

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 Moshhammer  
durchgeführt.



## **Abstract**

Here english text.

## **Zusammenfassung**

Hier deutscher Text.



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Motivation</b>	<b>9</b>
<b>2</b>	<b>Experimentelle Realisierung</b>	<b>11</b>
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
<b>3</b>	<b>Technische Umsetzung</b>	<b>27</b>
3.1	Quelle . . . . .	27
3.2	Skimmer . . . . .	31
3.3	Jetstufen . . . . .	33
<b>4</b>	<b>Experiment</b>	<b>35</b>
4.1	Weiß noch nicht was da so bei runkommt, aber denke dass man da erste Drücke auslesen kann. Evtl steht ein Quadrupol- Spektrometer zur verfügung mit dem man das was rasukommt analysieren kann . . . . .	35
<b>5</b>	<b>Zusammenfassung</b>	<b>37</b>
<b>6</b>	<b>Anhang</b>	<b>39</b>





# 1 Motivation

Wasser ist auf der Erde ein allgegenwärtiges Molekül, das den Grundstein allen Lebens darstellt. Deswegen ist es eine Aufgabe der Wissenschaft, möglichst alle Vorgänge, die in und wegen Wasser vorkommen, bis ins Detail zu verstehen. Bereits gewonnenes Wissen darüber findet Anwendung in Bereichen, die von medizinischer Strahlentherapie, bis hin zu Kernkraftwerktechnologien reichen. Auch diese Arbeit steht gewissermaßen unter einem medizinischen Zeichen, denn das Ziel ist grundlegende Relaxationsvorgänge und Gleichgewichtsreaktionen in Wasser auf Grundlagenbasis untersuchen. Und da der menschliche Körper zu ca. 70% aus Wasser besteht und grade die DNA sich in wässriger Umgebung befindet, ist es wichtig die genannten Vorgänge auch in Bezug auf die Wechselwirkung mit ihr zu untersuchen und mögliche Schlussfolgerungen für die Medizin zu ziehen.

Bei Experimenten über die Fragmentation von Wasserclustern wurde beobachtet, dass sich erstaunlich oft protonisierte Wassercluster bilden, wie das Zundel-Ion ( $\text{H}_5\text{O}_2^+$ ), das Eigen-Ion ( $\text{H}_3\text{O}^+(\text{H}_2\text{O})_3$ ) und den kleinsten Repräsentant davon, das Oxonium-Ion ( $\text{H}_3\text{O}^+$ ). Grundlegend für deren Entstehung ist der sogenannte Protonentransfer, über dessen Dynamik noch nicht viel bekannt ist. Es existieren allerdings eine Vielzahl von theoretischen Studien und Vorhersagen über die Protonentransferdynamik für verschiedene Größen von Wasserclustern. Natürlich steigt die Genauigkeit der Berechnungen mit sinkender Komplexität der Cluster, weswegen es von Vorteil ist, zuerst Wasserdimere in dieser Hinsicht zu untersuchen. Diese sind der beste Ansatzpunkt um Protonentransferdynamik zu untersuchen(**Wiederholung**), da für die Bildung des einfachsten protonierten Clusters, dem Oxonium-Ion, nur zwei Wassermoleküle erforderlich sind:



Schafft man es die **Zeitskala?** des Protonentransfers an diesem Beispiel zu messen(**aufzulösen**), setzt man damit einen wichtigen Vergleichswert für die

## 1 Motivation

Theorie, da alle vorkommenden Protonentransfers darauf aufbauen. Schnorr *et al.* von der Gruppe Pfeifer am MPIK Heidelberg haben vor, genau diese Messung am DESY in Hamburg durchzuführen [SSA<sup>+</sup>]. Das DESY stellt den Freie-Elektronen-Laser in Hamburg (FLASH) zur Verfügung, mit dem XUV-Pulse einer Pulsdauer von wenigen 10 fs erzeugt werden können. Die **Dauer?** des Protonentransfers wird auf die selbe Größenordnung geschätzt und kann damit mit diesem Laser aufgelöst werden. Das Ziel dieser Bachelorarbeit ist es die noch fehlende Wasser-Jet-Quelle zu konstruieren, welche die für das Experiment benötigten Wasserdimere in angemessenem Anteil produziert. *Hier erwähnen dass schon versucht wurde, aber nicht praktikabel war oder gut funktioniert hat; Warum neue Düse?* Doch die Anwendungsmöglichkeiten der Wasserdüse sind nicht nur auf dieses eine Experiment beschränkt. Ein weiteres Beispiel findet man in dem Proposal von Schnorr *et al.* [SAS<sup>+</sup>]. Im diesem wird die von Gokhberg *et al* [GKKC14] veröffentlichte Idee, der gezielten Auslösung eines intermolekularen Coulomb-Zerfalls (englisch: intermolecular atomic decay, kurz: ICD) aufgegriffen. Unser Ziel wird es sein, in der entworfenen Wasserdüse, Wasser mit einem massereichen Edelgas (Xe) koexpandieren zu lassen um Xe-H<sub>2</sub>O Moleküle zu formen. Diese sollen dann im Flash mit einem Laser zu ICD angeregt werden. Die Wellenlänge des Lasers muss dazu resonant zu einem bestimmten Übergang in Xenon sein. Dadurch, dass das Xenon einen viel größeren Wirkungsquerschnitt, als das Wasser hat (bei 100eV: 20Mbarn zu 1.8Mbarn) scheint es realistisch, das Xenon gezielt durch den Laser anzuregen, und den ICD-Prozess damit in Gang zu setzen. Und wenn die Wellenlänge nicht resonant verstimmt wird, soll kein ICD mehr stattfinden. Diese Technik wurde, u.a. auch von Gokhberg *et al.* [GKKC14], vorgeschlagen zur Tumorbildung eingesetzt zu werden, denn die zweiten ICD-Elektronen besitzen meist eine Energie von unter 15 eV und sind dafür bekannt Molekülbindungen effizient zu zerstören. Dazu müssten in der Praxis Zielmoleküle, mit einem den Querschnitt dominierenden Bestandteil, in die betroffene Region injiziert werden, um dort gezielt ICD anregen zu können. Diese Technik würde der Medizin bei der Tumorbildung weiterhelfen, doch leider ist die experimentelle Erfahrung im ICD-Feld zurzeit noch weit von der praktischen Anwendung entfernt. Wenn das Experiment glückt, wäre es das erste Mal, dass ICD gezielt auf molekularer Ebene ausgelöst und gestoppt werden kann. Am Ende der Motivation noch kurz die Inhaltsangabe machen

## 2 Experimentelle Realisierung

### 2.1 Reaktionsmikroskop

Wie theoretisch und experimentell vielfach bestätigt, führt die Interaktion von starken Lasern mit Atomen oder Molekülen 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 (REMI) 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 REMI erklären und sich dabei an den Doktorarbeiten von Schnorr [Sch14] und Fechner [Fec14] orientieren.

