

# Fragmentationsdynamik von Edelgasclustern induziert durch Pulse weicher Röntgenstrahlung

vorgelegt von  
Diplom-Physiker  
Matthias Hoener  
aus Uetersen

Von der Fakultät II - Mathematik und Naturwissenschaften  
der Technischen Universität Berlin  
zur Erlangung des akademischen Grades  
Doktor der Naturwissenschaften  
Dr.rer.nat.

- genehmigte Dissertation -

Vorsitzender: Prof. Dr. Mario Dähne  
Berichter: Prof. Dr. Thomas Möller  
Berichter: Prof. Dr. Peter Zimmermann

Tag der wissenschaftlichen Aussprache: 21.02.2008

Berlin 2008

D 83



**Die selbständige und eigenhändige Anfertigung  
versichere ich an Eides statt.**

**Datum / Unterschrift**



## Kurzfassung:

In dieser Arbeit wird die Fragmentationsdynamik von Edelgasclustern untersucht. Durch die Verwendung von zwei Lichtquellen mit sehr unterschiedlichen Leistungsdichten und zwei Detektorsystemen konnte die Fragmentation in verschiedenen Regimen betrachtet werden. Induziert wurde die Fragmentation durch Synchrotronlicht, sowie durch hoch intensive XUV-Pulse des Freien Elektronen Lasers FLASH am HASYLAB in Hamburg. Als Detektorsysteme wurde ein multikoinzidenzfähiges, impulsauflösendes Reaktionsmikroskop (COLTRIMS) und ein masseauflösendes Flugzeit-Spektrometer verwendet. Das Reaktionsmikroskop wurde im Rahmen dieser Arbeit für die speziellen Anforderungen der Cluster-Fragmentation angepasst und stellt somit den Kernpunkt dieser Arbeit dar.

Das Ziel der Experimente am Synchrotron war es, den Fragmentationsprozess von Edelgasclustern unterschiedlicher inneren Strukturen um die Rayleigh-Instabilitäts-Barriere (Spaltung oder Coulomb-Explosion) zu untersuchen und mit dem Modell für flüssige Tropfen von Lord Rayleigh zu vergleichen. Die Verwendung des Reaktionsmikroskops ermöglichte es erstmals, detaillierte Informationen über die Fragmentationsgeometrie von sehr komplexen Systemen wie Clustern zu erhalten. Die positiv geladenen Fragmente der Ne-Cluster zeigen für den Spaltprozess eine sehr anisotrope Winkelverteilung und einen großen Ladungstrennungsabstand. Die gemessene Spaltungsgeometrie von Xe-Clustern ist hingegen nahezu isotrop und der Ladungstrennungsabstand ist von der Größenordnung des interatomaren Abstandes. Dieser Unterschied deutet darauf hin, dass die Ladungsträger in weichen Ne-Clustern eine höhere Mobilität besitzen als in festen Xe-Clustern. Im Fall der Coulomb-Explosion verhalten sich beide Systeme sehr ähnlich. Die kleinen geladenen Fragmente verlassen den Cluster nach dem Ladungstransfer isotrop. Die Daten zeigen den starken Einfluss der inneren Struktur auf die Fragmentation von kleinen Teilchen, die aus wenigen Atomen aufgebaut sind.

Mit dem FLASH FEL stand zum ersten Mal eine Lichtquelle für extrem intensive XUV-Pulse zur Verfügung. Durch die Wechselwirkung von dieser hoch intensiven, kurzwelligen Strahlung wird jedes Atom im Cluster mehrfach ionisiert.

In dieser Arbeit wurde erstmals das Fragmentationsverhalten von, durch die FLASH Pulse mehrfach geladenen, heterogenen Clustern, bestehend aus Xe- und Ar-Atomen, mit einem masseauflösenden Flugzeitspektrometer untersucht. Durch die Verwendung von zwei verschiedenen Clusterkonsituenten konnte anhand des Flugzeitspektrums der Ladungstransfer innerhalb des Clusters rekonstruiert werden. Es zeigt sich eine starke Abhängigkeit der Fragmentation von der Clusterzusammensetzung. Große XeAr-Cluster deren kleiner Xe-Kern von einer Ar-Hülle umschlossen wird, zeigen ein sehr überraschendes Fragmentationsverhalten. Die geringe Intensität von Xe-Fragmenten im Flugzeitspektrum weist darauf hin, dass Xe-Atome im Inneren des Clusters mit quasi freien Elektronen zu neutralen Atomen rekombinieren. Während die hoch geladene Ar-Hülle in einer Coulomb-Explosion abgestoßen wird, kommt es zu einer Verzögerung der Expansion des Xe-Kerns. Diese Verzögerung kann für zukünftige abbildende Verfahren mit Röntgenlasern von großer Bedeutung sein, da sie die extremen Anforderungen an die Länge der Pulse entspannt.

## Abstract:

In this work the fragmentation dynamics of rare gas clusters were investigated. The use of two light sources with very different power densities and two detection systems, the fragmentation could be probed in very different regimes. The synchrotron source DORIS was used for experiments in the regime of low intensity radiation and the free electron laser FLASH at HASYLAB for the very intense regime. As detection systems a multicoincidence, momentum resolving reaction microscope (COLTRIMS) and a mass resolving time of flight spectrometer were used. The reaction microscope was designed for the special requirements of cluster fragmentation experiments.

The goal of the synchrotron experiments was the investigation of the fragmentation behavior of rare gas clusters of different inner structures around the Rayleigh-Instability-Barrier (fission or Coulomb explosion). These results were compared with a modified liquid drop model of Lord Rayleigh. The reaction microscope was used for the first time to explore the fragmentation geometry of clusters in detail. For the fission case soft Ne-clusters shew a very liquid like fragmentation behavior, whereas solid Xe-clusters deviated from this ideal drop pattern. These different responses to the generated charge could be explained with the different ion mobilities in the clusters. In the explosion regime both systems disintegrated isotropically into small ions and in agreement with the liquid drop model. This data show the strong influence of the inner structure on fragmentation for small particles consisting of a few atoms.

The free electron laser FLASH is the first light source for very intense short XUV pulses. The ultra high intensity and the short wavelength of the FLASH radiation led to highly charged atoms and to many new physical processes.

In this work the fragmentation behavior of heterogeneous rare gas clusters charged by the intense XUV pulses has investigated for the first time. The heterogeneous clusters consisted of Xe- and Ar-atoms. Through the detection of the two different cluster constituents with a time of flight spectrometer, the charge separation processes and the dissociation mechanisms could be reconstructed. The data shew that the fragmentation depends sensitively on the structure of the cluster. Large XeAr-clusters, consisting of a small Xe-core and several Ar-layers, shew a very unexpected fragmentation behavior. A low intensity of detected Xe-fragments, although multiply ionized during the light pulse, suggested that the charged Xe-core recombined with quasi free electrons. The outer highly charged Ar-layer disintegrated via Coulomb explosion. This recombination led to a delayed expansion of the inner Xe-core. Such a delay could be of major interest for upcoming imaging experiments with x-ray free electron lasers, since it relaxes the strong requirements on the length of the pulses.

# Inhaltsverzeichnis

|          |   |           |
|----------|---|-----------|
| <b>1</b> | <b>Einleitung und Motivation</b>  | <b>1</b>  |
| <b>2</b> | <b>Experimentelle Grundlagen</b>  | <b>3</b>  |
| 2.1      | Eigenschaften und Herstellung von Edelgasclustern . . . . .   | 3         |
| 2.2      | Dotierung von Edelgasclustern . . . . .   | 7         |
| 2.3      | Eigenschaften von Synchrotronstrahlung . . . . .  | 9         |
| 2.4      | Freier Elektronen Laser und XUV-Pulse . . . . .   | 12        |
| <b>3</b> | <b>Theoretische Grundlagen: Wechselwirkung von Clustern mit VUV-Pulsen</b>                                    | <b>17</b> |
| 3.1      | Ionisierung von Atomen und Clustern im linearen Regime der Wechselwirkung . . . . .                           | 17        |
| 3.2      | Fragmentation von Edelgasclustern: Spaltung / Explosion . . . . .   | 27        |
| 3.3      | Ionisierung von Atomen und Clustern im nicht linearen Regime der Wechselwirkung . . . . .                     | 31        |
| 3.4      | Dynamik von Ladungsträgern in intensiven VUV-Laserfeldern . . . . .   | 33        |
| 3.5      | Strukturbestimmung von Molekülen und Clustern durch Streuung mit intensiven XUV- und Röntgen-Pulsen . . . . . | 35        |
| <b>4</b> | <b>Aufbau eines Reaktionsmikroskops für Experimente mit Clustern</b>  | <b>41</b> |
| 4.1      | Das COLTRIMS-Prinzip . . . . .  | 41        |
| 4.2      | Simulationen von verschiedenen Detektorgeometrien . . . . .   | 47        |
| 4.3      | Inbetriebnahme des Reaktionsmikroskops . . . . .  | 53        |
| 4.4      | Optimierung der einzelnen Signale und die Datenaufnahme . . . . .   | 58        |

|          |   |            |
|----------|---|------------|
| 4.5      | Datenverarbeitung . . . . .   | 65         |
| <b>5</b> | <b>Ionisierung von Edelgasclustern mit XUV-Pulsen im linearen Regime der Wechselwirkung</b>                               | <b>73</b>  |
| 5.1      | Experimenteller Aufbau zur impuls aufgelösten Untersuchung der Fragmentation von Edelgasclustern . . . . .                | 73         |
| 5.2      | Ergebnisse und Diskussion: Impuls aufgelöste Untersuchung des Fragmentationsprozesses von Edelgasclustern . . . . .       | 79         |
| 5.2.1    | Fragmentationskanäle von Ne- und Xe-Clustern für die Fälle der Spaltung und der Explosion . . . . .                       | 80         |
| 5.2.2    | Winkelbeziehungen der Impulsvektoren aller Spalt- und Explosions-Fragmente . . . . .                                      | 82         |
| 5.2.3    | Analyse der kinetischen Energien und der Ladungstrennungsabstände aller Ne- und Xe-Fragmente . . . . .                    | 84         |
| 5.2.4    | Fragmentationsmodelle der untersuchten Spaltungs- und Explosionsprozesse für Ne- und Xe-Cluster . . . . .                 | 88         |
| 5.3      | Abschließende Bemerkungen . . . . .   | 97         |
| <b>6</b> | <b>Wechselwirkung von hoch intensiven XUV-Pulsen mit heterogenen Edelgasclustern</b>                                      | <b>101</b> |
| 6.1      | Experimenteller Aufbau zur Flugzeitspektroskopie von Coulomb explodierenden heterogenen Edelgascluster . . . . .          | 102        |
| 6.2      | Ergebnisse und Diskussion: Ladungsrekombination und verzögerte Coulomb-Explosion in heterogenen Edelgasclustern . . . . . | 106        |
| 6.2.1    | Fragmentationsdynamik von hoch angeregten, schwach dotierten Ar-Clustern . . . . .  | 108        |
| 6.2.2    | Ladungsrekombination und verzögerte Coulomb-Explosion in hoch angeregten XeAr-Core-Shell-Clustern . . . . .               | 111        |
| 6.3      | Abschließende Bemerkungen . . . . .   | 115        |
| <b>7</b> | <b>Zusammenfassung und Ausblick</b>   | <b>117</b> |
| 7.1      | Zusammenfassung . . . . .   | 117        |
| 7.2      | Ausblick . . . . .  | 119        |
|          | <b>Abbildungsverzeichnis</b>  | <b>121</b> |

**Tabellenverzeichnis**

**125**

**Literaturverzeichnis**

**126**



# Kapitel 1

## Einleitung und Motivation

Die Clusterphysik hat sich in den vergangenen Jahren zu einem sehr dynamischen Gebiet der Forschung entwickelt. Dieses relativ junge Forschungsfeld stellt das Bindeglied zwischen Atomphysik auf der einen Seite und der Festkörperphysik auf der anderen Seite dar [1, 2, 3]. Durch Variation der Clustergröße lässt sich der Bereich vom Atom bis zum makroskopischen Festkörper untersuchen und somit die Entwicklung vieler fundamentaler physikalischer Größen von mikroskopischen bis hin zu makroskopischen Dimensionen verfolgen [4, 5, 6, 7]. Durch die Wechselwirkung von Clustern mit Licht ist es möglich, Informationen über die physikalischen Eigenschaften der verschieden großen Systeme zu erhalten.

Die grundlegenden Fragen, die sich für die Wechselwirkung von Licht mit Materie stellen, sind: Wie reagieren kleine Teilchen, die durch Ionisierung instantan aufgeladen werden? Wie relaxiert das angeregte System? Welche Zerfallskanäle dominieren den Prozess? Welche Rolle spielt der Ladungszustand, die Größe und die innere Struktur der Systeme? Welchen Einfluss hat die Pulsstruktur der anregenden Strahlung auf die Fragmentationsdynamik? Wie wird das lokale Ladungsungleichgewicht ausgeglichen? Wie funktioniert Ladungstransport in einem mehrfachionisierten System? Die Beantwortung dieser fundamentalen Fragen ist wesentlich für das Verständnis der Fragmentation von Edelgasclustern und anderen komplexeren Systemen wie zum Beispiel Biomolekülen. Außerdem bilden sie die experimentelle Grundlage für kommende Experimente an hochintensiven Röntgenlasern.

In dieser Arbeit wurde die Fragmentationsdynamik von Edelgasclustern in Abhängigkeit ihrer Größe, ihres Ladungszustandes, ihrer inneren Struktur sowie der Intensität der anregenden Strahlung untersucht.

Die Experimente wurden an zwei unterschiedlichen Strahlungsquellen durchgeführt. Zum einen wurden hoch energetische Photonen der Synchrotronlichtquelle DORIS III am HASYLAB in Hamburg genutzt. Mit dieser Lichtquelle können Cluster durch Absorption eines Photons ionisiert werden. Durch anschließende Auger-Zerfälle kann sich

der Cluster weiter aufladen und fragmentieren. Diese Fragmentation wurde mit einem im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Reaktionsmikroskop untersucht. Dieses neuartige Detektorsystem ermöglichte es zum ersten Mal den Fragmentationsprozess von Clustern impuls aufgelöst zu untersuchen und somit sehr genau zu quantifizieren. Die so erhaltenen Daten wurden mit einem modifizierten Modell für flüssige Tröpfchen von Lord Rayleigh sowie mit auf diesen Modell basierenden neuen theoretischen Arbeiten verglichen. Während die Fragmentation von Ne-Clustern sehr gut mit diesem Modell übereinstimmt, zeigen Xe-Cluster signifikante Abweichungen.

Der zweite Teil der vorliegenden Arbeit beschäftigt sich mit der Wechselwirkung von hoch intensiven XUV<sup>1</sup>-Pulsen mit heterogenen Edelgasclustern. Die Experimente wurden am FLASH FEL in Hamburg, der weltweit ersten Strahlungsquelle für hoch intensive XUV-Pulse, durchgeführt. Die hohe Intensität und die kurze Wellenlänge dieser Strahlung führt zur Ionisierung aller Clusteratome. Durch diesen hohen Ladungszustand wird eine Coulomb Explosion des Systems initiiert. Die dabei entstehenden Fragmente werden mit einem masseauflösendem Flugzeitspektrometer nachgewiesen. Bisherige Untersuchungen haben sich auf homogene Cluster beschränkt. Eine Unterscheidung von Prozessen, die im Inneren oder auf der Oberfläche des Clusters stattfinden, war dabei nicht möglich. Um die innere Dynamik der Ladungstrennung und des Energietransfers zu untersuchen, wurden die Cluster in dieser Arbeit mit einem zweiten Edelgas dotiert. Durch verschiedene Dotiertechniken wurden die Gastcluster auf der Oberfläche, statistisch über den gesamten Cluster oder nur im Inneren des Clusters dotiert. Die Ergebnisse zeigen für große Ar-Cluster mit einem Xe-Kern ein sehr bemerkenswertes Fragmentationsverhalten. Diese Kern-Hüllen-Struktur und die Eigenschaften der Pulse führen zu einer verzögerten Expansion des Xe-Kerns, während die Ar-Hülle in einer schnellen Coulomb-Explosion abgestoßen wird. Diese Verzögerung der Cluster-Kernexpansion kann für zukünftige strukturbestimmende Experimente mit intensiven Röntgenpulsen einzelner Moleküle sehr interessant werden, da sie die extremen Anforderungen an die Länge der Pulse entspannen.

---

<sup>1</sup>XUV: EXtreme Ultra Violet

## Kapitel 2

# Experimentelle Grundlagen

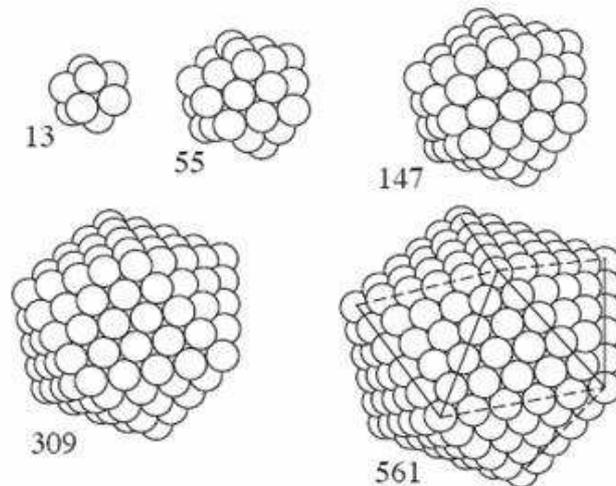
In diesem Kapitel werden die für diese Arbeit wichtigen experimentellen Grundlagen eingeführt. Zunächst wird die Herstellung von Edelgasclustern und deren Dotierung erklärt. Daran anschließend werden die Eigenschaften und die Funktionsweise der verwendeten Lichtquellen, Synchrotron und Freier Elektronen Laser (FEL) erläutert.

### 2.1 Eigenschaften und Herstellung von Edelgasclustern

Cluster sind Zusammenschlüsse von mindestens drei Atomen. Die Stärke der Bindungen zwischen den Atomen hängt wie bei Molekülen von der atomaren Zusammensetzung ab. In dieser Arbeit werden ausschließlich Edelgase für die Bildung und die Dotierung (s. Kapitel 2.2) von Clustern verwendet.

Edelgasatome bilden aufgrund ihrer abgeschlossenen Elektronenschalen untereinander van der Waals Bindungen aus. Da die van der Waals Kraft ungerichtet ist, arrangieren sich mehrere Atome zu einer energetisch günstigsten Struktur oder Packung (s. Abbildung 2.1). Für kleine Cluster sind dies Ikosaeder. Große Cluster nehmen die fcc-Struktur von Festkörpern an. Ein einzelnes Edelgasatom hat maximal zwölf Nachbarn. Diese Nachbarn legen sich wie eine Schale um das einzelne Atom. Besteht der Cluster aus mehr als 13 Atomen ordnen sich alle weiteren Atome wieder in Schalen um den Cluster. Eine abgeschlossene Schale bildet eine besonders stabile Struktur. Die entsprechende Anzahl der hierfür notwendigen Atome wird magische Zahl genannt. In Abbildung 2.1 sind Cluster für die ersten fünf magischen Zahlen (13, 55, 147, 309, 561) schematisch dargestellt. Da Cluster, deren Größe gerade eine magische Zahl entspricht, in ihrer Struktur sehr stabil sind, werden sie bei der Clusterbildung energetisch bevorzugt. Aus diesem Grund dienen diese Größen als günstiger Anhaltspunkt bei der Erzeugung von Clustern. Dadurch, dass wir die Cluster in der Gasphase untersuchen, stehen sie in keinerlei Wechselwirkung mit einem Trägergas oder einem Substrat. Sie werden deswegen als freie Cluster bezeichnet.

Die Kondensation von einzelnen Atomen zu Clustern und deren kontrollierte Herstellung ist in der Literatur [9, 10, 11, 12, 13] ausführlich beschrieben. Im Folgenden werden



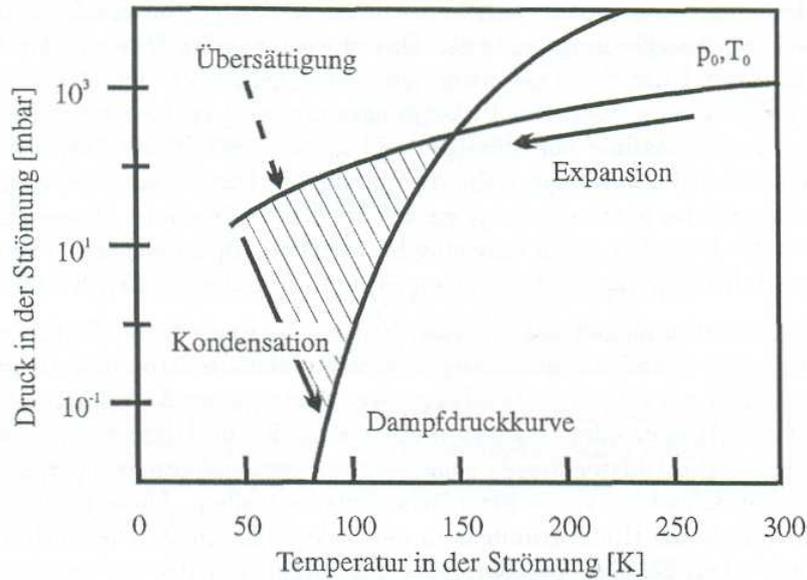
**Abbildung 2.1:** Schematisierter Aufbau von kleinen Edelgasclustern. Dargestellt sind die ersten fünf magischen Größen von Edelgasclustern: 13, 55, 147, 309, 561. Sie stellen aufgrund ihrer abgeschlossenen Schalen eine besonders stabile Ikosaederstruktur dar. [8]

daher nur die wichtigsten Aspekte zusammengefasst.

Edelgascluster werden durch eine adiabatische Überschallexpansion von Atomen ins Vakuum erzeugt. Die Expansion wird von einem Gas-Reservoir (Gasflasche) unter hohem Druck (100 mbar bis 20 bar) in eine Vakuumkammer ( $< 10^{-6}$  mbar) vollführt. Dabei wird die kinetische Energie der ungerichteten, thermischen Bewegung der einzelnen Gasatome in eine durch die Geometrie der Düse festgelegte Bewegungsrichtung transformiert. Betrachtet man diese Expansion in einem pT-Diagramm, dargestellt in Abbildung 2.2, erkennt man, dass die Dampfdruckkurve während der Expansion geschnitten wird und es zu einer Übersättigung des Gases kommt. Durch die Transformation der ursprünglichen kinetischen Energie in eine Bewegungsrichtung nimmt die Relativbewegung der Gasatome ab. Somit sinkt die Temperatur T im Strahl. Die Atome können zu Clustern kondensieren.

Für die Bildung von Clustern sind drei Stoßpartner notwendig. Das dritte Atom führt die bei der Bindung der anderen beiden Atome frei werdende Bindungsenergie (für Xenon ca. 172 meV [10]) ab. Der  $\text{Xe}_2$ -Cluster dient als Keim für die weitere Kondensation. Die Bindungen von weiteren Atomen aus dem Strahl an den wachsenden Cluster führt dazu, dass die Atomdichte im Strahl sinkt und somit das Clusterwachstum zum Erliegen kommt. Bei der Anlagerung von weiteren Atomen wird durch die frei werdende Bindungsenergie die Temperatur<sup>1</sup> des Clusters erhöht. Der Aufwärmung wirkt ein ständiges Abdampfen von Atomen entgegen. Die abdampfenden Atome transportieren die thermische Energie der Cluster in Form von kinetischer Energie ab. Die Größe des Clusters verändert sich demnach ständig. Man spricht deswegen auch von einem evaporativem Ensemble. Eine exakte Clustergröße ist aus diesem Grund nicht präparierbar. Vielmehr entspricht die Größenverteilung einer mittleren Clustergröße von  $\langle N \rangle$ . Die

<sup>1</sup>In [8] wird erläutert, wie man einem Cluster eine Temperatur zuschreiben kann.



**Abbildung 2.2:** P-T-Diagramm für Xenon. Die Expansion erfolgt entlang der Isentropen und kreuzt dabei die Dampfdruckkurve. Im Bereich der Übersättigung tritt Kondensation der Atome zu Clustern ein. [14]

|   | He   | Ne  | Ar   | Kr   | Xe   |
|---|------|-----|------|------|------|
| k | 3.85 | 185 | 1646 | 2980 | 5554 |

**Tabelle 2.1:** Der k-Parameter ist ein Maß für die Kondensationsfähigkeit von Edelgasen. Xe kondensiert am effektivsten zu Clustern. [11, 12, 13, 15].

Angaben aller Clustergrößen die im Folgenden gemacht werden, unterliegen dieser Verteilung.

Nach den empirischen Untersuchungen von Hagena [11, 12, 13, 15] hängen die Bildung und die Größe der Cluster im Wesentlichen von folgenden Parametern ab: Temperatur  $T$  und Druck  $p$  des Gases in der Düse, Geometrie der Düse durch die das Gas in die Kammer strömt und der verwendeten Gasart (s. Abbildung 2.3). Diese Abhängigkeiten wurden von Hagena in Skalierungsgesetzen zusammengefasst (s. Gleichungen 2.1, 2.2, 2.3). Die dimensionslose Größe  $\Gamma^*$  stellt ein Maß für die Kondensation dar. Ab  $\Gamma^* = 200$  tritt Kondensation ein [9]. Sie berechnet sich nach:

$$\Gamma^* = \frac{k \cdot p \cdot d^{0.85}}{T^{2.2875}} \quad (2.1)$$

K: Maß für Kondensationsfähigkeit des Gases (s. Tabelle 2.1), p: Stagnationsdruck in mbar, d: Düsendurchmesser in  $\mu m$ , Düsentemperatur in K.

Neben den einstellbaren Größen wie Gasdruck und Temperatur der Düse, spielt außerdem die Form der Düse für die Clusterbildung eine entscheidene Rolle.

In dieser Arbeit wurde ausschließlich eine konische Düse verwendet, die die Kondensation des Gases unterstützt [9]. Mit konischen Düsen lassen sich bei gleichen Drücken größere Cluster erzeugen als mit Lochdüsen. In Gleichung 2.1 ist dafür  $d$  durch  $d_{eq} = 0.719 \frac{d}{\tan \Theta}$ , dem equivalenten Düsendurchmesser, zu ersetzen. Dabei stellt  $\Theta$  den halben Öffnungswinkel der Düse dar. Für die in dieser Arbeit verwendete konische Düse mit  $d = 100 \mu\text{m}$ ,  $\Theta = 15^\circ$  ergibt das einen equivalenten Düsendurchmesser von  $268 \mu\text{m}$ . Die mittlere Größe  $\langle N \rangle$  der Cluster bestimmt sich nach [16, 17, 18] für ein  $\Gamma^* 350 \leq \Gamma^* \leq 1800$  durch

$$\langle N \rangle = 38.4 \left( \frac{\Gamma^*}{1000} \right)^{1.64} \quad (2.2)$$

und für  $1800 < \Gamma^*$  [16, 17, 18]:

$$\langle N \rangle = 33 \left( \frac{\Gamma^*}{1000} \right)^{2.35} . \quad (2.3)$$

Der Weg, den der Clusterstrahl von der Düse bis zur Wechselwirkungszone<sup>2</sup> zurücklegt, ist in Abbildung 2.3 dargestellt. Nach dem der Gasstrahl die Quelle verlassen hat, tritt er durch einen 3 mm Skimmer (Konus mit Öffnung an der Spitze) von der Skimmer-Kammer in die Verlängerungskammer. Die Verlängerungskammer ist wiederum durch einen Skimmer mit einer Öffnung von 0,5 mm von der Hauptkammer, in der sich das Spektrometer befindet, getrennt. Die Teilkammern werden jeweils durch zwei Turbomolekularpumpen gepumpt, die Hauptkammer hingegen durch eine einzige Turbomolekularpumpe. Die Skimmer schneiden oder schälen die Flügel des Clusterstrahls, in denen sich überwiegend Atome befinden, ab, so dass hauptsächlich Cluster in die Hauptkammer weitergeleitet werden. Der Clusterstrahl hat in der Wechselwirkungszone eine Breite von ca. 2 mm und ist somit senkrecht zur Ausbreitungsrichtung sehr kalt ( $< 1 \text{ K}$ ).

Um einen guten Hintergrunddruck ( $< 10^{-8} \text{ mbar}$ ) in der Hauptkammer zu bekommen, wird der Clusterstrahl auf der anderen Kammerseite durch eine 7 mm Blende geführt und durch eine weitere Turbomolekularpumpe abgepumpt. Durch den relativ großen Abstand zwischen Clusterquelle und Wechselwirkungszone ( $\sim 40 \text{ cm}$ ) wird die Dichte des Clusterstrahls in der Wechselwirkungszone verringert und somit eine schnelle Sättigung der Detektoren und Raumladungsprobleme vermieden.

Wie bereits erwähnt ist die Größe der erzeugten Cluster proportional zum Stagnationsdruck  $p$  des Gases vor der Düse (s. Gleichung 2.1). Zur Erzeugung großer Cluster

<sup>2</sup>Idealerweise ein Punkt in dem sich der Lichtstrahl und der Clusterstrahl kreuzen.

benötigt man somit hohe Drücke ( $> 5$  bar). Mit dem Druck steigt jedoch auch der Hintergrunddruck in den Kammern. Wird der Hintergrunddruck zu groß, bildet sich eine Schockfront - die Machsche Scheibe - vor der Düse aus [9]. An dieser Schockfront können die Cluster vollständig dissoziieren. Der Abstand der Machschen Scheibe zur Düse  $x_M$  hängt vom Verhältnis des Stagnationsdrucks  $p$  und des Hintergrunddrucks  $p_H$  in der Kammer und vom Düsendurchmesser ab [9]:

$$x_M = \frac{2}{3} \sqrt{\frac{p}{p_H}} d. \quad (2.4)$$

Der Abstand zur Wechselwirkungszone muss somit stets geringer sein, als der Abstand zur Machschen Scheibe.

Eine andere Möglichkeit große Cluster zu erzeugen ist die Verringerung der Düsentemperatur (s. Gleichung 2.1). Da die Temperatur mit  $T^{2.8}$  in  $\Gamma^*$  eingeht, hat sie großen Einfluss auf die Clustergröße. Für die Kühlung der Düse wird flüssiger Stickstoff bzw. Helium benutzt. In der Regel wird sowohl der Druck als auch die Temperatur zur Kontrolle der Clustergröße verwendet.

Auf weitere Details, wie z. B. verwendete Gasarten, Temperaturen, Drücke, etc. wird in den entsprechenden Kapiteln (5.1 und 6.1) zu den beiden hier diskutierten Experimenten eingegangen. Die oben beschriebenen Eigenschaften und Maße haben für beide Experimente Gültigkeit.

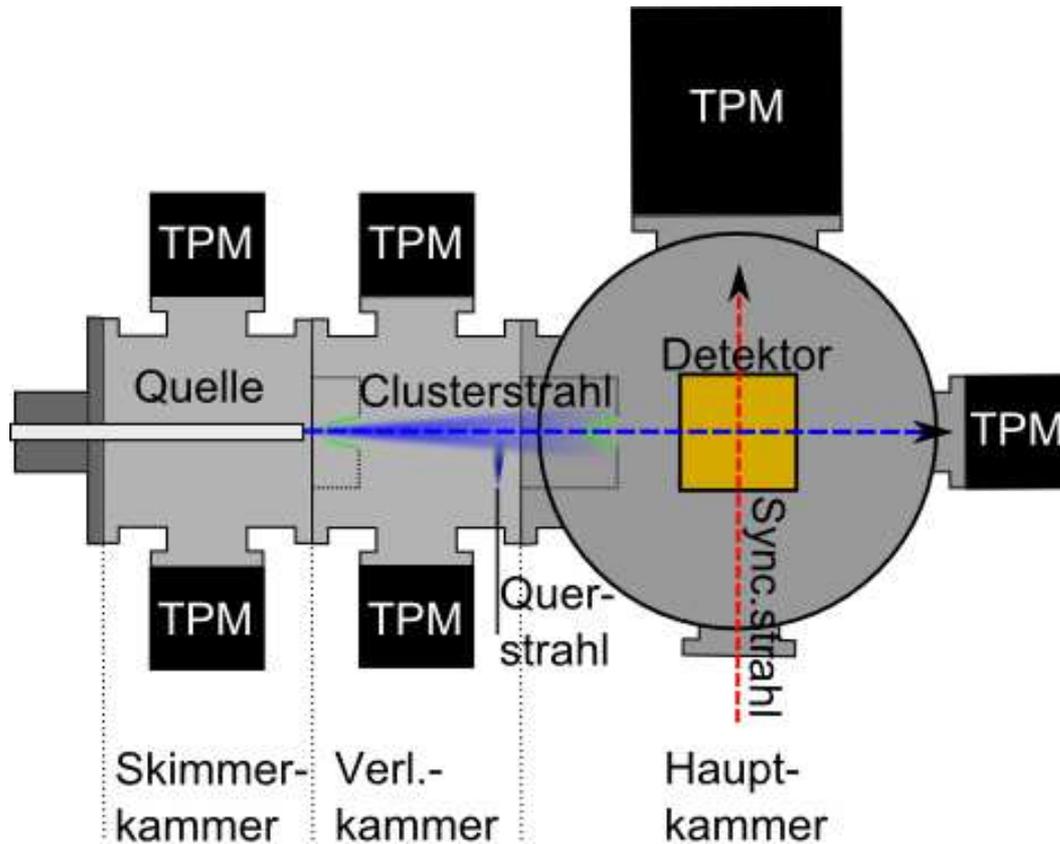
## 2.2 Dotierung von Edelgasclustern

Im vorangegangenen Kapitel wurde erklärt, wie durch Variation von Temperatur, Druck und Düsengeometrie die Größe der Cluster variiert werden kann. Durch sukzessive Veränderung der Clustergröße  $N$  kann der Übergang der Clustereigenschaften vom Atom ( $N=1$ ) bis zum Festkörper ( $N > 10^6$ ) untersucht werden.

Durch das Dotieren von Clustern mit Fremdatomen können Prozesse, die im oder auf dem Cluster stattfinden, untersucht werden. Die Fremdatome werden als eine Art Sonde in den Cluster eingebaut, um ihren Einfluss auf die Umgebung zu untersuchen. So lässt sich zum Beispiel der dynamische Prozess des Ladungstransfers zwischen Atomen untersuchen.

Cluster werden in dieser Arbeit auf zwei Wegen dotiert: durch die Expansion eines Mischgases und durch die Kreuzung des Clusterstrahls mit einem atomaren Querstrahl (Pick-up-Technik) (s. Abbildung 2.3).

Durch die Expansion eines Mischgases ins Vakuum erreicht man eine Volumendotierung [19, 20, 21, 22, 23, 24, 24]. Mit der Pick-up-Technik wird die Oberfläche der Cluster dotiert [23, 24, 25, 26, 27, 28, 29]. Je nach Mischungsverhältnis und Querstrahldruck können verschiedene Grade der Dotierung erreicht werden. In [24] wird die Dotierung in drei Klassen eingestuft:



**Abbildung 2.3:** Schematische Darstellung des experimentellen Aufbaus (Draufsicht). Der Clusterstrahl tritt nach Verlassen der Quelle durch zwei Skimmer (grün) in die Hauptkammer, wo er sich mit dem Synchrotronstrahl im Detektor kreuzt. Alle Teilkammern werden durch Turbomolekularpumpen (TPM) gepumpt. In der Verlängerungskammer ist über einen Querstrahl die Dotierung der Cluster möglich (Pick-Up-Technik). Der Übersicht halber wurde in dieser Skizze auf Details und eine maßstabsgetreuen Darstellung verzichtet.

1. **geringe Dotierung:** In jedem Wirtscluster befindet sich maximal ein Gastatom, dessen Position statistisch im Cluster verteilt ist.
2. **mittlere Dotierung:** Die Konzentration der Gastatome ist so groß, dass in oder auf dem Cluster mehrere Gastatome vorhanden sein können. Diese sind entweder statistisch eingebaut, oder bilden kleinere Cluster im Inneren.
3. **starke Dotierung:** Bei der Kondensation bilden sich Cluster aus den Gastatomen. Die Wirsatome bilden nur noch die äußeren Schalen.

Bei der Wahl der Gasarten ist darauf zu achten, dass die Bindungsenergie zwischen den Wirtsclusteratomen kleiner ist, als die zwischen Dotierungs- und Wirtsatom [23].

Wenn Cluster durch die Expansion eines Mischgases dotiert werden, ist das Verhältnis zwischen Gast- und Wirtsatom nach der Dotierung stets größer anzunehmen als das ursprüngliche Mischungsverhältnis. Zur Klärung dieses Sachverhaltes wird als Beispiel das Mischgas Xe in Ar angeführt. Diese Gaskombination wurde auch in dieser Arbeit

verwendet. Bei einem Mischungsverhältnis von 1 % Xe in Ar kommen auf hundert Ar-Atome ein Xe-Atom. Lässt man diese Gasmischung ins Vakuum expandieren, bilden sich durch Dreifach-Stöße Kondensationskeime. Die Bindungsenergie der Atome, die bei der Bildung eines Clusters frei wird, führt zur thermisch aktivierten Schwingung des Clusters. Durch Abdampfen von neutralen Clusteratomen wird diese Energie abgeführt. Die Bindungsenergie (Lennard-Jones-Potential) von Xe mit Ar (14,1 meV, [30]) oder von Xe mit Xe (19,4 meV, [30]) ist viel größer, als die Bindungsenergie von zwei Ar-Atomen (10,3 meV, [30]). Somit ist die Energie, die bei der Bindung von zwei Xe-Atomen bzw. eines Xe- mit einem Ar-Atom frei wird, größer als die Bindungsenergie von zwei Ar-Atomen. Das führt dazu, dass bei der Bindung von Xe-Atomen ArAr-Bindungen aufgebrochen werden können und Ar-Atome den Cluster verlassen. Auch wenn der ursprüngliche Anteil des Dotierelementes im Gasgemisch viel kleiner war, kommt es im Cluster zu einer Anreicherung. Wie stark diese Anreicherung wird hängt von dem anfänglichen Gasgemisch ab. Ab einem Anteil von 5 % Xe in Ar dienen die Ar-Atome nur noch als Kondensationkeime. Der größere Anteil von Xe-Atomen führt zu einer Erhöhung der Xe-Bindungen und somit zu einer Erhöhung der freiwerdenden Bindungsenergie. Diese Energie wird durch das Abdampfen von den schwächer gebundenen Ar-Atomen vom Cluster kompensiert, so dass sich ein reiner Xe-Cluster bilden kann [19]. Zwischen den Extremen der geringen Dotierung (0,01 %) und der hohen Dotierung (5 %) bildet sich aus dem expandierenden Mischgas ein Core Shell System, das heißt, dass sich um einen Kern aus Xe-Atomen Lagen aus Ar-Atomen gruppieren. Die Anzahl der Lagen und die Größe des Kerns werden durch das Mischungsverhältnis bestimmt. Die Trennung der beiden Gasarten zu einem Core Shell System lässt sich durch die verschiedenen Bindungsenergien und Oberflächenspannungen erklären. Durch diesen Unterschied kommt es zu einer Phasenseparation im Cluster.

