ und $I_{Reservoir} = 0,79 \text{ A}$, misst man bereits nach 15 Minuten 100 °C am Reservoir und 90 °C an der Spitze (siehe Abb. 4.12). Wechselt man nun auf niedrigere Heizströme von $I_{Spitze} = 0,45 \text{ A}$ und $I_{Reservoir} = 0,41 \text{ A}$ erreicht man innerhalb einer Stunde über 98 % der Plateautemperatur aus Abbildung 4.11. Allerdings ist hierbei zu beachten, dass mit eingefülltem Wasser mehr Masse erhitzt werden muss. Dies kann aber durch einen leicht höheren Strom oder gänzlich durch die Heizpatrone kompensiert werden.

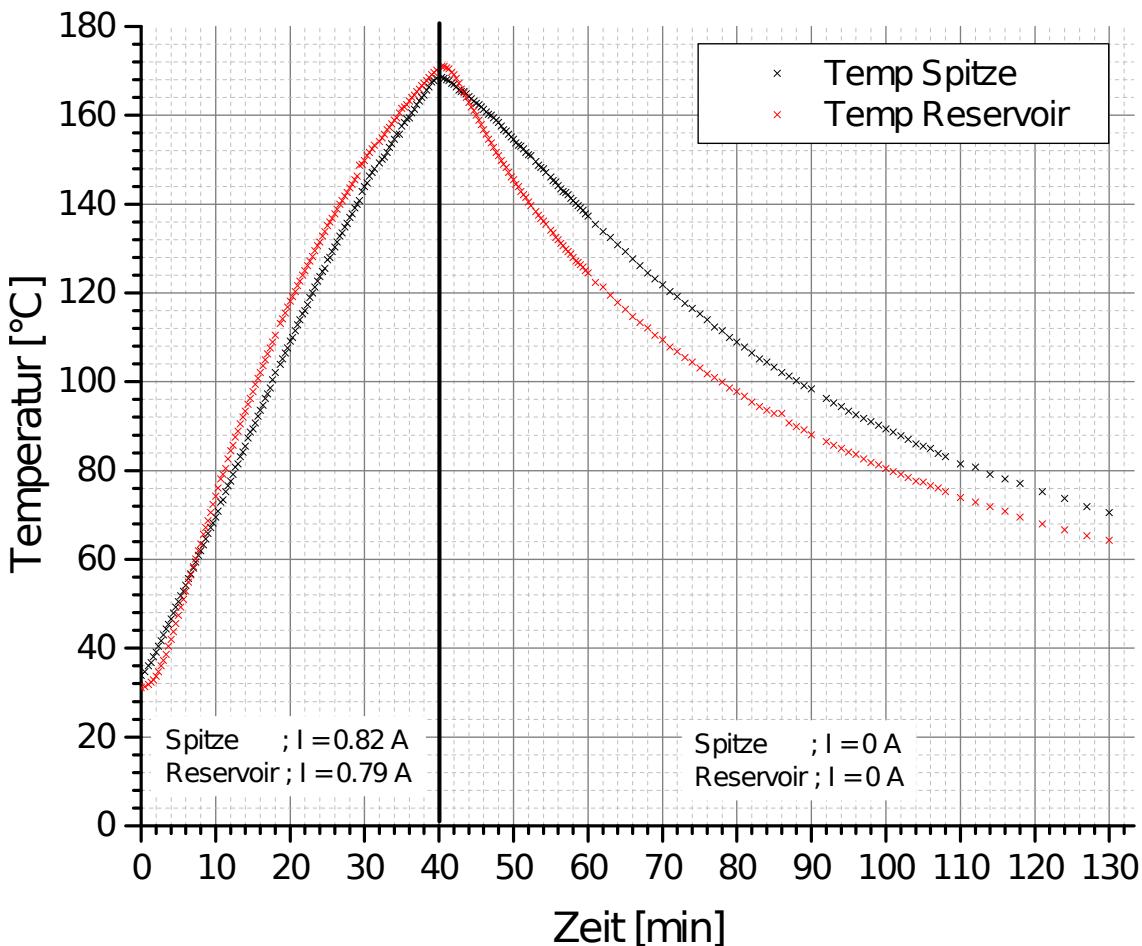


Abbildung 4.12: Der Graph zeigt den Temperaturverlauf an Spitze und Reservoir der Jetdüse zu höheren Heizströmen. Im ersten Abschnitt des Graphs wurde der Temperaturanstieg untersucht. Die Höchsttemperatur beträgt bei dieser Konfiguration 164 °C an der Spitzte und 170 °C am Reservoir. Der zweite Abschnitt löst die Abkühlung der Düse auf.