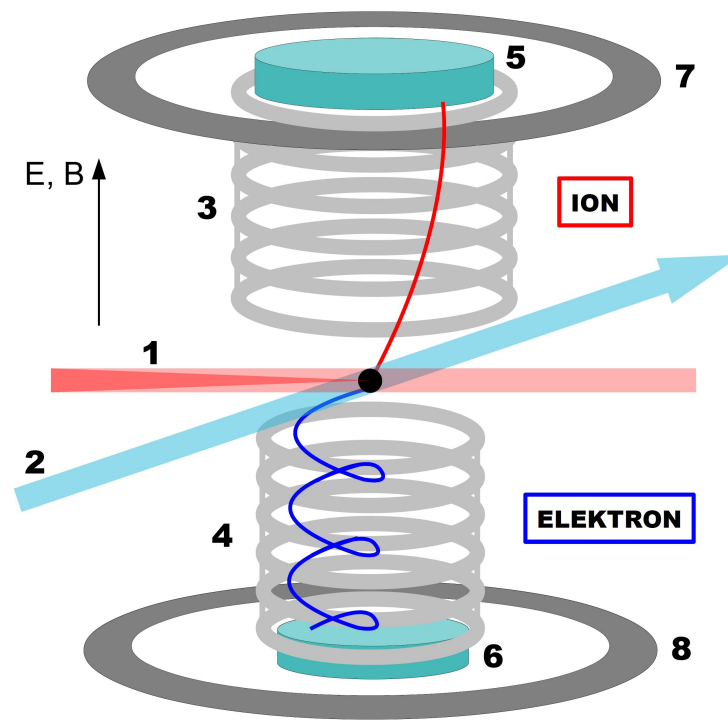


Abbildung 2.1: Schematischer Aufbau eines Reaktionsmikroskopes: 1: Fokussierter Laserstrahl. 2: Kalter Überschallgasjet. (siehe Kapitel 2.2.2) 3: Spektrometer Ionenseite. 4: Spektrometer Elektronenseite. (siehe Kapitel 2.1.1) 5: Ionendetektor. 6: Elektronendetektor. (siehe Kapitel 2.1.2) 7 und 8: Helmholtz-Spulenpaar.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

### 2.1.1 Spektrometer

In der Mitte einer Ultrahochvakuumkammer ( $p \approx 10^{-12}$  mbar) wird ein stark fokussierter Laser <sup>1</sup> im 90° Winkel mit einem kalten Gasjet gekreuzt. Im Laserfokus werden Targetatome/-moleküle ionisiert und es entstehen positive Ionen und Elektronen. Das Spektrometer besteht aus mehreren coaxial 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

<sup>1</sup>Außer Photonen werden auch Elektronen und Ionen als Projektile verwendet. [UMD<sup>+</sup>03]

Feld beschleunigt die Ionen und Elektronen in entgegengesetzte Richtungen 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.**

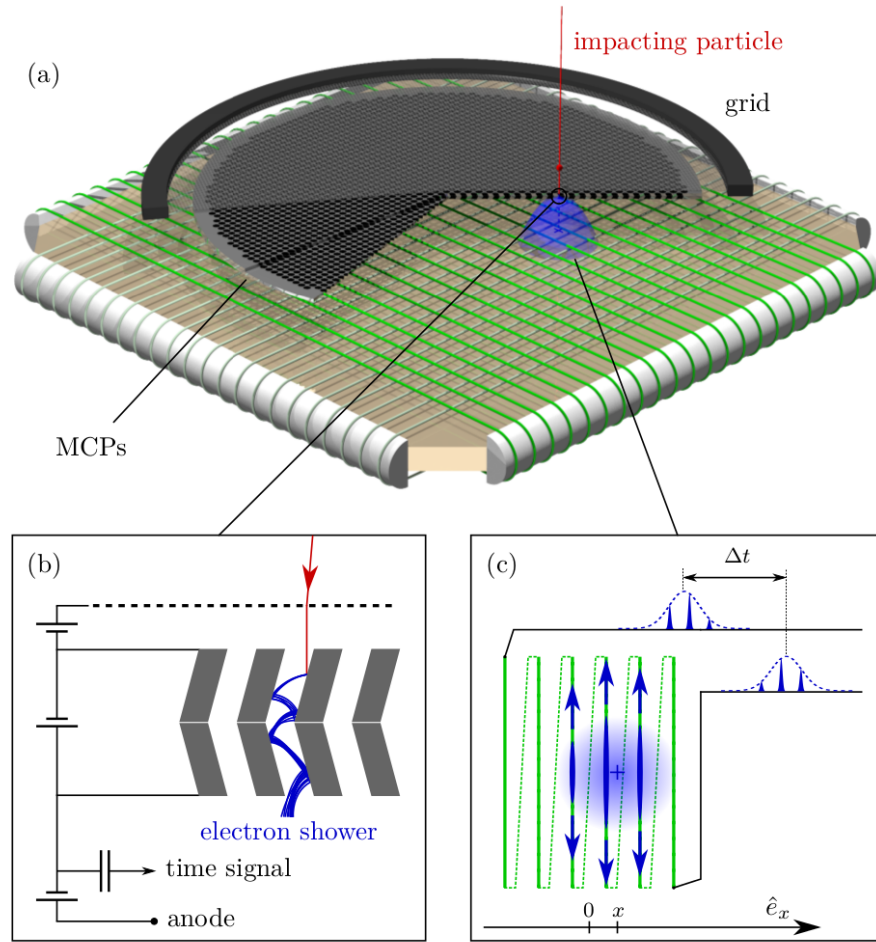


Abbildung 2.2: a) Orts- und Zeitauflösender Detektor eines Reaktionsmikroskopes. b) Zwei gestapelte MCPs. Geladenes Teilchen (roter Pfeil) trifft auf die MCP Innenwand und löst Sekundärelektronen aus. Durch die anliegende Spannung beschleunigt, lösen diese Elektronen bei Kontakt mit der Innenwand weitere 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]

### Multi-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  $8^\circ$  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  $\Delta t$  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 Kupferdrahtwick-

## 2 Experimentelle Realisierung

lung rechtwinkling zu der ersten orientiert angebracht (siehe Abb. 2.2 a)). **Da-**  
**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 Teil-**  
**chen gleichzeitig(?, oder ;8ns) orts aufgelöst werden.**

**Könnte noch beschreiben dass es einen zweiten Draht gibt, Hinter-**  
**grund**



## 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 kalter Targetstrahl essentiell, die die mittlere kinetische Energie von Gasen bei Raumtemperatur bei ca. 40 meV liegt [Kur07]. Ein Überschall-Gasjet erreicht Targettemperaturen in der Größenordnung eines Kelvin. 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 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

## 2 Experimentelle Realisierung

ähneln [Gen08]. Cluster können aus fast jeder Art von Atomen oder Molekülen erzeugt werden. Diese werden je nach ihren Bestandteilen und Bindungstypen in verschiedene Gruppen eingeteilt [Jor84].

Zum Einen gibt es die Gruppe der metallischen Cluster. Diese z.B.  $\text{Al}_n$ -Cluster bilden untereinander eine metallische Verbindung mit einem halbvollen Band delocalisierter Bindungselektronen. Die Bindungsenergien sind hierbei in einem Bereich von 0,5 - 3 eV. Metallische Cluster bestehen oft aus  $n > 200$  Atomen [KV13].

Dann gibt es die Gruppe der ionischen Cluster. Hier weisen die Bestandteile oft einen großen Unterschied in Elektronegativität auf und werden durch Coulombwechselwirkung zusammengehalten. Ihre Struktur ist meist kubisch wie wir das von  $\text{NaCl}_n$  kennen und die Bindungsenergien liegen zwischen 2 - 4 eV. Eine weitere bekannte Gruppe ist die der kovalenten Cluster, die vor allem durch C-Cluster wie Fullerene bekannt wurde. Diese besitzen eine ausgerichtete Bindung durch Elektronenpaare, mit einer mittleren Bindungsenergie von 1 - 4 eV. Bei diesem Typ liegt die charakteristische Clustergröße bei  $30 < n < 80$ . Weiterhin gibt es die Van-der-Waals-Cluster, die durch eine Dipol-Wechselwirkung zwischen Atomen und Molekülen verbunden werden. Sie besitzen nur eine geringe mittlere Bindungsenergie von 0,001 - 0,3 eV. Repräsentanten dieser Gruppe sind z.B. Edelgascluster wie  $\text{He}_2$ -Cluster. Diese Cluster bestehen meist aus  $n < 10$  Atomen oder Molekülen.

Und zum Schluss gibt es noch die Gruppe, mit der wir uns in dieser Arbeit befassen werden, und zwar die Gruppe der Cluster mit Wasserstoffbindung. Die Dipol-Dipol-Anziehung hält diese Cluster mit einer mittleren Bindungsenergie von 0,15 - 0,5 eV zusammen.