Bei einem geringen Mischungsverhältnis (0,01 %) bilden sich in dem Wirtskluster noch keine Gastcluster. Die Gastatome sind statistisch über den gesamten Cluster verteilt. Der gleiche Prozess bestimmt auch den Grad der Dotierung für die Dotierung durch einen atomaren Querstrahl. Hierfür sind die wichtigsten Parameter der Gasdruck des Querstrahls und der Abstand zum Wirtsklusterstrahl. Bei einem geringen Druck (1 mbar) und einem Abstand von ca. 1,5 cm ist eine statistische Verteilung der Gastatome über den gesamten Wirtskluster zu erwarten [23]. Ist der Druck, also die Teilchenzahl, größer, kann es genau wie beim Mischgas dazu führen, dass sich aus dem Wirtskluster ein Cluster aus Gastatomen bildet [25]. Es existiert somit, genau wie für die undotierten Cluster, ein evaporatives Ensemble, das ständig seine Größe und Zusammensetzung variiert.

## 2.3 Eigenschaften von Synchrotronstrahlung

Für die Untersuchung des Fragmentationsverhaltens von Edelgasclustern wurden in dieser Arbeit zwei verschiedene Lichtquellen benutzt.

Neben dem seit Jahren sehr erfolgreich genutzten Speicherring DORIS (Synchrotron-

quelle der 2. Generation) zur Erzeugung von Synchrotronstrahlung am HASYLAB<sup>3</sup> in Hamburg, konnte der weltweit erste Freie Elektronen Laser FLASH<sup>4</sup> (Strahlungsquelle der 4. Generation) für intensive VUV- und XUV-Strahlung ebenfalls am HASYLAB in Hamburg genutzt werden.

Der wesentlichste Unterschied dieser beiden Strahlungsquellen ist, neben den unterschiedlichen Pulsenergien und -längen, die Leistungsdichte. Während die Leistungsdichte des Synchrotrons sehr gering ist und deswegen jedes Atom nur ein Photon absorbieren kann, ist sie für den FEL sehr groß. Hier kann jedes Atom mehrere Photonen absorbieren.

Synchrotronstrahlung entsteht, wenn geladene, relativistische Teilchen beschleunigt werden. Im Speicherring tritt diese Beschleunigung auf, wenn Pakete von geladenen Teilchen, Elektronen oder Positronen, durch Ablenkmagnete auf Kreisbahnen gezwungen werden (s. Abbildung 2.5). Die Strahlung wird in einer Strahlungskeule in die mittlere Flugrichtung der geladenen Teilchen emittiert. Aus relativistischen Betrachtungen ergibt sich für die Leistung  $P$  der emittierten elektromagnetischen Strahlung [31]:

$$P = \frac{2}{3} \cdot \frac{e^2 \cdot c}{R^2} \cdot \frac{E^2}{(m_0 \cdot c^2)^2} \quad (2.5)$$

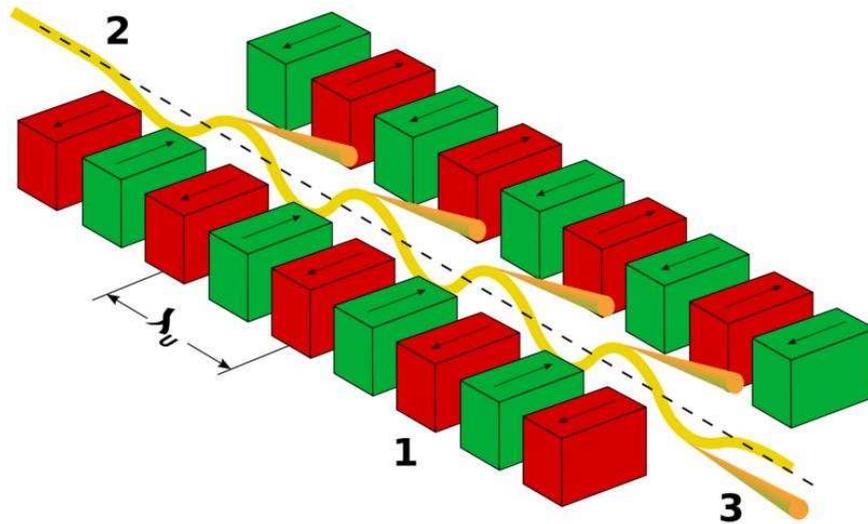
$e$ : Elementarladung,  $c$ : Lichtgeschwindigkeit,  $R$ : Radius der Kreisbeschleunigung,  $E$ : kinetische Energie,  $m_0$ : Ruhemasse des Teilchens. Aus Gleichung 2.5 lassen sich sofort viele wichtige Voraussetzungen und Eigenschaften von Synchrotronlicht ableiten: z. B. ist  $P$  zum Quadrat der kinetischen Energie des Teilchens proportional. D. h. für  $v \simeq c$  wird die grösste Leistung erzielt. Die Abhängigkeit  $P \sim 1/R^2$  zeigt, dass eine Reduzierung des Bahnradius zu einer enormen Steigerung der abgestrahlten Leistung und der Frequenz führt. Die Polarisierung der Strahlung ist durch die Auslenkungsebene der Teilchen festgelegt.

Um die Strahleigenschaften zu optimieren, durchlaufen die Teilchenpakete periodische Magnetstrukturen, die einige Meter lang sein können. Die einzelnen Perioden bzw. die Undulatorperioden besitzen Längen von wenigen Zentimetern. In diesen periodischen Magnetstrukturen werden die geladenen Teilchen auf Wellenbahnen gezwungen. Durch die wirkende Beschleunigung werden wie beim Ablenkmagneten Photonen emittiert. Durch Variation des Abstandes der Magnetstrukturen und durch die Verwendung eines Monochromators kann die Energie der Photonen über einen großen Bereich ( $\sim 10$ - $10^4$  eV) sehr genau eingestellt werden.

Bei den Magnetstrukturen sind zwei verschiedene Arten zu unterscheiden: Wiggler und Undulatoren. Sie unterscheiden sich durch die Art der abgegebenen Synchrotronstrah-

<sup>3</sup>Hamburger Synchrotronstrahlungslabor

<sup>4</sup>Free Electron Laser Hamburg



**Abbildung 2.4:** Der relativistische Elektronenstrahl (2) fliegt durch die Undulator-Magnetstruktur (1). Die Pfeile auf den Magneten symbolisieren die alternierende Polarität. Durch die Kreisbeschleunigungen emittieren die Elektronen hochenergetische Photonen: Synchrotronlicht (3). Der Abstand zweier Magnete gleicher Polarität definiert die Undulatorperiode  $\lambda_U$  [32].

lung (s. Abbildung 2.5). Im Wiggler werden die Teilchen viel stärker ausgelenkt, um hohe Photonenenergie zu erreichen. Die erzeugten Strahlungskeulen haben aufgrund der hohen Auslenkung einen großen Winkel zur Achse des Wignlers und überlagern sich dadurch nicht konstruktiv. Als Folge können die verschiedenen Strahlungskeulen nicht miteinander interferieren. Außerdem ist die spektrale Bandbreite relativ groß. Beim Undulator hingegen werden die Teilchen nur äußerst gering ausgelenkt, dadurch ist die Strahlungskeule viel schmaler als die der Wiggler-Strahlung. Andererseits sind die Energien, die so erreicht werden können, geringer. Die Elektronenbahnen sind so gewählt, dass es zur Interferenz der Strahlungskeulen kommt. Das Energie-Spektrum ist sehr scharf. Somit wird mit dieser Strahlung eine hohe Brillanz (s. Kapitel 2.4) erreicht.

Die Intensität ist bei beiden Bauarten proportional zur Anzahl der Auslenkperioden und der Anzahl der Elektronen  $N$  im emittierenden Elektronenpaket. Den Übergang vom Undulator zum Wiggler beschreibt der dimensionslose Parameter  $K$ :

$$K = \frac{e \cdot B \cdot \lambda_U}{2 \pi m \cdot c}. \quad (2.6)$$

Hierbei ist  $e$  die Elementarladung,  $B$  die Magnetfeldstärke,  $\lambda_U$  die Undulatorperiode,  $m$  die Elektronenmasse und  $c$  die Lichtgeschwindigkeit. Die Undulatorperiode ist die Strecke, nach der das Magnetfeld wieder seinen ursprünglichen Wert annimmt.  $K$  beschreibt die Stärke der Auslenkung der Elektronen. Gilt  $K \leq 1$  ist die Auslenkung klein, die erzeugten Lichtkegel überlagern sich und man spricht von einem Undulator. Ist jedoch  $K \gg 1$ , wie es in einem Wiggler der Fall ist, wird die Auslenkung der Elektronen

größer und die Lichtkegel überlagern sich nicht mehr. Die Folge ist, dass ein breiteres Energie-Spektrum entsteht (s. Abbildung 2.5).

Die Wellenlänge  $\lambda$  der Synchrotronstrahlung kann mit der Undulatorgleichung bestimmt werden. Sie ergibt sich aus der Betrachtung der Bewegung eines relativistischen, geladenen Teilchens in einem periodischen Magnetfeld [31].

$$\lambda = \frac{\lambda_U}{2\gamma^2} \left( 1 + \frac{K^2}{2} + \gamma^2 \theta^2 \right) \quad (2.7)$$

mit dem Lorentz-Faktor  $\gamma$ :

$$\gamma = \sqrt{1 + \frac{v^2}{c^2}} \quad (2.8)$$

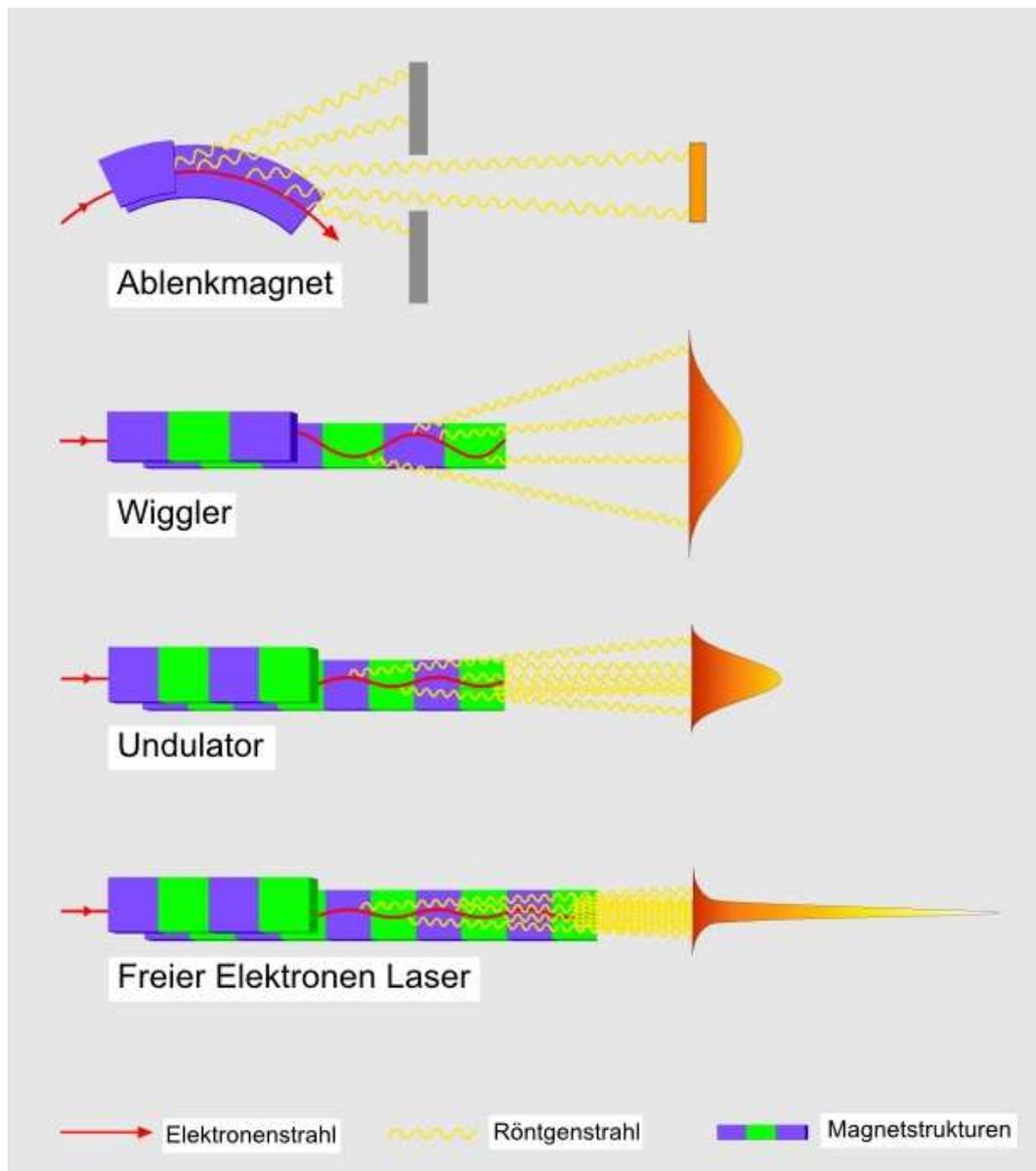
$K$  ist der dimensionslose Parameter aus Gleichung 2.6,  $\theta$  der Winkel zwischen der Richtung der Teilchenbewegung und des emittierten Photons,  $v$  die Geschwindigkeit der geladenen Teilchen und  $c$  die Lichtgeschwindigkeit. An Gleichung 2.7 erkennt man, dass die Wellenlänge  $\lambda$  proportional zu dem  $K$  und  $\theta$  ist. Die  $\theta$ -Abhängigkeit lässt erkennen, dass direkt auf der Strahlachse ( $\theta = 0^\circ$ ) die Wellenlänge der Strahlung am kleinsten ist. Die Photonen, die im Strahlungskegel weiter außen liegen ( $\theta > 0^\circ$ ), besitzen durch die Doppler-Verbreiterung eine größere Wellenlänge. Die Abhängigkeit von  $K$  beschreibt den Zusammenhang von Magnetfeldstärke und Strahlung. Um die Wellenlänge zu ändern braucht demnach nur das Magnetfeld geändert werden.

Um in einem Undulator die gleiche Photonenenergie zu erzeugen wie in einem Wiggler, müssen die Elektronenpakete auf eine höhere Energie beschleunigt werden. Man nimmt diesen Mehraufwand in Kauf, da die emittierte Strahlung eine wesentlich höhere Brillanz und ein schmaleres Spektrum aufweist.

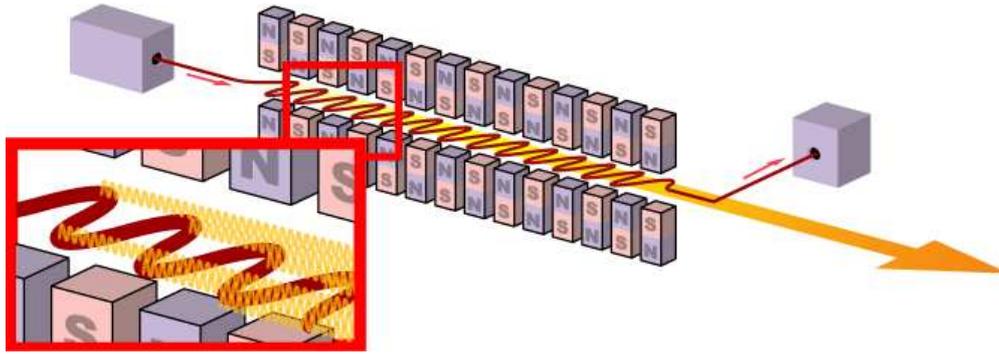
Bei der Herleitung der Undulatorgleichung 2.7 konnte der Einfluss des, durch die beschleunigte Bewegung, erzeugten elektromagnetischen Feldes auf die Bewegung der Teilchen vernachlässigt werden, für die Beschreibung eines Freien Elektronen Lasers spielt sie indes eine wichtige Rolle.

## 2.4 Freier Elektronen Laser und XUV-Pulse

Die Länge eines Undulators beträgt in der Regel wenige Meter. Dehnt man die Länge auf mehrere 10 Meter oder gar mehrere 100 Meter aus, so kann die von dem Elektronenpaket emittierte elektromagnetische Strahlung auf der nun längeren Strecke wieder mit dem Elektronenpaket wechselwirken. Auf diese Weise wird eine besondere Mikrostrukturierung im Elektronen-Paket erreicht. In diesem Fall spricht man von einem Freien Elektronen Laser (FEL). Eine andere wichtige Voraussetzung für die hohe Brillanz eines FELs ist, dass die Elektronen linear beschleunigt werden. Durch die ausschließliche lineare Beschleunigung wird eine hohe Qualität des Elektronenstrahl erreicht. Bei einem FEL ist die Brillanz und die Intensität der Strahlung im Vergleich zu einer Synchrotronlichtquelle sehr groß (s. Abbildung 2.5). Die Intensität ist nun proportional zum



**Abbildung 2.5:** Synchrotronstrahlcharakteristika für verschiedene Synchrotrongenerationen. Oben: Ablenkmagnet eines Speicherrings (1. Generation), mitte: Wiggler- und Undulatorstrahlung (2./3. Generation), unten: FEL (4.Generation)[33].



**Abbildung 2.6:** Ein Elektronenstrahl tritt in eine Undulatorstruktur ein und induziert spontane Emission. Die Wechselwirkung der Elektronen mit der selbst generierten Strahlung führt zu einer Energiemodulation des Elektronenstrahls. Die Strahlung nimmt exponentiell zu. Der Elektronenstrahl wird am Ende der Verstärkermodule von dem Photonenstrahl separiert [33].

Quadrat der Anzahl der im Paket enthaltenen Elektronen  $N^2$ .

Freie Elektronen Laser sind die Weiterentwicklung von Synchrotronstrahlungsquellen. In ihnen werden die hohen Photonenintensitäten und die kurze Pulslänge von Lasern sowie die hohen Photonenenergien von Synchrotronstrahlungsquellen kombiniert.

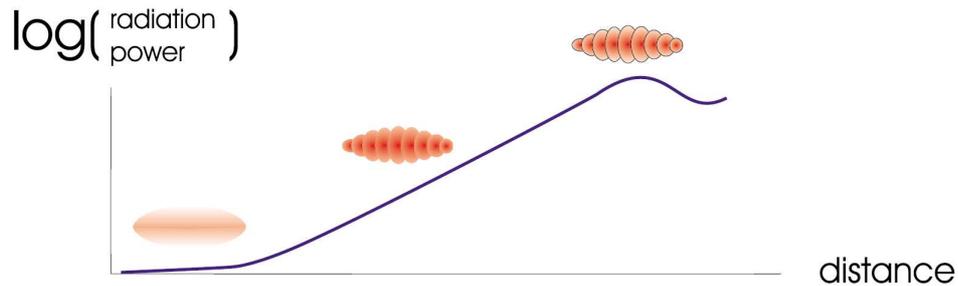
Aus technischer Sicht lässt sich die Funktionsweise eines FELs aus der einer Synchrotronquelle ableiten. Im Undulator wird der Elektronenstrahl durch alternierend angeordnete Magnete in transversale Bewegung versetzt, wodurch Synchrotronstrahlung erzeugt wird (s. Abbildung 2.6).

Aufgrund der relativistischen Geschwindigkeit der Elektronen ist die Strahlung nahezu vollständig in Vorwärtsrichtung entlang der Elektronenbahn gerichtet. Der Abstand der Magnete und die Geschwindigkeit der Elektronen werden so aufeinander abgestimmt, dass die Lichtwellen, die an jedem einzelnen Magneten abgegeben werden, konstruktiv interferieren. Am Ende des Undulators werden Elektron- und Photonstrahl von einander getrennt.

Das Prinzip der Erzeugung intensiver Röntgenblitze basiert auf der selbstverstärkenden, spontanen Emission von Photonen (s. Abbildung 2.6), kurz SASE <sup>5</sup>.

Die extrem hohe Kohärenz erhält der FEL durch den Microbunching-Effekt, der dafür sorgt, dass eine Mikrostrukturierung des Elektronenpaketes durch die Wechselwirkung mit der erzeugten Laserstrahlung entsteht (s. Abbildung 2.7). Das Elektronenpaket wird in dünne Scheiben strukturiert, die senkrecht zur Flugrichtung ausgerichtet sind. Diese Scheiben haben einen genau auf die emittierte Strahlung ausgerichteten Abstand, der gleich ihrer Wellenlänge ist, so dass alle Elektronen in dem Paket gleichzeitig kohärent emittieren können. Durch das phasenrichtige Emittieren der Strahlung addieren sich die Amplituden der einzeln erzeugten Wellen und nicht mehr die Intensitäten, wie es bei zufälliger, nicht phasenrichtiger emittierter Strahlung der Fall ist. Die Folge ist, dass die Intensität der emittierten Strahlung beim FEL proportional zum Quadrat der Anzahl der emittierenden Elektronen ( $N^2$ ) steigt und nicht mehr linear ( $N$ ) wie beim Synchrotron. Dies ist die Ursache für die sehr hohe erreichbare Brillanz, die einen FEL

<sup>5</sup>Self-Amplified-Spontaneous Emission



**Abbildung 2.7:** Durch die Wechselwirkung mit dem Strahlungsfeld werden die Elektronenpakete (ganz links) auf ihrem Weg durch den Undulator in Microbunche unterteilt (ganz rechts). Die von den Microbunchen emittierte Strahlung überlagert sich perfekt, so dass eine hohe Kohärenz erreicht wird und die Intensität stark wächst. [34, 35]

auszeichnet.

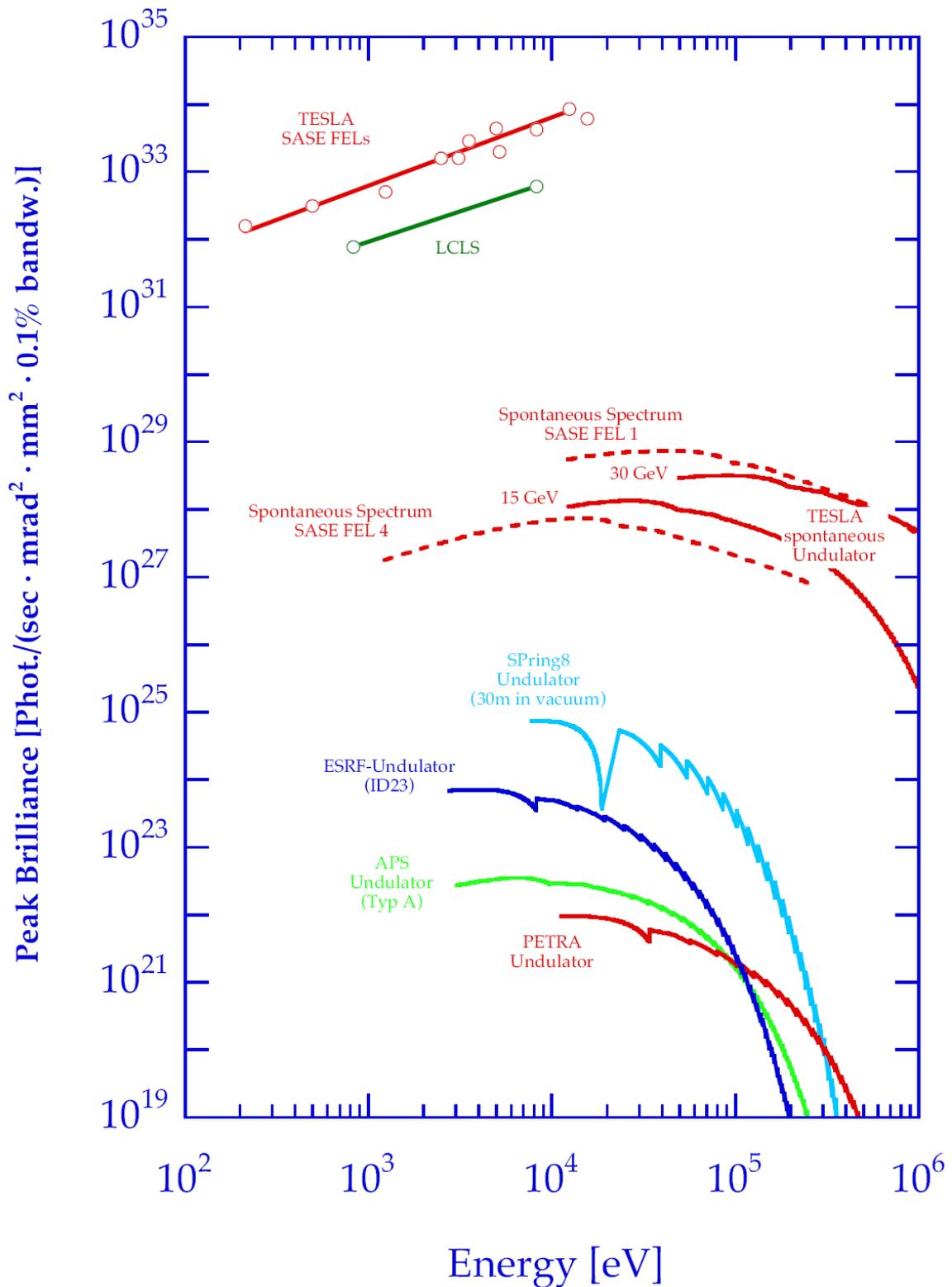
Die Brillanz beschreibt eine physikalische Eigenschaft von Strahlungsquellen (s. Gleichung 2.9). Sie ist definiert als die Zahl der Photonen pro Fläche (Quellfläche), Raumwinkel (Quelldivergenz) und Zeit innerhalb einer schmalen Bandbreite ( $\Delta E/E$ ) [31]:

$$\text{Brillanz} = \frac{\text{Photonen}}{\text{Zeit} \cdot \text{Ort} \cdot \text{Raumwinkel} \cdot \text{Bandbreite}} \quad (2.9)$$

Synchrotronquellen der 2. Generation, zu der auch DORIS3 gehört (s. Kapitel 2.3), haben Brillanzen, die zwischen  $10^{19} - 10^{23} [\text{Phot.}/(\text{s} \cdot \text{mm}^2 \cdot \text{mrad}^2 \cdot 0.1\% \text{bandw.})]$  liegen (s. Abbildung 2.8). Die 4. Generation von Strahlungsquellen (FELs) besitzt Brillanzen, die um bis zu 12 Größenordnungen höher sind.

In Abbildung 2.8 sind die Brillanzen als Funktion der Photonenenergie für verschiedene Lichtquellen dargestellt. Während sich Lichtquellen der 3. Generation im unteren Bereich dieser der Brillanz-Skala aufhalten, nehmen die Freien Elektronen Laser den oberen Bereich ein.

Der Freie Elektronen Laser FLASH in Hamburg, der sehr kurze, intensive Laserpulse in einem Energiebereich von  $\sim 30$  bis  $\sim 90$  eV liefert, ist der weltweit einzige VUV- bzw. XUV-FEL. Der European XFEL in Hamburg, die SCSS in Japan und die LCLS in Stanford (USA), sind Quellen für intensive Röntgenpulse, die sich derzeit in Planung bzw. im Bau befinden.



**Abbildung 2.8:** Die Brillanzen für Lichtquellen der dritten und vierten Generation aufgetragen über der Photonenenergie. FELs haben Brillanzen, die um bis zu 12 Größenordnungen höher sind als die von modernen Synchrotronquellen. DORIS3 liegt knapp außerhalb des Skalenbereichs. [36]

## Kapitel 3

# Theoretische Grundlagen: Wechselwirkung von Clustern mit VUV - Pulsen

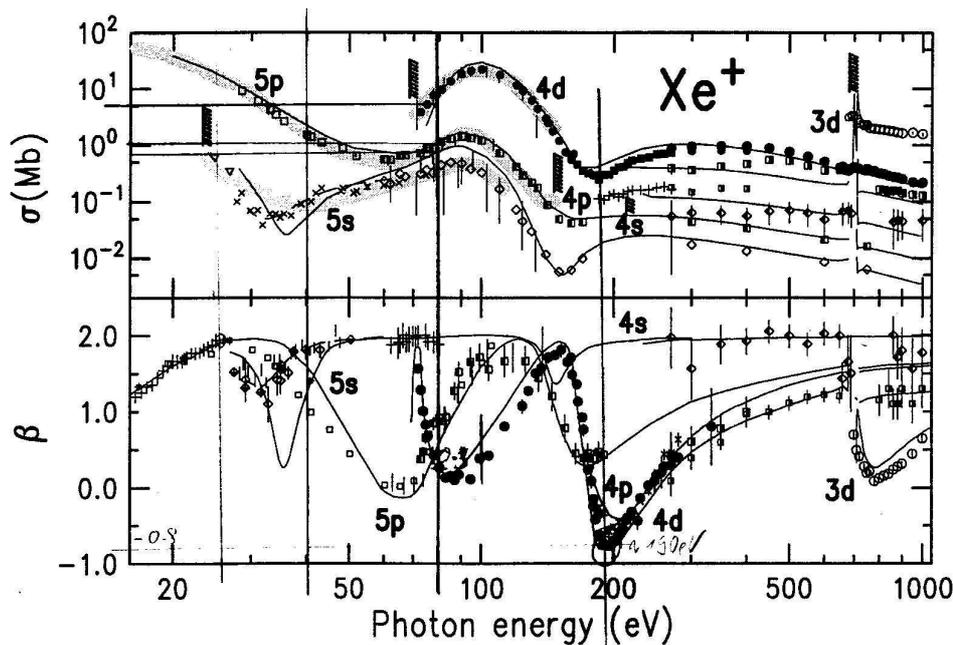
In dieser Arbeit wird die Wechselwirkung von Synchrotronstrahlung und hoch intensiven VUV<sup>1</sup> - bzw. XUV - Pulsen mit Edelgasclustern untersucht. Der wesentliche Unterschied dieser beiden Lichtquellen besteht in der Intensität der Strahlung. Dieser Unterschied hat großen Einfluss auf die Wechselwirkung speziell mit Clustern. Bei der Anregung mit Synchrotronlicht werden einzelne Photonen von den Clusteratomen absorbiert. Dabei hängt es von der Energie des Photons ab, wie das System reagiert. Der geladene Cluster relaxiert in einen neuen Gleichgewichtszustand. Bei der Anregung mit hoch intensiven VUV - Pulsen eines FELs kann es zu multiphotonen und kollektiven Phänomenen kommen, bei denen ein Großteil der Elektronen den Cluster verläßt und der Cluster komplett disintegriert. In den folgenden Kapiteln 3.1, 3.3 sollen diese beiden Intensitäts-Regime näher betrachtet werden und die daraus resultierenden Unterschiede in der Wechselwirkung mit Edelgasclustern diskutiert werden.

### 3.1 Ionisierung von Atomen und Clustern im linearen Regime der Wechselwirkung

Ein großer Vorteil von Synchrotronquellen gegenüber anderen Lichtquellen ist ihre Durchstimmbbarkeit. Mit dem Messplatz BW3 [37] des DORIS III - Speicherrings am HASYLAB steht ein Energiebereich von 15 eV bis 2000 eV zur Verfügung. Aufgrund der geringen Photonen-Intensität sind an diesem Speicherring nur lineare Prozesse zu erwarten. Die Wechselwirkung von Synchrotronlicht mit Materie führt zur Ionisierung der Probe. Die wichtigsten Ionisierungsprozesse sind direkte Photoionisation und Auger-Zerfälle bzw. Autoionisation. Da diese Prozesse für das Verständnis der hier präsentier-

---

<sup>1</sup>VUV: Vakuum-Ultra-Violet

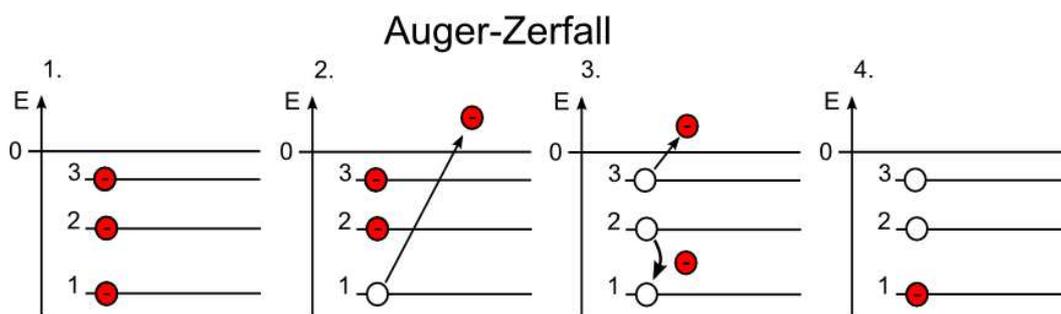


**Abbildung 3.1:** oben: Partieller Wechselwirkungsquerschnitt  $\sigma$  für Xenon, unten: Asymmetriefaktor  $\beta$  der Winkelverteilung für Photoelektronen. [40]

ten Ergebnisse wesentlich sind, werden sie im Folgenden näher beschrieben.

Die Wechselwirkung eines Photons mit einem Atom hängt im Wesentlichen von der Photonenenergie und dem Wechselwirkungsquerschnitt des Atoms bei dieser Energie ab. Um ein Atom über direkte Photoionisation zu ionisieren, muss mindestens die Bindungsenergie des Elektrons aufgebracht werden. Die Wahrscheinlichkeit der Energieabsorption eines Niveaus wird bestimmt durch die Wellenfunktion und somit durch das Orbital der Elektronen [38, 39]. Ausdruck findet diese Wahrscheinlichkeit im Wechselwirkungsquerschnitt. In Abbildung 3.1 ist der Wechselwirkungsquerschnitt für Xe in Abhängigkeit der Photonenenergie aufgetragen. Für einige Energiebereiche (z. B. 80-120 eV, 4d-Elektronen) wird der Wechselwirkungsquerschnitt sehr groß (50 Mb). Die Wahrscheinlichkeit ein Atom mit dieser Energie anzuregen ist demnach sehr hoch. Zur Ionisierung von Xenon sind die 4d-Elektronen demnach besonders gut geeignet. Wenn ein Innerschalenelektron (z. B. ein 4d-Elektron) eines Atoms durch direkte Photoionisation ionisiert wird, kann dem Atom eine positive Energie zugeordnet werden. Nach der Anregung relaxiert das Atom wieder in einen stabilen Grundzustand niedriger Energie. Dabei konkurrieren zwei Relaxationsprozesse miteinander:

1. Das Innerschalenloch wird von einem Elektron aus einer höheren Schale aufgefüllt. Die dabei frei werdende Energie wird als Strahlung (reales Photon) der Frequenz  $\nu$  abgegeben:  $h\nu = E_1 - E_2$ . Dieser Prozess wird als strahlender Zerfall bezeichnet.
2. Im Gegensatz dazu kann das Innerschalenloch durch ein Elektron aus einer höheren Schale besetzt werden. Die frei werdende Energie wird via virtuellem Photon auf ein anderes Elektron einer höheren Schale  $E_3$  übertragen. Dieses Elektron

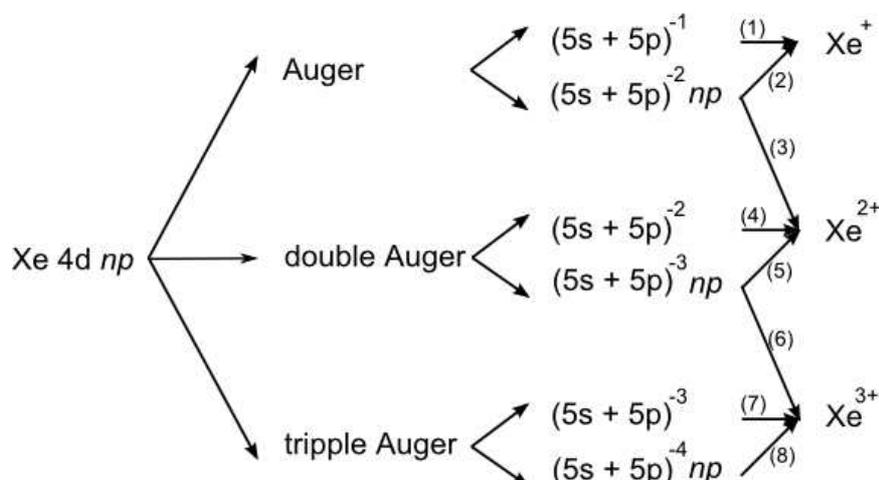


**Abbildung 3.2:** Schematische Darstellung des Auger-Zerfalls. Ein Atom im Grundzustand (1.) wird durch direkte Photoionisation einer inneren Schale ionisiert (2.). Das innerschalen Loch wird durch ein Elektron aus einer höheren Schale besetzt. Die frei werdende Energie führt zur Emission eines weiteren Elektrons (3.). Der Endzustand ist ein zweifach geladenes Atom (4.).

kann daraufhin das Atom mit der kinetischen Energie  $T_A = E_1 - E_2 - E_3$  verlassen (s. Abbildung 3.2). Dieser Prozess wird nichtstrahlender oder Auger-Zerfall genannt. Er ist nur erlaubt wenn :  $E_1 - E_2 > E_3$ .