5 Zusammenfassung

Das Ziel dieser Arbeit war die Konstruktion einer beheizbaren Clusterquelle für Flüssigkeiten. Die Quelle wird im Rahmen von Experimenten mit Wasserdimeren für das Reaktionsmikroskop am Freie-Elektronen Laser in Hamburg (FLASH) benötigt.

In einem einführendem Kapitel wurden die Grundlagen der Entstehung von Clustern durch Überschallexpansion dargestellt.

Darüberhinaus wurde in diesem Kapitel das Reaktionsmikroskop vorgestellt. Dabei wurden Aufbau und Funktionsweise der wichtigsten Komponenten des Reaktionsmikroskopes, sowie die physikalischen Zusammenhänge der Clusterbildung ausführlich behandelt.

Das zweite Kapitel erläuterte die technische Umsetzung der theoretischen Grundlagen. In diesem Zusammenhang wurde die neu entwickelte Cluster-Quelle in Hinsicht der an sie gestellten Anforderungen und Möglichkeiten eingehend besprochen. Des Weiteren wurden die technischen Komponenten des experimentellen Ausbaus erläutert, die notwendig sind, um einen kalten Targetjet zu erzeugen.

Das letzte Kapitel befasste sich mit Ergebnissen aus früheren Experimenten mit Wasserclustern an FLASH und der Inbetriebnahme der neu entwickelten Cluster-Quelle. Im ersten Teil des Kapitels wurden die experimentellen Daten in Form von Flugzeitspektren und Ortbildern untersucht. Die Analyse der Flugzeitspektren ergab eine deutliche Dominanz von Wasserionen. Relativ zur Flugzeit der Wasserionen konnten relevante Peaks aus dem Spektrum Ionenarten zugeordnet werden. Der Anteil der erzeugten Wasserdimere beschränkte sich hierbei auf 0,21 %. Der zweite Teil des Kapitels behandelt die Vorbereitungen auf den Einsatz der neu gebauten Cluster-Quelle. Auswirkungen der Positionierung der Düse zum Skimmer auf die Strahlqualität wurden 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.

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.
- [Dam] CRC Handbook of Chemistry and Physics. D. R. Lide, 76. edition edition.
- [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 wasserstoffclustern am münsteraner cluster-jet-target, 2008.
- [Hag81] Otto F Hagena. Nucleation and growth of clusters in expanding nozzle flows. *Surface Science*, 106(1):101–116, 1981.
- [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.
- [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.
- [SW88] Stanley E Sobottka and Mark B Williams. Delay line readout of micro-channel 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, <http://www.lsbu.ac.uk/water/anmlies.html>.

Danksagung

Ich möchte an dieser Stelle all den Menschen danken, die mich bei dieser Arbeit und während meines bisherigen Studiums unterstützt haben.

Ich danke zuerst Georg, der mich während der Arbeit am Institut begleitet hat. Gerade in der finalen Phase hat er die Arbeit unermüdlich probegelesen und mir mit zahlreichen Kommentaren und Ideen riesig geholfen.

Ich danke Robert, dass er mich so freundlich am MPIK aufgenommen hat. Er hat mir die Ausarbeitung dieses interessanten Projektes ermöglicht. Durch ihn bin ich meinem Traum, Physik nicht nur zu studieren, sondern auch praktisch anzuwenden, ein ganzes Stück näher gekommen.

Severin möchte ich für die angenehme Zusammenarbeit an diesem Projekt danken. Wir hatten ein lustige und stressige Situationen mit der Wasserdüse erlebt. Ich habe viel von seiner Erfahrung lernen können und werde ihm auch gerne bei der Vervollständigung dieses Projektes zur Hand gehen.

Ich möchte mich auch ganz herzlich bei Kirsten und Sven bedanken, die selbst aus dem Ausland immer ein wachendes Auge und eine helfende Hand für mich übrig hatten. Bei Problemen war immer auf Ihre Unterstützung und hilfreichen Ideen verlass.

Meiner Familie danke ich, weil ich mich immer auf sie verlassen kann und sie mir dieses Studium überhaupt erst ermöglicht hat.

Ich danke auch allen meinen Freunden, die sich besonders in der letzten anstrengenden Zeit sehr um mich gesorgt haben und mir immer Rückhalt bieten. Besonders danken möchte ich Dani, der immer ein offenes Ohr hat und mich schon seit meiner Schulzeit nie im Stich lässt. Auch Sarah gilt ein besonderer Dank. Sie versüßt mir die Studiumszeit ungemein und ich bin froh, dass wir uns trotz der Entfernung so nahe stehen. Doch allen voran danke ich Thomas und Peter, die mich schon seit dem ersten Studententag begleiten. Wir haben schöne und schwere Zeiten gemeinsam erlebt und ich hatte noch nie so viel Spaß, wie in der Zeit mit euch.

Dankeschön!

Eigenständigkeitserklärung

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

Heidelberg den,

Viktor Adam