### 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. Da bei adiabatischen Prozessen die Entropie erhalten bleibt, muss auch die Zustandsdichte erhalten bleiben. Deswegen muss bei einer Abnahme der räumlichen Dichte, die Dichte im Impulsraum im Gegenzug zunehmen [Kur07]. Eine Erhöhung der Dichte im Impulsraum allerdings bedeutet eine schmalere Geschwindigkeitsverteilung und eine Abnahme

der Temperatur. Diese Temperaturabnahme ist sehr bemerkenswert, da sie es ermöglicht van-der-Waals-gebundene Moleküle, wie z.B.  $^4\text{He}_2$ , zu produzieren und zu detektieren. Das  $^4\text{He}_2$ -Molekül ist ein sehr beeindruckendes Beispiel dafür, weil die He-He-Bindung nach quantenmechanischen Berechnungen die schwächste bekannte Bindung ist. Diese Moleküle wurden 1993 erstmals, via Überschallexpansion erzeugt und nachgewiesen [LMK<sup>+</sup>93], obwohl die Bindungsenergie nur 1,176 mK, also etwa  $10^{-4}$  eV entspricht [LB07].

In der folgenden Erklärung von den Prozessen und Formeln die bei der Clusterbildung durch Überschallexpansion eine Rolle spielen orientiere ich mich im Wesentlichen am Kapitel 2 des Buches „Atomic and Molecular Beam Methods Vol 1“ [SBBL88] und der Zusammenfassung darüber in der Dissertation über „Ultraschnelle Dynamik in dotierten und reinen Wassercluster“ von Jan Müller [Mül13].

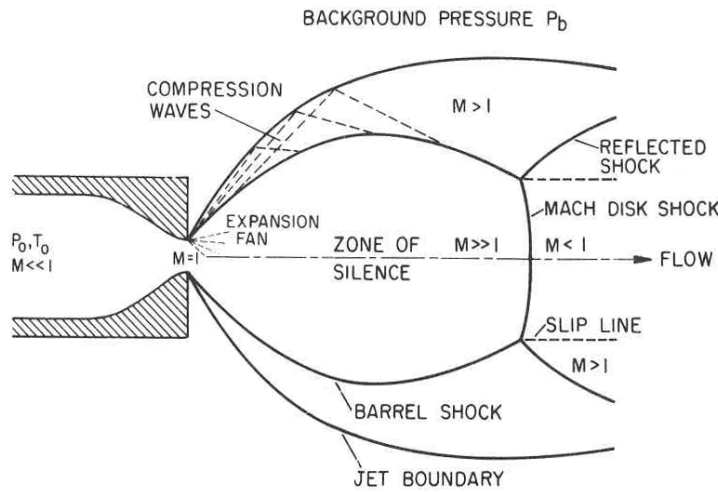


Abbildung 2.3: Übersicht der Überschallexpansion mit Schockwellenstruktur [SBBL88]

Expandiert Gas aus einem Reservoir mit Temperatur  $t_0$  und Druck  $p_0$  adiabatisch durch eine Düse mit Durchmesser  $d$ , folgt die Druckabnahme der thermodynamischen Gesetzmäßigkeit

$$pV^{\gamma/(1-\gamma)} \text{ mit } \gamma = c_p/c_v = (f+2)/f \text{ bei } \Delta S = 0. \quad (2.2)$$

Der Exponent  $\gamma$  zählt die Anzahl der Freiheitsgrade und kann wie in der Formel angegeben als Quotient aus der isobaren und isochoren Wärmekapazität

## 2 Experimentelle Realisierung

experimentell bestimmt werden. Reines Wasser, wie es bei uns verwendet wird, hat bei Raumtemperatur 6 Freiheitsgrade [brauch ich hierfür Referenz? oder Fußnote mit Werten für id Gas oder Moleküle anhängen]. Da bei der Expansion ins Vakuum die Dichte und Temperatur des Gases sinken, muss aufgrund der Energieerhaltung, die Geschwindigkeit zunehmen. Nimmt man an dass die gesamte thermische Energie in kinetische Energie umgewandelt wird erhält man folgende Formel für die Endgeschwindigkeit.

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

Wobei der Zusammenhang für ideale Gase

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

verwendet wurde. R steht hier 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 gewichteteten, Mittelwerte  $\bar{c}_{p,mol}$  und  $\bar{W}_{mol}$  verwenden. Vergleicht man die Endgeschwindigkeit  $v_{\infty}$  mit der Schallgeschwindigkeit für ideales Gas

$$c = \sqrt{\frac{R\gamma}{W} T} \quad (2.5)$$

sieht man, dass  $v_{\infty}$  größer ist als c, weil die Temperatur des expandierten Gases T sehr viel kleiner ist, als die Düsentemperatur  $T_0$  und der andere Faktor  $\sqrt{(2/\gamma - 1)} = 2,45$  (mit f=6 bei Wasser) den Unterschied nochmal 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 dazu eine Rolle spielt und vektoriell betrachtet das Strömungsfeld an jedem Ort  $\vec{r}$  charakterisiert.

Nach Austritt aus der Düse hat das Gas eine Machzahl  $M > 1$ , was bedeutet, das Gas breitet sich mit Überschallgeschwindigkeit aus. Das hat zur Folge, das der Gasstrom zunächst unabhängig von jeglichen externen Randbedingungen ist. Dieser Effekt rührt daher, dass sich Information „nur“ mit Schallgeschwindigkeit ausbreitet und das Fluid eben schneller ( $M > 1$ ) ist. Doch obwohl der

Gasstrom nichts von Randbedingungen weiß, muss er sich an diese anpassen. Das wird nach kurzer Zeit von Schockwellen realisiert, die an begrenzenden Wänden oder ähnlichen „Randbedingungen“ abprallen und auf ihrem Rückweg den Strom regulieren. Wie man an Bild 2.4 erkennen kann gibt es mehrere Instanzen dieser Schockwellen, die nichtisentropische Gebiete sind und sich durch starke Dichte-, Temperatur-, Geschwindigkeits- und Druckgradienten auszeichnen. Durch diese Eigenschaften kann man die Schockwellen mit diversen Lichtstreutechniken sichtbar machen.

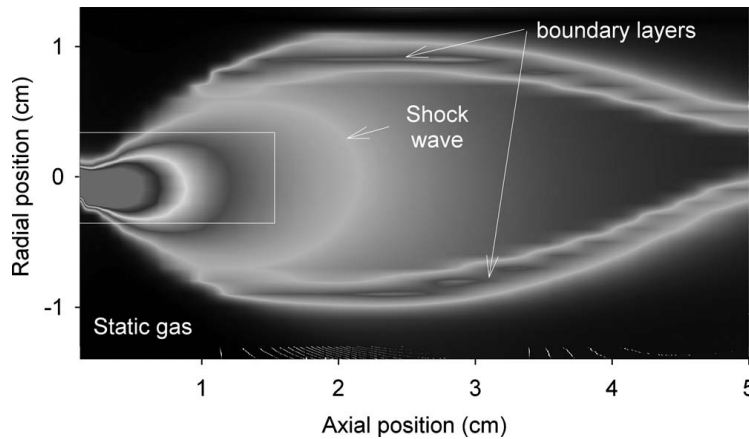


Abbildung 2.4: Druckverteilung bei einem Argon-Jet mit einer 20 µm breiten schlitzförmigen Düsenöffnung. Die gekennzeichnete Schockwelle in der Mitte begrenzt den isentropen Bereich, also die „zone of silence“ [MGG<sup>+</sup>09]

Der von diesen Schockwellen eingegrenzte Bereich ist dennoch unbeeinflusst von den Randbedingungen und wird deswegen auch „zone of silence“ genannt. Die Lage der Schockstrukturen hauptsächlich abhängig von dem Verhältnis von Düsendruck  $p_0$  zu Hintergrunddruck  $p_b$  der Kammer. Eine weitere wichtige Schockstruktur ist die sog. Mach-Scheibe (englisch „mach disc“), die normal zur Ausbreitungsrichtung des Gases liegt. Da Schockwellen enormen Druck auf die im Strom vorkommenden Cluster ausübt, muss der für Experimente verwendete Molekülstrahl noch vor der Mach-Scheibe entnommen werden. Diese Entnahme wird durch einen Skimmer realisiert, welcher den gewollten Teil des Molekülstrahls durchlässt und den restlichen Anteil von der Strahlachse wegreflektiert, doch auf diesen Teil werde ich im Kapitel [Kapitel über Jet/Skimmer] etwas genauer eingehen.