Um die Entstehung höher geladener Ionen zu verstehen, sind noch weitere Prozesse zu erklären. Eine schematische Übersicht dieser Prozesse ist in Abbildung 3.3 dargestellt. Nach einer resonanten Anregung können zwei Auger-Prozesse unterschieden werden: Wenn das angeregte Elektron nach dem Auffüllen des Innerschalenlochs durch ein anderes Elektron emittiert wird, spricht man von participator - Auger-Prozess (oder Autoionisation) [40]. Das Ergebnis ist das gleiche wie bei einer direkten Ionisierung eines Elektrons einer äußeren Schale. Wird das Innerschalenloch durch zwei Elektronen der äußeren Schalen gefüllt und bleibt das angeregte Elektron dabei in seinem angeregtem Zustand, spricht man vom spectator-Auger-Prozess. In manchen Fällen kann das spectator-Elektron durch einen shake-up, shake-down oder shake-off Prozess in ein höheres, niedrigeres Niveau oder ganz aus den gebundenen Zuständen übergehen. Diese two-step-Prozesse dominieren meistens über die participator-Prozesse und führen zu den höher geladenen Zuständen im Atom.

Je nachdem mit welcher Photonenergie bzw. welche Schalen angeregt werden, entstehen verschiedene Ladungszustände im Atom [38, 40, 41]. Bei den in dieser Arbeit diskutierten Experimenten wurde genau dies zu Nutzen gemacht, um verschiedene Ladungszustände auf dem Cluster zu generieren (s. Kapitel 5). In Abbildung 3.4 sind exemplarisch Flugzeitspektren von Xe-Atomen aufgetragen, die bei verschiedenen Anregungsenergien aufgezeichnet wurden. Die Spektren wurden mit dem im Rahmen dieser Arbeit gebauten Reaktionsmikroskop (s. Kapitel 4) gemessen. Man erkennt, dass mit zunehmender Anregungsenergie der Grad der Ionisierung zunimmt, und dass die Verteilung der verschiedenen Ladungszustände sich zu höheren Ladungen verschiebt. Die hohen Grade der Ionisation kommen durch Auger-Zerfälle zustande. Die scharfen Linien innerhalb eines Ladungszustandes sind die einzelnen Isotope, die aufgrund ihrer unterschiedlichen Massen unterschiedliche Flugzeiten haben. Am linken Rand der Spektren sind breite Linien von Wassermolekülen zu erkennen. Die Flugzeitverteilung dieser



**Abbildung 3.3:** Zerfallskanäle von  $Xe\ 4d^{-1}$ . Erste Unterteilung in Auger-, doppelter Auger-, dreifacher Auger-Zerfall bei denen ein, zwei, drei Elektronen emittiert werden. Im zweiten Abschnitt ist jeder Kanal noch einmal in participator- und spectator-Prozess unterteilt. Die Zahlen (1) bis (8) bezeichnen die einzelnen Zerfälle: (1) participator-Auger-Prozess, (2) spectator-Auger-Prozess, (3) spectator-Auger-Prozess verbunden mit shake-up, -down, (4) participator-Doppel-Auger-Prozess, (5) spectator-Doppel-Auger-Prozess, (6) spectator-Doppel-Auger-Prozess, (7) participator-Dreifach-Auger-Prozess, (8) spectator-Dreifach-Auger-Prozess [40].

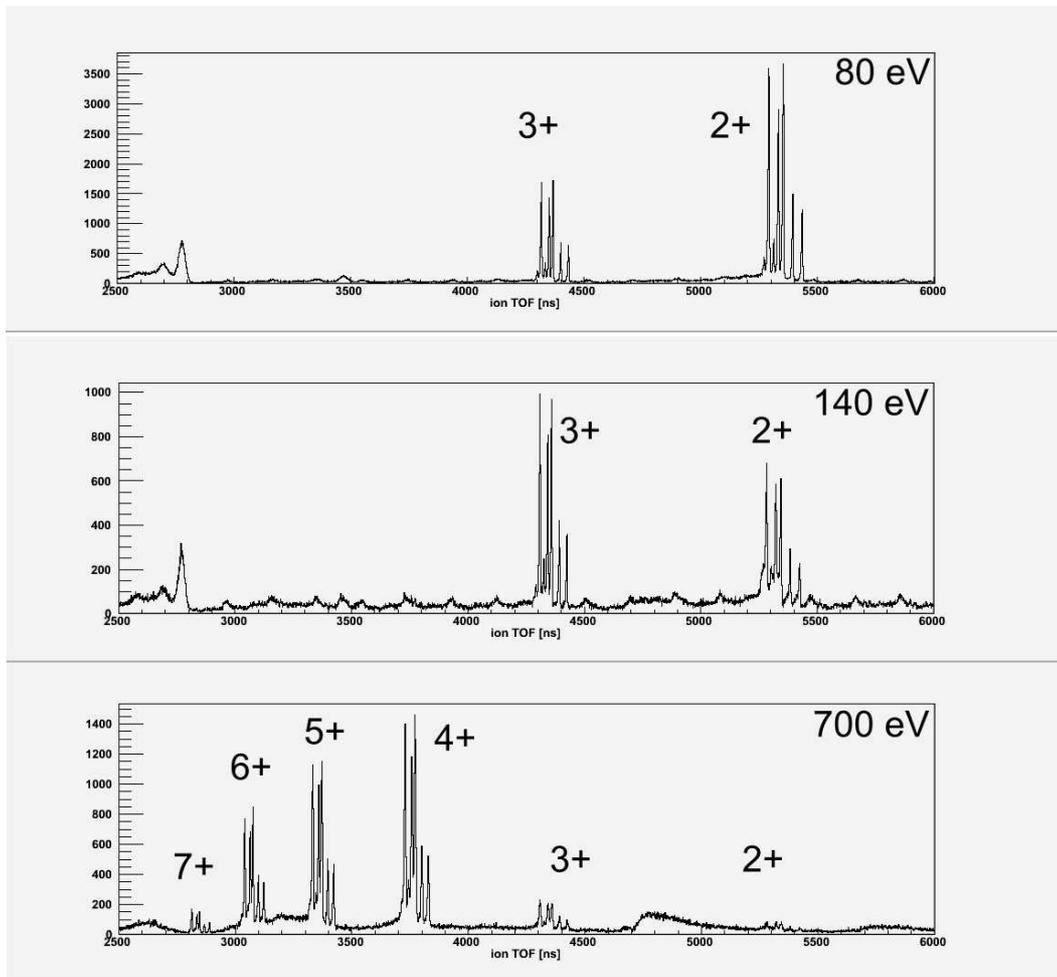
Linien ist größer als die der Xe-Isotope, da Wasser als Molekül in leichtere Fragmente dissoziiert und somit die Impulse statistisch auf verschiedene Ionen verteilt werden.

In Tabelle 3.1 sind die relativen Häufigkeiten von Xe-Ionen für alle in dieser Arbeit verwendeten Anregungsenergien aufgeführt. Diese Häufigkeiten wurden aus den Flugzeitspektren aus Abbildung 3.4 ermittelt.

| $Xe^{n+}$ | 1+   | 2+          | 3+          | 4+          | 5+   | 6+          | 7+   | 8+   |
|-----------|------|-------------|-------------|-------------|------|-------------|------|------|
| 40 eV     | 0.16 | <i>0.45</i> | 0.39        | -           | -    | -           | -    | -    |
| 80 eV     | -    | <i>0.71</i> | 0.29        | -           | -    | -           | -    | -    |
| 140 eV    | -    | <i>0.48</i> | <i>0.52</i> | -           | -    | -           | -    | -    |
| 700 eV    | -    | 0.05        | 0.09        | <i>0.37</i> | 0.27 | 0.19        | 0.03 | -    |
| 1140 eV   | -    | -           | 0.07        | 0.23        | 0.23 | <i>0.28</i> | 0.11 | 0.07 |

**Tabelle 3.1:** Relative Häufigkeiten der Ladungszustände von Xe-Atomen nach dem Anregen mit verschiedenen Photonenenergien. Die Ladungszustände mit der größten Häufigkeit sind kursiv dargestellt.

Die Wechselwirkung von Synchrotronstrahlung und Atomen in Clustern unterscheidet sich grundsätzlich nicht von der mit isolierten Atomen. Nach dem Photoionisierungsprozess und eventuellen sich anschließenden Auger-Zerfällen relaxiert der Cluster in einen Zustand niedrigster Energie. Die Relaxation hängt dabei stark vom Grad der Ionisierung ab. Bei der einfachen Ionisierung delokalisiert das Valenzloch bevor es durch



**Abbildung 3.4:** Flugzeitspektren von Xe-Atom gemessen bei verschiedenen Anregungsenergien (80 eV, 140 eV, 700 eV). Alle Spektren wurden mit dem in dieser Arbeit entwickelten Reaktionsmikroskop aufgenommen. Zahlen mit Plus geben den Grad der Ionisation an. An den Spektren ist sehr gut die Aufspaltung in die verschiedenen Xe-Isotope zu erkennen. Die relative Häufigkeit der Ladungszustände sind in Tabelle 3.1 zusammengefasst. Bei 2600 ns sind fragmentierende Wassermoleküle zu erkennen.

die Bildung eines Dimers lokalisiert. Wird ein Atom durch Innerschalenanregung und anschließenden Auger-Zerfällen mehrfach geladen, werden die Löcher des ionisierten Atoms durch Elektronen der Nachbarn aufgefüllt. Auf diese Weise können mehrere einfach geladene Ionen im Cluster entstehen, die sich aufgrund ihrer gleichnamigen Ladung abstoßen. Eine detaillierte Beschreibung des Wechselwirkungs- und Relaxations-Mechanismus von Edelgasclustern (Ne bis Xe) mit Photonen bzw. Elektronen von der Ionisierung bis zur Detektion wurde von Hellmut Haberland vorgeschlagen [42]. Die Fragmentation wird dabei in sechs Schritte unterteilt (s. Tabelle 3.2). Dieses Modell findet vielfältige experimentelle Unterstützung und Anwendung z. B. in [43, 44, 45].

| Schritt | Zeit nach Ionis.[s]  | Ereignis                                   |
|---------|----------------------|--|
| 1       | 0                    | Ionisierung                                |
| 2       | $< 2 \cdot 10^{-15}$ | Elektron verlässt Cluster                  |
| 3       | $10^{-12}$           | Ladungstransfer ( <i>hole hopping</i> )    |
| 4       | $< 10^{-12}$         | Bildung von Dimer-Ionen                    |
| 5       | $< 10^{-8}$          | Relaxation durch Abdampfen neutraler Atome |
| 6       | $> 10^{-6}$          | Nachweis im Detektor                       |

**Tabelle 3.2:** Beschreibung der Cluster-Licht-Wechselwirkung in sechs Schritten nach H. Haberland [42].

Im *ersten Schritt* findet die Ionisierung eines Clusteratoms statt. Abhängig von der Energie wird das Clusteratom einfach oder mehrfach ionisiert. Ist die Energie des einfallenden Photons groß genug, kann ein Innerschalenelektron ins Kontinuum angeregt werden. Durch anschließende Auger-Zerfälle ( $\sim fs$ ) lädt sich das Atom weiter auf.

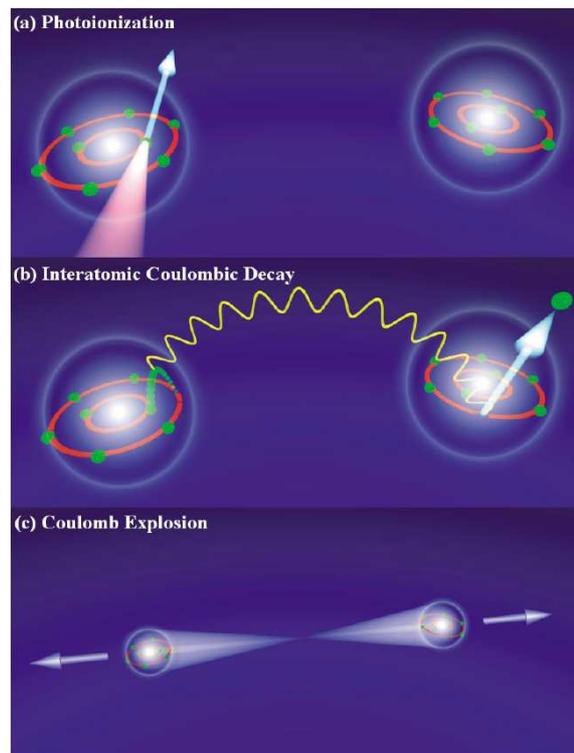
Der *zweite Schritt* beschreibt das Verlassen der Elektronen aus dem Cluster. Die freie Weglänge des Elektrons in einem kleinen Edelgas-Cluster ist so groß. Neueste Experimente haben gezeigt, dass die Elektronen in großen Clustern an anderen Atomen streuen [19, 46].

Wird ein Atom einfach ionisiert, kann die positive Ladung bzw. das Loch auf benachbarte Atome transferiert werden (*dritter Schritt*). Aus der endlichen Amplitude der Lochtransfer-Wahrscheinlichkeit lässt sich ableiten, dass das Loch im Cluster delokalisiert ist, d.h. dem Loch lässt sich zunächst kein Atom als Aufenthaltsort zuordnen. Die Zeit  $\Delta t$ , die eine Ladung für diesen hole hopping Prozess von einem geladenen zu einem neutralen Atom benötigt, lässt sich über die Unschärferelation  $\Delta t \cdot \Delta A \geq \hbar$  bestimmen [47].  $\Delta A$  ist das Überlappintegral von benachbarten Atomen. Somit hängt die hole hopping Zeit von der elektronischen Struktur ab und somit vom Element. Für Ne, Ar, Kr und Xe ergeben sich für die Zeit entsprechend 4,3, 1,9, 1,6 und  $1,4 \cdot 10^{-14}s$ . Spin-Orbit-Effekte wurden hier vernachlässigt. Außerdem wurde als Abstand zwischen den Atomen der Gleichgewichtszustand eines neutralen Dimers angenommen. Eine andere Abschätzung für die hole hopping Zeit kann über das tight-binding [48] Modell für kubische Kristalle gegeben werden. Hier ist die Breite des Valenzbandes gerade 2A multipliziert mit der Anzahl der nächsten Nachbarn [47]. Die Valenzbandbreiten für

Ne, Ar, Kr und Xe sind 1,3 eV, 1,7 eV, 2,3 eV, und 3,0 eV [49]. Diese Abschätzung ergibt die gleiche Größenordnung und den gleichen Trend wie die durch die Unschärfe bestimmten Werte für  $\Delta t$  [47]. Somit kann die delokalisierte Ladung auf dem Cluster mit einer Rate von  $\sim 10^{14}$  1/s zwischen den Atomen hin und her wandern. Diese Rate ist für Ne fast vier mal zu groß wie von Xe. Ein Loch im Ne Cluster kann in der gleichen Zeit weiter wandern als eines in Xe-Clustern. Wenn man dieses Modell von Haberland auf mehrere Löcher erweitert, kann angenommen werden, dass die Löcher sich aufgrund ihrer Coulombabstoßung maximal voneinander entfernen. Unter der Annahme, dass sich die Löcher mit 1000 m/s bewegen, legen sie in  $10^{-12}$  s (typische Zeit bis zur Ladungslokalisierung) eine Strecke von 1 nm zurück. Diese Strecke entspricht einem typischen Radius der hier untersuchten Cluster (s. Tabelle 5.2). Der Unterschied der verschiedenen hole hopping Zeiten für Ne und Xe von  $\sim 3 \cdot 10^{-14}$  s verschwindet auf dieser Zeitskala.

Ein anderer Prozess der für den Ladungs- bzw. Energietransfer zwischen zwei Atomen eine wichtige Rolle spielt, ist der *Interatomic Coulombic Decay* (ICD). Bei diesem extrem schnellen Prozess (1-100 fs, [50, 51]) wird die Energie, die bei der Relaxation eines Innerschalenloches frei wird, auf ein Nachbaratom übertragen. Diese Energie kann dazu führen, dass ein Elektron aus der äußeren Schale des Nachbaratoms emittiert wird. Durch diesen Energietransfer werden zwei Ladungen auf zwei benachbarten Atomen erzeugt (s. Abbildung 3.5). Aufgrund der Coulomb-Kraft der beiden Ionen stoßen sich die beiden Ionen voneinander ab. Findet der Prozess in einem Dimer statt, zerbricht dieses in zwei Ionen. Der Nachweis dieses Prozesses wurde vor kurzem an Ne Clustern, die unter der Doppelionisierungsenergie (60,9 eV für Dimere, [53]) angeregt wurden, experimentell nachgewiesen [52, 54].

Der *vierte Schritt* beschreibt das Lokalisieren der Ladungen im Cluster. Im Fall der einfach Ionisierung lokalisiert das Loch nach  $\sim 10^{-12}$  s zu einem Dimer. Der Grund für diese Lokalisierung liegt in dem großen Bindungspotential von Dimeren: 1,3 eV für Ne und 1,03 eV für Xe-Dimere [47]. Für die Lokalisierung von zwei (mehreren) Ladungen auf dem Cluster existieren zwei Erklärungsmodelle. Das eine Modell basiert darauf, dass sich die Ladungen durch das hole hopping maximal voneinander entfernen und nach  $\sim 10^{-12}$  s im Abstand von einigen nm, wie im Fall der einfach Ionisierung, zu Dimeren lokalisieren. Das zweite Modell, das auf Untersuchung von Relaxationsstrahlung basiert [43, 55, 56, 57], beschreibt die Bildung eines kurzlebigen doppelt geladenen Dimers. Durch die elektrische Ladung ist der Abstand der beiden Konstituenten durch Polarisierungseffekte kurzzeitig reduziert, wodurch die Lochtransferwahrscheinlichkeit anwächst. Das zweifach geladene Dimer zerfällt in zwei einfach geladene Ionen [43, 56, 57]. Im weiteren Verlauf der Relaxation können diese Monomere mit neutralen Atomen wieder größere Fragmente bilden. Die Bindungsenergie des Dimers führt zur thermischen Anregung des Clusters wodurch die Abstände der Atome größer werden und somit die Lochtransferwahrscheinlichkeit kleiner. Der Ladungstransport durch hole hopping spielt bei diesem Prozess keine große Rolle. Welcher Ladungstransferprozess in Edelgasclustern tatsächlich stattfindet, konnte bisher nicht eindeutig geklärt werden. Der *fünfte Schritt* beschreibt die Relaxation des geladenen Clusters. Die Bindungsenergie, die bei der Bindung von Ionen mit neutralen Atomen frei wird, führt zur ther-

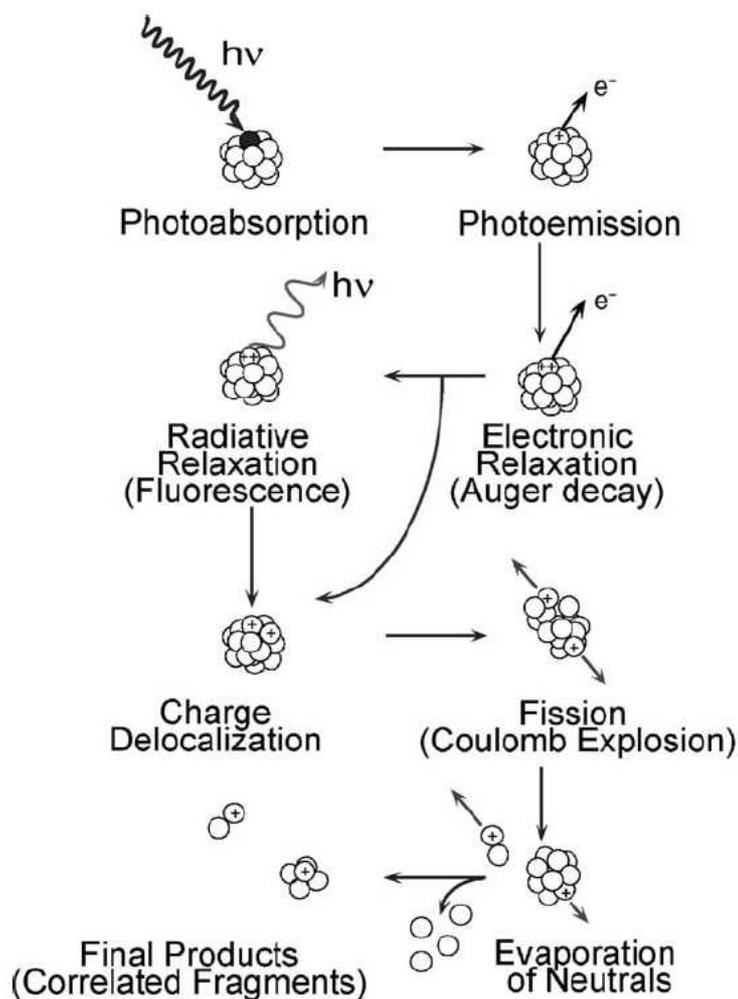


**Abbildung 3.5:** Darstellung des Interatomic Coulombic Decays in einem Edelgasdimer. Nachdem ein Innerschalenloch durch Photoionisierung in einem der Atome entstanden ist (a), wird die freiwerdende Energie auf das Nachbaratom übertragen und führt zur Emission eines Valenzelektrons (b). Die positiv geladenen Ionen stoßen sich aufgrund der Coulomb-Kraft ab (c). [52]

mischen Schwingungsanregung des Clusters und somit zu einem Aufheizen des Clusters. Dem Aufheizen wirkt ein permanentes Abdampfen von neutralen Atomen aus dem Cluster entgegen. Die abdampfenden Atome oder Clusterfragmente transportieren thermische Energie vom Cluster, was zu einer Kühlung führt. Durch das Aufheizen wird der Abstand zwischen den Konstituenten größer, was zu einer höheren Mobilität der Ionen im Cluster führt. Die Dynamik der Ionen hängt außerdem noch von der Art der Cluster und der Anzahl der Ladungen ab. Atome in Ne Clustern besitzen aufgrund der geringen Bindungsenergie pro Teilchen (26,5 meV, [58]) eine erhöhte Mobilität. Daher werden sie oftmals auch als weich oder flüssig bezeichnet. Die Bindungsenergie pro Teilchen in Xe-Cluster hingegen ist sehr viel größer (172,3 meV, [58]) und somit sind Xe-Cluster im Vergleich zu Ne Clustern sehr viel stabiler. Wie sich die Ionen im Cluster bewegen wird im Wesentlichen durch die Anzahl der Ladungen bestimmt. Befinden sich mehrere Ladungen auf dem Cluster wird deren Bewegung durch die gegenseitige Coulombabstoßung bestimmt. Welchen Einfluss die Anzahl der Ladungen und die Art der Cluster auf die Fragmentation hat, wird in dieser Arbeit untersucht.

Im *letzten Schritt* treffen die Fragmente auf die Detektoroberfläche.

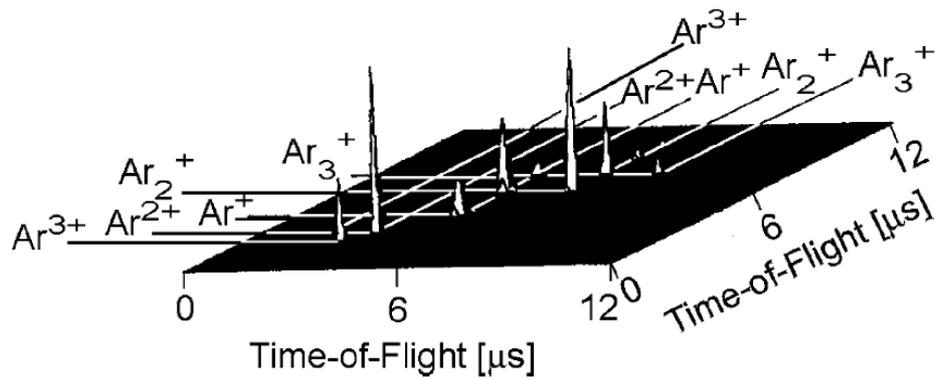
Diese Schritte haben sich als praktische und sinnvolle Modellvorstellung etabliert und sollen in dieser Arbeit als Gedankengerüst verwendet werden.



**Abbildung 3.6:** Schema der Dynamik in einem innerschalen angeregten Edelgascluster. Nach der Photoabsorption und Photoemission relaxiert der Cluster. Es folgt Ladungstransfer und Ladungsdelokalisierung. Je nachdem wie viel Ladung auf dem Cluster deponiert wurde, kommt es im letzten Schritt zur Cluster-Spaltung oder zur Coulomb-Explosion. [43]

In Abbildung 3.6 ist ein einfaches Bild für die Innerschalen-Anregung eines Clusters dargestellt. Der Lochzustand wird zunächst durch elektronische oder strahlende Relaxation abgeregt. Durch die Relaxation kann sich der Ladungszustand des Clusters durch einen Auger-Prozess erhöhen. Die Art der Cluster-Fragmentation hängt stark von der Größe des Clusters und dem Grad der Ionisierung ab. Rühl hat das Fragmentationsverhalten von kleinen Innerschalen angeregten Ar-Clustern untersucht [43, 44]. Ionen-Ausbeute-Messungen haben ergeben, dass sich die relative Häufigkeit von  $\text{Ar}^+$ ,  $\text{Ar}_2^+$ ,  $\text{Ar}_3^+$  in Abhängigkeit von der mittleren Clustergröße  $\langle N \rangle$  ändert. Größere Fragmente als  $\text{Ar}_3^+$  wurden nicht detektiert.

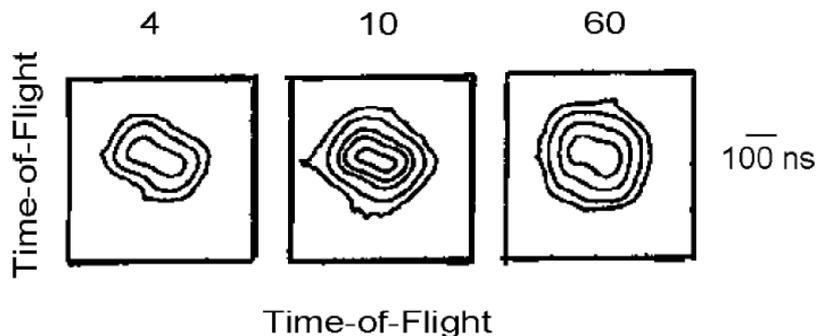
Eine Möglichkeit diese Prozesse genauer zu untersuchen stellt die PePiPiCo- (Photoelectron Photoion Photoion Coincidence) Messung dar. Die PePiPiCo-Messmethode stellt eine sehr etablierte Verfahren für die Untersuchung des Fragmentationsverhalten von kleinen, schwach geladenen Molekülen und Clustern dar [43, 44, 59, 60, 61, 62, 63, 64].



**Abbildung 3.7:** PePiPiCo-Messung von Argon  $\langle N \rangle = 60$ ,  $E_\gamma = 260$  eV. Die Flugzeit des ersten nachgewiesenen Fragmentes ist gegen die des zweiten aufgetragen. Aus den Überlappungen der Flugzeit-Signale erkennt man, welche Fragmente koinzident auftreten und wie die kinetischen Energien verteilt sind. [43]

Dabei wird ein Photoelektron in Koinzidenz mit zwei Ionen gemessen. Die Flugzeiten der beiden Ionen werden gegeneinander aufgetragen (s. Abbildung 3.7). Aus dieser Darstellung lassen sich für zweifach geladene Cluster alle Fragmentationskanäle darstellen. Aus der relativen Stärke und der sich überlagernden Flugzeitsignale können bevorzugte Kanäle erkannt werden. So entdeckte man, dass die Fragmentation in symmetrische Fragmente, z. B. zwei  $\text{Ar}^+$  mit ansteigender Clustergröße, abnimmt. Gleichzeitig nimmt die unsymmetrische Fragmentation, d.h. z. B.  $\text{Ar}^+$  und  $\text{Ar}_2^+$  zu. Des Weiteren kann man aus der Form der überlagernden Flugzeitsignale Einblick in den Fragmentationsprozess erhalten. Fragmentiert der Cluster nur in zwei geladene Teile gleicher Größe ergibt sich ein Strich mit der Steigung -1. Die kinetische Energie wird nur zwischen diesen beiden Teilen aufgeteilt. Ist an dem Prozess noch ein weiteres neutrales Teilchen beteiligt, das nicht nachgewiesen werden kann, tritt eine Abweichung von der Steigung -1 auf. Für größere Cluster verschmiert die Form in eine ellipsenförmige Struktur (s. Abbildung 3.8), aus der man lernen kann, dass die kinetische Energie statistisch zwischen vielen Zerfallsprodukten aufgeteilt wird. Für Prozesse, in denen drei Ladungen auf dem Cluster generiert werden, lassen sich ähnliche Überlegungen anstellen. Allerdings ist dafür die in [44] verwendete Technik nicht mehr sehr aussagekräftig. Die verschiedenen Zerfallskanäle können zwar noch getrennt werden, die Form der überlagerten Signale enthält jedoch keine Information mehr über die Dynamik der Prozesse. Aus der Auswertung dieser PePiPiCo-Messungen hat man geschlossen, dass nachdem ein einfach geladenes Atom den Cluster verlassen hat, der verbleibende zweifach geladene Rest zerbricht. Eine genauere Analyse ist mit dieser Messtechnik nicht möglich. Somit bleibt auch unklar, ob die Relaxation bzw. Fragmentation sequentiell oder simultan abläuft. Außerdem ist es mit dieser Messmethode unmöglich, die Dynamik und die Geometrie der Fragmentation zu untersuchen.

Bisher wurden nur Fragmentationsprozesse diskutiert in denen der Cluster zwei- oder dreifach geladen war. Kleine Cluster zerbrechen unter dem Einfluss der abstoßenden



**Abbildung 3.8:** Form der überlagerten Flugzeit-Signale von  $\text{Ar}^+/\text{Ar}_2^+$  in Abhängigkeit von der Clustergröße ( $N = 4, 10, 60$ ). Die Form ermöglicht eine Analyse des Fragmentationsprozesses.[43]

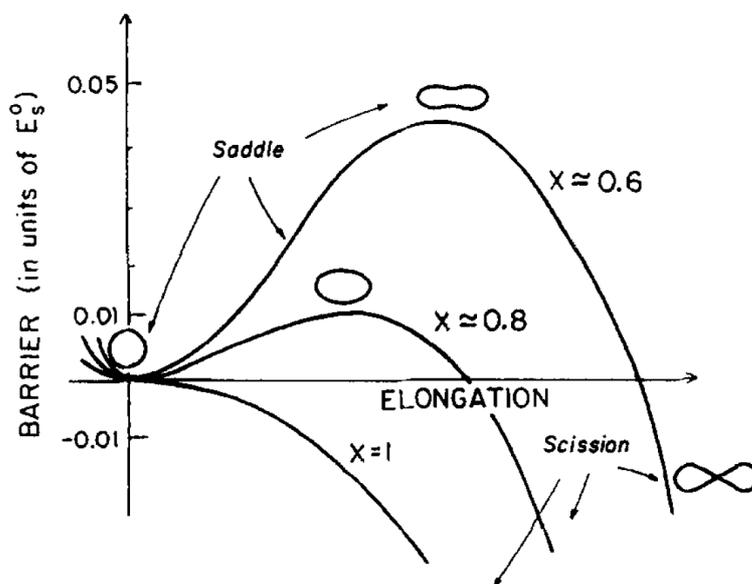
Coulombkraft der Clusterionen. Größere Cluster können allerdings die bei der Ionisation und Rekombination frei werdende Energie und die Coulombabstoßung kompensieren, indem die Energie in Schwingungsenergie der Clusteratome überführt wird. Durch die große Zahl von möglichen Schwingungsmoden kommt es zu keiner Fragmentation; die Energie kann dissipiert werden. Die Größen, ab denen die Cluster stabil bleiben, werden auch kritische Größen genannt und werden durch das *Liquid Drop Model* (LDM, s. Kapitel 3.2) [65] gut vorhergesagt [66, 67]. Diese kritische Größe liegt zum Beispiel für  $\text{Ar}^{2+}$  bei  $N_{crit} = 91$  und für  $\text{Ar}^{3+}$   $N_{crit} = 262$  [68].

Wird ein Clusteratom mehrfach geladen, ist ein schneller Ladungstransfer auf die benachbarten Clusteratome die Folge. Die abstoßende Coulombkraft ist viel stärker als die Bindungsenergie des Clusters. Das Resultat ist die sogenannte *Coulomb-Explosion*. Jetzt stellt sich natürlich die Frage, unter welchen Bedingungen kommt es zu einer Spaltung des Clusters und wann zu einer Coulomb-Explosion? Außerdem erscheint es sehr interessant, die dynamischen Größen und die Geometrie dieser beiden Prozesse zu bestimmen. Diese Aspekte werden im folgenden Thema diskutiert.

## 3.2 Fragmentation von Edelgasclustern: Spaltung / Explosion

Bereits 1882 hat Lord Rayleigh eine Arbeit über das Fragmentationsverhalten von makroskopischen, flüssigen Tropfen veröffentlicht [65]. In dieser Arbeit führt er das *Liquid Droplet Model* (LDM) ein. Seit der Einführung fand dieses Modell in den verschiedensten Feldern der Wissenschaft Anwendung. Unter anderem kann es die Fragmentation verschiedenster Teilchen in der Kern- und Clusterphysik beschreiben [69, 70, 71, 72, 73, 74, 75]. Aktuelle Ergebnisse zum Fragmentationsverhalten von makroskopischen Teilchen haben gezeigt, dass die Untersuchung der Dynamik hoch geladener Partikel ein sehr interessantes Thema darstellt [76].

Das LDM beschreibt im Wesentlichen wie elektrisch geladene Tropfen über eine prolate Verformung in mehrere kleine Tröpfchen zerplatzen können. Cluster werden in diesem



**Abbildung 3.9:** Dargestellt ist die Rayleigh-Instabilitäts-Barriere für verschiedene Fissilitäten  $X$  in Abhängigkeit von der Verformung (Elongation). Für  $X < 1$  besitzt die Barriere Maxima. Hier ist der Cluster stabil. Für größere Fissilitäten  $X \geq 1$  wird der Cluster instabil. Wann der Cluster aufspalten, hängt von seiner Verformung ab. [72]

Modell als klassische geladene Tröpfchen behandelt. Diese geladenen Tropfen können sich unter Erhalt ihrer Masse in ihrer Länge ausdehnen und in mehrere kleine Tropfen aufspalten. Zu Beginn dieses Prozesses kann die kurz reichweitige Kohäsiv-Kraft der Verformung entgegenwirken und der Cluster bleibt stabil. Wenn jedoch, z. B. durch thermische Anregung, die lang reichweitige Coulomb-Kraft eine kritische Stärke erreicht hat, wird der Cluster instabil und zerplatzt. Die Menge der Ladung und die Größe bestimmen, wie ausgeprägt diese Verformung und somit die Fragmentation verläuft.

Die Dynamik des Cluster wird somit bestimmt durch das Verhältnis der anziehenden, kurz reichweitigen Kohäsiv-Kraft (bzw. Energie)  $E(Kohesiv)$  und der abstoßenden lang reichweitigen Coulomb-Kraft (bzw. Energie)  $E(Coulomb)$ . Diese konkurrierenden Kräfte sind dafür verantwortlich, dass sich eine Barriere ausbildet, die zwischen stabilen und instabilen Clustern trennt. Diese Barriere ist die *Rayleigh-Instabilitäts-Barriere*.

Eine Größe, die die anziehende und die abstoßende Kraft in Verbindung setzt und somit die dynamische und strukturelle Entwicklung des Systems charakterisiert, ist der *Rayleigh Fissilitäts Parameter*  $X$  (s. Abbildung 3.9) [65, 74]:

$$X = \frac{E(Coulomb)}{2E(Kohesiv)}. \quad (3.1)$$

Ist die abstoßende Coulomb-Energie zweimal so groß, wie die anziehende Kohäsiv-Energie, nimmt der Fissilitäts-Parameter  $X$  den Wert 1 an (Rayleigh-Instabilitäts-Limit) und die Barriere ist 0.

Ist die Coulomb-Energie kleiner als die Kohäsiv-Energie,  $X < 1$ , kann es zur thermisch

aktivierten Spaltung des Partikels kommen. Der angeregte Cluster beginnt zu schwingen und die dabei frei werdende Energie führt zu einer Zunahme der Amplitude, bis sich eine Art Flaschenhals bildet und der Cluster in idealerweise zwei große Fragmente aufspaltet [67].

Über dem Rayleigh-Instabilitäts-Limit  $X > 1$  öffnen sich Kanäle für eine barrierefreie Fragmentation. Der Anteil der abstoßenden Coulomb-Energie ist in diesem Fall viel größer als der Anteil der zusammenhaltenden Kohäsiv-Energie. Der Atomverbund kann nicht mehr zusammengehalten werden und platzt auf. Für Cluster befindet man sich hier im Bereich der Coulomb-Explosion (s. Abbildung 3.9).

In Abbildung 3.9 ist die Rayleigh-Instabilitäts-Barriere für verschiedene Fissilitäten  $X$  in Abhängigkeit von der Verformung (Elongation) dargestellt. Für  $X = 1$  ist die Barriere gleich null. Verformt sich der Cluster, nimmt die Barriere einen negativen Wert an und der Cluster fragmentiert. Für Fissilitäten, die kleiner als eins sind existieren Maxima für die Barriere bei bestimmten Verformungen. Hier sind die Cluster stabil. Verformen sich die Cluster weiter, nimmt die Stärke der Barriere ab und der Cluster wird instabil. Er spaltet in mehrere Fragmente auf.