## 2 Experimentelle Realisierung

Die Position der Mach-Scheibe lässt sich mittels

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

bestimmen, wobei  $x_m$  die besagte Mach-Scheibenposition, ausgehend von der Düse und  $d$  die Größe der Düsenöffnung ist. Um einen kleinen Vorausschritt zu wagen, habe ich hier schonmal grobe Werte unseres Experimentes eingesetzt. Mit  $d = 50 \mu\text{m}$ ,  $p_0 \approx 1000 \text{ mbar}$  und  $p_b \approx 10^{-3} \text{ mbar}$  erhält man für  $x_m \approx 3,35 \text{ cm}$ . Ein sehr großer Wert, wenn man bedenkt, dass man üblicherweise wenige Millimeter nah an den Skimmer fährt und zudem der Wert in der Realität noch größer ist, weil ich hier für  $p_0$  den Dampfdruck im Reservoir bei  $100^\circ\text{C}$  gewählt habe (man weiß noch nicht dass verdampft wird!) und nicht den an der Düse, der garantiert größer sein wird.

### 2.2.3 Clusterbildung

Das zur Clusterproduktion verwendete reine Wasser wird bei Temperaturen um  $100^\circ\text{C}$  und einem entsprechendem Dampfdruck von ca. 1 bar durch eine kurze konische Düse geleitet (Abb. 2.5).

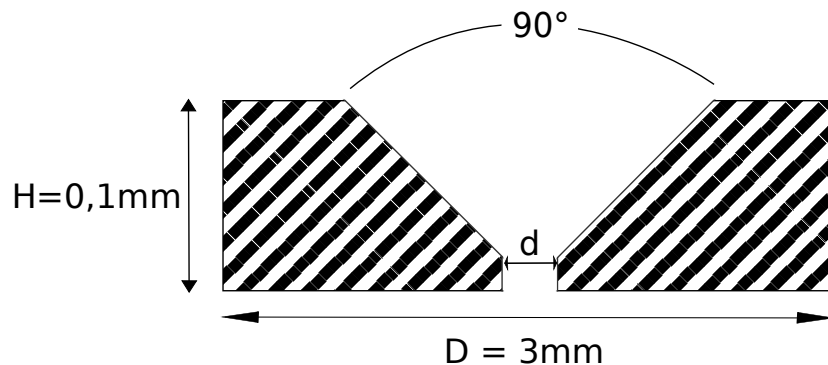


Abbildung 2.5: Abmessungen der von uns benutzten Platin-Blenden von Plano als Düse. Als Düsenöffnung  $d$  haben wir  $30 \mu\text{m}$  und  $50 \mu\text{m}$  benutzt.  $D$  ist der Durchmesser des Plättchens und  $H$  die Höhe. Pfeile normal nachen!

Nachdem es den engsten Querschnitt durchquert hat, kommt es zu einer starken Expansion und damit einhergehend zu einer starken Abkühlung des Gases

(Joule-Thomson-Effekt). Durch das Abkühlen werden die Relativgeschwindigkeiten der Gasmoleküle sehr klein, sodass sich ein gerichteter Teilchenstrom einstellt. Wenn die thermische Energie der Moleküle unter die Bindungsenergie eines Dimers sinkt, kann es durch Dreikörperstöße zur Agglomeration zweier Moleküle kommen. Der dritte Körper ist bei diesem Prozess wichtig zur Bewahrung der Energie und Impulserhaltung. Die entstandenen Dimere dienen nun als Kondensationskeim, an den sich viele weitere Moleküle anlagern können. Allerdings, gibt jeder weiter sich anlagernde Moleküle die Bindungsenergie frei, durch die sich das Cluster aufheizt. Damit wird die Stabilität natürlich eingeschränkt, was dazu führt dass einige Moleküle wieder abdampfen. Wenn ein hoher Gasdruck herrscht, sprich eine große Teilchendichte existiert, gibt es mehr Teilchen die durch Stöße mit dem Cluster die überschüssige Energie abtransportieren können und somit die Clusterbildung unterstützen. Die Größe der Cluster die bei einer Überschallexpansion lässt sich durch eine Boltzmannverteilung beschreiben, deren große Breite proportional zur mittleren Clustergröße  $\langle N \rangle$  ist.

Um auf die Clusterverteilungen in idealen Gasen schließen, benutzt man den empirischen Skalenparameter  $\Gamma$  von Hagena [Hag87]:

$$\Gamma = n_0 d^q T_0^{sq-f/2} \quad (0 < q \leq 1). \quad (2.8)$$

Für axialsymmetrische Flüsse gilt  $s = (f - 2)/4$  und  $q$  ist ein Parameter der experimentell bestimmt werden muss.  $n_0, T_0$  and  $d$  sind die Quellendichte, die Düsentemperatur und der Düsendurchmesser.

Um  $\Gamma$  unabhängig von den Einheiten zu machen wird der reduzierte Skalenparameter

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

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

$$r_{ch} = \frac{m_{atom}}{\rho^{1/3}} \quad \text{und} \quad T_{ch} = \frac{\Delta h_{atom,0}}{k_B} \quad (2.10)$$

$r_{ch}$  bringt hierbei die Eigenschaften des Gases in die Gleichung ein, wobei  $m$  die Atommasse und  $\rho$  die Festkörperdichte ist.  $T_{ch}$  ist die charakteristische Temperatur mit der Sublimationsenthalpie  $\Delta h_{atom,0}$  bei 0 K und der Boltzmannkonstante  $k_B$ . Für Wasser wurden die Werte  $r_{ch} = 3,19 \text{ \AA}$  und  $T_{ch} = 5684 \text{ K}$  ermittelt [BSSB02]. Die mittlere Clustergröße ergibt sich nach Hagena als

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

## 2 Experimentelle Realisierung

wobei  $a$  und  $D$  experimentell ermittelt werden müssen. Hagena hat sich damals für  $D = 33$  und  $a = 2,35$  entschieden. Im Jahre 1996 haben Buck und Krohne herausgefunden, dass man die Parameter  $a$  und  $D$  abhängig von  $\Gamma^*$  wählen sollte um ein genaueres Ergebnis für  $\langle N \rangle$  zu erhalten [BK96]. Für große Werte von  $\Gamma^* > 1800$  bestätigen Sie die Originalformel von Hagena. Für einen mittleren Bereich  $350 \leq \Gamma^* \leq 1800$  Sie die Formel angepasst zu

$$\langle N \rangle = 38,4 \left( \frac{\Gamma^*}{1000} \right)^{1,64}, \quad (2.12)$$

und für  $\Gamma^* < 350$  empfehlen Sie ein Polynom dritten Grades zu verwenden,

$$\langle N \rangle = \exp(2,23 + 7 \cdot 10^{-3} \Gamma^* + 8,3 \cdot 10^{-5} \Gamma^* + 2,55 \cdot 10^{-7} \Gamma^*) . \quad (2.13)$$

*Hier teil mit schnellerer Formel aus ICDBerlin ergänzen!*

Wie schon angedeutet, lässt sich das Prinzip der Skalenparameter auch auf Wasser anwenden, obwohl sich die Thermodynamik von Wasser durch die starken Wasserstoffbrückenbindungen doch sehr von der, der schwach gebundenen idealen Gasen, unterscheidet. In der Publikation von Bobbert *et al.* [BSSB02] wurden die freien Parameter aus Gleichung (2.11) für Wasser zu  $a = 1,886(64)$ ,  $D = 11,60(1,62)$  und  $q = 0,634(68)$  bestimmt. Um  $\Gamma$  unabhängig von der Form der Düse berechnen zu können, wird der effektive Düsendurchmesser

$$d_{eff} = G(f) d / \tan(\beta); \quad \text{mit } G(f) = 0,5(f+1)^{-(f+1)/4} A^{f/2}, \quad (2.14)$$

wobei  $\beta$  der halbe Öffnungswinkel der Düse,  $d$  der Düsendurchmesser und  $A$  eine von Ashkenas und Sherman berechnete Konstante ist, die, bei einem dreidimensional achsensymmetrischen Fluss, den Wert  $A = 3,83$  hat [BSSB02]. Damit ergibt sich für Wasser mit 6 Freiheitsgraden bei ca.  $100^\circ\text{C}$   $G(f = 6) = 0,933$ . Zur Anwendung der Theorie kann man an dieser Stelle eine Beispielrechnung durchführen. Nehmen wir an, es herrscht eine Reservoirtemperatur von  $100^\circ\text{C}$  und dementsprechend einen Druck von 1 bar bzw. eine Teilchendichte  $n_0 = 1,9 \cdot 10^{25}$  Moleküle/cm<sup>3</sup>. Die Düsen haben den Öffnungsdurchmesser 50 bzw. 30  $\mu\text{m}$  und einen halben Öffnungswinkel von  $45^\circ$ . Der effektive Düsendurchmesser ergibt sich gemäß Gleichung (2.14) zu 46  $\mu\text{m}$  respektive 28  $\mu\text{m}$ . Mit  $s = 1$  und der Verwendung von  $d_{eff}$  in Gleichung (2.8) erhält man  $\Gamma = 3,3 \cdot 10^{17}$  bzw.  $2,4 \cdot 10^{17} (\text{cm} \cdot \text{K})^{q-3}$ . Mit Gleichung (2.9) folgt dann  $\Gamma^* = 8535$  bzw. 6231 was schließlich mit (2.11) zu  $\langle N \rangle = 662$  bzw. 365



führt. Das ist eine zu große mittlere Teilchendichte, wenn wir nur hauptsächlich Dimere erzeugen wollen. Wenn man sich die Formeln ansieht, kann man erkennen, dass eine höhere Düsentemperatur und gleichzeitig niedrigerer Teilchendruck zu kleineren Clustern führen. Das ist kein Widerspruch, denn Reservoir und Spitze werden bei uns separat geheizt und man kann ein Trägergas, z.B. Helium, hinzufügen, und damit den Partialdruck vom Wasserdampf erniedrigen und gleichzeitig durch die Gesamtdruckerhöhung für einen höheren Fluss sorgen. Ein weiterer nützlicher Effekt des Trägergases ist, dass dieses bei Dreikörperkollisionen mit zwei Wassermolekülen, den Impuls abtransportieren kann. Durch Variation der Masse des Gases lässt sich damit der Clusterprozess optimieren.



## 3 Technische Umsetzung

Der Hauptbestandteil dieser Arbeit bestand darin, eine stabile und praktikable Wasserclusterquelle zu konstruieren, die einen vakuumseitiges Reservoir besitzt und während des Betriebes wiederbefüllt werden kann, damit die bestmöglichen Voraussetzungen für Experimente damit herrschen. (Hier etwas sinnvolles ausdenken + kleine Inhaltsübersicht)

### 3.1 Quelle

Das Design wurde gewissermaßen durch die Arbeiten von Mucke [Muc11] und Wechselberger [Wec14] inspiriert und durch eigene Überlegungen verfeinert. Die dezidierte Wasserclusterquelle ist in Abbildung 3.1 im Querschnitt dargestellt. Wie aus der Abbildung zu erkennen ist, hat die Quelle an sich eine Länge von 114 mm und einen Außendurchmesser von 35mm, welcher auf den maximalen Innendurchmesser des Manipulatorbalgs abgestimmt ist **haha**. Die in braun angedeuteten Haltestangen sorgen für eine starre Verbindung zwischen Quelle und Flansch und schützen die Rohrleitungen, in dunkelgrün, davor, durch die Last der Quelle zu verbiegen. Die Haltestangen haben eine Länge von 240 mm, die in Rücksicht auf die Jetkammer gewählt wurden und es ermöglichen beliebig nahe an den Skimmer heranzufahren (**Hier Bild Düse mit Jetkammer referenzieren und das Bild in Anhang stecken?**). Die gesamte Quelle wird mit Heizdraht von außen geheizt. Dabei wird die Spitze und das Reservoir separat umwickelt, damit diese Bauteile separat geheizt werden können. Da das Reservoir durch die Heizpatrone schon eine effektive Lösung zum Erhitzen des Wassers hat ist die Umwicklung nicht besonders notwendig, und wird voraussichtlich nur leicht betrieben um die Kondensation an den Wänden zu hemmen. Die Heizdrahtwicklung an der Spitze ist hingegen für die Stabilität der Quelle essentiell. Die Spitze wird so geheizt, dass sie immer etwa 10-20 Kelvin über der Reservoirtemperatur ist, damit keine Wassertropfen an den Wänden kondensieren und damit für schubartige Austöße aus der Düse oder

### 3 Technische Umsetzung

sogar zur Vereisung der Düse führen würden.

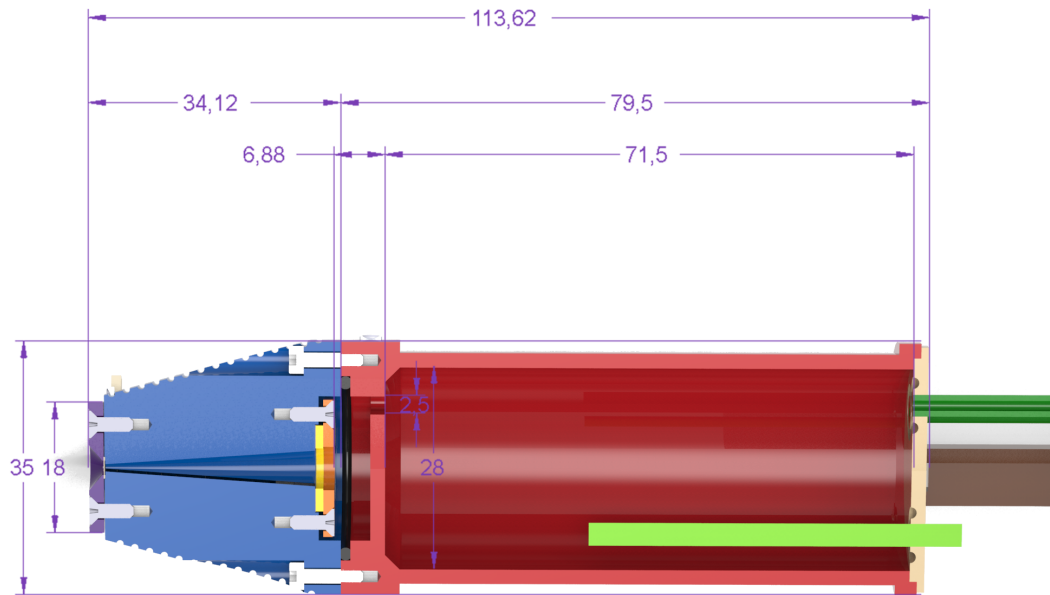


Abbildung 3.1: Querschnitt der konstruierten Wasserclusterquelle ohne Heizdraht (maßstäblich). Maße in mm. Die Wasserclusterquelle ist aus Edelstahl. Die einzelnen Bauteile sind farblich hervorgehoben (von links nach rechts): lila: Düsenhalterplatte; blau: Spitze; gelb: Filter; orange: Filterhalterplatte; schwarz: O-Ring; rot: Reservoirkammer; hellgrün: Heizpatrone; beige: Reservoirrückwand; dunkelgrün: Rohrleitungen; braun: Haltestangen; Die Düse selbst ist zwischen der Spitze und der Düsenhalterplatte zu erkennen.