Bis zu welcher Verformung die Objekte noch stabil bleiben, hängt von ihrer Fissilität ab. Bestimmen lässt sich  $X$  für  $Z > 1$  und große  $N$  durch:

$$X = \frac{(Z^2/N)}{(Z^2/N)_{cr}} \quad (3.2)$$

$$(Z^2/N)_{cr} = 16\pi\gamma r^3/e^2. \quad (3.3)$$

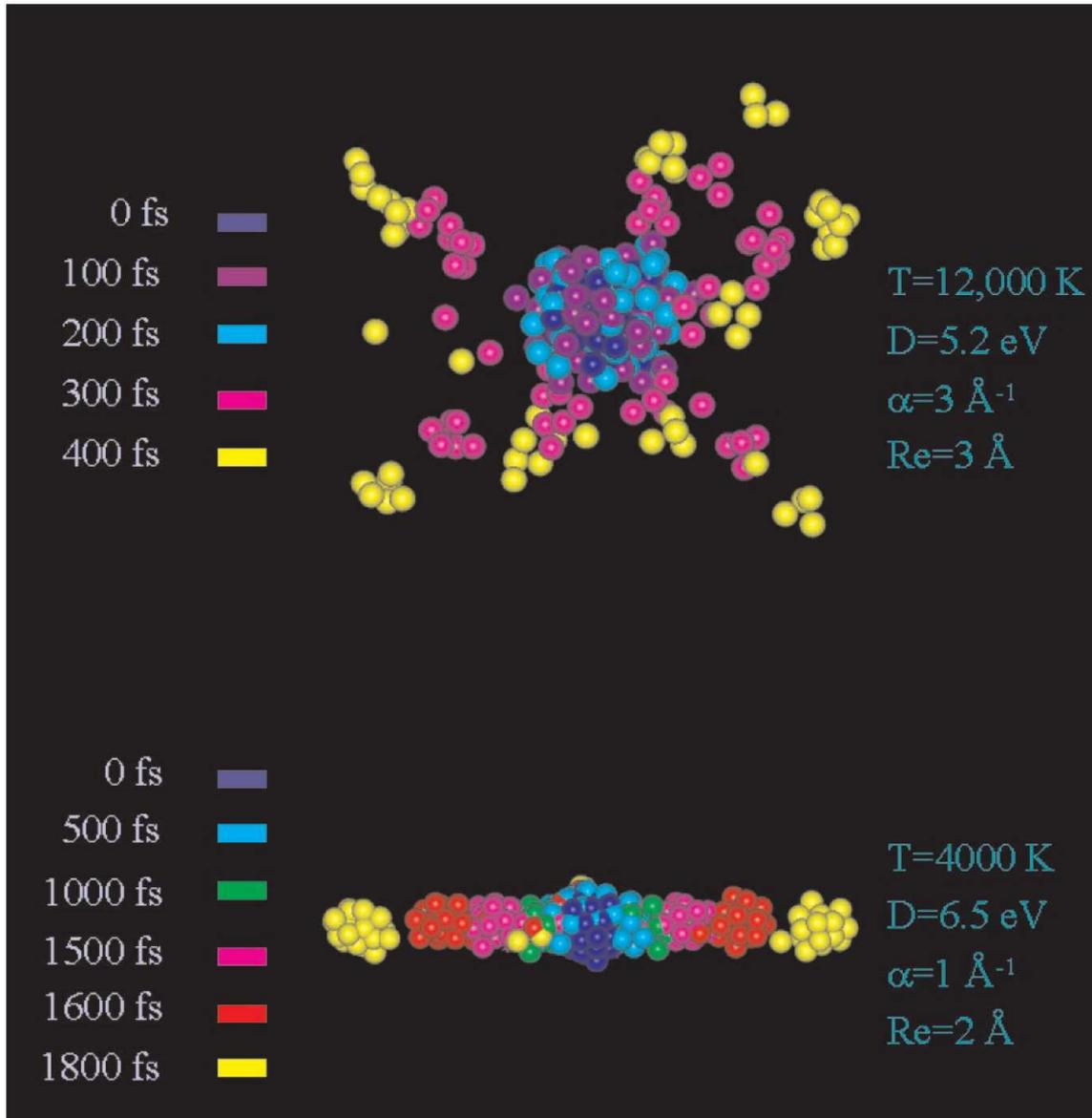
Mit  $Z$ : Anzahl der Ladungen auf dem Cluster,  $N$ : Anzahl der Atome im Cluster,  $\gamma$ : Oberflächenspannung,  $r$ : Radius der einzelnen Atome. Für Neon Cluster erhält man ( $\gamma = 0,006 \text{ J/m}$  [77],  $r = 2,74 \text{ \AA}$  [48]):

$$X_{Ne} = 40 \cdot \left( \frac{Z^2}{N} \right) \quad (3.4)$$

und für Xenon Cluster ( $\gamma = 0,019 \text{ J/m}$  [78],  $r = 3,98 \text{ \AA}$  [48])

$$X_{Xe} = 4,2 \cdot \left( \frac{Z^2}{N} \right) \quad (3.5)$$

Die Arbeitsgruppe von J. Jortner hat sich in den letzten Jahren intensiv mit der Simulation von Fragmentationprozessen verschiedenartiger mikroskopischer Teilchen beschäftigt. Die Basis dieser Simulation bildet auch hier ein modifiziertes LDM nach Lord Rayleigh. Auch wenn die Simulationen für Morse-Cluster durchgeführt wurden, lassen sich laut Diskussion der Autoren die wesentlichen Ergebnisse auf Edelgas Cluster übertragen [79]. In den Simulation von Jortner [74, 79, 75] werden Morse-Potentiale angenommen. Für geringe Ladungszustände wird ein schwaches, langreichweitiges Potential benutzt, für hohe Ladungszustände ein starkes kurzreichweitiges Potential. Des



**Abbildung 3.10:** Momentaufnahmen von fragmentierenden Morse-Clustern. Die verschiedenen Farben markieren das System zu verschiedenen Zeiten. Oben: Coulomb-Explosion bei einer Fissilität von  $X = 4,2$ , unten: Spaltung eines Clusters bei  $X = 0,23$ . Besonders auffällig ist der Unterschied der Geometrie der Explosion und der Spaltung. Ein weiterer gravierender Unterschied sind die voneinander abweichenden Zeitskalen. Die für die Simulationen angenommenen Parameter sind am rechten Bildrand aufgetragen. [79]

Weiteren wird die Größe der Cluster und die Dissoziationsenergie variiert. Das Ergebnis der Simulationen ist in Abbildung 3.10 sehr eindrucksvoll und anschaulich dargestellt. Dabei können zwei Regime unterschieden werden: Die Spaltung (Fission) und die Coulomb-Explosion. Der deutlichste Unterschied dieser beiden Prozesse ist die räumliche Verteilung der Fragmente oder auch die Geometrie. Für einen Fissilitäts-Parameter von  $X = 0,23$  und einem langreichweitigen Potential zerbricht der Cluster in zwei kleinere Cluster, die im  $180^\circ$  Winkel auseinander fliegen (s. Abbildung 3.10, unten). Die Fragmentation ist somit sehr anisotrop. Auf der anderen Seite (s. Abbildung 3.10, oben) resultiert aus  $X = 4,2$  und einem kurzreichweitigen Potential eine Coulomb-Explosion der Probe. Diese Explosion ist räumlich isotrop. Es entstehen ausschließlich kleine Ionen. Die Explosion spielt sich auf einer viel kürzeren Zeitskala ab. Fragmente, die aus einer Coulomb-Explosion entstehen, besitzen eine größere kinetische Energie als Fragmente aus einem Spalt-Prozess.

### 3.3 Ionisierung von Atomen und Clustern im nicht linearen Regime der Wechselwirkung

In diesem Kapitel wird die Wechselwirkung von hoch intensiven VUV Laserfeldern mit Atomen und Clustern beschrieben

Bei hohen Feldstärken kann es zur Ionisation von Atomen kommen, auch wenn die Photonenenergie für diesen Prozess eigentlich zu gering ist. Die Entwicklung von hochintensiven IR<sup>2</sup> Laserquellen haben ganz neue Forschungsfelder hervorgebracht, wie zum Beispiel die Erzeugung von höheren Harmonischen [80, 81] oder die Attosekunden-Physik [82, 83, 84, 85].

Für die Diskussion der Wechselwirkung von Licht mit Materie sind zwei Wellenlängen-Bereiche zu unterscheiden: Der IR- und der VUV-Bereich.

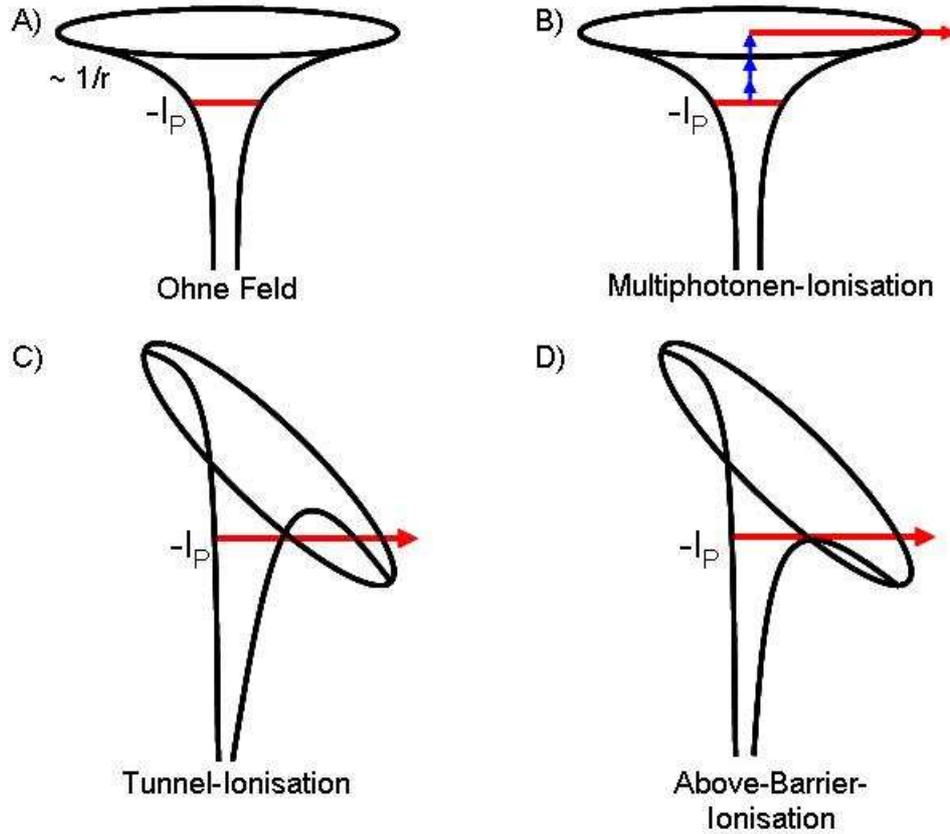
In hoch intensiven IR Laserfeldern ( $> 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>) kann das elektromagnetische Feld nicht mehr als kleine Störung des atomaren Coulomb-Potentials angesehen werden. Es ist von der gleichen Größenordnung und verbiegt es derart, dass es unter der Ionisationsschwelle der Valenzelektronen liegt (s. Abbildung 3.11) [86, 87, 88, 89]. Außerdem ist das Feld im IR-Bereich gegenüber allen elektronischen Bewegungen quasi-statisch. Elektronen können das Atom somit bei sehr hohen Intensitäten barrierefrei (above barrier ionisation) oder durch Tunneln durch den verbleibenden Potentialwall (Tunnel-Ionisation) verlassen. In diesem Fall spricht man von der Feldionisation.

Im VUV-Spektralbereich ist die Frequenz des elektromagnetischen Feldes und die Energie der Photonen viel größer. Der Cluster lädt sich während der Wechselwirkung stark auf. Das sich aufladende Nanoplasma kann sehr viel Energie absorbieren. Ab einer gewissen Schwelle ist die abstoßende Coulomb-Kraft der Ionen so groß, dass der Cluster explodiert (s. Kapitel 3.4).

Die Separation der beiden Wellenlängen- (bzw. Ionisierungs-) Bereiche kann erklärt werden, indem man annimmt, dass die Elektronen für das Durchtunneln des Potenti-

---

<sup>2</sup>IR: Infra Rot



**Abbildung 3.11:** Nicht lineare Ionisationsprozesse in starken Laserfeldern. A) Wirkt kein externes Feld auf das Atom erhält man die bekannte  $1/r$ -Abhängigkeit des Coulomb-Potentials vom Abstand  $r$ . Das Ionisationspotential des Atoms ist  $I_p$ . B) Die Multi-Photonen-Ionisation tritt bei Feldstärken bis  $< 10^{14} \text{ W/cm}^2$  auf. Für die Ionisation sind mehrere Elektronen notwendig; hier angedeutet durch die Pfeile. C) Bei Feldstärken von  $10^{14} \text{ W/cm}^2 - 10^{15} \text{ W/cm}^2$  tritt Tunnelionisation auf. Wenn die Laserfrequenz gering genug ist, kann das elektromagnetische Feld als statisch angesehen werden und die Elektronen können durch den herabgesetzten Potentialwall das Atom verlassen. D) Bei noch intensiveren Feldern kommt es zur direkten above barrier Ionisation.

alwalls eine endliche Zeit  $t_t$  benötigen. Ist diese Zeit kleiner als die Schwingungsdauer des Lasers  $t_L$ , kann es zur Tunnel-Ionisation kommen. Ist  $t_L$  kleiner als  $t_t$ , hat sich die Richtung des Feldstärkevektors gedreht, bevor es zu einem Tunneln kommen konnte. Durch die Einführung des Keldysh-Parameters  $\gamma$  lassen sich die beiden Bereiche quantitativ trennen [90]:  $\gamma = t_t/t_L$ . Für  $\gamma \gg 1$  befindet man sich im MPI Bereich und für  $\gamma \ll 1$  im Bereich der Feldionisierung. Unter Verwendung der Tunnel-Frequenz  $\omega_t = eE_0/\sqrt{2m_e I_p}$  erhält man folgenden Ausdruck für den Keldysh-Parameter:

$$\gamma = \sqrt{\frac{I_p}{2 \frac{e^2 E_0^2}{4m_e \omega^2}}} = \sqrt{\frac{I_p}{2E_p}}. \quad (3.6)$$

Mit  $I_p$ : Ionisationspotential,  $E_0$ : elektrische Feldstärke und  $E_p$ : Ponderomotive Energie. Die ponderomotive Energie ist die über mehrere Schwingungen gemittelte kinetische Energie  $E_{kin}(t) = (e^2 E_0^2 / 2m\omega^2) \sin^2(\omega t)$ , die ein Elektron im Laserfeld gewinnt:

$$E_p = \frac{e^2 E_0^2}{4m_e \omega^2}. \quad (3.7)$$

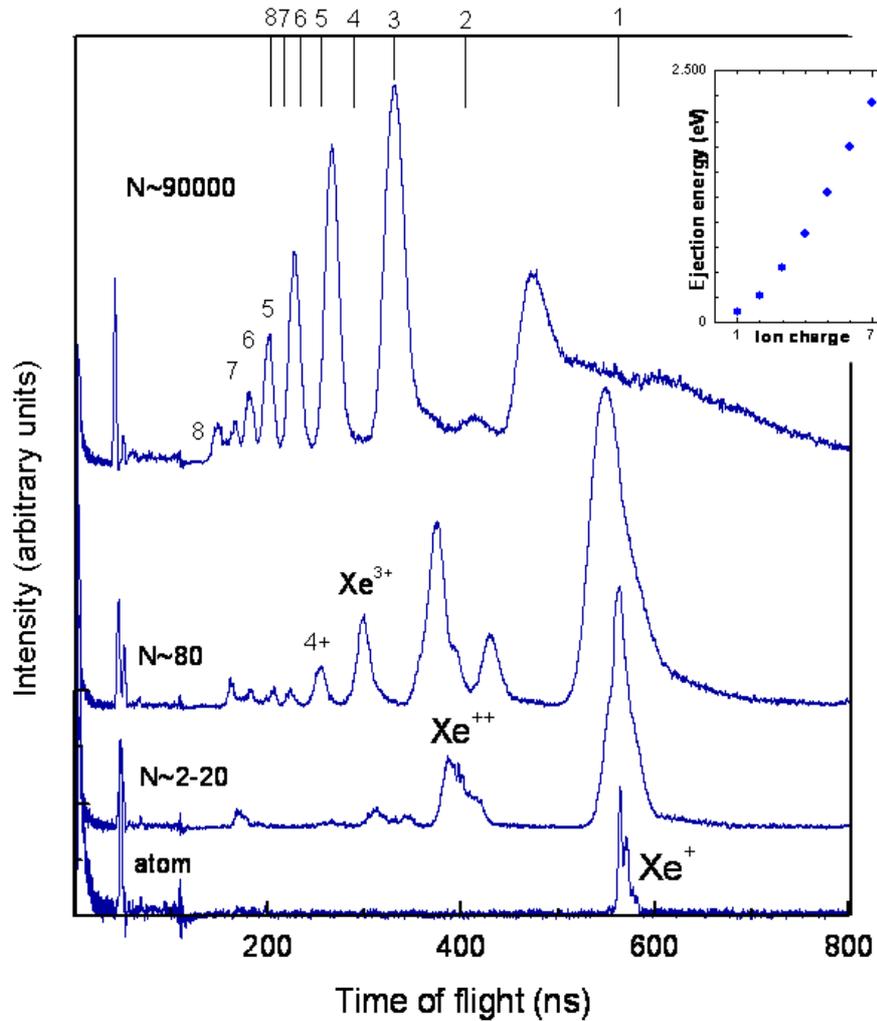
Für elektromagnetische Felder hoher Frequenzen (VUV Spektralbereich) dominiert der MPI Prozess und für niedrige Frequenzen (IR Spektralbereich) der Feldionisation Prozess die Ionisierung.

Für niedrige Feldintensitäten ist der gesamte Spektralbereich seit längerem experimentell zugänglich. Für hohe Intensitäten gab es bis vor kurzem nur Lichtquellen im sichtbaren und IR Spektralbereich. Erst die Entwicklung des VUV-FELs, FLASH, am HASYLAB in Hamburg (s. Kapitel 2.4) hat es möglich gemacht, auch bei hohen Frequenzen Materie in starken Laserfeldern zu untersuchen [34, 35, 92].

### 3.4 Dynamik von Ladungsträgern in intensiven VUV-Laserfeldern

Im Folgenden wird der aktuelle Kenntnisstand zur Wechselwirkung von intensiven VUV-Pulsen mit Clustern kurz zusammengefasst. Die ersten Experimente hierzu wurden von der AG Möller am HASYLAB bei einer Wellenlänge von 98 nm durchgeführt und unter anderem in der Dissertation von Hubertus Wabnitz [93] ausführlich diskutiert.

Die Wechselwirkung hochintensiver Pulse mit Clustern wird bestimmt durch die Energie, die Intensität und der Pulslänge sowie der Größe der Cluster. Auf Basis der Ergebnisse, die in der ersten Testphase des FLASHs gewonnen wurden [91, 94, 95, 96], konnte ein theoretisches Modell entwickelt werden, das die beobachteten Phänomene qualitativ beschreibt. In diesem Experiment entstanden während der Wechselwirkung von VUV-Pulsen mit Clustern mehrfach geladene Clusteratome. Der hohe Ladungszustand des Clusters führte zur Coulomb-Explosion. Die geladenen Fragmente konnten mit einem TOF-Spektrometer nachgewiesen werden. In Abbildung 3.12 sind TOF-Spektren verschieden großer Cluster bei konstanter Pulsintensität aufgetragen. Es ist deutlich zu erkennen, dass der Grad der Ionisierung mit zunehmender Clustergröße stark zunimmt. Bei einer mittleren Clustergröße von  $\langle N \rangle = 90000$  werden bis zu achtfach ionisierte Clusteratome gemessen. Aus der Breite der Flugzeitlinien lässt sich die kinetische Energie der Ionen bestimmen. In dem Inset von Abbildung 3.12 ist die kinetische Energie gegen die Ionenladung aufgetragen. Der hohe Ionisierungsgrad und die hohe kinetische Energie lassen den Schluss zu, dass der Cluster ausserordentlich viele Photonen absor-



**Abbildung 3.12:** TOF-Spektren von Clustern verschiedener Größe angeregt durch hoch intensive VUV-Pulse (Wellenlänge 98 nm). Die mittlere Intensität betrug  $8 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ . Mit zunehmender Clustergröße nimmt der Grad der Ionisierung zu. Der Wechselwirkungsprozess ist stark nicht linear. Das Inset zeigt den für eine Coulombexplosion charakteristischen, quadratischen Zuwachs der kinetischen Energien der Fragmente mit dem Grad der Ionisierung. [91]

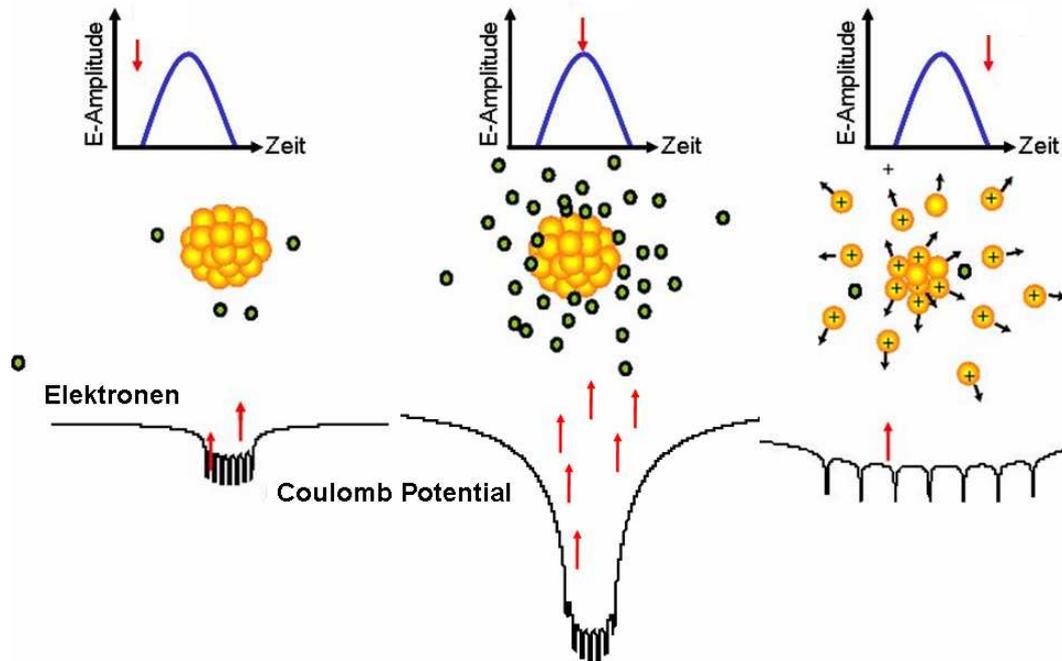
biert haben muss.

Eine Erklärung für diese starke Erhöhung der Energieabsorption in großen Clustern liefert ein Zwei-Stufen-Modell. Dieses Modell gliedert den Ionisierungsprozess in die *innere Ionisierung* des Clusters und die *äußere* [97]. Wenn die Energie der Photonen das Ionisierungspotential der Atome übersteigt, werden die Atome des Clusters schon zu Beginn der Wechselwirkung durch Photoionisierung und anschließenden Auger-Zerfällen ionisiert. Der Cluster lädt sich positiv auf. Elektronen, die zu einem späteren Zeitpunkt angeregt werden, besitzen nicht genügend Energie, um das starke, positive Coulombfeld des Clusters zu verlassen (*inneren Ionisierung*). Die quasi-freien Elektronen bilden zusammen mit den Ionen ein Nanoplasma. Dieses Nanoplasma oszilliert in Phase mit dem Laserfeld. Wenn es zum Stoß eines Elektrons mit einem Ion kommt, ändert das Elektron seine Geschwindigkeit bzw. seine Bewegungsrichtung. Zeigt der Vektor des Laserfeldes in eine andere Richtung, wird das Elektron in diese Richtung beschleunigt und absorbiert somit Energie aus dem Feld. Dieser Absorbtionsprozess wird *inverse Bremsstrahlung* genannt [98, 99]. Über diesen Prozess kann der Cluster  $\sim 50$  Photonen pro Atom absorbieren und lädt sich sehr stark auf. Je größer der Cluster ist, desto effektiver ist die Energieabsorption. Das liegt unter anderem daran, dass der Anteil an Oberflächennatome mit der Größe geringer wird und die mittlere Koordinationszahl größer. Diese starke Aufladung führt zur explosionsartigen Fragmentation, der Coulomb Explosion (*äußere Ionisierung*). Dieser Vorgang ist in Abbildung 3.13 sehr anschaulich dargestellt. Das Schema stellt die Veränderung des Coulombpotentials zu drei verschiedenen Zeitpunkten des Lichtpulses dar. Am Anfang des Pulses werden wenige Elektronen direkt über Photoionisation vom Cluster getrennt. Mit zunehmendem Grad der Ionisierung lädt sich der Cluster auf und bildet ein attraktives Coulombpotential. Es muss somit immer mehr Energie aufgewandt werden, um ein Elektron aus dem Cluster zu lösen. Anschließend beginnt der Cluster zu dissoziieren.

### 3.5 Strukturbestimmung von Molekülen und Clustern durch Streuung mit intensiven XUV- und Röntgen-Pulsen

Im Hinblick auf die Ergebnisse zur Wechselwirkung von hoch intensiven XUV-Pulsen mit heterogenen Clustern, die in Kapitel 6 vorgestellt werden, soll ein kurzer Überblick über strukturbestimmende Experimente mit XUV- und Röntgen-Pulsen und deren Probleme bzw. experimentellen Herausforderungen erbracht werden.

Bisherige Imaging- oder Streuexperimente mit Synchrotronstrahlung, in denen die Struktur der Proben mit atomarer Auflösung bestimmt werden konnte, waren darauf angewiesen, dass sich die Probe kristallisieren lässt [100]. Durch die gleichmäßige Anordnung der Atome in einem Kristallgitter überlagern sich die durch die periodische Struktur gestreute Röntgenstrahlung kohärent zu Bragg-Reflexen [48]. Aus diesen Bragg-Reflexen kann die Struktur der Probe rekonstruiert werden. Diese durch Interferenz erzielte Verstärkung des Signals, verringert die Anforderung an die Pulsintensität. Strukturelle Details, deren Streuintensität zu gering sind oder deren Periodizität zu gering ist, um einen Bragg-Reflex zu bilden, können so nicht aufgelöst werden. Außerdem wird die



**Abbildung 3.13:** Coulombpotential des Clusters zu drei verschiedenen Zeitpunkten der Wechselwirkung. Die entsprechenden Zeitpunkte sind im oberen Teil des Bildes dargestellt. Betrachtet wird der Potentialverlauf vor dem Lichtpuls, zum Zeitpunkt der höchsten Lichtintensität (Maximum der elektrischen Feldstärke) und nach dem Puls. Die Pfeile symbolisieren Photonen. [91]

Struktur der einzelnen Probe durch die Kristallstruktur gestört.

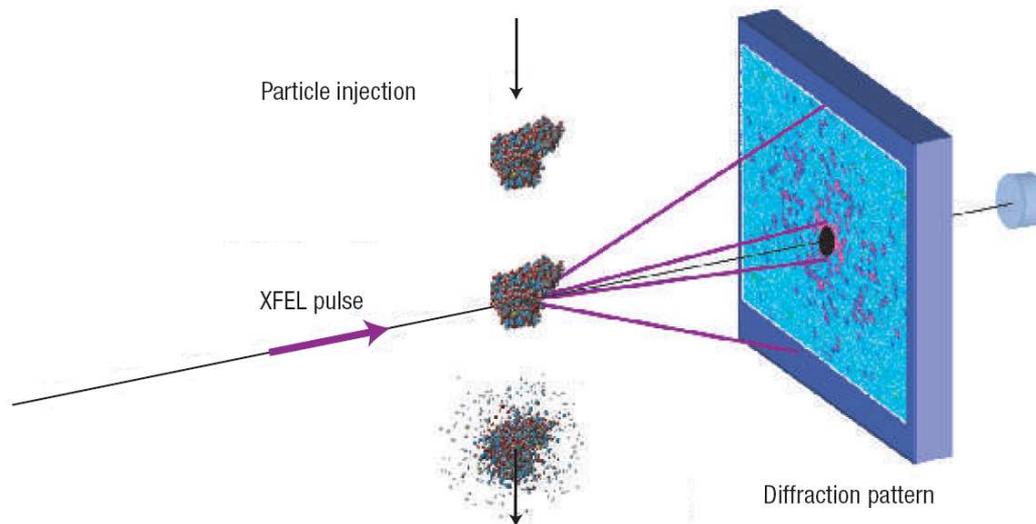
Die Struktur vieler Proben, die nicht kristallisieren, kann mit dieser Methode nicht bestimmt werden. Für die Streuung an einzelnen, nicht periodischen, freien Proben (Moleküle, Cluster, etc.) ist neben einer hohen Pulsintensität und einer kurzen Wellenlänge eine Phasen-Kohärenz über die gesamte Probendicke notwendig.

Wenn Proben einer intensiven, kurzwelligen Strahlung ausgesetzt werden, führt dies zu starker Ionisierung. Der resultierende hohe Ladungszustand führt durch die wirkenden Coulombkräfte zu Verformungen bzw. Zerstörung der Probe. Der Puls und somit die Wechselwirkung muss kürzer sein als dieser Verformungsprozess. Strahlung mit diesen laserartigen Eigenschaften wird seit Kurzem vom FLASH FEL (s. Kapitel 2.4) geliefert.

Die Arbeitsgruppe um H. Chapman konnte zeigen, dass mit dieser neuartigen Strahlung des FLASH FELs Streuung an einzelnen, nichtperiodischen Strukturen möglich ist. Mit dieser instantaneous imaging<sup>3</sup>-Methode konnten Einzelschuss-Aufnahmen an mikrostrukturierten Si-Strukturen erzielt werden [101].

Kurz darauf konnte von unserer Arbeitsgruppe gezeigt werden, dass es möglich ist,

<sup>3</sup>instantaneous imaging, engl. Momentaufnahme



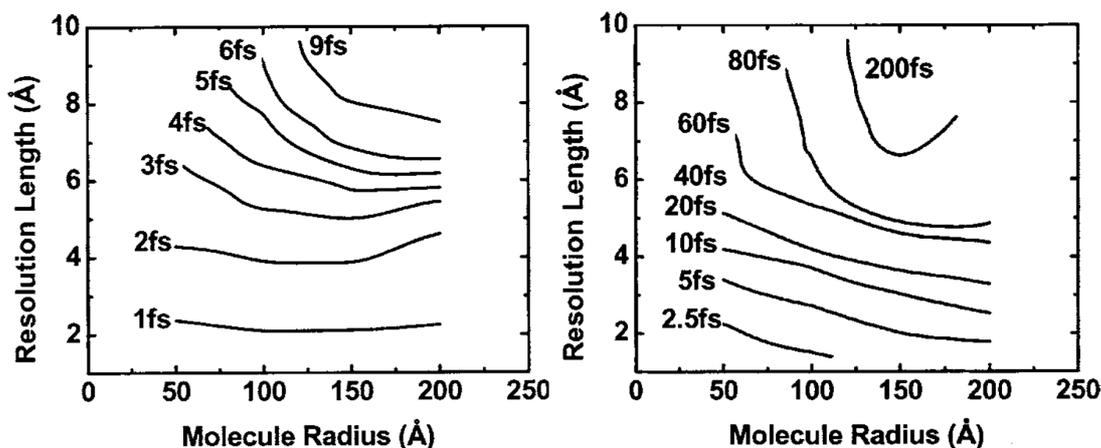
**Abbildung 3.14:** Schematische Darstellung eines Streuexperimentes an freien Partikeln. Die an den Partikeln gestreuten Photonen des FEL-Pulses werden mit einem hochauflösenden CCD-Detektor aufgenommen. Aus dem resultierenden Streubild kann die ursprüngliche Struktur der Partikel rekonstruiert werden. Ist der Puls kurz genug, verformt sich die Probe erst nach der Streuung. [100]

Momentaufnahmen von Edelgasclustern ( $\sim 30$  nm) zu erstellen [102].

In Abbildung 3.14 ist der prinzipielle Aufbau eines Streuexperimentes an einzelnen, freien Partikeln dargestellt. Nachdem das Streubild mit einem CCD-Detektor aufgenommen wurde, wird es mit Hilfe von mathematischen Algorithmen rekonstruiert. Ein weiterer Vorteil von Streuexperimenten mit FEL-Strahlung ist die Möglichkeit, die Dynamik der Proben durch Pump-Probe-Experimente [103] und Holographie [104] zu bestimmen.

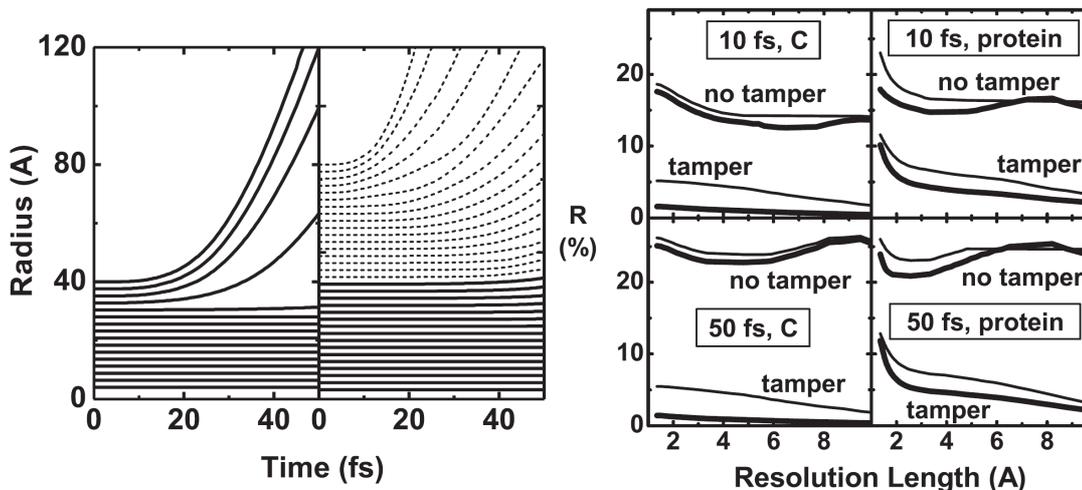
Zukünftige XFELs, die hoch intensive Pulse im Röntgenbereich erzeugen und deren Auflösung für Streuexperimente auf der atomaren Skala liegen werden, liefern zunächst Lichtpulse, die 100 fs (XFEL) [36] bzw. 230 fs (LCLS) [106] lang sind.

In Abbildung 3.15 links sind die Anforderungen an die Röntgenpuls-Eigenschaften für die Streuung an Biomolekülen nach Simulationen von S.P. Hau-Riege [105] dargestellt. In dem Graphen ist die Resolution Length (Auflösungslänge, Kehrwert des maximalen Impulstransfers) gegen den Radius der Probe (Molecular Radius) für 12 keV (Wellenlänge 1 Å) Photonen aufgetragen. Neben einer durchschnittlichen Leistungsdichte (Photonen pro 100 nm spot) von  $10^{13}$  wurde eine Verformung der Probe um 20 % (Variation der Probengröße durch Coulombkräfte) zugelassen. Man erkennt, dass mit kürzeren Pulsen die Auflösung zunimmt. Für Aufnahmen mit atomarer Auflösung (2 Å- 6 Å) sind Pulslängen von 1-3 fs notwendig. Die Simulationen haben außerdem gezeigt, dass die Anforderungen an die Pulslänge reduziert werden kann, wenn die Leistungsdichte um einen Faktor 10 geringer ist (s. Abbildung 3.15). Für eine atomare Auflösung sind unter



**Abbildung 3.15:** Simulationen zu den Anforderungen an Röntgenpuls für Streuung an einzelnen Molekülen. Links: Aufnahmen mit atomarer Auflösung ( $2\text{ \AA}$ -  $6\text{ \AA}$ ) erfordern Pulslängen von 1-3 fs bei einer durchschnittlichen Leistungsdichte von  $10^{13}$  Photonen pro  $100\text{ nm}$  spot. Rechts: Reduziert man die Leistungsdichte um einen Faktor 10, können die Pulse, die für atomare Auflösung notwendig sind, länger sein [105].

diesen Bedingungen nur noch Pulse mit einer Länge von 40 fs notwendig (s. Abbildung 3.15). Für Teilchen mit einem Radius von  $150\text{ \AA}$  und für eine Auflösung von  $7\text{ \AA}$  bewegt man sich in einem Pulslängenbereich von 200 fs, der von den zukünftigen Röntgen-FELs erreicht werden kann. Während dieses langen Pulses kann sich die Probe jedoch durch Coulomb-Explosion derart verformen, dass es schwierig wird, Informationen über die Struktur zu erhalten. Die Expansion der Probe führt zu einer reduzierten Auflösung. Weitere Simulationen von S.P. Hau-Riege zeigen, dass die Expansion der angeregten Probe durch eine Schutzschicht (Tamper) verzögert werden kann [107]. In Abbildung 3.16 (links) ist die Zunahme des Radius eines Kohlenstoff Clusters (Radius  $40\text{ \AA}$ ) während eines 50 fs langen Lichtpulses dargestellt. Ab 25 fs expandiert der Cluster signifikant. Die Photonenenergie beträgt  $12\text{ keV}$  und die Leistungsdichte  $10^{13}$  Photonen pro  $(100\text{ nm})^2$ . Im rechten Teil des Bildes ist die Expansion des selben Kohlenstoff Cluster mit einer  $40\text{ \AA}$  dicken Wasserhülle dargestellt, das den gleichen Bedingungen ausgesetzt ist. Es ist zu erkennen, dass sich der Kohlenstoffkern so gut wie nicht ausdehnt, während die äußere Wasserhülle stark expandiert. Elektronen, die zu Beginn des Pulses freigesetzt werden, können den Cluster verlassen. Der sich positiv aufladende Kern bildet zusammen mit den Elektronen, die zu einem späteren Zeitpunkt des Pulses erzeugt werden und das Coulomb-Potential des Cluster nicht mehr verlassen können, ein Nanoplasma. Die hoch geladene äußere Wasserhülle explodiert, während das Nanoplasma des Clusters teilweise rekombiniert. Die Expansion des Clusters wird somit verzögert. Die Streubilder können deswegen auch bei längeren Pulsen aufgenommen werden, ohne dass die Auflösung durch eine schnelle Expansion des Clusters abnimmt. Der Einfluss der Wasserhülle auf das Streubild muss in der Rekonstruktion beachtet werden. Wasser scheint als Schutzhülle besonders geeignet zu sein, da es die natürliche Umgebung für viele Biomoleküle darstellt [107]. Neben Wasser bietet sich Helium als Schutzhülle an. In Abbildung 3.16 (rechts) ist die Veränderung der Clustergröße ( $R$ ) für



**Abbildung 3.16:** Eine Schutzhülle (tamper), die die Probe umgibt, reduziert die Verformung der Probe während eines langen Pulses. Links: Der linke Teil zeigt, dass ein Kohlenstoffcluster während eines 50 fs langen Pulses expandiert. Im rechten Bildteil liegt um den Kohlenstoffcluster eine 40 Å dicke Wasserhülle. Während des Pulses expandiert die Hülle, der Kern bleibt jedoch stabil. Links: Hier ist die Veränderung der Clustergröße ( $R$ ) für verschiedene Proben (Kohlenstoff und Protein) mit und ohne Schutzhülle für verschiedene Pulslängen gegen die Auflösungslänge (resolution length) aufgetragen. Die Verformung von Proben mit Schutzhülle ist extrem reduziert. Bei diesen Daten handelt es sich um Simulationen aus [107].

verschiedene Proben (Kohlenstoff und Protein) mit und ohne Schutzhülle (Tamper) für verschiedene Pulslängen gegen die Auflösungslänge (resolution length) aufgetragen. Diese Abbildung entstammt ebenfalls der theoretischen Arbeit von S.P. Hau-Riege [107]. Es ist deutlich zu erkennen, dass die Verformung mit Schutzhülle extrem reduziert wird. Die Pulslänge scheint nur eine Rolle für Proben ohne Schutzhülle zu spielen.