(ICDBerlin schaun...Seite 100)

**Wie fehlt hier die Überleitung** Das Reservoir ist über eine Trennwand, die oben ein kleines Loch besitzt, mit der Spitze verbunden. Da Wasser in das Reservoir gefüllt wird, welches nicht durch das Loch ausfließen darf, ist die Orientierung der Düse beim Einbau zu betrachten. Die Reservoirkammer wird von außen mit einer Heizdrahtwicklung geheizt und hat an der Rückseite drei Swagelok-Rohre mit jeweils 3mm Außendurchmesser. Zwei dieser Rohre dienen der Wasserbefüllung und sind außerhalb des Vakuums mit durchsichtigen

PVC-Schläuchen mit Spritzen verbunden. Eines der Rohre geht relativ mittig in das Reservoir ein und das Andere befindet sich knapp unter der Kante des erwähnten Loches. Durch das tieferstehende Rohr wird das Wasser mit einer Spritze per Hand gegen den Betriebsdruck eingeführt und das höherstehende Rohr saugt gleichzeitig mit einer weiteren Spritze dasselbe Volumen ab bis im transparenten Silikonschlauch Wasser zu erkennen ist. Sobald dies der Fall ist, ist der Maximalfüllstand erreicht und das Befüllen beendet. In dem Reservoir finden maximal 36 ml Wasser Platz. **Formeln/Rechnung dazu?** So tief, wie es die Schweißung zugelassen hat, befindet sich eine 50W(?) Heizpatrone von Watlow, welche das Wasser erhitzen wird, sodass der gewünschte Wasserdampfdruck eingestellt wird. Der Dampfdruck des Wassers entspricht auch etwa dem Stagnationsdruck hinter der Düse, wobei man beachten muss, dass die konische Form der Aushöhlung den Druck bis zur Düse erhöhen wird. Wie sehr dieser Effekt eine Rolle spielt muss experimentell geprüft werden. Es besteht die Möglichkeit den Stagnationsdruck zu erhöhen, indem man ein zusätzliches Gas koexpandieren lässt. Diese Funktion erfüllt das höchstgelegene Swagelok-Rohr. Mit dieser Methode kann man die Expansionsbedingungen für eine bestimmte Clustergröße optimieren, oder auch gemischte Cluster produzieren. Am vorderen Ende des Reservoirs, nahe der Trennwand, sind von außen zwei Pt-100-Thermofühler angebracht, um die Temperatur des Reservoirs abschätzen zu können und um Referenzwerte für den aktuellen Zustand zu liefern, damit bestimmte Einstellungen reproduzierbar sind. In Abbildung 3.2 sieht man den vorderen Teil der Wasserclusterquelle, der als Spitze bezeichnet wird etwas mehr im Detail. Die Spitze wird gegenüber dem Reservoir mit einem O-Ring gedichtet und ringsum verschraubt. **(ist das deutsch?)** Bei Betrieb entsteht im Reservoir Wasserdampf, das durch das Loch in der Trennwand in die Spitze strömt. In der Spitze ist eine konische Aushöhlung durch die der Wasserdampf zu der Düse kommt. Vor der konischen Aushöhlung ist ein bleigedichteter, gesinterter Filterring mit 5µm bzw. 10µm Porenweite zum Einsatz vorgesehen. Zwischen der Trennwand und dem Filterring ist ein kleiner Hohlraum in den theoretisch ein Feststoff hineingegeben werden kann, um dotierte Cluster (englisch: doped clusters) über das Pick-Up-Verfahren zu produzieren. Nachdem das Gas die konische Aushöhlung durchquert hat, muss es die Düse passieren um ins Vakuum zu expandieren (**Detailaufnahme**). Als Düse wird eine Platin/Iridium-Blende von Plano mit 50µm bzw. 30µm Lochdurchmesser verwendet (siehe Abb. 2.5) **(warum diese Abmessungen, schon immer so, Preise?)**, die mit einem dünnen Bleiring gedichtet und mit einer Halteplatte

### 3 Technische Umsetzung

fest angepresst wird.

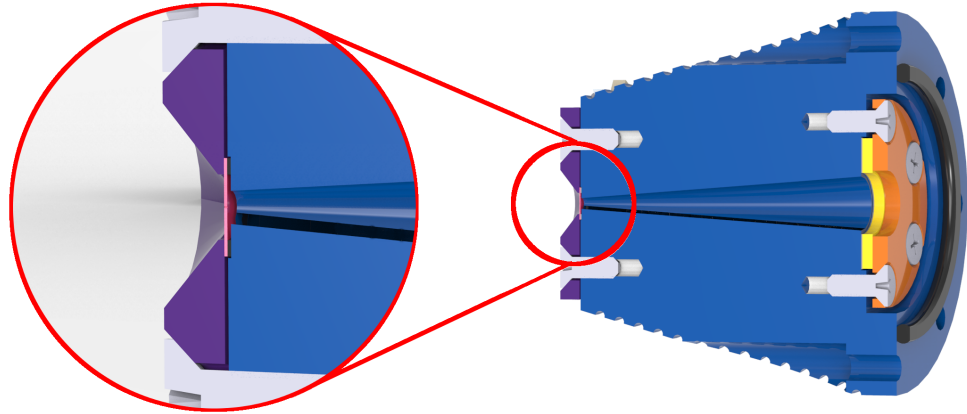


Abbildung 3.2: Leicht gekippte Detailansicht der Spitze. Von links nach rechts:  
lila: Düsenhalteplatte; pink: Düse; blau: Spitze; gelb: Filter;  
orange: Filterhalteplatte; schwarz: O-Ring;

Die ganze Spitze verjüngt sich in Richtung der Düse und wird von außen gleichmäßig durch einen Heizdraht geheizt. Dadurch, dass sich bis zur Spitze hin immer weniger Edelstahl zwischen Heizdraht und dem Gas in der Aushöhlung befindet, stellt sich ein Wärmegradient ein. Vorne an der Spitze befinden sich abermals 2 Pt-100-Thermofühler, die dazu dienen die ungefähre Temperatur der Düse abschätzen zu können und Referenzwerte liefern mit denen man die Heizbedingungen an der Spitze wieder rekonstruieren zu kann. Die drei anfangs erwähnten Rohrleitungen werden direkt durch den Flansch nach außen geführt mit dem die gesamte Konstruktion an einem xyz-Manipulator befestigt wird. Der xyz-Manipulator ermöglicht es den Targetjet in alle Raumrichtungen zu justieren. Der Manipulator und die Wasserclusterquelle werden als Einheit an der ersten Jetstufe montiert. Die Stromleitungen, die für die Verkabelung von Thermofühlern, Heizdrähten und der Heizpatrone verwendet werden, werden durch mehrpolige Durchführungen in dem Manipulatorflansch übersetzt.

Eine für spätere Anwendungen vielleicht interessante Eigenschaft ist, dass dieser Jet auch in vertikaler Position betrieben werden kann.

Die genauen Konstruktionszeichnungen der Düse sind im Anhang beigefügt.

## 3.2 Skimmer

Wie schon im Kapitel 2.2.2 Überschallexpansion beschrieben unterteilt sich der Gasstrom in den Bereich der „zone of silence“ und den von Schockwellen und turbulenten Strömungen dominierten Restbereich. Die experimentell geeigneten Clustertargets müssen aus der zone of silence extrahiert werden. Dies wird mit einem Skimmer realisiert. Ein Skimmer ist eine speziell entworfene konische Apertur, die einen schmalen Molekülstrahl durchlässt und die Zerstörung dessen Intensität und Clusterbeschaffenheit durch an den Wänden reflektierten Streustrahlen weitestgehend verhindert.

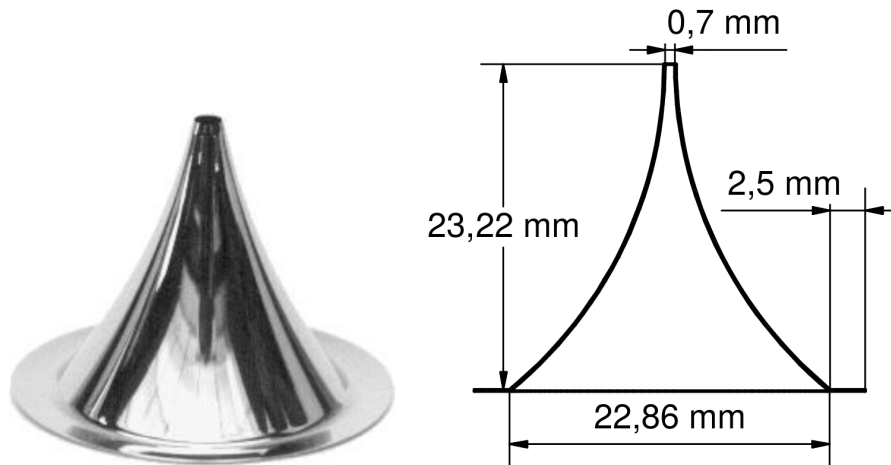


Abbildung 3.3: links: Bild eines Skimmers von Beam Dynamics Inc.  
rechts: typische Größenordnung der Abmessungen eines Skimmers. [Rau04]

In Abbildung 3.3 sieht man einen beispielhaften Skimmer, der auch ein Gefühl für die Größenordnungen der Abmessungen vermittelt. Die Wandstärke des aus Nickel bestehenden Skimmers beträgt an der Spitze unter  $10\mu\text{m}$  (**Webseite angeben?**). Im Gegensatz zu früheren Ausführungen ist er nicht mehr kegelförmig, sondern wird nach oben hin schmaler. Der flache Winkel an der kleinen Öffnung bewirkt, dass der abgeschälte Teil sanft abgelenkt wird und in den Molekülstrahl zurückreflektiert werden kann. Durch die Verbreiterung nach unten bekommen die abgeschälten Moleküle bzw. Atome eine größere

### 3 Technische Umsetzung

Geschwindigkeit normal zur Strahlachse und werden somit daran gehindert zurückzustreuen.

Die perfekte Position der Düse lässt sich abschätzen wenn man die Innenwandung des Skimmers zu einem Kegel verlängert. An der Spitze des imaginären Kegels soll die Düse positioniert werden, denn so können die, in erster Näherung radial austretenden Atome oder Moleküle weder an der Skimmerinnenwand noch an der Skimmeraußenwand reflektiert werden (siehe Abb. 3.4, mitte). Und da sich die Skimmerspitze in der zone of silence befindet, wird die größtmögliche Menge der „guten“ Moleküle durchgelassen, wennauch damit auch die schlechteste Fokussierung des Strahls in Kauf genommen wird.

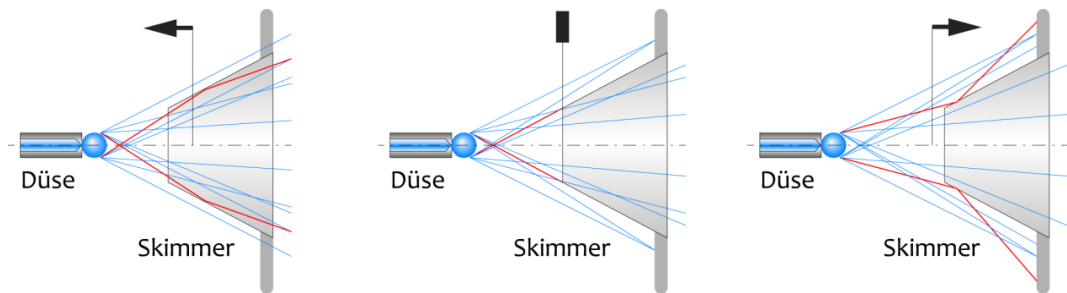


Abbildung 3.4: Strahlverlauf bei verschiedenen Entfernungen zum Skimmer.  
links: Zu nahe, Reflektionen an der Skimmerinnenwand; mitte:  
Richtig, Teilchen werden weder Innen noch Außen am Skimmer gestreut; rechts: Zu weit entfernt, man büßt Intensität ein;  
**Stichworte ok?** [Mül12]

Wenn die Düse zu nah am Skimmer positioniert wird, erhält man zwar eine noch größere Intensität des Moleküljets, aber die Teile des Strahls, die an den Innenwänden des Skimmers reflektiert werden streuen wieder in den Strahl selbst und stoßen da mit anderen Targetteilchen (vgl. Abb. 3.4, erstes Bild). Dadurch wird die Eigenschaft, dass die Targetteilchen nur sehr geringe Relativgeschwindigkeiten haben, zerstört und der Jet somit unbrauchbar für eine Verwendung im REMI. Denn wie schon im Kapitel 2.2 erläutert wurde, ist ein Jet mit geringer (unbekannter) Impulsverteilung essentiell, damit die Impulse der Reaktionsfragmente nicht im Hintergrund verschwinden. Sitzt die Düse allerdings zu weit weg von dem Skimmer, wird ein zu großer Teil des Molekülstrahls „abgeskimmt“ und die Intensität des Targetstrahls leidet darunter (siehe Abb. 3.4, drittes Bild). Da wir ohnehin nur eine Ausbeute von wenigen Prozent an Dimeren erhoffen, würde das die Messzeit nur unnötig in die



Länge ziehen. Hat man einmal die optimale Entfernung der Düse zum Skimmer berechnet, wird die xy-Positionierung durch Maximierung der Drücke in den Jetstages zwei und drei vorgenommen.

### 3.3 Jetstufen

Muss ich erklären dass gepumpt wird und wie gepumpt wird? Bei Betrieb der Wasserclusterquelle erwarten wir einen Druck von  $p_b \approx 10^{-4}$  mbar in der ersten Jetstufe. Wie der Name schon suggeriert gibt es davon mehrere. Der Grund dafür ist, dass man später bei dem Experiment von einem Druck von ca. 1 bar in der Düse auf etwa  $\approx 10^{-12}$  mbar in der Hauptkammer kommen möchte. Realisiert wird das durch beliebig viele differentielle Pumpstufen, auch als Jetstufen bezeichnet. In dem experimentellen Aufbau, in dem die eingangs besprochenen Experimente stattfinden werden sind 6 Jetstufen im Einsatz (siehe Abb. 3.5).