Die Idee, die Expansion bzw. Verformung einer Probe nach der Wechselwirkung mit hoch intensiven Röntgen-Pulsen durch eine äußere Schutzhülle zu unterdrücken, wird in Kapitel 6 wieder aufgegriffen.



## Kapitel 4

# Aufbau eines Reaktionsmikroskops für Experimente mit Clustern

In diesem Kapitel wird das Reaktionsmikroskop (COLTRIMS) ausführlich beschrieben. Dabei wird sowohl auf die Simulation des Detektors und die technische Realisierung, als auch auf die Datenverarbeitung eingegangen.

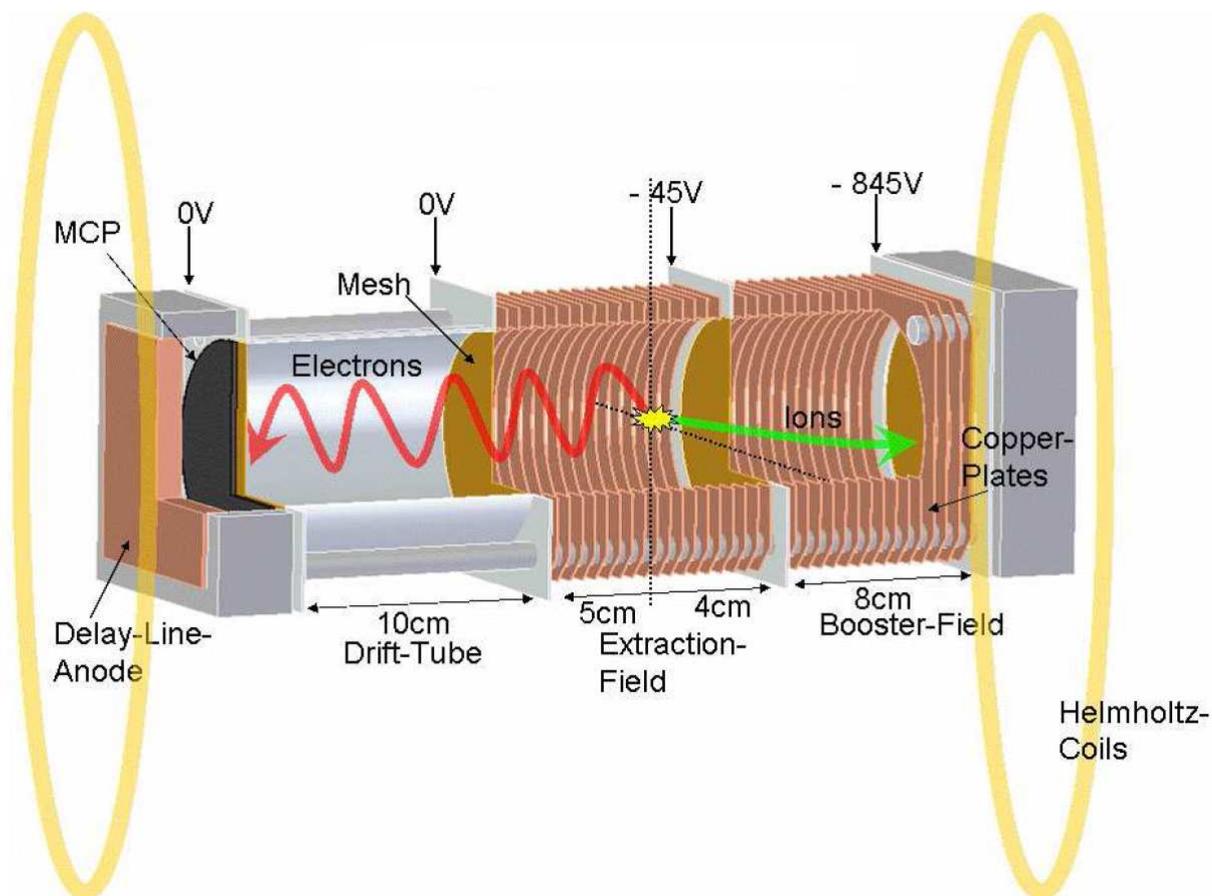
Das Prinzip der COLTRIMS- (Cold target recoil ion momentum spectroscopy) Technik wurde am Institut für Kernphysik der Universität Frankfurt am Main in der Arbeitsgruppe von Prof. Horst Schmidt-Böcking entwickelt. Es ermöglicht impuls aufgelöste Spektroskopie von Reaktionen in Atomen und kleinen Molekülen [108, 109]. Aufgrund dieser Eigenschaften erhielt es den Beinamen Reaktionsmikroskop. Die Leistungsfähigkeit und der Erfolg dieser neuen Detektorgeneration lässt sich schon daran erahnen, dass es bereits als Blaskammer der Atomphysik bezeichnet wurde<sup>1</sup> [110]. Speziell in diesem Bereich der Physik konnten mit dem Reaktionsmikroskop bereits bahnbrechende Ergebnisse erzielt werden [111, 112].

### 4.1 Das COLTRIMS-Prinzip

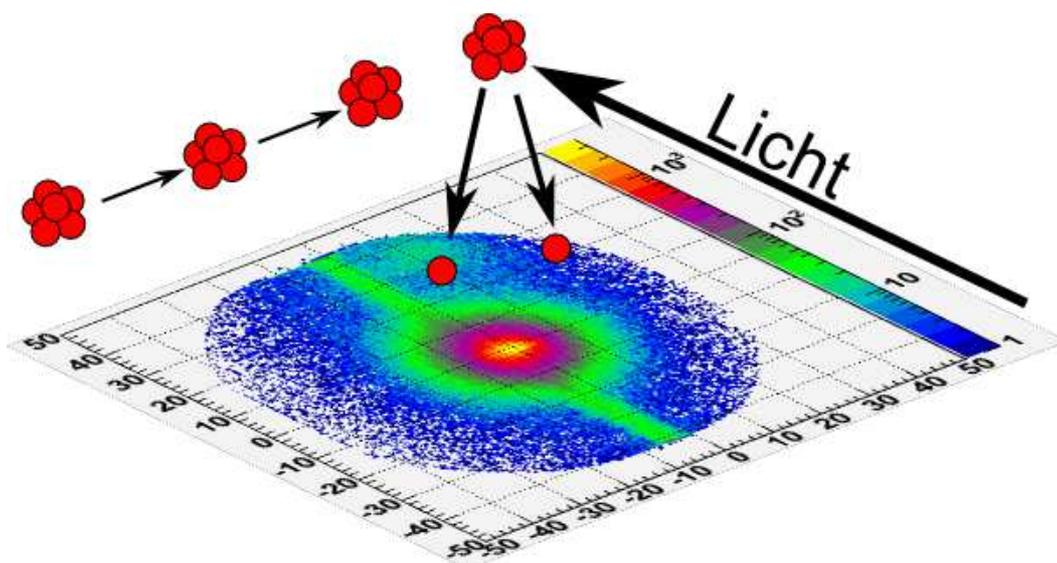
Das Reaktionsmikroskop bzw. der COLTRIMS Detektor (s. Abbildung 4.1) ermöglicht den multikoinzidenten Nachweis aller negativen und positiven Teilchen eines Fragmentationsprozesses. Dazu werden die bei der Wechselwirkung von XUV-Pulsen mit Clustern erzeugten geladenen Teilchen, Ionen und Elektronen, durch elektrostatische Felder auf zwei gegenüberliegende Detektoreinheiten beschleunigt. Diese Einheiten bestehen aus einem zeitauflösenden und einem ortsauflösenden Detektor. Aus der so bestimmbar Flugzeit aller Fragmentationsprodukte und ihren Auftrefforten können die kinemati-

---

<sup>1</sup>In Anlehnung an die sehr erfolgreiche Forschung mit Blaskammern in der Kern- und Hochenergiephysik (1960 Nobelpreis für Physik)



**Abbildung 4.1:** Schematische Darstellung des im Rahmen dieser Arbeit entwickelte und verwendete Reaktionsmikroskops. Die gelbe, gezackte Blase in der Mitte des Bildes stellt die Wechselwirkungszone dar. Sie liegt im Inneren des Detektors. Die geladenen Teilchen, Ionen und Elektronen, werden durch elektrostatische Felder (Extraction-Field, Booster-Field, Drift-Tube) auf gegenüberliegende Detektoreinheiten beschleunigt. Die wirkenden elektrischen Felder bestimmen die Flugzeiten der Teilchen. Die verschiedenen Feld-Bereiche sind durch feine Kupfernetze voneinander getrennt. An den beiden Enden der Felder sitzen die MCPs und die Delay-Line-Anoden, die zusammen die Detektoreinheiten bilden. Sie ermöglichen eine zeit- und orts- und somit impulsauflösende Detektion aller geladenen Fragmente. Die Helmholtz-Spulen dienen der Nachweiseffizienz schneller Elektronen.



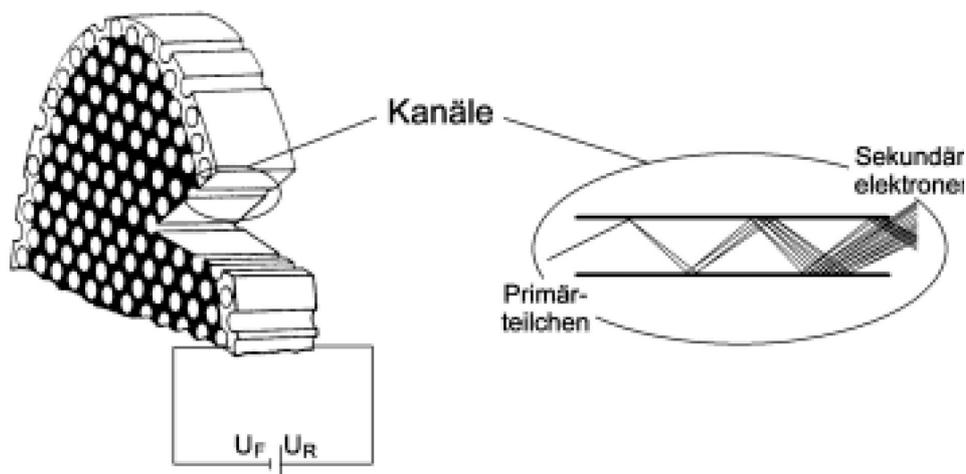
**Abbildung 4.2:** Nachdem die Cluster durch die Wechselwirkung mit Licht zu Ionen fragmentiert sind, werden sie durch ein elektrisches Feld auf die Detektoren beschleunigt. Die Projektion spiegelt die Verteilung der Impulsvektoren der Fragmente wieder. Restgasatome werden ebenfalls durch das Licht ionisiert und auf den Detektor abgebildet (grüner Strich).

sche Größen, wie z. B. Energie und Impuls, bestimmt werden.

In Abbildung 4.2 ist exemplarisch ein Detektorbild dargestellt, das im Rahmen dieser Arbeit aufgenommen wurde. Die Impulsverteilung der während der Wechselwirkung erzeugten Ionen spiegelt sich direkt in der Ausdehnung des Detektorbildes wieder. Auf dem Weg durch den Detektor ionisiert das Licht auch Restgas. Dieses Restgas wird ebenfalls auf den Detektor abgebildet (grüner Strich).

Die Entwicklung des Detektors erfolgt evolutionär in zwei Versionen. Das Ziel für die erste Version besteht darin ein allgemeines Verständnis der Funktionsweise eines Reaktionsmikroskops zu erlangen. Das der zweiten in einer hohen Impulsauflösung für die Ionen und die Elektronen, die bei der Fragmentation von Edelgasclustern zu erwarten sind. Das Reaktionsmikroskop wurde für Experimente mit Clustern modifiziert. Simulationen der Trajektorien für Elektronen und Ionen mit typischen Energien beider Versionen sind in den Abbildungen 4.6 und 4.8 dargestellt.

In Abbildung 4.1 ist die zweite Version des Reaktionsmikroskops aufgezeigt. Die Wechselwirkungszone, dargestellt durch eine gelbe, gezackte Blase liegt im Inneren des Detektors. Hier kreuzen sich der Cluster- und der Synchrotronstrahl. Bei der Reaktion entstehen sowohl positiv geladene Fragmente als auch negativ geladenen Elektronen. Die Trennung von Ionen und Elektronen wird durch ein homogenes elektrostatisches Absaugfeld (Extraction-Field) realisiert. In der zweiten Version des Reaktionsmikroskops werden die schnellen, schweren Ionen durch ein stärkeres elektrisches Feld (Booster-Field) nach beschleunigt, um die Nachweiseffizienz zu erhöhen (s. Kapitel 4.2). Die Auflösung der Elektronenimpulse wird durch eine feldfreie Driftstrecke (Drift-Tube) erhöht.



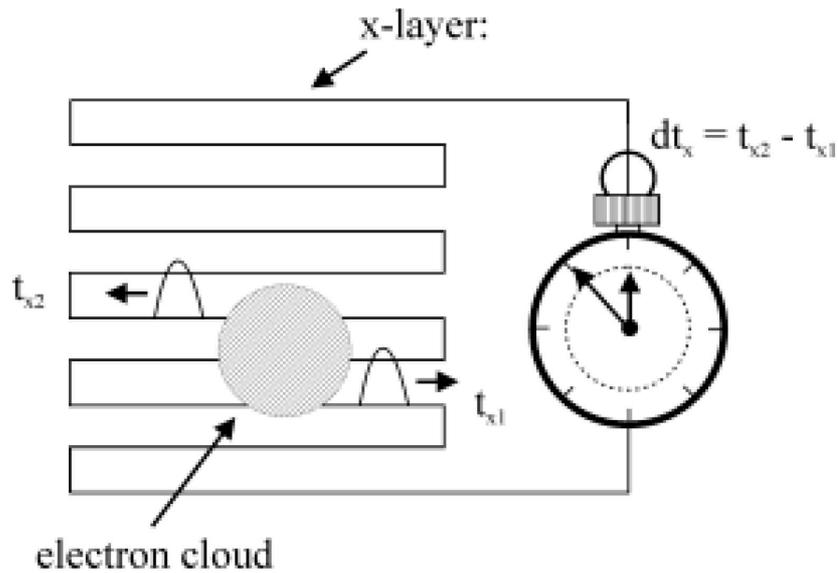
**Abbildung 4.3:** Querschnitt durch ein Multi-Channel-Plate (MCP) Detektor. Trifft ein Primärteilchen auf die Oberfläche bewegt es sich, angetrieben durch eine elektrische Spannung, durch die Kanäle (Kapillare). Durch die Kollision mit den Kapillarinnenwänden treten weitere Teilchen aus, die zu einer Verstärkung des Signals führen. Auf der anderen Seite des MCPs tritt eine Kaskade von Sekundärteilchen aus. [113]

Die beiden geladenen Teilchensorten werden somit mit zwei getrennten Detektoreinheiten nachgewiesen. Diese Detektoreinheiten bestehen aus einem MCP<sup>2</sup>-Stack und einer Delay-Line-Anode (DLA), oder auch Verzögerungsdraht-Anode.

MCPs sind dünne (hier 1,5 mm dick) Scheiben (Durchmesser hier 86,6 mm) aus einer Glaskeramik. Diese Scheibe ist durchsetzt von Kapillaren (Durchmesser hier 25  $\mu\text{m}$ ), die gegenüber der Scheibennormalen um 7 Grad geneigt sind. Das gesamte MCP ist mit einem leitfähigen Material geringer Austrittsarbeit bedampft. Wird an die Vorder- und Rückseite eine Spannungsdifferenz von typischerweise 2,5 kV gelegt und mit geladenen Teilchen beschossen, wird dieses Signal in den Kanälen verstärkt und tritt auf der anderen Seite als Kaskade von Teilchen aus (s. Abbildung 4.3). Um die Verstärkung zu erhöhen setzt man ein zweites MCP direkt hinter das Erste, dreht es allerdings um 180 Grad, so dass die Kapillare nicht parallel zu einander stehen. Dadurch wird die Kaskade geladener Teilchen verstärkt. Die hier verwendeten MCPs und DLA der Firma RoentDek [114] besitzen folgende Spezifikationen: aktiver Durchmesser 83 mm, Positionsauflösung  $< 1\text{mm}$ , Totzeit 20 ns, maximale Rate 1 MHz. Trifft ein Ion oder ein Elektron auf ein MCP, ist ein Spannungspuls über das MCP messbar. Dieser Puls stellt das Stop-Signal der Flugzeit- (auch Time Of Flight: TOF) Messung dar. Als Startpuls bietet sich ein Signal der Lichtquelle an. Die Differenz aus Start- und Stoppsignal ergibt die Flugzeit des Teilchens.

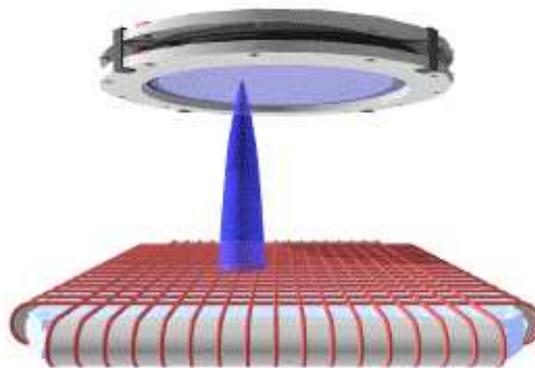
Der große Vorteil der ortsauflösenden Delay-Line-Anode gegenüber anderen positionsensitiven Anoden ist die hohe Verarbeitungsrate von etwa zehn Mega-Hertz und die große Linearität über die ganze aktive Fläche [114]. Der Aufbau und die Funktionsweise sind relativ einfach. Die elektrisch leitenden Drähte (Kupfer-Zirkonium) werden eng auf einen isolierenden Keramikrahmen gewickelt, der an einem extra Anodenhalter

<sup>2</sup>Multi-Channel-Plate, oder Viel-Kanal-Platten



**Abbildung 4.4:** Prinzip der Verzögerungsdrahtanode oder Delay Line Anode (DLA). Trifft das durch das MCP verstärkte Signal (electron cloud) auf einen Draht der Anode, wandert ein Spannungspuls zu den Enden. Aus der Laufzeitdifferenz dieser Pulse kann die Position des Auftreffens und somit der Impuls in diese Richtung bestimmt werden. Hier ist nur ein Draht dargestellt. [113]

aus Aluminium angebracht ist. Um den Ort in der Ebene exakt bestimmen zu können, sind zwei solche Drahtebenen um neunzig Grad gedreht. Die beiden Drahtebenen definieren die x- und y-Koordinate des Detektors. Die Bestimmung des Auftreffortes der



**Abbildung 4.5:** Nachdem das Signal im MCP verstärkt wurde, trifft die Elektronenkaskade auf die DLA. Auf der DLA kann über eine relative Laufzeitmessung der Signale auf den Drähten der DLA die xy-Koordinate bestimmt werden. [114]

Teilchen basiert ebenfalls auf einer relativen Zeitmessung (s. Abbildung 4.4). Trifft eine Elektronenkaskade aus dem MCP auf die beiden Drahtebenen (s. Abbildung 4.5) laufen Spannungspulse zu den Enden der Drähte (s. Abbildung 4.4). Da die Gesamtlaufzeit,  $t_{sum}$ , der Pulse auf dem Draht als konstante Größe bekannt ist (ca. 80 ns), kann über

die Laufzeitdifferenz der an zwei Drahtenden gemessenen Pulse (z. B.  $t_{x1}$  und  $t_{x2}$  für die X-Koordinate) der Auftreffort entlang des Drahtes also in einer Dimension bestimmt werden. Führt man die gleiche Prozedur an der anderen Drahtebene durch, lässt sich der genaue Ort (xy-Koordinate) auf der Detektorebene bestimmen. Die Gesamtlaufzeit auf dem Draht lässt sich über die Summe der Laufzeiten  $t_{x1}+t_{x2}$  bestimmen. Als Startsignal für diese Zeitmessung dient das MCP-Signal,  $t_{MCP}$ . Da relative Zeitmessungen sehr genau durchgeführt werden können, wird durch die DLA eine sehr exakte Ortsmessung möglich ( $< 1$  mm) [114].

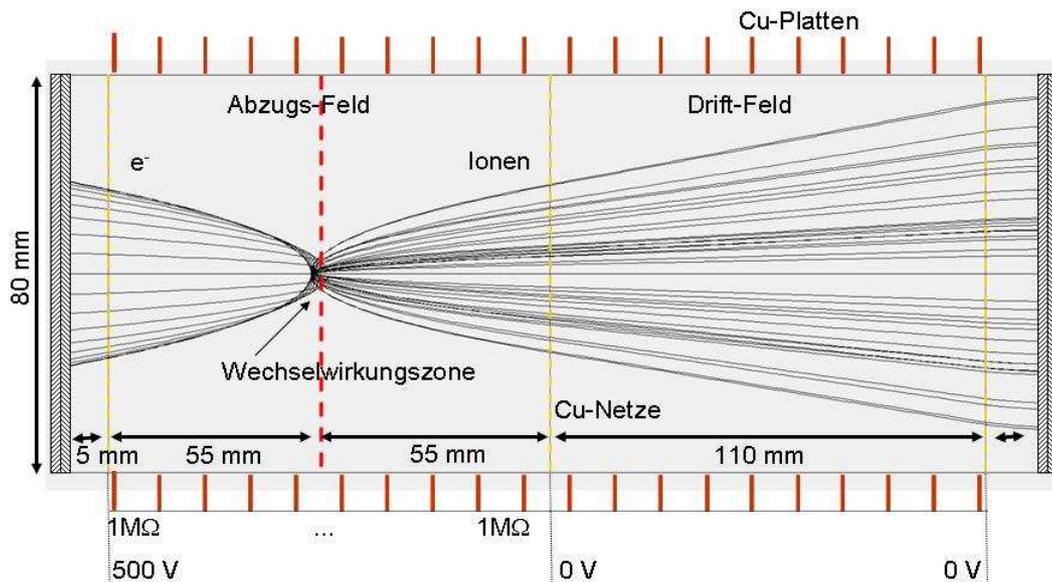
Für eine hohe Auflösung sind außerdem scharfe Pulse und schnelle Verstärker erforderlich. Die dünnen Drähte (0,5 mm [114]) der Anode sind in einem sehr geringen Abstand (1 mm [114]) über die Keramikhalter gewickelt. Die Länge der Drähte beträgt über 10 Meter. Die Wellenlänge der elektronischen Signale auf den Drähten ist jedoch kleiner als ein Meter, und somit wirkt ein einzelner Draht wie eine Antenne, welche die Energie des Pulses abstrahlt. Um der Dispersion des schwachen Elektronenpulses von etwa 5 bis 20 mV auf dieser langen Strecke entgegenzuwirken, transportiert man die Energie zwischen zwei parallel laufenden Drähten nach dem Prinzip einer hochfrequenzfähigen Lecher-Leitung [113]. Somit kann man die Verluste minimieren und steile Puls-Flanken gewährleisten. Daher besteht jede Drahtebene aus zwei parallelen Wicklungen (Abstand 0,5 mm), die beide positiv gegenüber der Rückseite des MCPs vorgespannt sind. Die eine Wicklung dient als Signaldraht und die andere als Referenzdraht. Die Elektronenkaskade wird jedoch nur auf einem Draht - dem Signaldraht - gemessen, indem dieser ein um 20 oder 40 V höheres, positives Potential zugewiesen bekommt.

Die Energie des Pulses wird zwischen den beiden Drähten transportiert und kann an den beiden Enden als Differenz durch einen entsprechenden Differenzverstärker in der Decouplingbox, ausgekoppelt und verstärkt werden. Der passive Draht wird deswegen als Referenzdraht bezeichnet. Diese Relativmessung hat den großen Vorteil, dass äußere, elektromagnetische Störsignale, die meist auf beide Anodendrähte gleichermaßen einkoppeln, weitgehend durch die Differenzbildung eliminiert werden können.

Wenn mehrere Teilchen innerhalb der Signallaufzeit auf die Drahtebenen auftreffen, befinden sich somit auch mehrere Pulse gleichzeitig auf den Lecher-Leitungen, die sich dann durchlaufen und zu verschiedenen Differenzzeiten bzw. Auftrefforten führen. Die richtigen Laufzeiten zu den verschiedenen Enden der Anode können durch die konstanten Summenlaufzeitbeziehungen (Signalbedingungen) bestimmt werden:

$$t_{sum,x} = 2 \cdot t_{MCP} - (t_{x1} + t_{x2}) \quad (4.1)$$

Treffen die Elektronenkaskaden zu eng nebeneinander auf die Anodendrähte auf, überlappen sich die Pulse untrennbar und eine Ortsbestimmung ist nicht mehr eindeutig. Durch eine geeignete Wahl der elektrischen Abzugsfelder kann diesem Problem entgegengewirkt werden. Ist die Flugzeit der Teilchen lang genug, driften sie auseinander und treffen an entfernten Orten auf dem Detektor auf.



**Abbildung 4.6:** Simulation von Trajektorien für Elektronen ( $E_{Kin} = 10 \text{ eV}$ ) und Ionen ( $m_{Xe} = 131 \text{ amu}$ ,  $E_{Kin} = 2 \text{ eV}$ ) durchgeführt mit SimIon. Ergänzt wurden die wesentlichen Bestandteile des Detektors. Die Kupfer-Platten, die durch Widerstände bzw. Drähte miteinander verbunden sind und durch eine angelegte Spannung die homogenen elektrostatischen Felder erzeugen, sind hier im Querschnitt zu sehen. Der Clusterstrahl ist hier durch eine rote, gestrichelte Linie angedeutet. Der Synchrotronstrahl kreuzt den Clusterstrahl senkrecht zur Zeichenebene. Bei dieser Detektorgeometrie wurde vor allem Wert auf eine gute Flugzeitauflösung der Ionen gelegt.

## 4.2 Simulationen von verschiedenen Detektorgeometrien

Die physikalische Fragestellung bestimmt im Wesentlichen die Dimensionierung des gesamten Detektors, d.h. die Längen und Anzahl der verschiedenen Abzugsfelder, sowie die wirkenden Spannungen etc. (s. Abbildung 4.1).

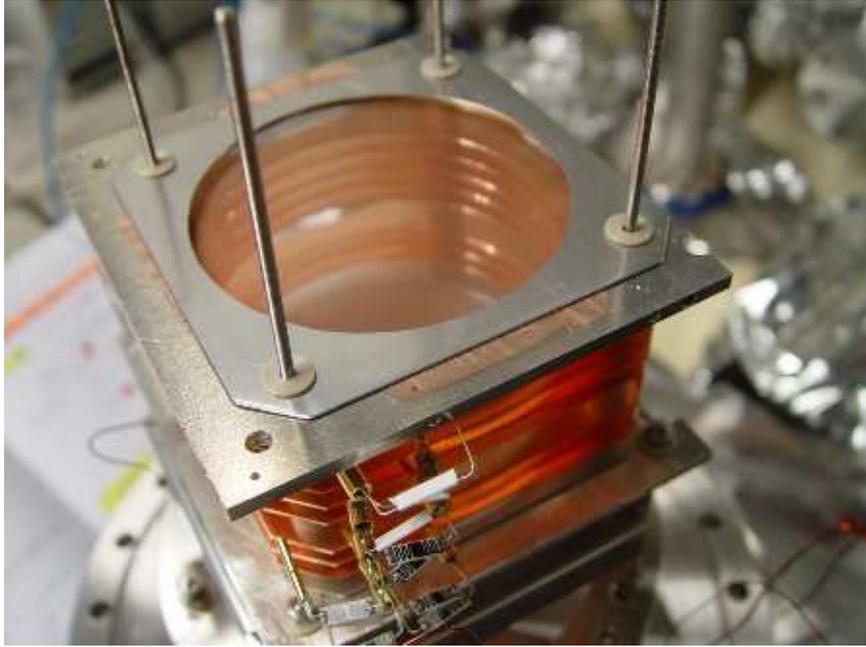
Eine der Stärken des Reaktionsmikroskops ist der koinzidente Nachweis von Teilchen gleicher und unterschiedlicher Ladung. Da diese aber am gleichen Ort entstehen, wirkt auf sie auch das gleiche elektrostatische Abzugsfeld. Will man z. B. Xe-Ionen, deren kinetische Energien in dieser Arbeit einige eV betragen können, nach einer sinnvollen Flugzeit ( $\sim \mu\text{s}$ ) auf die MCPs abbilden, sind Abzugsfelder von einigen  $1 \text{ V/mm}$  nötig. Diese Potentiale übersteigen jedoch die kinetischen Energien der Elektronen bei weitem. Die Unterschiede in den Flugzeiten der Elektronen ( $\sim \text{ns}$ ), die aus verschiedenen Anfangsenergien oder Emissionsrichtungen resultieren, können nicht mehr aufgelöst werden. Reduziert man das Abzugsfeld, um die Energieauflösung der Elektronen zu verbessern, muss damit gerechnet werden, dass viele der schwereren Ionen nicht in die Richtung der Detektoreinheit umgelenkt und somit nicht nachgewiesen werden können. Die Anforderungen an den Detektor werden außerdem dadurch erhöht, dass nicht nur leichte Ionen, sondern auch schwere Clusterfragmente nachgewiesen werden sollen. Diese kurze Diskussion deutet schon darauf hin, dass bei den Experimenten Kompromisse bezüglich der Energieauflösung der Elektronen und der Ionen eingegangen werden

müssen.

Um die Einschränkungen so gering wie möglich zu halten, wurden Simulationen durchgeführt, um eine optimale Feldgeometrie zu ermitteln. In Abbildung 4.6 sind die simulierten Trajektorien von Elektronen und Xe-Ionen der ersten Version des Reaktionsmikroskops dargestellt. In dieser Abbildung ist zu erkennen, dass die Flugstrecke der Elektronen recht kurz ist und die Detektorfläche nicht komplett von auftreffenden Elektronen überdeckt wird. Wie bereits erwähnt lag das primäre Ziel bei der ersten Version des Reaktionsmikroskops darin, eine gute Zeitauflösung für die Ionen zu erreichen und das gesamte System kennen zu lernen. Die Auflösung der Elektronenflugzeiten spielte nur eine untergeordnete Rolle. Für die Simulationen wurden typische Startenergien (für Elektronen ( $E_{Kin} = 10 \text{ eV}$ ) und Xe-Ionen ( $E_{Kin} = 2 \text{ eV}$ )) und isotrop verteilte Startrichtungen festgelegt. Die Feldgeometrien sind so gewählt, dass eine geringe Variation ( $< 500 \text{ meV}$ ) der Startenergien vom Detektor aufgelöst werden konnte. Außerdem ist darauf zu achten, dass alle Teilchen auf die Detektoren treffen und die Fläche der Detektoren komplett ausgenutzt werden, um die Ortsauflösung zu maximieren. Wichtige Detektorbestandteile, wie die Kupfer-Netze und die Cu-Platten (im Querschnitt dargestellt), wurden in der Abbildung ergänzt.

Im Folgenden soll im Detail auf die technische Realisierung des COLTRIMS eingegangen werden:

Um eine hohe Energie- bzw. Impulsauflösung für die positiv geladenen Fragmente zu erreichen sind einige Dinge zu beachten. Impulsdifferenzen von Teilchen werden in erster Linie durch unterschiedliche Flugzeiten und Auftrefforte bestimmt. Die räumliche Separation auf den MCPs ist letztendlich bestimmt durch die Dauer der Flugzeit. Je länger Teilchen mit einem von Null verschiedenen Anfangsimpuls fliegen, desto weiter driften sie auseinander und desto größer ist die xy-Ortsauflösung. Die Flugzeit wird bestimmt durch die Masse  $m$  und die Ladung  $q$  der Teilchen, dem elektrischen Abzugsfeld  $E$  und die Länge  $s$  des Feldes (s. Abbildung 4.6):  $Flugzeit \sim s \cdot \sqrt{m/(q \cdot E)}$ . Für eine lange Flugzeit ist das elektrische Feld  $E$  also niedrig zu halten und die Länge groß. Die Länge des Spektrometers ist begrenzt durch das Vakuumsystem. Das elektrische Feld ist, wie oben bereits diskutiert, der physikalischen Fragestellung anzupassen. Die Auflösung wird unter anderem dadurch eingeschränkt, dass die Fragmente, bedingt durch die endliche Wechselwirkungszone, zu verschiedenen Zeiten bzw. an verschiedenen Orten entstehen. Um die Auflösung des Spektrometers zu verbessern, wurden die Abzugsstrecken so dimensioniert, dass sie einer Wiley-McLaren-Zeitfokussierung erster Ordnung [115] genügen. Dabei werden die Ionen zunächst durch ein elektrisches Feld in Richtung der MCPs beschleunigt. Danach durchfliegen sie eine feldfreie Driftstrecke. Die Zeitfokussierung bewirkt, dass Ionen, die in einem größeren Abstand zum Detektor starten als andere und somit eine längere Strecke zurücklegen müssen, eine größere Beschleunigung erfahren. Aufgrund der größeren resultierenden Geschwindigkeit können die Ionen, die dichter am MCP generiert worden sind, im Driftfeld eingeholt werden. Nach Gleichung 4.2 [116] erhält man für das Abzugsfeld  $U_{extr} \neq 0$  und das Driftfeld  $U_{drift} = 0$  folgendes Verhältnis  $k$  für die Längen der beiden Felder:



**Abbildung 4.7:** Innenansicht des Reaktionsmikroskops (hier in der Aufbauphase). Der Blick ist direkt auf das feinmaschige Kupfernetz gerichtet, das die Feldabschlüsse besser definieren soll. Darunter sind die Kupfer-Platten sichtbar, die durch Widerstände miteinander verbunden sind.

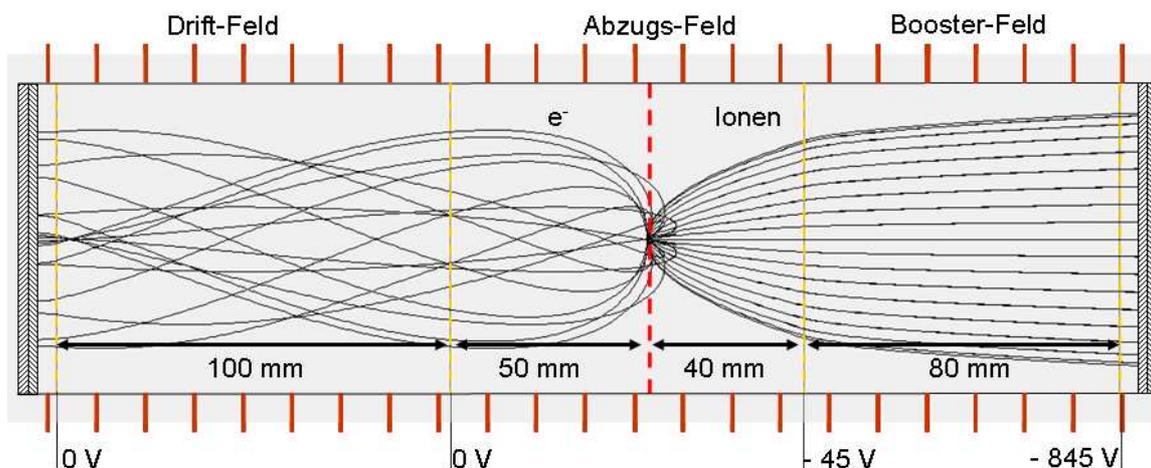
$$k = \frac{x_{drift}}{x_{extr}} = \left(2 - \frac{U_{drift}}{U_{extr}}\right) / \left(1 - \frac{U_{drift}}{U_{extr}}\right)^2 = \frac{2}{1} \quad (4.2)$$

Für den Fall der Wiley-McLaren-Zeitfokussierung erster Ordnung ergibt sich somit ein Strecken-Verhältnis von 2:1 für das Drift- und Abzugsfeld. Die Stärke des Abzugsfeldes kann dabei beliebig gewählt werden. Diese Richtlinien flossen in die Simulation der Trajektorien als zusätzliche Randbedingung ein.

Auf der Basis dieser Simulationen ist der Detektor konstruiert worden. Die homogenen elektrostatischen Felder werden durch eine Reihe dünner (0,5 mm dick) Kupferplatten erzeugt. An den Enden dieser Plattenreihe wird eine Spannungsversorgung angeschlossen. Die Platten sind untereinander durch 1 M $\Omega$  Widerstände verbunden und haben einen Abstand von 5 mm (s. Abbildung 4.7). Die Kupferplatten haben in ihrer Mitte ein Loch mit einem Durchmesser von 82 mm. Das entspricht gerade dem aktiven Durchmesser der MCPs. Der feldfreie Drift-Bereich wird durch Kurzschließen der Kupferplatten erzeugt. Eine elektrische Isolierung zwischen den Platten ist durch Abstandshalter aus dem Material PEEK erreicht. Die Kupfer-Platten und die Abstandshalter sind auf Edelstahlgewindestangen aufgezogen. Um eine saubere Trennung der verschiedenen Felder zu erzielen und um Felddurchgriffe z. B. auf die MCPs zu vermeiden, sind zwischen den verschiedenen Feldbereichen sehr feine Kupfer-Netze mit einer Transmission von 90% gespannt (s. Figur 4.7). Die Detektoreinheiten, bestehend aus DLA und MCP (s. Kapitel 4.1), befinden sich in einem Abstand von 5 mm hinter dem letzten Netz des Abzugs- bzw. Drift-Feldes. Der Abstand zwischen DLA und MCP beträgt 5 mm.

Der gesamte Detektor ist so auf einem CF200-Flansch angebracht, dass der Bereich der Wechselwirkungszone des Detektors mit der Wechselwirkungszone in der Vakuumkammer zusammenfällt (s. Abbildung 5.1). Bei allen Materialien ist darauf zu achten, dass sie nicht magnetisch sind, da dies die Bewegung der Elektronen beeinflusst.

In Abbildung 4.11 ist ein Flugzeitspektrum, das mit diesem Detektor aufgenommen wurde, dargestellt. Es zeigt hochgeladene Xe-Ionen, die bei der Anregung von atomaren Xe mit 700 eV entstanden sind. Die Tatsache, dass neun verschiedene Xe-Isotope (schmale Linien in Abbildung 4.11) von einander zu trennen sind, spiegelt die sehr gute Flugzeit- und somit Impulsaufösung wider.

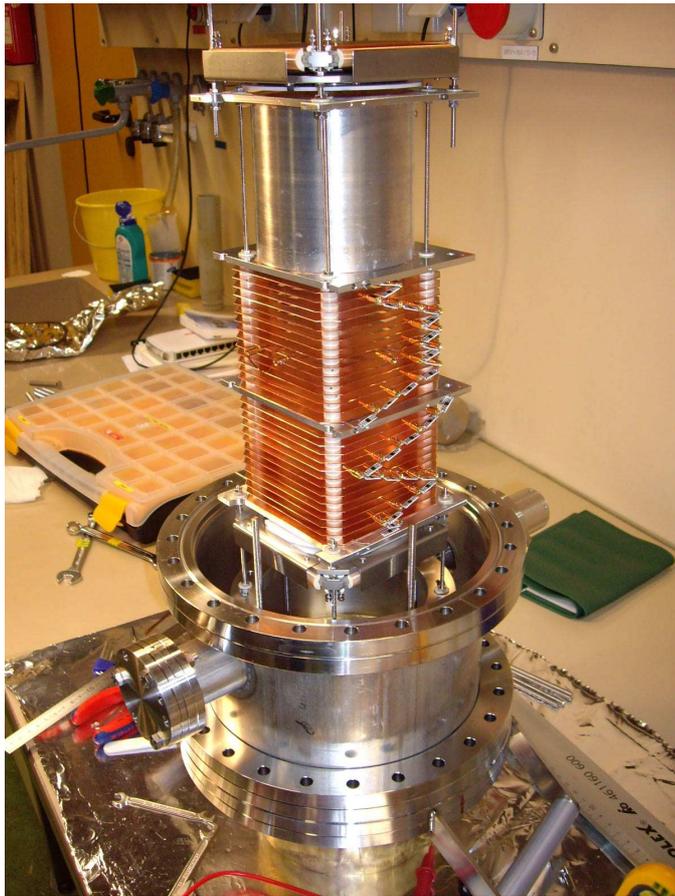


**Abbildung 4.8:** Simulation der Trajektorien von Elektronen (20 eV) und Xe-Ionen (2 eV) der zweiten Reaktionsmikroskop-Version. Durch eine Drift-Strecke für Elektronen und ein Boosterfeld für die Ionen konnte die Energieauflösung verbessert werden. Die Elektronen werden für eine erhöhte Nachweeffizienz durch ein externes, magnetisches Feld auf Gyrationbahnen gezwungen. Die Bezeichnungen korrespondieren mit denen aus Figur 4.6.

Für die auf die erste Version aufbauende zweite Version des Reaktionsmikroskops (s. Abbildung 4.8 und 4.9) sind die elektrostatischen Felder so konzipiert, dass sowohl eine hohe Energieauflösung für die Ionen als auch für die Elektronen möglich ist. Dazu wird die Elektronenabzugsstrecke durch eine feldfreie Driftstrecke (Al-Rohr, Abbildung 4.9) ergänzt. Außerdem ist das Abzugsfeld derart verringert, dass eine simulierte Energieauflösung von 100 meV erreicht wird ( $E_{kin}$  Elektronen = 20 eV).

Um die Nachweeffizienz schneller Elektronen zu erhöhen, wird durch ein Helmholtzspulenpaar ein äußeres Magnetfeld ( $\leq 10$  Gauss) parallel zur Detektorachse erzeugt (s. Abbildung 4.10). Elektronen mit einer großen Geschwindigkeitskomponente parallel zur Detektorebene können so auf Gyrationbahnen (s. Abbildung 4.8) auf den Detektor gezwungen werden. Die so manipulierte Position des Auftreffens der Elektronen wird in der Datenanalyse korrigiert (s. Kapitel 4.5). Die schweren Ionen erfahren durch das Magnetfeld eine zu vernachlässigende Ablenkung.

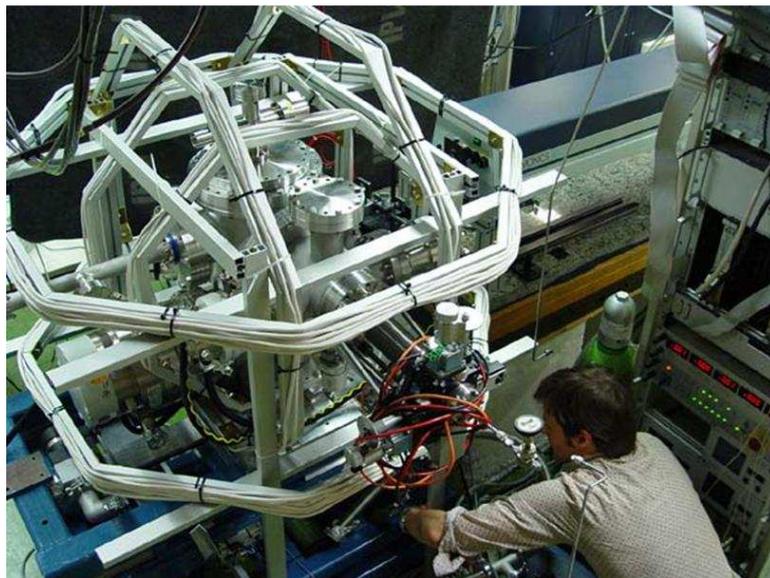
Um trotz des verringerten Abzugsfeldes alle Ionen nachweisen zu können, werden diese im Booster-Feld durch ein hohes elektrisches Feld (10 V/mm) nachbeschleunigt (s. Abbildung 4.8). Somit wird gewährleistet, dass alle Ionen auf dem Detektor abgebil-



**Abbildung 4.9:** Die zweite Version des Reaktionsmikroskops. Das Aluminium-Rohr über den Kupfer-Platten stellt die feldfreie Elektronen-Drift-Zone dar. Aufgrund der Verlängerung musste das gesamte Spektrometer nach oben versetzt werden, damit die Wechselwirkungszone noch getroffen wurde. Dafür wurde ein CF200-Adapter-Rohrstück auf die Kammer gesetzt.

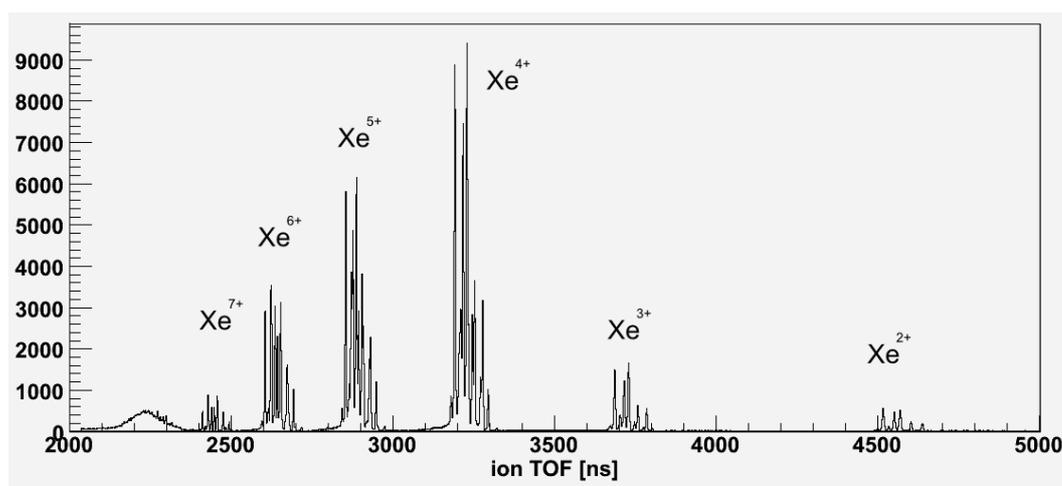
det werden können. Durch die hohe Nachbeschleunigung besitzen die positiv geladenen Fragmente kinetische Energien von  $\sim 3000$  eV. Die hohe kinetische Energie vergrößert die Nachweiseffizienz des MCP-Detektors (s. Abbildung 4.13). Durch diese Erweiterungen und Verbesserungen der Feldgeometrien werden multikoinzidente Untersuchungen mit einer hohen Impulsauflösung möglich.

Damit die einzelnen Detektorkomponenten mit Spannung versorgt und die zu messenden Signale ausgelesen werden können, werden die Kabel aus der Vakuumkammer herausgeführt. Dazu dient eine elektrische Vakuumdurchführung mit 12 Pins an der Vakuumseite, die von der Atmosphärenseite aus kontaktiert werden können (s. Abbildung 4.12). Die Pin-Belegung ist in der Tabelle in Abbildung 4.12 aufgelistet. Functions entspricht der Funktion der entsprechenden Kabel und FT12-TP channel die Kanalbelegung am Signalmischer (s. Kapitel 4.3). Die reference-Signalkabel sind eingeklammert, da nur das von Signal- und Referenzsignal differenzierte Signal für die weitere Datenverarbeitung verwendet wird. MCP front und MCP back bezeichnen die Kontaktierung der



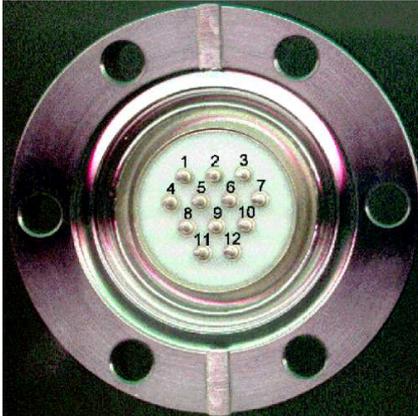
**Abbildung 4.10:** Experimentier-Kammer mit drei Helmholtz-Spulenpaaren. Das große Spulenpaar parallel zur Erde dient der Steigerung der Elektronen-Nachweiseffizienz. Die beiden kleinen Paare senkrecht dazu kompensieren das Erdmagnetfeld. Der COLTRIMS Detektor befindet sich in der Kammer. Alle Spulen sind so positioniert, dass der homogene Feldbereich im Inneren der Kammer liegt.

Vorder- und Rückseite der MCPs. An X oder Mesh kann eine elektrische Spannung für die Abzugsfelder angelegt werden. An Anode Holder ist der Anoden Halter kontaktiert. Die Kabel müssen HV- und vakuumtauglich sein. Alle Kabel sind so kurz wie möglich zu halten. Die Kontaktierung der Anodendrähte wird über M2 Gewindestangen, an denen die Drähte befestigt sind, bewerkstelligt. Somit befinden sich an allen vier Ecken



**Abbildung 4.11:** Xe-Flugzeitspektrum nach Anregung mit 700 eV Photonen aufgenommen mit dem in dieser Arbeit entwickelten Reaktionsmikroskops. Die einzelnen scharfen Linien resultieren von verschiedenen Isotopen. Die Auflösung von neun verschiedenen Xe-Isotopen spiegelt die sehr hohe Flugzeit- bzw. -Massenaufösung wider.

einer Anode zwei Kontaktierungen (jeweils ein Signal- und ein Referenzdrahtende). Die Kabel, die zu diesen Kontaktstellen führen, werden gegeneinander verdreht (ca. 3 Drehungen auf 10 cm). Dies dient einer besseren Transmission der Signale [114]. Da die Position über die Signal-Laufzeit auf den Kabeln bestimmt wird, ist es wichtig, dass die einzelnen Anodendrähte bis auf einen halben Zentimeter gleich lang sind. Alle Kabel werden über Crimp-Steckverbinder an der Vakuumdurchführung befestigt. Für die Elektronenseite sind die gleichen Kontaktierungen vorzunehmen, so dass zwei 12 Pin Durchführungen belegt sind. Die Kontaktierung der Drift-, Abzugs- und Boostfelder werden an einer extra Durchführung vorgenommen.



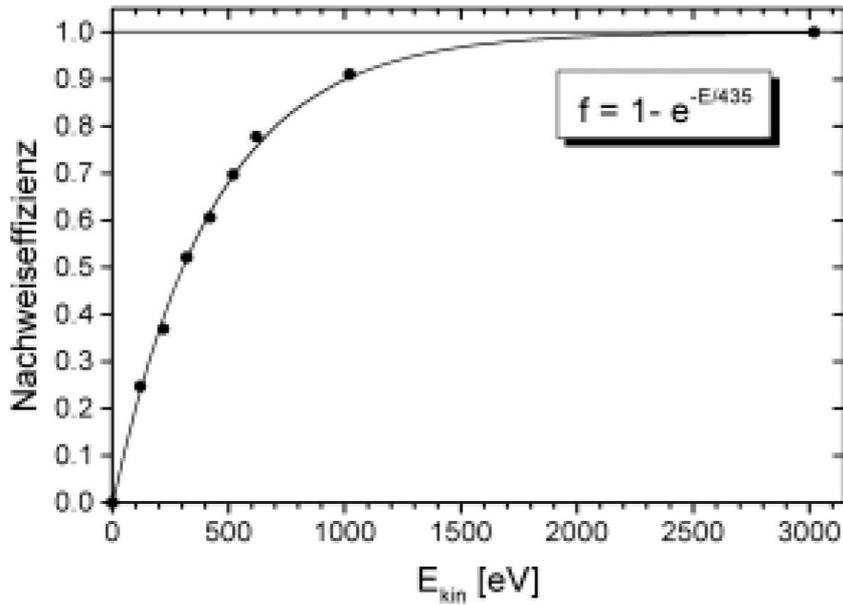
| Pin number<br>FT12 flange | Function         | FT12-TP channel |
|---------------------------|------------------|-----------------|
| No. 1                     | $z_1$ -signal    | No. 7           |
| No. 2                     | $z_2$ -reference | (No. 8)         |
| No. 3                     | $z_2$ -signal    | No. 8           |
| No. 4                     | $z_1$ -reference | (No. 7)         |
| No. 5                     | $x_1$ -signal    | No. 3           |
| No. 6                     | $x_2$ -reference | (No. 4)         |
| No. 7                     | $x_2$ -signal    | No. 4           |
| No. 8                     | $x_1$ -reference | (No. 3)         |
| No. 9                     | $y_1$ -signal    | No. 5           |
| No. 10                    | $y_1$ -reference | (No. 5)         |
| No. 11                    | $y_2$ -signal    | No. 6           |

**Abbildung 4.12:** Vakuumseite der FT12 Vakuumdurchführung (links). An den 12 Pins werden sowohl die Spannungsversorgungen als auch die signalführenden Kabel aus dem Vakuum an Atmosphäre übertragen. Die Belegung der Pins ist in der rechten Tabelle aufgelistet. In der Spalte FT12-TP sind die Kanäle des Signalmischers angegeben. Sowohl der Ionen als auch der Elektronen Detektor besitzen eine solche Durchführung. [114]

### 4.3 Inbetriebnahme des Reaktionsmikroskops

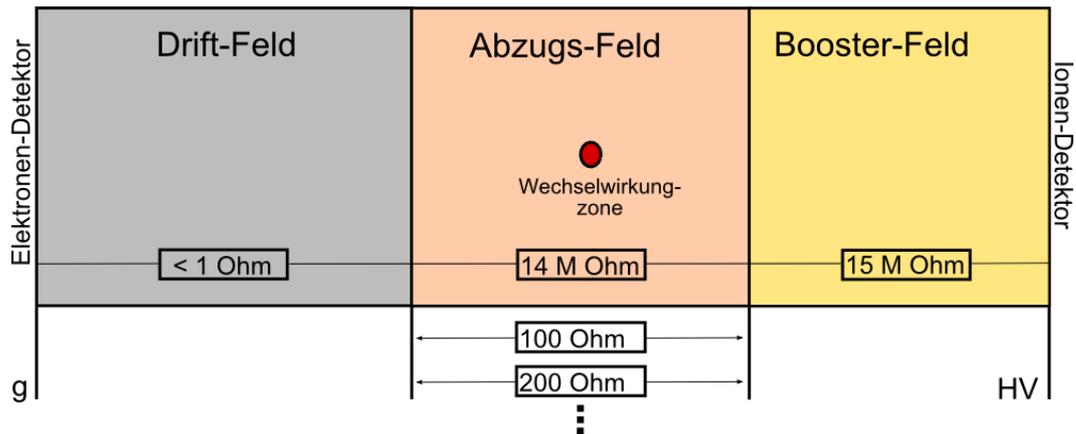
Um die Signale die von den MCPs und den DLA erzeugt werden weiter zu verarbeiten und um den gesamten Detektor mit Spannung zu versorgen, werden die beiden (Elektronen- und Ionen-Detektor) FT12-TP Vakuumdurchführungen jeweils mit eine Decoupling Box (s. Abbildung 4.15) der Firma Roentdek [114] verbunden. Neben sechs LEMO-Buchsen für die Signalauskopplung sind an den Boxen sechs SHV-Hochspannungsstecker angebracht:  $MCP_{front}$ ,  $MCP_{back}$  dienen der Spannungsversorgung der MCP-Detektoren, Anoden-Halter legt den Aluminiumrahmen der Anode auf ein positives Potential, Signaldraht und Referenzdraht versorgen die Anodendrähte mit Spannung, mit Mesh kann die Abzugsspannung geregelt werden.

Die Frontseite, der Wechselwirkungszone zugewandte Seite, des Ionen-MCPs wird über ein ISEG-Powersupply mit einer hohen negativen Spannung versorgt (s. Abbildung 4.16). Die Rückseite des MCPs wird mit einem Erdungsstecker geerdet. Durch leichte Variation dieser Spannung kann man die Stärke des MCP-Signals den Randbedingungen anpassen (s. Kapitel 4.4). Die Spannungsdifferenz am MCP-Detektor sollte für eine



**Abbildung 4.13:** Nachweiseffizienz der verwendeten MCP-Detektoren als Funktion der kinetischen Energie. Für diese Messungen wurden einfach geladene Heliumkerne verwendet, die verschieden stark vorbeschleunigt wurden. Die Daten wurden normiert und mit der aufgeführten Exponentialfunktion gefittet. [116]

ausreichende Verstärkung mindestens 2000 V betragen. Der Widerstand über das MCP-Stack beträgt ungefähr  $112\text{ M}\Omega$ . Der Anoden-Halter liegt auf einem elektrisch höheren Potential als die Rückseite des MCP-Stacks. Elektronen, die das MCP verlassen,



**Abbildung 4.14:** Schematische Darstellung der Widerstandsverhältnisse der verschiedenen elektrostatischen Felder. Da das Drift-Feld der Elektronen durch ein Aluminium Rohr definiert wird, ist der Widerstand klein. Die Widerstände, die zwischen den Kupferplatten angebracht sind, summieren sich für das Abzugsfeld zu  $15\text{ M}\Omega$  und für das Booster-Feld zu  $14\text{ M}\Omega$ . Durch das Parallelschalten von Widerständen zum Abzugsfeld, wird der Widerstand hier verringert und es fällt weniger Spannung ab. Somit können durch Erden der Driftstrecke mit einer Spannungsversorgung verschiedene Abzugsfelder erzeugt werden.



**Abbildung 4.15:** Die Decoupling Box wird an die FT12-TP Vakuumdurchführung angeschlossen. Sie ermöglicht die Spannungsversorgung durch sechs SHV-Hochspannungsstecker und das Auskoppeln der MCP- und Anoden-Signale durch LEMO-Buchsen. Ionen- und Elektronen-Detektor haben jeweils eine eigene Decoupling Box. Links ist die Box mit den Steckern und den LEMO-Buchsen zu sehen. Rechts ist die Steckverbindung für die Vakuumdurchführung zu erkennen.

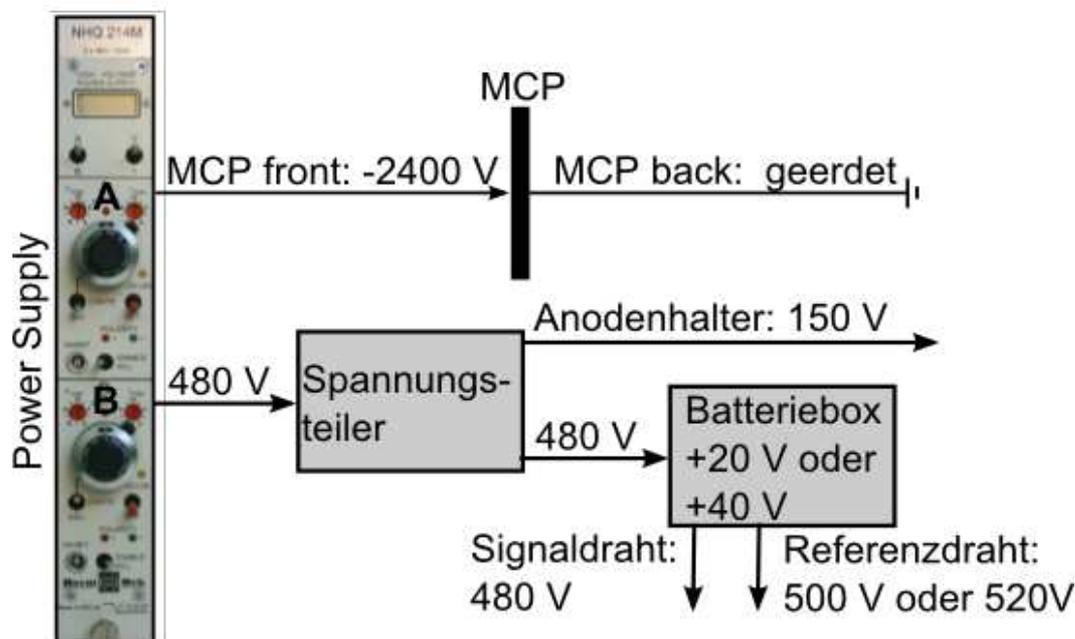
werden so noch leicht nachbeschleunigt, was zu einer Erhöhung der Nachweiseffizienz der DLA führt. Die Spannungsversorgung des Anoden-Halters und der Anoden-Drähte wird über einen Widerstandsteiler geregelt (s. Abbildung 4.16). An den Signal- und Referenzdrähten liegen Spannungen, deren Differenz zwischen 20 und 40 V eingestellt werden kann. Da diese Differenz unabhängig von der eingehenden Spannung und sehr konstant sein muss, wird hierfür eine Batteriebox verwendet. Je nach Signalstärke und -form kann zwischen 20 und 40 V variiert werden.

Die Spannungsversorgung des Elektron-Detektors funktioniert nach dem gleichen Schema. Da hier jedoch Elektronen auf dem MCP-Detektor nachgewiesen werden, liegt an der Frontseite eine positive Spannung von 300 V. Um trotzdem über das MCP-Stack eine Spannungsdifferenz von 2400 V zu erreichen, muss an der Rückseite des MCPs eine Spannung von 2700 V anliegen. Genau wie die Spannungen des Ionen-Detektors sind auch die hier angegebenen Spannungen nur Richtwerte. Um die Signale nach Höhe und Breite zu optimieren, kann eine leichte Variation vorgenommen werden.

Um möglichst homogene elektrische Felder für die Trennung von Elektronen und Ionen zu erhalten, wird nur eine Spannungsquelle verwendet. Die Verwendung von mehreren Spannungsquellen führte zu ungewünschten Spannungsverhältnissen. Dem Problem wird derart entgegengetreten, dass verschiedene Widerstände mit dem Abzugs-Feld parallel geschaltet werden können. Somit wird der Widerstand, der über die Abzugsstrecke abfällt, verringert. Erdet man die Driftstrecke der Elektronen und legt an das Boosterfeld eine Spannung an, fallen über alle drei Feldbereiche verschiedene Spannungen ab (s. Abbildung 4.14).

Wie schon erwähnt, werden über die Decoupling Box die differenzierten Signal- und Referenzsignale der Anoden durch RC-Glieder ausgekoppelt und zu single line Signalen mit einer Impedanz von  $50 \Omega$  transformiert [114]. Insgesamt führt dies zu vier Anoden-Signalen: x1, x2 für die beiden Drahtenden der x-Drahtebene und y1, y2 für die beiden

## Spannungsversorgung Ionen-Detektor

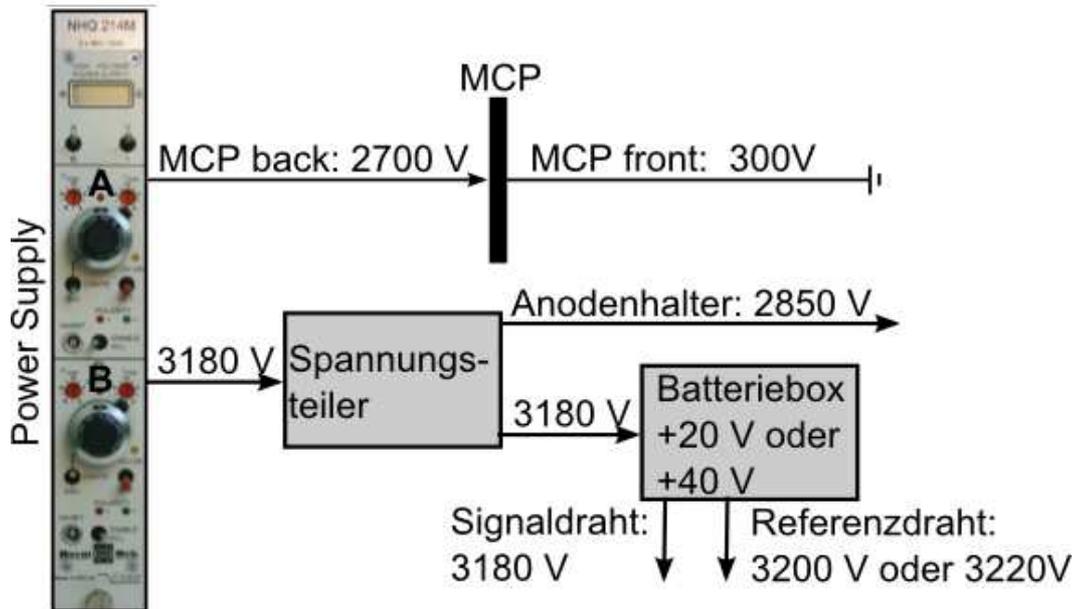


**Abbildung 4.16:** Spannungsversorgung des Ionen-Detektors. Die Spannungen werden durch ein 2 Kanal ISEG-Power-Supply, einem Spannungsteiler und einer Batterie geliefert. Die angegebenen Spannungen sind nur Referenzwerte und können je nach Experiment und Signalsituation leicht variiert werden.

Drahtenden der y-Drahtebene. Für die MCP-Signale existieren zwei LEMO-Buchsen, eine für  $MCP_{front}$  und eine für  $MCP_{back}$ . Die MCP-Signale werden auch über RC-Glieder ausgekoppelt. An dem jeweils anderen MCP-Eingang ist ein einstellbares Spindelpotentiometer ( $50\ \Omega$  -  $180\ \Omega$ ) zur Terminierung anzubringen. Die Signale des Elektronendetektors werden auf die gleiche Weise ausgekoppelt, so dass insgesamt zehn Signalkabel zur Weiterverarbeitung zur Verfügung stehen. Als Signalkabel empfehlen sich LEMO-Kabel, die so kurz wie möglich gehalten werden sollten, um das Einkoppeln von elektrischen Störungen zu minimieren. Außerdem sollte darauf geachtet werden, dass die signalführenden Kabel nicht in Kontakt mit Kabeln, die eine Wechselspannung führen, stehen, da dies zu unerwünschtem elektrischen Rauschen führt.

Die acht Anoden-Signale werden zunächst in acht verschiedene Kanäle eines schnellen, bipolaren Vorverstärkers, FAMP8, geführt (s. Abbildung 4.18). Dieser Vorverstärker von der Firma RoentDek bietet für jeden der acht Eingänge einen invertierenden und einen nicht-invertierenden Ausgang. Die Bandbreite des Verstärkers beträgt 2-500 MHz. Der Verstärkungsfaktor von 55 kann um  $\pm 10\%$  eingestellt werden. Von diesem Verstärker aus werden die verstärkten Anodensignale mittels LEMO-Kabel in den Signalmischer MIXA8 weitergeführt, ebenfalls von der Firma RoentDek. Die Anoden-Signale der Ionen kommen jeweils in einen invertierenden Eingangskanal und die Signale der Elektronen in einen nicht-invertierenden Eingangskanal (s. Abbildung 4.18). Der Signalmischer verstärkt (0,2 bis 4 fach) und mischt hochfrequente Signale. Durch die Invertierung der Ionen-Signale erreicht man, dass die Ionen-Signale positiv

## Spannungsversorgung Elektronen-Detektor



**Abbildung 4.17:** Spannungsversorgung des Elektronen-Detektors. Die Spannungen werden genau wie beim Ionen-Detektor durch ein 2 Kanal ISEG-Power-Supply, Spannungsteiler und einer Batterie geliefert. Die angegebenen Spannungen sind nur Referenzwerte und können je nach Experiment und Signalsituation leicht variieren.

und die Elektronen-Signale negativ werden (s. Abbildung 4.21). Erst diese Invertierung ermöglicht eine Mischung der Signale ohne Informationsverlust. Durch diese Mischung wird die Zahl der für die Datenaufnahme notwendigen Digitalisierer um die Hälfte reduziert. Für die weitere Datenverarbeitung weiß man, dass die negativen Signale zu den Elektronen-Anoden gehören und die positiven zu den Ionen-Anoden.

Die zwei Anoden-Signalen unterschiedlicher Polarität (z. B. x1 der Elektronen und x1 der Ionen) werden in einem Kanal zusammengefasst. Die vier so generierten und gemischten Anodensignale werden in den Acqiris Transientenrekorder gespeist. Die MCP-Signale aus den Decoupling Boxen werden durch separate schnelle Vorverstärker (40 fach) vorverstärkt. Die verstärkten Signale werden dann ebenfalls in den Signalmischer gespeist (s. Abbildung 4.18). Damit alle Signale einer Teilchensorte die gleiche Polarität haben, wird das Ionen-Signal in einen invertierenden Kanal gesteckt. Die MCP-Signale werden ebenfalls in den Acqiris Transientenrekorder geführt.

Neben den Anoden- und MCP-Signalen wird ein Trigger- (s. Kapitel 4.4) und ein Referenzzeit (Timing)-Signal für die Datenaufnahme und -analyse benötigt. Diese Signale werden ebenfalls in den Transientenrekorder gespeist. Der Transientenrekorder speichert für acht Kanäle fortlaufend für maximal  $120 \mu\text{s}$  alle eingehenden Signale. Wenn zu einem beliebigen Zeitpunkt ein Trigger zur Datenaufnahme erfolgt, kann der Transientenrekorder in einem bestimmten Zeitrahmen auf bereits vergangene Ereignisse zurückgreifen. Außerdem kann der Transientenrekorder die eingehenden Signale sehr schnell digitalisieren und auf die Festplatte eines PCs schreiben.

Was nun folgt ist die Optimierung und das Aufnehmen aller Signale. Für die Datenaufnahme muss ein guter Trigger gesetzt werden, der an die physikalische Fragestellung anzupassen ist. Somit kann schon vor der Datenaufnahme eine Selektion vorgenommen werden.

#### 4.4 Optimierung der einzelnen Signale und die Datenaufnahme

Die Datenaufnahme stellt hohe Anforderungen an das gesamte System. Da das Reaktionsmikroskop sowohl zeitauflösende als auch ortsauflösende Messungen für koinzidente Elektronen- und Ionenergebnisse ermöglicht, sind dementsprechend viele Signale aufzunehmen und zu verarbeiten. Ein Ereignis erzeugt pro Detektoreinheit vier Ortssignale ( $x_1, x_2, y_1, y_2$ ) und ein Zeitsignal ( $t$ ). Die Ereignisrate kann je nach Clustergröße und Photonenenergie bis einige kHz betragen.

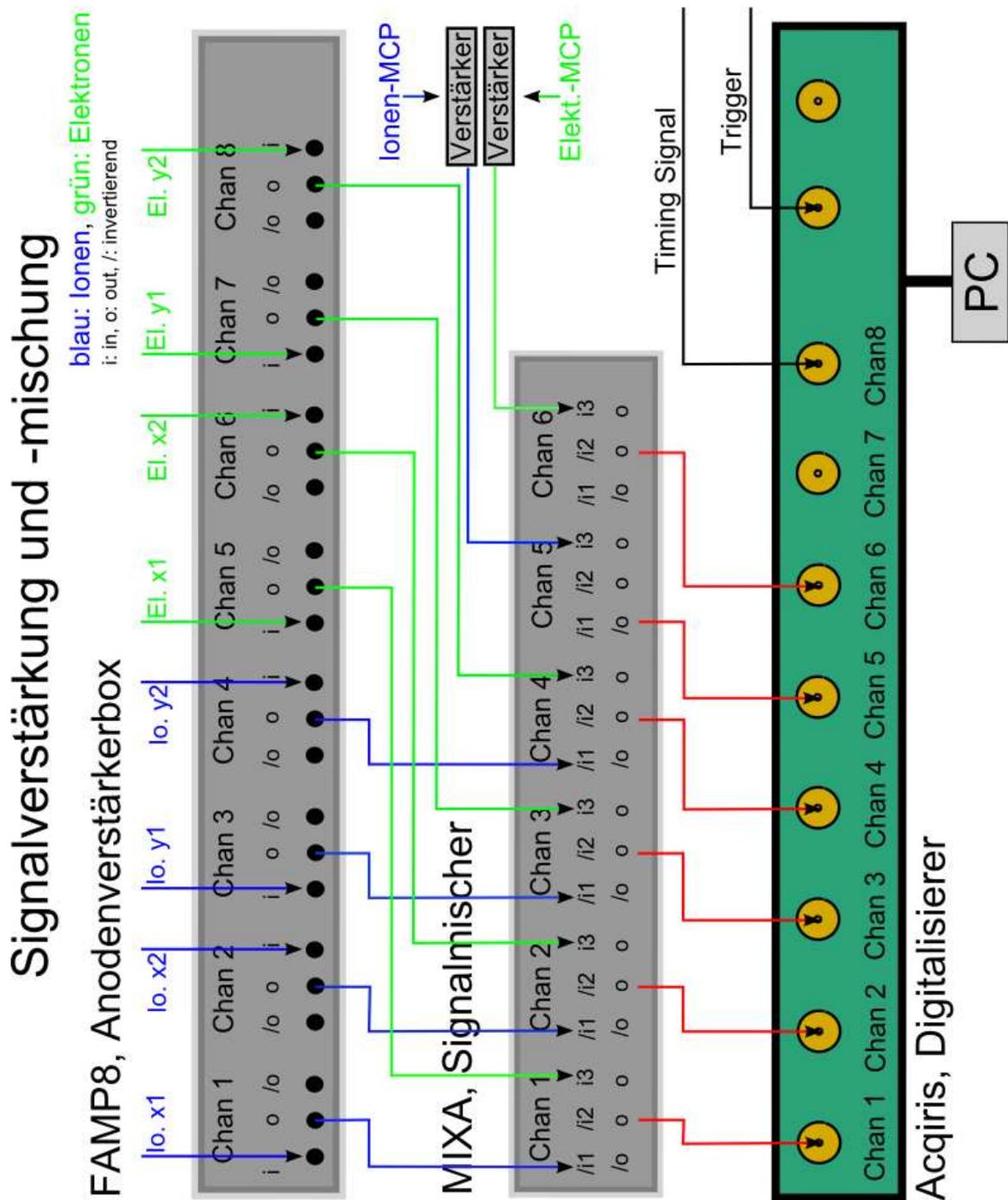
Für die Signalsoptimierung und das Datenauslesen stellt das Programm Agat, das von Lutz Foucar vom Institut für Kernphysik der Universität Frankfurt am Main aus der Forschungsgruppe von Prof. Dörner entwickelt wurde, einige wichtige Kontrollfunktionen bereit. Ein wesentlicher Aspekt für die Signalsoptimierung einer Detektoreinheit ist, dass alle Signale, d.h. vier Anoden- und ein MCP-Signal, vorhanden sind. Dies kann sehr gut mit der Bit-Masken-(BitMask) Funktion geprüft werden. Diese Funktion codiert die fünf Signale nach  $2^n$ : MCP:  $2^0 = 1$ , x1:  $2^1 = 2$ , x2:  $2^2 = 4$ , y1:  $2^3 = 8$ , y2:  $2^4 = 16$ . Wird eins der Signale nachgewiesen, wird ihm der entsprechende Wert zugeordnet. Alle gemessenen Werte eines Ereignisses werden addiert und in der Bit-Maske aufgetragen. Sind alle Signale vorhanden, erfolgt ein Eintrag bei 31. Fehlt ein Signal erfolgt ein Eintrag bei  $\neq 31$  und es kann sofort nachvollzogen werden, welches Signal fehlte. Wenn ein Signal ganz fehlt, kann dies relativ schnell an der entsprechenden Kanalanzeige (s. Abbildung 4.21) erkannt werden.

Durch das Setzen eines Rausch-Levels kann elektrisches Rauschen weitgehend weg diskutiert werden. Das elektronische Rauschen kann durch Abschirmen der Signalkabel mit Aluminiumfolie, Abschirmen von Turbopumpen-Kontrollern und deren Kabel, durch Einpacken der Decoupling Boxes mit Aluminiumfolie, etc. reduziert werden.