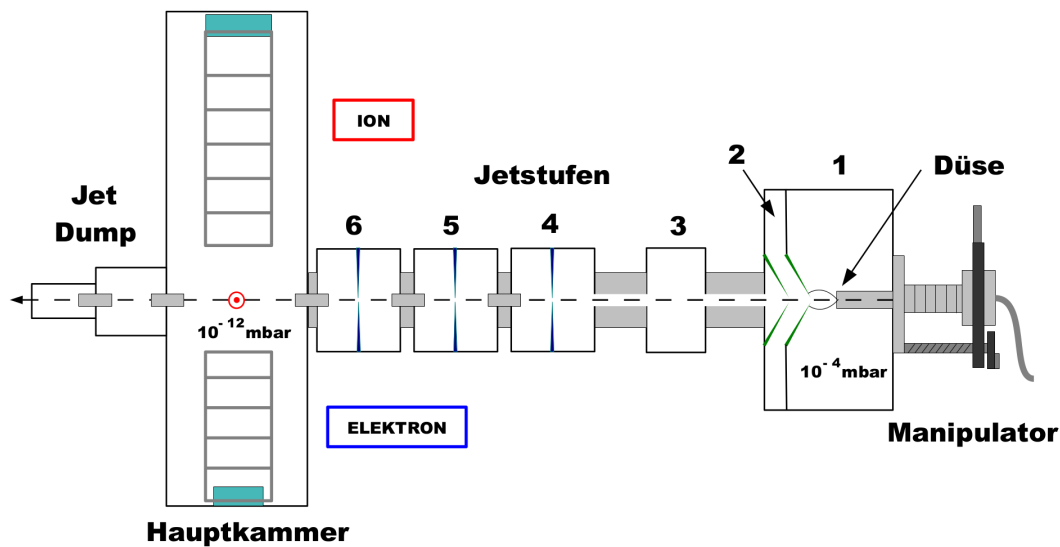


Abbildung 3.5: Querschnitt durch den REMI-Aufbau in Hamburg. Die Nummern 1-6 kennzeichnen die Jetstages. In der Hauptkammer des REMI ist der Laserfokuspunkt mit dem roten Punkt gekennzeichnet und die Detektoren in türkis angedeutet. Der Jetstrahl ist als graue gestrichelte Linie gekennzeichnet. [Sch11]

### 3 Technische Umsetzung

In dem experimentellen Aufbau, den ich in dieser Arbeit zu Testzwecken in Betrieb nehmen werde, sind auch 6 Jetstufen verbaut. **macht keinen sinn das doppelt zu nennen, oder?** Um die Düse vor dem Skimmer zu positionieren sind vorerst nur die ersten drei Jetstufen von Interesse. Die Z-Einstellung wurde schon im vorigen Abschnitt 3.2 behandelt. Um die xy-Positionierung zu optimieren müssen die Drücke in den Jetstufen zwei und drei maximiert werden. Das hat den Nutzen, dass man somit eine Position findet an der besonders viel des Molekularstrahls den Skimmer passiert. Geht man von einer perfekt radialen Ausbreitung in der Zone der Ruhe aus, was in erster Näherung in der Nähe der Düse vertretbar ist, ist es in Bezug auf die konische Form des Skimmerspitze ersichtlich, dass diese Position eine zentrische Ausrichtung zur Skimmeröffnung darstellt. In der zweiten Jetsufe befindet sich ein weiterer Skimmer, der aber eine leicht größere Öffnung als der Erste besitzt. Die beiden Skimmer sind auf einer Achse ausgerichtet, sodass man den zweiten Skimmer nicht auch noch in Bezug auf den ersten ausrichten muss. Seine Hauptfunktion besteht darin, die Bereiche des Targetsstrahls abzuschälen, die die größte Bewegung orthogonal zur Strahlachse besitzen. Dadurch wird eine gewisse konstante Strahldichte auf dem Weg zum Laserfokus gewährleistet. **(Der Satz ist zu larifari)** Die restlichen Jetstufen 4-6 sind mit verstellbaren Schlitzen ausgestattet, die es erlauben den Strahl weiter in seiner räumlichen Ausdehnung zu beschneiden und damit auch den Hauptkammerdruck zu wahren. Nach allen Einstellmaßnahmen besitzt der Targetstrahl am Fokuspunkt ungefähr einen Durchmesser von 1mm (?) und vernachlässigbar geringe **transversale Impulskomponenten**. Nach dem der Strahl die Reaktionskammer passiert hat ist ein sogenannter Auffänger (englisch: dump) in der Strahlachse positioniert, der dafür sorgt, dass die restlichen Moleküle des Strahls aus dem System abgepumpt werden (siehe Abbildung 3.5).

**Noch erklären was ein Jet überhaupt ist?**

## 4 Experiment

Inbetriebnahme/Charakterisierung der Quelle

**Aufbau kann ich schonmal erklären, Quadrupol auch?**

Positionsbestimmung a lá Vakuumjetexpansion gut. seite 35

Mal schaun was ich bekomme. Zuerst hab ich nur die Drücke der Jetstages zu Verfügung. Wenn ich irgendwie sicher sein kann, dass das ganze sauber funktioniert vielleicht mit REMI ausprobieren um zu sehen welche Cluster man denn bekommt?

Sicher sein heißt, dass die Drücke alle im „richtigen“ Bereich bleiben und stabil sind?

**4.1 Weiß noch nicht was da so bei rumkommt,  
aber denke dass man da erste Drücke auslesen  
kann. Evtl steht ein Quadrupol-Spektrometer  
zur verfügung mit dem man das was  
rasukommt analysieren kann**



## **5 Zusammenfassung**



## 6 Anhang

Hier alle Konstruktionszeichnungen und Referenzen





# Literaturverzeichnis

- [Bar07] Silko Barth. *Untersuchung des interatomaren Coulomb-Zerfalls in schwach gebundenen Systemen*. PhD thesis, 2007.
- [BK96] Udo Buck and Reinhard Krohne. Cluster size determination from diffractive he atom scattering. *The Journal of chemical physics*, 105(13):5408–5415, 1996.
- [BMP88] Giorgio Benedek, Thomas Patrick Martin, and Gianfranco Pacchioni. *Elemental and molecular clusters*. Springer-Verlag Berlin, 1988.
- [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.
- [Fec14] Lutz Fechner. *High resolution experiments on strong-field ionization of atoms and molecules*. PhD thesis, Heidelberg, Univ., Diss., 2014, 2014. Mit Zfassungen in dt. und engl. Sprache.
- [Gen08] Stephan General. Massenspektroskopische untersuchung von wasserstoffclustern 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.
- [Hag87] Otto F Hagen. Condensation in free jets: Comparison of rare gases and metals. *Zeitschrift für Physik D Atoms, Molecules and Clusters*, 4(3):291–299, 1987.

- [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.
- [KV13] Uwe Kreibig and Michael Vollmer. *Optical properties of metal clusters*, volume 25. Springer Science & Business Media, 2013.
- [LB07] Lawrence Lohr and S M Blinder. The weakest link: Bonding between helium atoms. *Journal of Chemical Education*, 84(5):860, 2007.
- [LMK<sup>+</sup>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<sup>+</sup>09] A. Moudens, R. Georges, M. Goubet, J. Makarewicz, S. E. Lokshtanov, and A. A. Vigin. Direct absorption spectroscopy of water clusters formed in a continuous slit nozzle expansion. *The Journal of Chemical Physics*, 131(20), 2009.
- [Muc11] Melanie Mucke. *Employing electron-electron coincidence techniques to investigate the autoionisation of clusters*. PhD thesis, Technische Universität Berlin, 2011.
- [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.
- [Rau04] Tobias Rausmann. *Arbeiten zum Aufbau eines Clustertargets für  $4\pi$ -Experimente an Speicherringen und Untersuchungen zur Clusterproduktion*. PhD thesis, Diplomarbeit, IKP WWU Münster, 2004.

- [SAS<sup>+</sup>] K. Schnorr, S. Augustin, G. Schmid, S. Meister, H. Lindenblatt, A. Rudenko, C.D. Schröter, T. Pfeifer, and R. Moshhammer. Inter-molecular coulombic decay in mixed water–rare-gas clusters.
- [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<sup>+</sup>] K. Schnorr, G. Schmid, S. Augustin, A. Rudenko, D. Rolles, M. Kübel, C. Jendrzewski, M.F. Kling, B. Erk, R. Boll, C.D. Schröter, T. Pfeifer, and R. Moshhammer. 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<sup>+</sup>03] Joachim Ullrich, Robert Moshhammer, 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.
- [Wec14] Natascha Desirée Wechselberger. Untersuchung der aufbruchskanäle von uracil-wasser-clustern nach bestrahlung mit vuv-licht, 2014.

## **Eigenständigkeitserklärung**

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

Heidelberg den, .....

.....

Viktor Adam