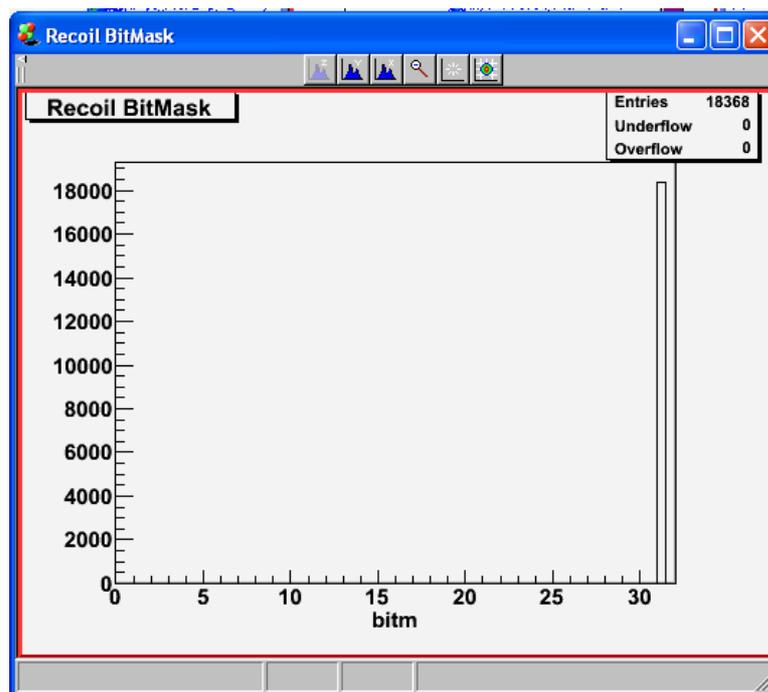
Ein anderer wesentlicher Punkt der Signalsoptimierung ist die Minimierung der Signal-Überschwinger. Wie in Kapitel 4.3 beschrieben, werden positive und negative Anodensignale gemischt und in einem Kanal zusammengefasst. Wenn die Überschwinger der Signale zu groß sind, registriert das Programm den Überschwinger als Anodensignal. Die Form der Anodensignale und somit auch die Überschwinger können auf verschiedene Arten eingestellt werden: zum einen kann die Verstärkung der Signale am FAMP8 aufeinander abgestimmt werden, außerdem kann durch eine kleine Variation der Anodenspannungen die Signalhöhe zusätzlich verändert werden. Ein gutes Anodensignal ist 6 ns breit und hat ein Signal-Rausch-Verhältnis von 4:1.

Zusätzlich kann man mit Agat über die Funktion `step size` und `back` in der Kanal-Konfiguration die Pulsaufzeichnung einstellen.

Die Qualität der Signale kann durch den Grafen Signalhöhe vs. FWHM von Agat kon-



**Abbildung 4.18:** Die Anoden- und MCP-Signale, die mit der Decoupling Box ausgekoppelt werden, werden mit schnellen Vorverstärkern verstärkt. Anschließend werden die Anodensignale gemischt und in einem Kanal zusammengeführt. Die gemischten Anoden-Signale und die MCP-Signale können dann über einen schnellen Transientenrekorder (Acqiris, Digitalisierer) im PC weiterverarbeitet werden.



**Abbildung 4.19:** Bitmask der Detektoren. Die Anoden- und MCP-Signale sind durch  $2^n$ -Werte codiert: MCP:  $2^0 = 1$ , x1:  $2^1 = 2$ , x2:  $2^2 = 4$ , y1:  $2^3 = 8$ , y2:  $2^4 = 16$ . Für jedes Ereignis werden diese Werte addiert. Fehlt ein Signal, kann sofort festgestellt werden welches dies ist.

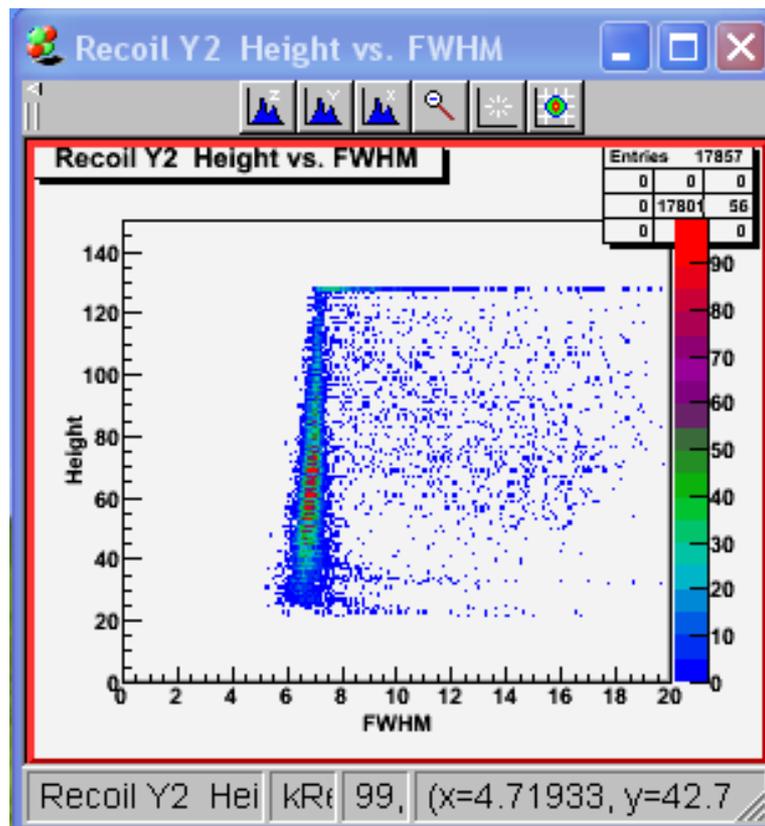
trolliert werden (s. Abbildung 4.20). Ein gutes Signal sollte um die 6 ns breit sein und den ganzen Bereich homogen ausfüllen. Ist dies nicht der Fall, ist das Signal wie oben beschrieben einstellbar.

Die Optimierung der MCP-Signale funktioniert nach dem gleichen Schema. Da diese Signale jedoch nicht gemischt werden, ist die Minimierung des Überschwingers nicht so wesentlich. Verringert werden kann er durch Anpassung des Terminierungswiderstandes des MCPs (s. Kapitel 4.3) an der Decoupling Box.

Das Agat-Programm ermöglicht außerdem das Einstellen der Fenstergröße, in der gemessen werden soll. Wenn z. B. ein Elektron als Startsignal dient, kann eingestellt werden, wie weit die Datenaufnahme in der Zeit von diesem Signal aus zurückgehen soll, um dann ein Zeitfenster zu öffnen, in dem alles aufgenommen werden soll.

Für die Datenaufnahme muss dem Programm über die Funktion Assign Channels die Polaritäten von Ionen- und Elektronen-Signalen mitgeteilt werden. Eine weitere wichtige Signal-Optimierungsfunktion von Agat ist das Einstellen der richtigen Zeitsummen (time sum) der Anodensignale (s. Kapitel 4.3). Ist die Zeitsumme falsch gesetzt, macht sich dies durch ein nicht vorhandenes oder asymmetrisches Detektorbild bemerkbar. Wenn alle Signale soweit optimiert wurden, sollten die Graphen der Zeitsummen der x- und y- Anodendrähte eine ca. 5 ns breite Linie zwischen 70 und 90 ns anzeigen. Für einen homogen ausgeleuchteten Detektor (Dunkelpulse) muss dem Programm über die Funktion TimeSum diese Werte mitgeteilt werden.

Wenn alle Signale optimiert sind, kann im Prinzip die Messung starten. Um die Menge

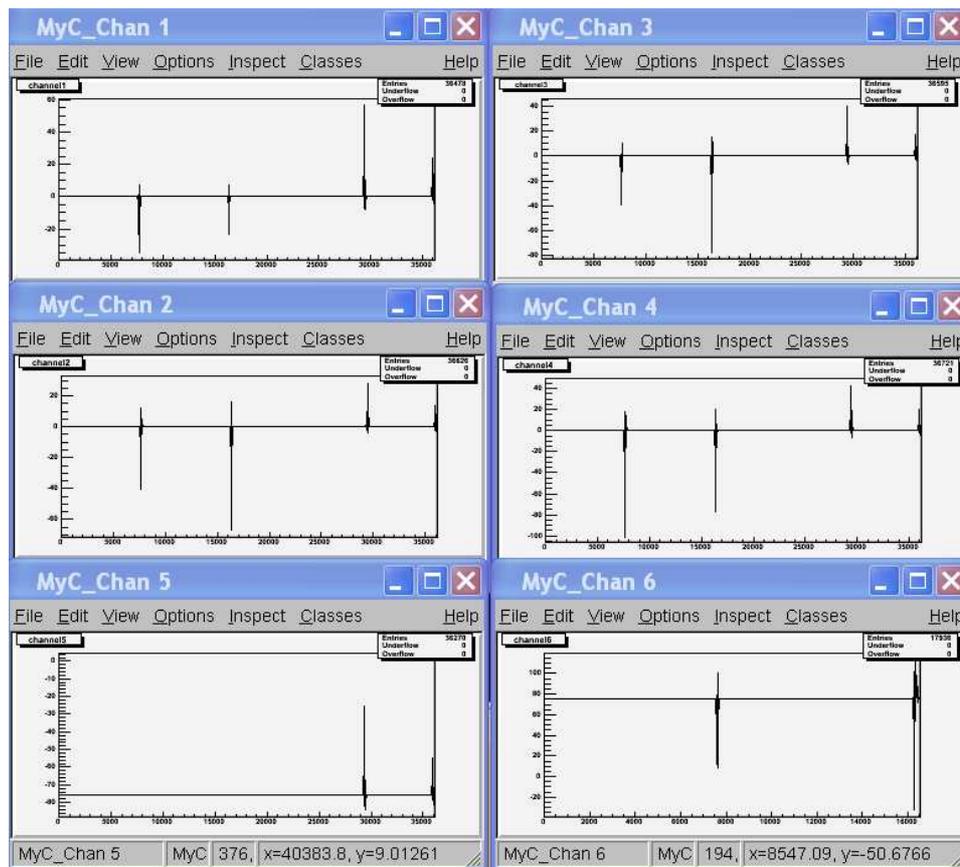


**Abbildung 4.20:** Durch das Auftragen der Signalhöhe (willkürliche Einheit) gegen FWHM (ns) kann das Signal optimiert werden. Alle Signale sollten möglichst schmal sein und die Intensität gleichmäßig über die volle Höhe verteilt sein. Bildet sich am oberen Rand eine waagerechte Linie wie hier, ist das ein Zeichen für eine Übersteuerung des Signals, somit muss die Verstärkung verringert werden.

der aufzunehmenden Daten gering zu halten, sollte man sich ein sinnvolles Trigger-Signal erzeugen, das nur auf wesentliche Ereignisse triggert.

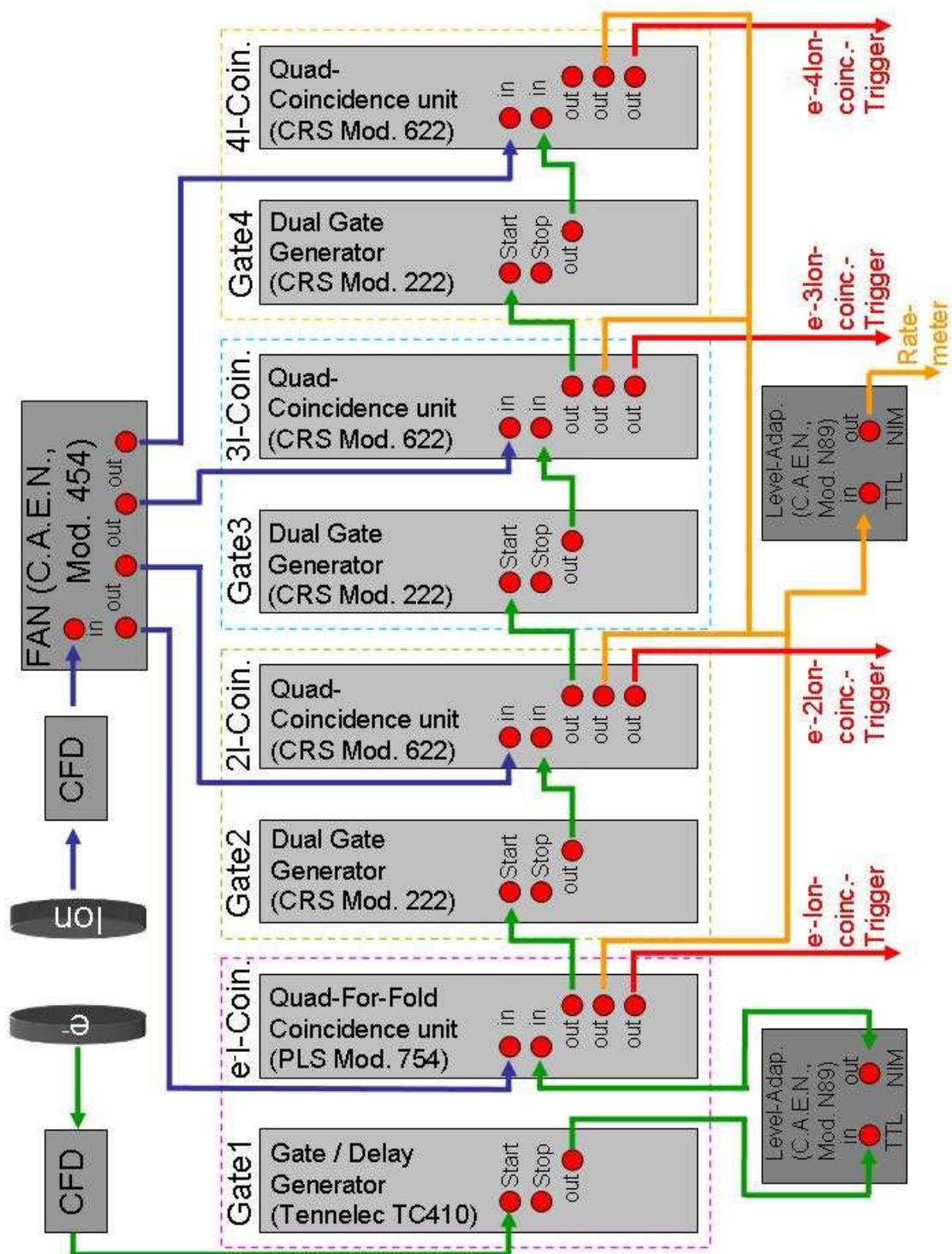
Für die multikoinzidente Datenaufnahme der Cluster-Fragmentationsprozesse sind verschiedene Trigger - Schaltungen (Multikoinzidenzelektroniken) verwendet worden. Abhängig vom generierten Ladungszustand auf dem Cluster sind verschieden viele Ionen zu erwarten. Da immer alle geladenen Fragmente nachgewiesen werden sollen, die zu einem bestimmten Prozess gehören, wurde auf die zu erwartende Fragment-Anzahl getriggert. Wenn zum Beispiel bei entsprechender Photonenenergie zwei Ionen erzeugt werden, wird die Koinzidenzelektronik so geschaltet, dass nur ein Trigger erzeugt wird, wenn zwei Ionen-MCP-Signale in Kombination mit mindestens einem Elektron-MCP-Signal in einem charakteristischen Zeitintervall nachgewiesen werden. Trifft dies zu, werden die MCP- und DLA-Signale in der Post-Analyse des Agat-Programms geprüft und gespeichert. Dieses Multi-Koinzidenz-Triggering konnten wir bis zu einer Vierfach-Koinzidenz ausbauen. Im Folgenden wird auf die Details dieser Schaltung eingegangen werden:

Die Elektron-Ion-Koinzidenz-Schaltung sorgt dafür, dass nur Daten aufgenommen werden, wenn ein Elektron in Kombination mit einem Ion nachgewiesen wird (s. Abbildung

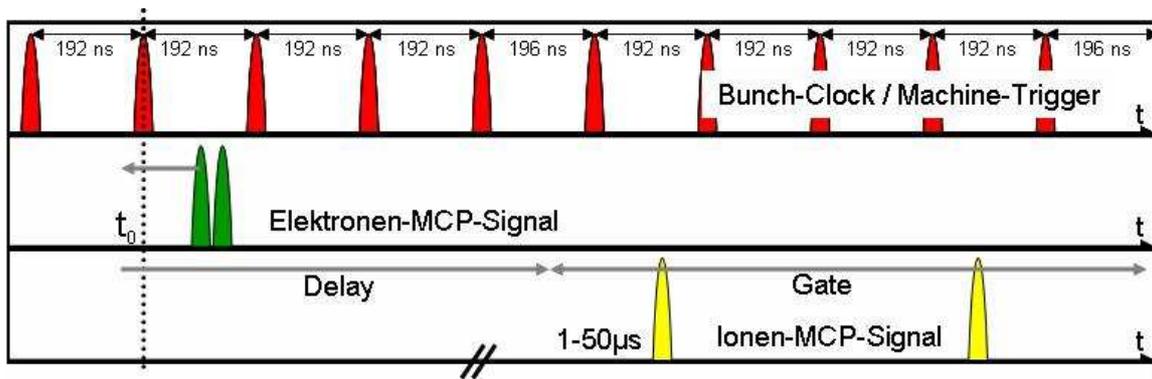


**Abbildung 4.21:** Signale der DLA und der MCPs. Die positiven Anoden-Signale gehören zu Ionen, die negativen zu Elektronen. Kanal 1 (MyC\_Chan1): x1-Anoden-Signal, Kanal 2 (MyC\_Chan2): x2-Anoden-Signal, Kanal 3 (MyC\_Chan3): y1-Anoden-Signal, Kanal 4 (MyC\_Chan4): y2-Anoden-Signal. Bei dem Ereignis wurden erst zwei Elektronen und dann zwei Ionen detektiert. Die x-Achse liefert die Flugzeiten, die allerdings noch mit dem Timing-Signal verrechnet werden, um eine Aussage liefern zu können.

4.22, violette Box ganz links). Die Elektron-MCP- und Ion-MCP-Signale durchlaufen zunächst jeweils einen CFD (Constant Fraction Discriminator) mit angepassten threshold (typischerweise 0.6-1), um elektronisches Rauschen zu unterdrücken. Das Elektron-Signal wird dann in einen Gate-Delay-Generator (Tennelec TC 410), Gate1, gespeist (s. Abbildung 4.22). Da die zugehörigen positiv geladenen Fragmente eine, je nach Abzugsspannung und Photonenenergie, viel längere Flugzeit besitzen, wird das Elektronen-Signal verzögert (delayed). Nach der Verzögerung wird ein Zeitfenster (Gate) geöffnet, in dem man die positiv geladenen Fragmente erwartet. Das verzögerte Signal läuft jetzt in einen NIM-TTL-NIM-Level-Adapter (C.A.E.N., Model M89). Aus diesem Level-Adapter wird das Signal in eine Quad-Four-Fold Coincidence Unit (PLS, Model 754) (QFD) geleitet, in die auch das Ionen-MCP-Signal aus dem CFD läuft. Trifft jetzt ein Ion oder auch mehrere in das von dem Elektron geöffnete und verzögerte Zeitfenster, gibt die QFD-Unit ein Trigger-Signal für ein Elektron-Ion-Ereignis an den Transientrekorder, der wiederum die eintreffenden Daten digitalisiert und gegebenenfalls speichert. So wird für jedes weitere koinzidente Ereignis ein Fenster geöffnet.



**Abbildung 4.22:** Skizze der gesamten Koinzidenz-Schaltung. Im Wesentlichen besteht die Schaltung aus vier Blöcken aus Gate/Delay-Generatoren und Quad-Coincidence Units. Je nach dem welchen Grad von Koinzidenz-Messung für das Experiments nötig ist, stehen die entsprechenden Trigger-Signale zur Verfügung.



**Abbildung 4.23:** Skizze der Datenverarbeitung des Acqiris-Transientenrekorders. Wenn dem Maschinen-Trigger ein Elektron-MCP-Signal folgt, wird auf der Zeit-Achse bis zum letzten Maschinen-Trigger-Signal zurückgegangen. Dann wird ein entsprechendes Zeit-Fenster geöffnet, in dem alle zu erwartenden Elektronen und Ionen liegen. Während dieses Zeitfensters werden alle MCP- und Anoden-Signale aufgezeichnet.

Der Transientenrekorder erhält sein Trigger-Signal von der Koinzidenz-Elektronik (s. Abbildung 4.23). Folgt einem Elektron-Signal ein oder mehrere Ionen-Signale (je nach eingestellter Multi-Koinzidenz-Schaltung), wird die Datenaufnahme mit dem Transientenrekorder ausgelöst. Nachdem das letzte Zeitfenster für den Ionen-Nachweis geschlossen ist, geht der Transientenrekorder zu dem Maschinen-Trigger vor dem Elektron-Signal zurück. Dieser Maschinen-Trigger wird als Referenzzeitpunkt für alle Zeitmessungen verwendet. Der Maschinen-Trigger erfolgt alle 192 ns. Jedes fünfte Triggersignal erscheint nach 196 ns. Diese Anomalie ist eine Eigenheit des DORIS-Speicherringes und ist historischen Ursprungs.

Bei den hier präsentierten Messungen stehen vor allem Fragmentations-Prozesse im Vordergrund, bei denen mehr als ein Ion entsteht. Die Koinzidenz-Schaltung kann bis zu einer Vier-Fach-Koinzidenz-Schaltung erweitert werden. D.h., dass erst ein Elektron und vier Ionen in die geöffneten Fenster fallen müssen, damit der Transientenrekorder angesteuert wird. Erfüllen alle Signale die Filterbedingungen, die mit dem Vor-Analyse Programm Agat definiert werden, können die Daten gespeichert werden. Dieses Verfahren macht die Datenaufnahme extrem effizient. Die Zählrate nimmt dadurch um einen Faktor 5-10 ab, dadurch werden so gut wie nur physikalisch sinnvolle Daten aufgenommen. Auf diese Art und Weise können wir mit der Vier-Fach-Koinzidenz-Schaltung bis zu Acht-Fach-Koinzidenz-Ereignisse nachweisen. Ist die Ereignisrate hoch genug und stehen einem genügend Geräte zur Verfügung, lässt sich die Koinzidenz-Schaltung beinahe beliebig ausbauen.

Wenn die Signale des Ionen- und Elektronen-Detektors perfekt optimiert sind und man sich einen für das Experiment sinnvollen Trigger generiert hat, kann mit der Messung begonnen werden und die Daten mit dem write-Befehl von Agat gespeichert werden.

## 4.5 Datenverarbeitung

Da bei der in den vorangegangenen Kapiteln beschriebene Methode der Datenakquisition sämtliche Flugzeit- und Ortsinformationen der Ionen und der Elektronen aufgenommen werden, besteht die Möglichkeit, im Nachhinein alle kinematischen und dynamischen Größen, die den Fragmentationsprozess beschreiben, zu bestimmen.

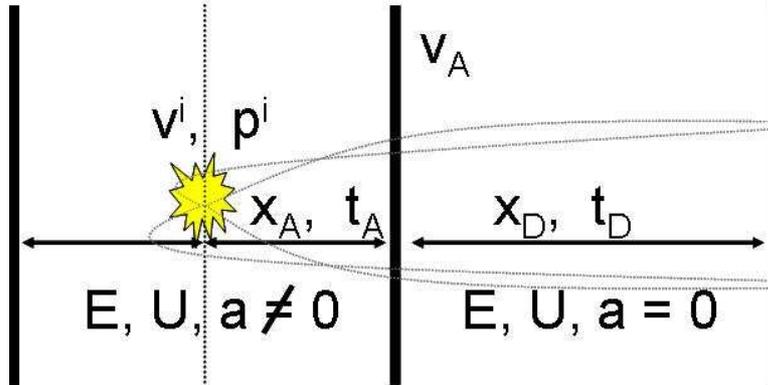
Die Menge der aufgenommenen Daten ist so groß, dass wir uns einer Daten-Analyse-Umgebung bedienen, welche vom CERN für die Datenauswertung in der Hochenergiephysik entwickelt wurde [117]. Dieses Analyse-Programm mit dem Namen Root macht den Umgang mit großen Datenmengen möglich und stellt diverse Werkzeuge und Darstellungsmöglichkeiten zur Verfügung.

Das Programm `agat22root` dient zur Analyse der aufgenommenen Daten und wurde ebenfalls von Lutz Foucar entwickelt. Die gesamte Datenanalyse kann mit diesem C++-Programm individuell bearbeitet werden. Elektronen und Ionen durchlaufen unterschiedliche Analysen. Äußere Einflüsse auf die Teilchen-Trajektorien, wie das elektrostatische Abzugsfeld oder das magnetische Feld, können aus den Daten heraus korrigiert werden. Auch Asymmetrien des Detektors können nachträglich ausgeglichen werden. Die Bestimmung des dreidimensionalen Impulsvektors soll hier exemplarisch für die gesamte Datenanalyse gezeigt werden. Betrachten wir zunächst die Bewegung der Ionen: Der dreidimensionale Impulsvektor  $p_{ges}$  (nach 4.5) lässt sich relativ einfach darstellen.

$$p_{ges} = \begin{pmatrix} p_x \\ p_y \\ p_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} (x - x_0) \cdot m / TOF \\ (y - y_0) \cdot m / TOF \\ (TOF - TOF_0) \cdot q \cdot E \end{pmatrix} \quad (4.3)$$

Unter idealer Detektorgeometrie hat das elektrische Abzugsfeld keine Komponenten senkrecht zur Detektorachse. Die Impulskomponenten  $p_x$  und  $p_y$  parallel zur Detektoroberfläche lassen sich also direkt aus einer relativen Ortsmessung zum Detektormittelpunkt  $x_0$  und  $y_0$  bestimmen. TOF entspricht der Flugzeit der Fragmente. Ist man zum Beispiel an dem Impuls eines Xe-Monomeres interessiert, muss für die Masse  $m$  und die Ladung  $q$  der entsprechende Wert angegeben werden. Durch Setzen eines Flugzeitfilters auf bestimmte Fragmente können außerdem die kinetischen Eigenschaften selektiv bestimmt werden.

Die z-Komponente des Impulses ist nicht so einfach abzuleiten. Da in diese Richtung das elektrische Feld  $E$  wirkt, wird die Flugzeit stark beeinflusst. Dieser Einfluss muss von der gemessenen Flugzeit TOF abgezogen werden. Dazu berechnet man die Flugzeit  $TOF_0$ , für ein Fragment, das keinen Anfangsimpuls besitzt. Wenn man annehmen kann, dass der Anfangsimpuls vernachlässigbar klein ist, kommt man schnell zu einer Lösung. In unserem Fall müssen wir jedoch davon ausgehen, dass die Fragmente durch ihre gegenseitige Coulombabstoßung einen nicht zu vernachlässigen Anfangsimpuls aufnehmen. Dies erschwert die Datenauswertung erheblich. Die Flugzeit der positiv geladenen Fragmente TOF (s. Gleichung 4.4) ergibt sich bei unserer Detektorgeometrie aus der Summe der Aufenthaltszeit im Abzugsfeld  $t_A$  und im Driftfeld  $t_D$  bzw. Boosterfeld. Die 5 mm Flugstrecke zwischen dem letzten Cu-Netz und dem MCP spielt aufgrund



**Abbildung 4.24:** Skizze des Reaktionsmikroskops. Dargestellt sind alle Größen, die in der Herleitung des Impulses für die Ionen benutzt werden. Zur Veranschaulichung sind exemplarisch die Trajektorien von vier Ionen dargestellt.

des hohen Potentials und der somit geringen Verweildauer für die Gesamtflugzeit keine Rolle. Dies ergaben Simulationen mit SimIon. In Abbildung 4.24 sind alle Größen, die im Folgenden relevant sind, aufgeführt.

$$TOF = t_A + t_D \quad (4.4)$$

Für den ersten Summanden erhält man mit Hilfe der Newtonschen Mechanik:

$$x_A = \pm v^i \cdot t_A + \frac{1}{2} \cdot a \cdot t_A^2 \quad (4.5)$$

$v^i$  ist die Geschwindigkeit, die das Fragment aus dem Fragmentationsprozess erhält.  $a$  beschreibt die Beschleunigung in  $z$ -Richtung, die das Ion durch das elektrische Abzugsfeld erfährt und setzt sich wie folgt zusammen:

$$a = \frac{e \cdot E}{m} = \frac{q}{m} \cdot \frac{U}{x} \quad (4.6)$$

Für  $t_A$  erhält man aus Gleichung 4.5:

$$t_A = \mp \frac{v^i}{a} + \sqrt{\frac{v^{i,2}}{a^2} + \frac{2x_A}{a}} \quad (4.7)$$

An Gleichung 4.7 kann man erkennen, wie sich der Sachverhalt vereinfachen würde, könnte man die Anfangsgeschwindigkeit vernachlässigen. Es bliebe lediglich der letzte

Term unter der Wurzel.

Die Zeit  $t_D$ , die das Fragment für das Passieren der Driftstrecke benötigt, lässt sich folgendermaßen bestimmen:

$$E_A = E_i + E_{kin} = \frac{p_i^2}{2m} + qU = \frac{1}{2}mv_A^2 \quad (4.8)$$

$E_A$  ist die kinetische Energie des Fragmentes, die es beim Eintritt in die Driftstrecke besitzt.  $E_i$  erlangt es aus dem Fragmentationsprozess und  $E_{kin}$  nimmt es durch das elektrische Feld auf. Die Geschwindigkeit, die das Fragment beim Eintritt in die Driftzone besitzt, ergibt sich somit zu:

$$v_A = \frac{1}{m} \cdot \sqrt{p_i^2 + 2mqU} \quad (4.9)$$

Da auf das Fragment in der Driftzone keine Kräfte mehr wirken, resultiert die Zeit  $t_D$  somit zu:

$$t_D = \frac{x_D}{v_A} = \frac{m \cdot x_D}{\sqrt{p_i^2 + 2mqU}} \quad (4.10)$$

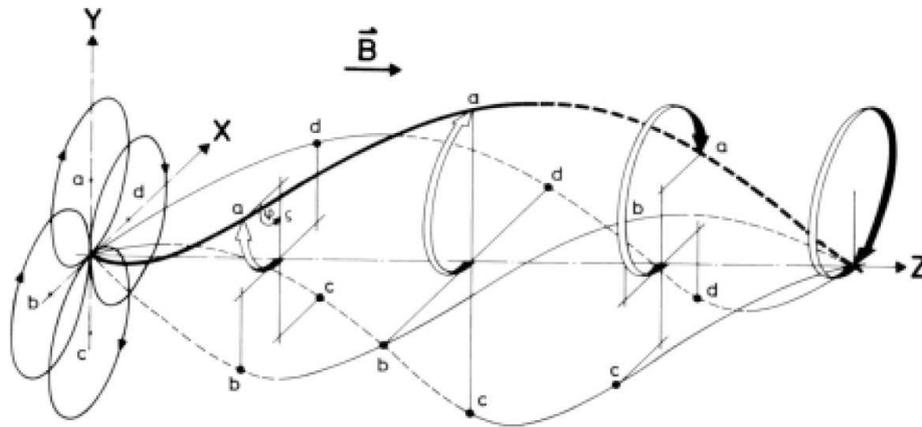
Die Gesamtflugzeit TOF ist demnach:

$$TOF = t_A + t_D = \mp \frac{v^i}{a} + \sqrt{\frac{v^{i,2}}{a^2} + \frac{2x_A}{a}} + \frac{x_D}{v_A} = \frac{m \cdot x_D}{\sqrt{p_i^2 + 2mqU}} \quad (4.11)$$

Gleichung 4.11 lässt sich nicht nach der gesuchten Größe  $p_i$  oder  $p_z$  auflösen. Die Gleichung kann nur unter gewissen Anfangsbedingungen iterativ gelöst werden. In unserer Auswertung haben wir dazu das Newtonsche Iterationsverfahren benutzt. Die Impulsbestimmung der Elektronen gemessen mit der ersten Version des Reaktionsmikroskops ist weniger kompliziert, da hier lediglich ein elektrisches Abzugsfeld vorhanden ist. Die Terme, die durch das Driftfeld zustande kommen, fallen somit weg.

Für die zweite Version des Reaktionsmikroskops sind einige Ergänzungen im Auswertungs-Code vorzunehmen. Im Wesentlichen wird die feldfreie Driftstrecke der Ionen durch die Boosterstrecke ersetzt und die Elektronenseite durch die Driftstrecke ergänzt.

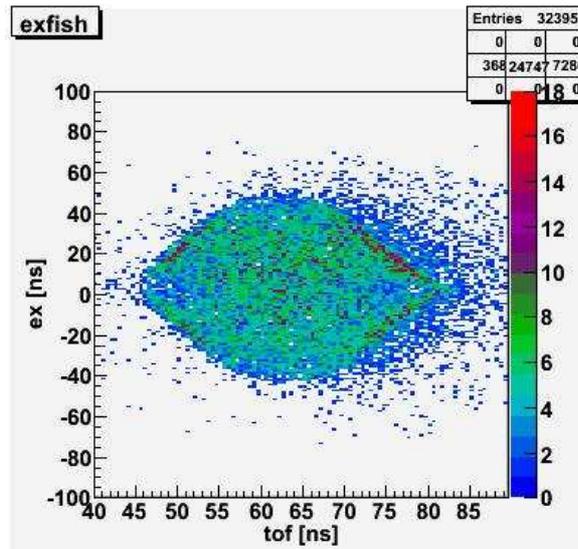
Wie in Kapitel 4.1 bereits angedeutet, wird ein äußeres, solenoides Magnetfeld benutzt, um die Nachweiseffizienz der Elektronen zu steigern. Elektronen deren kinetische An-



**Abbildung 4.25:** Darstellung von vier Elektron-Trajektorien in einem externen Magnetfeld. Die Elektronen haben unterschiedliche Startrichtungen. Die Flugrichtung ist parallel zur Detektorachse. [113]

fangsenergie zu groß ist, um vom elektrischen Feld abgezogen zu werden, können so noch nachgewiesen werden. Auf die Flugbahn der viel schwereren positiv geladenen Edelgas-Fragmente hat das Magnetfeld keinen Einfluß und braucht deswegen nicht berücksichtigt werden. In Abbildung 4.25 sind verschiedene Trajektorien für Elektronen dargestellt. Bei der Wahl des Magnetfeldes und des elektrischen Abzugsfeldes ist darauf zu achten, dass die Elektronenbahn nicht wieder in ihren Startpunkt (wie in Abbildung 4.25 dargestellt) zurückgeführt werden. In dieser Situation gehen sämtliche Informationen über die x- und y-Impulscomponenten verloren. Auf die Rekonstruktion der Elektron-Trajektorien soll in dieser Arbeit nur knapp eingegangen werden, da sie für die hier diskutierten Ergebnisse keine Rolle spielen. Details hierüber sind zum Beispiel in [113] und [116] nachzulesen.

Die magnetischen Feldlinien sind parallel zu den elektrischen Feldlinien orientiert. Die Lorentz-Kraft  $\vec{F}_L = e \cdot (\vec{v} \times \vec{B})$  wirkt nur auf Geschwindigkeitscomponenten der Elektronenbewegung senkrecht zum Magnetfeld, also parallel zu den MCP-Detektoren. Elektronen, die respektive zu der Spektrometerachse einen Transversalimpuls  $p_\perp$  besitzen, werden auf eine von der Stärke des Magnetfeldes abhängigen Kreisbahn mit dem Radius  $R = p_\perp / (e \cdot B)$  abgelenkt. Die Kombination der beiden verschiedenen Felder zwingt das Elektron auf eine Zyklotronbahn (Abbildung 4.25). Der Einfluss der beiden Felder ist im Idealfall untereinander komplett entkoppelt, d.h. das elektrische Feld wirkt nur auf Geschwindigkeitscomponenten parallel und das magnetische Feld nur auf Geschwindigkeitscomponenten senkrecht zur Spektrometerachse. Die Zyklotronfrequenz  $\omega_c = 2\pi/t_c = B \cdot e/m$  wird ebenfalls durch das Magnetfeld bestimmt. Nach einer Periode ist das Elektron wieder an seinem Startort angelangt. Jegliche Information über den Transversalimpuls  $p_\perp$  geht somit verloren. Bei der Wahl der Magnetfeldstärke sind solche Werte zu vermeiden. Andererseits kann mit Hilfe dieser Knotenstrukturen sehr gut das im Detektor herrschende Magnetfeld bestimmt werden (s. Abbildung 4.26). Genau wie bei dem elektrischen Feld muss auch der Einfluss des Magnetfeldes auf die Trajektorien der Elektronen zurückgerechnet werden. Wie bereits erwähnt, ist dies aber nur



**Abbildung 4.26:** Trägt man die Auslenkung der Elektronen gegen die Flugzeit auf, erkennt man bei bestimmten Zeiten Knotenpunkte in der Auslenkung (hier der x-Auslenkung). Die Knotenpunkte sind bei ganzzahligen Vielfachen der Zyklotronfrequenz zu finden. Die Felder sind so zu wählen, dass man eine erhöhte Intensität zwischen den Knoten erhält. So wird die Impulsauflösung maximal.

für die x- und y- Koordinaten notwendig. Der Einfluss auf die Transversalkomponenten  $p_x, p_y$  des Impulses lässt sich aus dem Kräftegleichgewicht zwischen Lorentz-Kraft und Zentripetal-Kraft ermitteln:

$$F_Z = F_L \rightarrow \frac{m \cdot v^2}{r} = e \cdot v_{\perp} \cdot B \rightarrow p_{\perp} = m \cdot v_{\perp} = e \cdot r \cdot B. \quad (4.12)$$

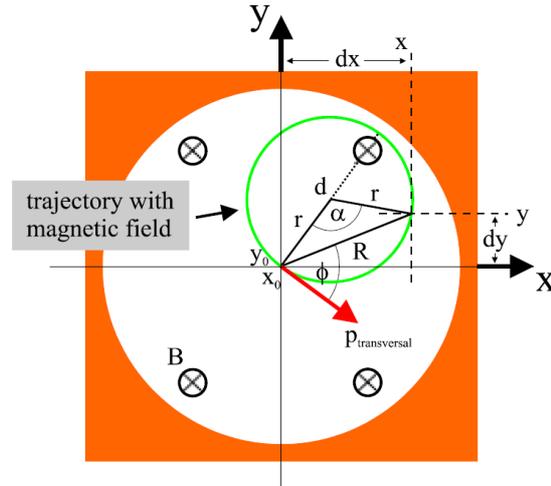
Den Gyrationradius  $r$  erhält man [113, 116] aus dem Satz des Pythagoras (s. Abbildung 4.27):

$$r^2 = \frac{R^2}{4} + \left(r \cdot \cos \frac{\alpha}{2}\right)^2 \quad (4.13)$$

Daraus folgt letztendlich [113, 116]:

$$r = \frac{R}{\sqrt{2 - 2 \cos \alpha}} \quad (4.14)$$

$R$  ist der Ortsvektor  $R = \sqrt{dx^2 + dy^2}$  mit  $dx = x - x_0$  bzw.  $dy = y - y_0$  auf dem MCP.  $x_0$  und  $y_0$  sind die Nullpunktskoordinaten des MCPs. Mit Gleichung 4.15 lässt



**Abbildung 4.27:** Skizze der Gyrationbahn eines Elektrons, die durch ein externes Magnetfeld verursacht wird. Blickrichtung ist entlang der Spektrometerachse. Das Magnetfeld ist in die Zeichenebene hinein orientiert [113].

sich nun aus Gleichung 4.12 der Betrag des Transversalimpulses  $p_{\perp}$  bestimmen. Um die gesuchten Größen  $p_x$  und  $p_y$  zu bestimmen, muss man nun noch  $p_{\perp}$  auf eine Tangente der Kreisbahn projizieren, die durch den Startpunkt der Gyration läuft. Da dieses Koordinatensystem gegenüber dem Laborsystem im Allgemeinen um den Winkel  $\phi = 2\alpha$  verdreht ist (s. Abbildung 4.27), müssen die Koordinaten mittels einer Drehmatrix transformiert werden. Letztendlich ergibt sich für die Startimpulse:

$$\begin{pmatrix} p_x \\ p_y \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} dx \\ dy \end{pmatrix} \cdot \frac{e \cdot B}{\sqrt{2 - 2 \cos \alpha}} \quad (4.15)$$

Das koinzidente Messen und die schnelle Datenaufnahme stellen besonders hohe Anforderungen an das gesamte System. In dieser Arbeit konnten maximal, bedingt durch die geringe Photonenintensität der Synchrotronlichtquellen, 6-fach Koinzidenten (Ereignisse in denen 6 Ladungen generiert wurden) aufgenommen werden. Daher kann nicht gesagt werden wie groß die maximale Kapazität des Detektorsystems ist. Für Experimente an intensiveren Lichtquellen wie z. B. dem VUV-FEL FLASH, bei dem bedingt durch die extrem hohen Leistungsdichte, sehr viele geladene Fragmente entstehen, müssen sehr viel mehr Teilchen nachgewiesen werden, um ein vollständiges Bild des Fragmentationsprozesses zu erlangen. Aktuelle Messungen am FLASH ergaben, dass jedes Atom in einem großen Edelgascluster mehrfach ionisiert wird [91]. Somit sind tausende geladene Fragmente zu erwarten. Laut RoentDek können die DLA Signale eine maximale Signalarate von 10 MHz verarbeiten [114]. Unter der idealisierten Annahme, dass alle  $0,1 \mu\text{s}$  ein Ion den Detektor trifft, können in dem maximalen Zeitfenster von  $120 \mu\text{s}$  (durch den Acqiris-Transientenrekorder festgelegt) demnach 1200 Ionen pro Ereignis nachgewiesen werden. Die Totzeit des MCPs (20 ns) und die Breite der Signale (6 ns) ließen diese hohe Rate durchaus zu. Demnach müsste die Feldgeometrie des Reaktionsmikro-

---

skops so konzipiert werden, dass die Ionen mit einem Abstand von 100 ns auf das MCP treffen. Gleichzeitig ist ein sehr gutes Vakuum essentiell, damit nur Atome ionisiert und nachgewiesen werden, die von Interesse sind. Unter diesen idealen Bedingungen kann das Reaktionsmikroskop auch für die Untersuchung des Fragmentationsverhalten kleiner Cluster - induziert durch intensive Röntgenstrahlung - eingesetzt werden.



## Kapitel 5

# Ionisierung von Edelgasclustern mit XUV-Pulsen im linearen Regime der Wechselwirkung

## Von der Spaltung zur Coulomb-Explosion

In diesem Kapitel werden Ergebnisse der impuls aufgelösten Spektroskopie des Fragmentationsverhalten von Edelgasclustern vorgestellt und diskutiert sowie mit Simulationen von Last [79] diskutiert. Im Vordergrund steht dabei der Zusammenhang zwischen dem Fissilitäts-Parameter  $X$  und dem Fragmentationsprozess. Die Experimente wurden an einer Synchrotronlichtquelle durchgeführt.

In dieser Arbeit wurde erstmals ein Reaktionsmikroskop (s. Kapitel 4) für die Aufklärung der Fragmentationsgeometrie von atomaren Clustern eingesetzt. Diese Technik ermöglicht es den Relaxationsprozess von kleinen, geladenen Teilchen zu bestimmen. Die Ergebnisse, die im Folgenden diskutiert werden, sind in [118] veröffentlicht.

### 5.1 Experimenteller Aufbau zur impuls aufgelösten Untersuchung der Fragmentation von Edelgasclustern

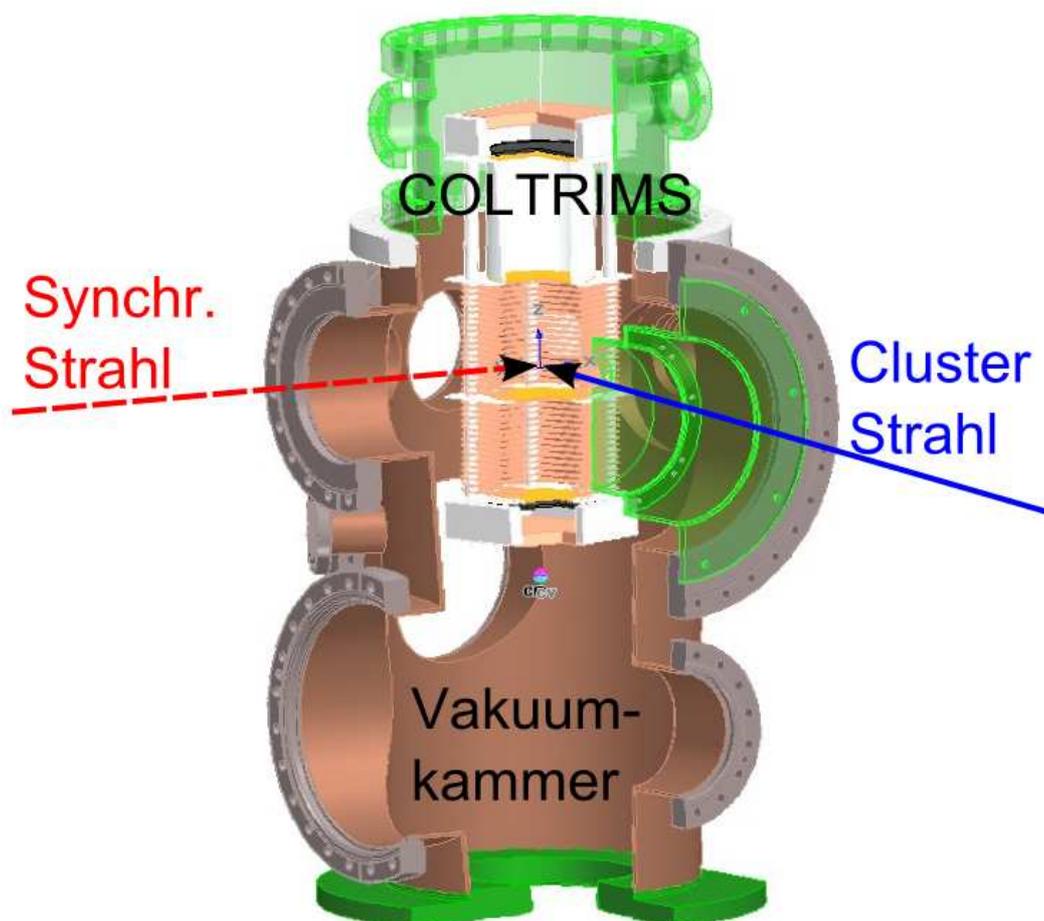
Das Experiment, das in diesem Kapitel diskutiert wird, wurde an der Synchrotronlichtquelle DORIS III / HASLYAB (s. Kapitel 2.3) durchgeführt. Eigenschaften eines Synchrotrons wie Durchstimbarkeit und die relativ geringe Photonen-Intensität sind für das Experiment wesentlich. Die wichtigsten Parameter der DORIS III-Synchrotronlichtquelle sind im Folgenden aufgelistet:

- Photonenenergie: 15 - 2000 eV

- Repititionsrate: 5.2 MHz  $\equiv$  192 ns Pulsabstand
- Pulsintensität:  $\sim 10^9$  W/cm<sup>2</sup>
- Fokus: 100  $\mu$ m vertikal, horizontal 200  $\mu$ m

Die Werte wurden aus [37] entnommen.

In Abbildung 5.1 ist die Vakuumkammer, in der das Experiment durchgeführt wird, schematischer dargestellt. In die Vakuumkammer hinein ragt von oben das Reaktionsmikroskop (COLTRIMS, hier nur schematisch dargestellt). Die gesamte Kammer ist so orientiert, dass die Wechselwirkungszone von Synchrotronlicht (rot) und Cluster Strahl (blau) im Zentrum des Detektor liegt. Die Skimmerkammer, in der sich die Clusterquelle befindet, und die Verlängerungskammer sind hier nicht dargestellt (s. Abbildung 2.3).



**Abbildung 5.1:** Schematische Darstellung der Vakuumkammer mit dem Reaktionsmikroskop (COLTRIMS). Die Kammer ist so orientiert, dass die Wechselwirkungszone von Synchrotronlicht (rot) und Cluster Strahl (blau) im Zentrum des Detektors liegt.

Wie in Kapitel 3.2 ausführlich beschrieben, lässt sich der Fragmentationskanal eines

Clusters durch den Fissilitäts-Parameter beschreiben. Die Fissilität  $X$  wird im Wesentlichen durch die Ladung auf dem Cluster und dessen Oberflächenspannung bestimmt:

$$X = \frac{E(\text{Coulomb})}{2E(\text{Kohesiv})}. \quad (5.1)$$

Im Gegensatz zu der Wechselwirkung von intensiver VUV-FEL-Strahlung absorbiert ein Atom im Synchrotronstrahlungsfeld, im Mittel weniger als ein Photon. Unter Berücksichtigung von anschließenden Auger-Zerfällen können Atome bzw. Cluster gezielt ionisiert und somit gezielt geladen werden ( $E(\text{Coulomb})$ ). Die Oberflächenspannung ( $E(\text{Kohesiv})$ ) der Cluster kann durch Variation der Clustergröße und der Clusterart (z. B. Xe oder Ne) geändert werden. Die Größe der Fissilität  $X$  ist entscheidend für den Fragmentationskanal (s. Kapitel 3.2):

- $X = 1$  definiert die Rayleigh-Instabilitäts-Barriere
- $X < 1$  der Cluster fragmentiert in einer asymmetrischen Spaltung in wenige langsame und große Produkte (Spaltungs-Regime)
- $X > 1$  der Cluster explodiert isotrop in viele kleine und schnelle Fragmente (Explosions-Regime).

Die Cluster werden durch die Energie der Photonen derart präpariert, dass die Art ihrer Fragmentation einen der beiden Regime ( $X < 1$  oder  $1 < X$ ) zuordbar ist. Dadurch, das sowohl feste Xenon Cluster als auch weiche Neon Cluster, deren Konstituenten eine erhöhte Mobilität besitzen, untersucht werden, lassen sich die Ergebnisse nicht nur in Abhängigkeit von  $X$ , sondern auch in Abhängigkeit des Aggregatzustandes sehr gut mit dem Modell für flüssige Tropfen vergleichen (s. Kapitel 3.2).

In Tabelle 5.1 sind die untersuchten Kombinationen aus Ladungszustand und Cluster-

| Element | Phase | $Z$ | $\langle N \rangle = 55$ | $\langle N \rangle = 309$ | $\langle N \rangle = 923$ |
|---------|-------|-----|--------------------------|---------------------------|---------------------------|
| Ne      | weich | 2   | <i>3</i>                 | <i>0,5</i>                | 0,18                      |
| Xe      | fest  | 2   | <i>0,3</i>               | 0,05                      | 0,02                      |
| Xe      | fest  | 3   | 0,7                      | 0,1                       | 0,04                      |
| Xe      | fest  | 4   | 1,2                      | 0,2                       | 0,07                      |
| Xe      | fest  | 5   | 1,9                      | 0,3                       | 0,1                       |
| Xe      | fest  | 6   | <i>2,8</i>               | 0,5                       | 0,2                       |
| Xe      | fest  | 7   | <i>3,7</i>               | 0,7                       | 0,2                       |

**Tabelle 5.1:** Aufgelistet sind die in dieser Arbeit untersuchten Kombinationen aus Ladungszustand  $Z$  und mittlerer Clustergröße  $\langle N \rangle$  und der daraus resultierende Fissilitäts-Parameter  $X$  für Neon und Xenon. Die kursiv dargestellten Fälle werden im Folgenden im Detail diskutiert.

größe sowie die resultierenden Fissilitäten aufgelistet. Neben dem verwendeten Element ist noch die Phase angegeben, in der sich der Cluster befindet (weich, fest). Kursiv sind

die Fissilitäten gedruckt deren Fragmentation in dieser Arbeit im Detail diskutiert werden sollen. Diese Fissilitäten decken die für Neon und Xenon interessanten Regime um die Instabilitäts-Barriere ab.

Bedingt durch die Herstellung sind die Größen  $\langle N \rangle$  der Cluster normal verteilt. Die Selektion von Ereignissen eines bestimmten Ladungszustandes  $Z$  und damit letztendlich der Fissilität gestaltet sich als schwieriger. In Tabelle 3.1 sind die relativen Häufigkeiten von atomaren Ladungszuständen für verschiedene Anregungsenergien am Beispiel von atomarem Xenon zusammengefasst. Die Häufigkeiten wurden im Rahmen dieser Arbeit aus Flugzeitspektren gewonnen (s. Abbildung 3.4). Für den Nachweis mehrerer Ionen pro Wechselwirkung ist die Nachweiseffizienz des MCP-Detektors zu berücksichtigen. Die Nachweiseffizienz nimmt nahezu exponentiell mit der kinetischen Energie ab (s. Abbildung 4.13). Für die Spaltung von  $Xe_{55}$  ( $X = 0,3$ ) wurden die Cluster mit  $h\nu = 80$  eV angeregt. Dies führt nach unseren Referenzmessungen (s. Tabelle 3.1) zu 71 % zur Erzeugung von zwei bzw. zu 29 % zur Erzeugung von drei Ladungen auf den Clustern. Unter der Annahme einer 30 prozentigen Nachweiswahrscheinlichkeit sind bis zu 20 % der gefilterten Daten Ereignisse mit einem Ladungszustand von  $Z = 3$  und somit 80 % mit einem Ladungszustand von  $Z = 2$ .

Die Spaltung von Ne-Clustern wird durch die Anregung mit  $h\nu = 80$  eV induziert. Hier liegt die Anregung jedoch deutlich über der Doppelionisation und somit sind zum großen Teil zwei Ladungen zu erwarten [80].

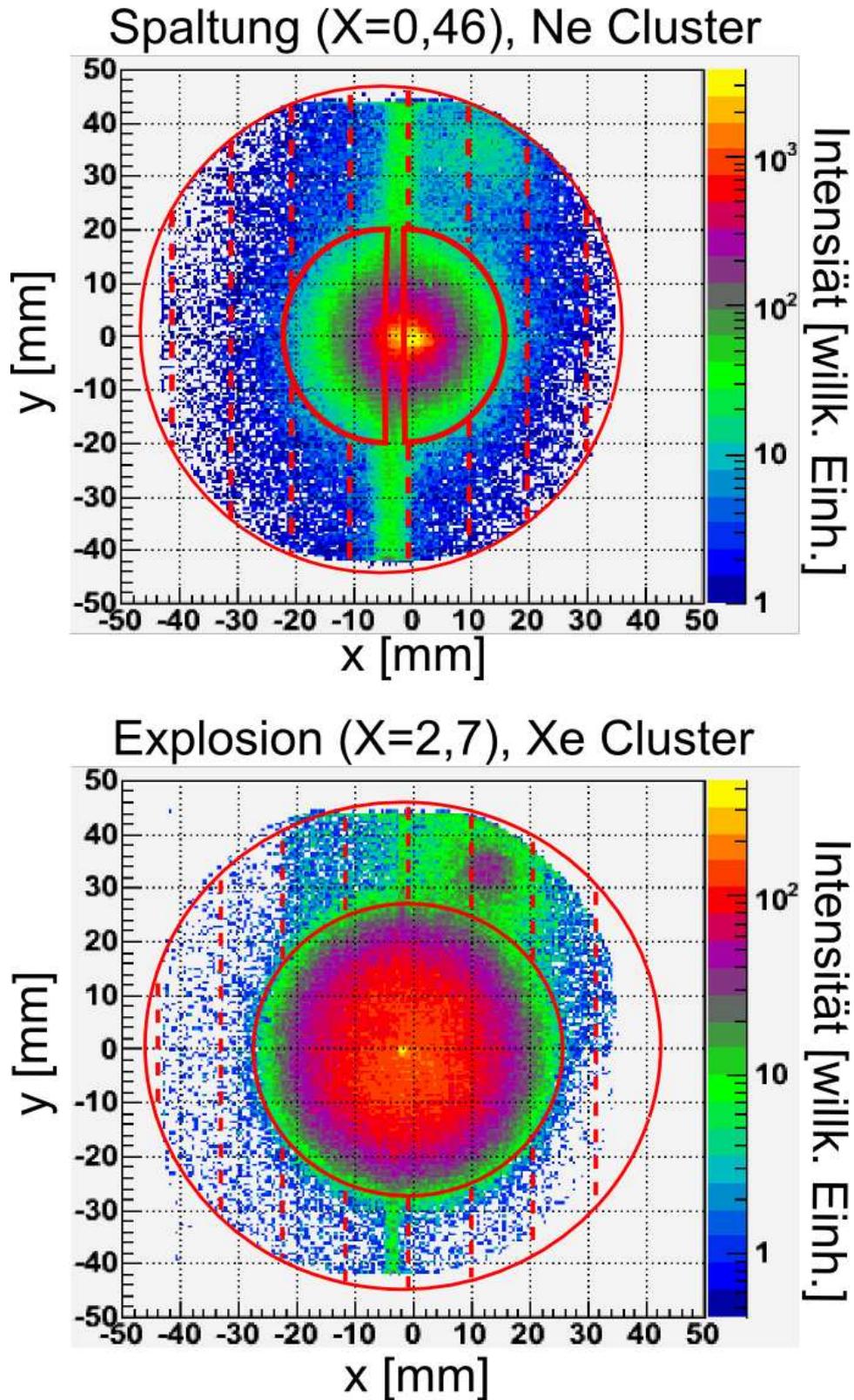
Für die Explosion von Neon Clustern wird mit  $h\nu = 890$  eV über das 1s Niveau angeregt. Auch hier werden zum großen Teil 2 Ladungen generiert [80].

Um viele Ladungen auf den Xe-Clustern zu deponieren wird mit  $h\nu = 1160$  eV (3s Niveau) angeregt. Auf die Weise werden zu 28 % 6 Ladungen auf dem Cluster erzeugt. Unter der Annahme der gleichen Nachweiswahrscheinlichkeit wie oben und einer Wahrscheinlichkeit von 11 % für  $Z = 7$  werden 25 % der gefilterten Daten Ereignisse sein, bei denen 7 Ladungen erzeugt wurden und somit 80 % mit einem Ladungszustand von  $Z = 6$ .

Um ausschließlich Daten aufzunehmen bei denen die zu erwartende Anzahl von Ladungen vollständig nachgewiesen werden, wird eine analoge Multi-Koinzidenz-Trigger Elektronik installiert (s. Kapitel 4.4). Der Trigger gibt zum Beispiel nur ein Startsignal für die Datenaufnahme, wenn mindestens vier Fragmente nachgewiesen werden. Ereignisse bei denen weniger als vier Fragmente nachgewiesen werden, werden demnach nicht verwertet. Somit kann die Datenmenge extrem zu Gunsten von physikalisch relevanten Ereignissen reduziert werden.

Nachdem die MCP- und Anoden-Signale sämtliche Filter und Kontrollsequenzen (s. Kapitel 4.4) durchlaufen haben, werden die Daten durch weitere Orts-, Zeit- und Koinzidenz-Bedingungen weiter eingeschränkt. Diese Bedingungen sollen im Folgenden am Beispiel der hier diskutierten Daten vorgestellt werden.

In Abbildung 5.2 sind Bilder der Ionen-Detektoreinheit dargestellt. Das obere Bild zeigt fragmentierende Ne-Cluster ( $X = 0,46$ ) und das untere fragmentierende Xe-Cluster ( $X = 2,7$ ). Die beiden Bilder präsentieren somit einen Spaltungs- und einen Explosionsprozess. Die  $xy$ -Achsen sind so normiert, dass sie mit den Detektordimensionen direkt übereinstimmen. Die Wechselwirkungszone liegt über dem Punkt  $P(x,y) = (0,0)$ . Die



**Abbildung 5.2:** Ionen-Detektorbilder für den Fall der Spaltung (oben) von Ne-Clustern,  $X=0,46$ , und für den Fall der Explosion (unten) von Xe-Clustern  $X=2,7$ . Die Detektorbilder zeigen die Projektion der dreidimensionalen Impulsvektoren auf die Detektorebene. Im oberen Bild markiert der vertikale grüne Strich den Durchgang des Synchrotronstrahls. Beide Bilder zeigen am rechten oberen Rand einen schwachen Fleck, der durch cross talk mit dem gegenüber liegenden Elektronendetektor erzeugt wird. Der gesetzte Ortsfilter ist durch rote Linien und Kreise dargestellt. Die Intensität ist durch eine willkürlich gelegte logarithmische Farbskala dargestellt.

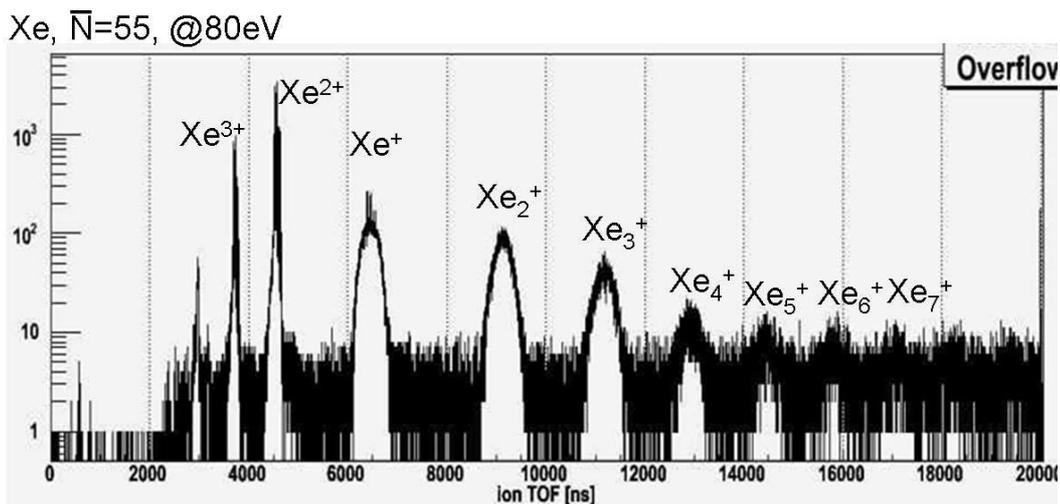
Intensitäten sind durch logarithmische Farbskalen dargestellt.

Der Synchrotronstrahl kreuzt bei  $x = -3$  vertikal den Detektor und der Clusterstrahl bei  $y = 0$  horizontal. Da die Ionen nach ihrer Entstehung durch ein elektrostatisches Feld auf den Detektor abgezogen werden (s. Kapitel 4), stellen die beiden Bilder Projektionen der dreidimensionalen Impulsvektoren aller Ionen auf die Detektorebene dar. Bereits diese Rohdaten lassen einen extremen Unterschied im Fragmentationsverhalten der beiden Regime vermuten: die Fragmentationsprodukte der Explosion scheinen sehr viel größere Impulse zu besitzen, als die der Spaltung.

Im oberen Bild zeigt sich sehr deutlich, das neben den Clustern auch Restgasatome oder nicht kondensiertes Clustermaterial durch den Synchrotronstrahl ionisiert und auf den Detektor abgebildet werden (grüner vertikaler Strich). Im unteren Bild ist dieser Strich aufgrund des schwächeren Wechselwirkungsquerschnitts des Restgases bei dieser Wellenlänge nicht zu sehen. Außerdem werden hier durch die sechsfach Koinzidenz-Schaltung unkorrelierte Ereignisse stärker unterdrückt. Am oberen rechten Bildrand ist ein schwacher Fleck erkennbar. Flecke dieser Art entstehen, wenn schnelle, geladene Teilchen auf den gegenüberliegenden Elektronen-Detektor treffen und positiv geladenen Fragmente freischlagen. Diese positiv geladenen Fragmente werden wiederum auf den Ionen-Detektor beschleunigt und treffen dort unkorreliert zu den anderen Ionen auf. Dieser Effekt, der zwischen den beiden Detektoreinheiten auftritt, wird als cross talk bezeichnet.

Um in der weiteren Datenanalyse nur Ereignisse zu verarbeiten, die aus einer relevanten Fragmentationsprozess resultieren, werden auf die Detektorbilder in der Auswertung Ortsfilter gelegt. Diese Ortsfilter lassen für die weitere Analyse nur Ereignisse zu, die innerhalb der gewählten Grenzen liegen. In Abbildung 5.2 sind diese Ortsfilter durch rote Striche und Kreise symbolisiert. Wenn die Intensität des Restgases, das durch die Synchrotronstrahlung ionisiert wird und ebenfalls auf den Detektor abgebildet wird (grüner Strich), im Vergleich zum Clustersignal groß ist, wird der Ortsfilter um diesen Strich gelegt (s. Abbildung 5.2, oben).

Neben dem Ortsfilter werden Filter auf das Flugzeitspektrum angewendet, die nur Ereignisse zulassen, die zu bestimmten Zeiten detektiert werden. In Abbildung 5.3 ist ein Flugzeitspektrum von  $\text{Xe}_N$   $\langle N \rangle = 55$  dargestellt (logarithmische Skala), in dem alle Ereignisse zugelassen wurden. Die Anregungsenergie betrug  $h\nu = 80$  eV. Das Spektrum zeigt die Verteilung aller positiv geladenen Fragmente, die während vieler Wechselwirkungsprozesse entstanden sind. Die mehrfach geladenen Xe-Atome ( $\text{TOF} < 6000$  ns) sind durch Ionisierung von atomaren Xe-Restgas entstanden. Die geringe Breite dieser Linien unterscheidet sich signifikant von den breiten Linien der Clusterfragmente ( $\text{TOF} > 6000$  ns). Die Breite der Linien gibt direkte Auskunft über den Impuls, den die Ionen bei der Fragmentation erfahren. Die Flugzeitfilter sind auf die Linien der verschiedenen Fragmente gesetzt. Ereignisse, die außerhalb dieser Bereiche liegen, werden in der weiteren Datenanalyse nicht berücksichtigt.



**Abbildung 5.3:** Logarithmische Darstellung eines Flugzeitspektrums von Xe<sub>55</sub>-Cluster nach Anregung mit  $h\nu = 80$  eV. Das Spektrum zeigt eine große Verteilung der bei dieser Wechselwirkung entstandenen positiv geladenen Fragmente. Die mehrfach geladenen Xe-Atome (TOF < 6000 ns) kommen aus atomarem Xe-Restgas. Die breiten Linien (TOF > 6000 ns) sind Cluster Fragmente. Die Breite der Linien spiegelt zum einen den endlichen Impuls der Fragmente senkrecht zur Detektorebene wieder, zum anderen die räumliche Verteilung der Emission.

## 5.2 Ergebnisse und Diskussion: Impulsaufgelöste Untersuchung des Fragmentationsprozesses von Edelgasclustern

In diesem Kapitel werden die Daten diskutiert, die mit dem, im Rahmen dieser Arbeit aufgebauten, Reaktionsmikroskops aufgenommen wurden. Dabei soll besonders auf den von Last [79] und anderen vorhergesagten Zusammenhang zwischen Fissilität und Fragmentationsgeometrie eingegangen werden.

Um Aussagen über die Fragmentationsdynamik und die Fragmentationsgeometrie von Edelgasclustern treffen zu können, werden die Zerfallskanäle, die Winkel zwischen den Impulsvektoren der Fragmente, die kinetischen Energien aller Fragmente sowie dem daraus resultierenden Abstand der Fragmente zum Zeitpunkt ihrer Trennung bestimmt. Wie bereits in Kapitel 4 beschrieben werden die Fragmente durch ein elektrisches Abzugsfeld auf die Detektoren beschleunigt. Somit können mit dieser Messmethode nur geladene Fragmente direkt nachgewiesen werden. Informationen über elektrisch neutrale Fragmente können daher nur indirekt über Impuls- und Energieerhaltung gewonnen werden. Wenn im Folgenden von Fragmenten die Rede ist, sind im Allgemeinen alle nachgewiesenen Ionen gemeint.

Die Diskussion beschränkt sich auf vier repräsentative Fälle der Spaltung ( $X_{Ne} = 0, 5$  und  $X_{Xe} = 0, 3$ ) und der Explosion ( $X_{Ne} = 3$  und  $X_{Xe} = 2, 8$ ) von Ne- und Xe-Clustern (s. Tabelle 5.1 und 5.2).

### 5.2.1 Fragmentationskanäle von Ne- und Xe-Clustern für die Fälle der Spaltung und der Explosion

Nachdem durch die Koinzidenz-Elektronik, dem Ortsfilter und dem Flugzeitfilter ausschließlich Fragmente für die weitere Analyse zugelassen werden, deren Ursprung in der Cluster Dissoziation liegt, wird die Art (Monomer, Dimer, Trimer, etc.) aller Fragmente für jedes Ereignis bestimmt. Für diese Bestimmung werden die Einträge in verschiedene Fenster des Flugzeitspektrums gezählt und die Reihenfolge ihrer Detektion bestimmt. Somit lassen sich für alle Prozesse die Fragmentationskanäle bestimmen. Die Ergebnisse für die vier hier diskutierten Fälle sind in Abbildung 5.4 dargestellt.

In den Grafen sind die nachgewiesenen Fragmente für die Fragmentationskanäle aufgetragen, die mindestens 10% zu dem Gesamtsignal beitragen. Die verschiedenen Fragmente sind durch M: Monomer, D: Dimer und T: Trimer abgekürzt. Wenn z. B. das erste nachgewiesene Fragment ein Dimer ist und das zweite ein Trimer erfolgt an der entsprechenden Stelle ein Eintrag. Die Farbskala gibt die relative Häufigkeit wieder. Für den Explosions-Fall von Xe werden insgesamt sechs Ionen in Koinzidenz pro Ereignis nachgewiesen. Da es unmöglich ist sechs Fragmente in einem zwei dimensional Grafen darzustellen, ist hier nur das fünfte Fragment gegen das sechste aufgetragen. Die Datenanalyse ergab, dass die ersten vier, hier nicht dargestellten Fragmente, zu 75% Monomere sind.

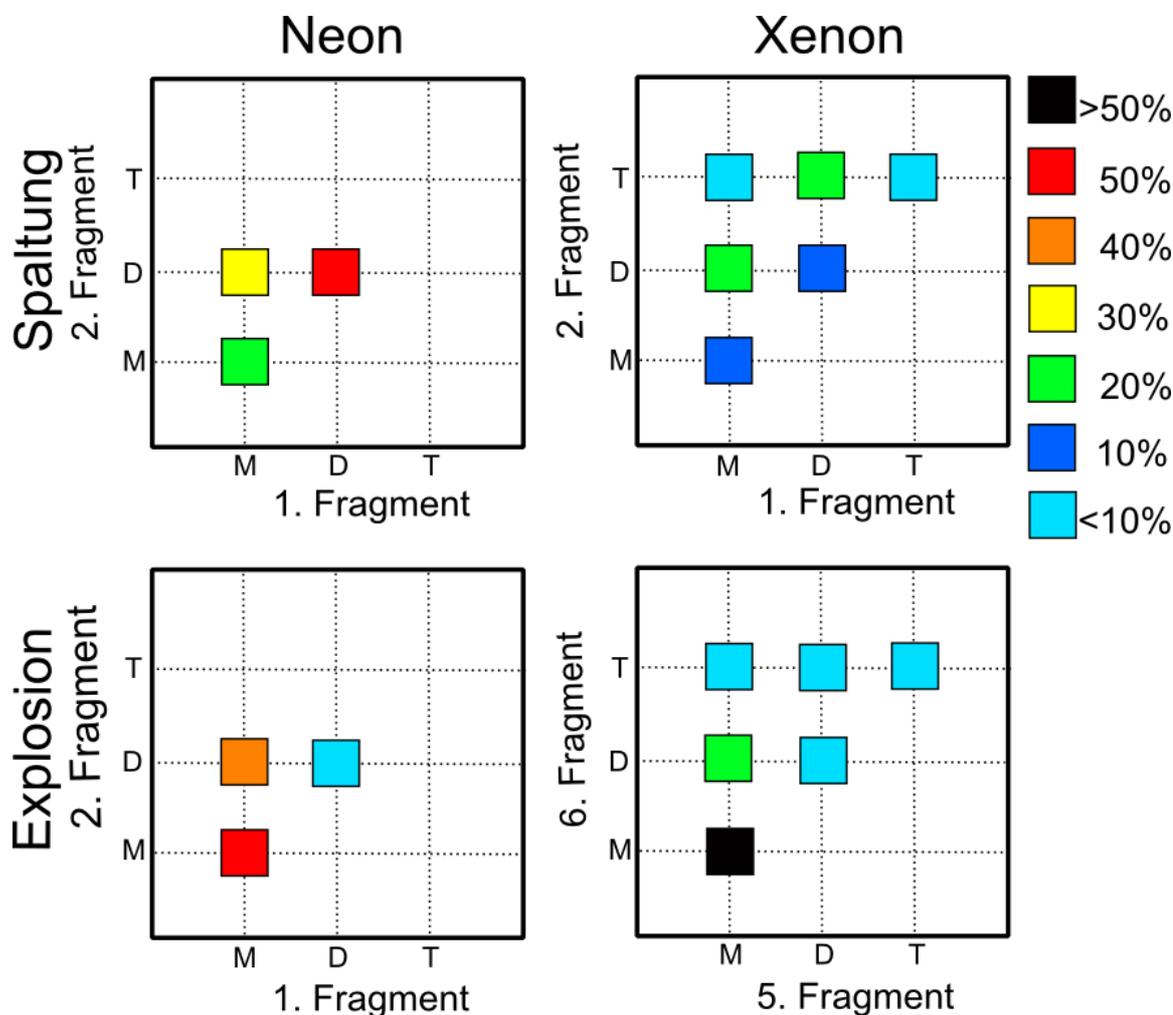
Die Zerfallskanäle liefern einen ersten Einblick in die Fragmentationsdynamik der Cluster. In Kapitel 3.2 wurde bereits dargestellt, dass nach dem LDM für die Spaltung wenige schwere Fragmente und für die Explosion viele leichte Fragmente zu erwarten sind [79, 74, 75].

#### Betrachtung der Fragmentationskanäle für den Fall der Spaltung

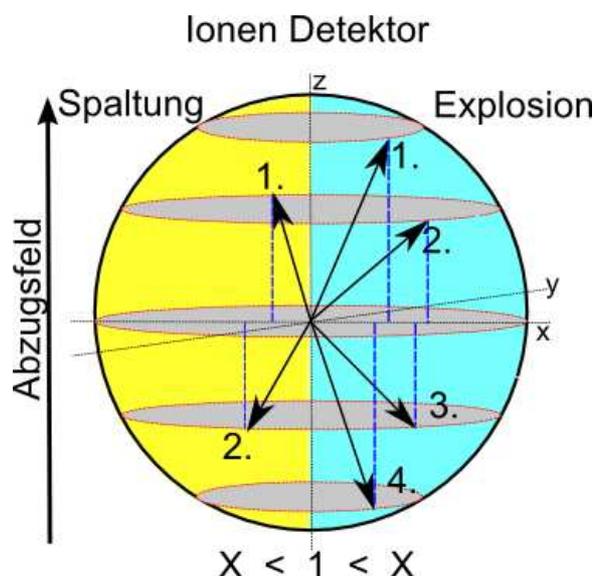
Die Fragmentationskanäle, die für die Spaltung von Ne- und Xe-Cluster bestimmt wurden, sind in der oberen Reihe von Abbildung 5.4 dargestellt. Für die Spaltung der Ne-Cluster sind die häufigsten Kanäle DD, MD und MM. In Übereinstimmung mit vorherigen Messungen treten keine schwereren Fragmentationsprodukte auf [119]. Für Xe dominieren bei dem Spaltprozess (s. Abbildung 5.4, rechts oben) die asymmetrischen Kanäle MD und DT. Die symmetrischen Kanäle MM, DD und TT kommen seltener vor, was mit den Messungen an Ar Clustern von Rühl [44] gut übereinstimmt. Somit kann für die Zerfallskanäle für Ne- und Xe-Cluster der gleiche Trend, dass bei dem Spaltungsprozess bevorzugt große Fragmente entstehen, wie bei den Simulationen von Last [79] beobachtet werden.

#### Betrachtung der Fragmentationskanäle für den Fall der Explosion

Die Fragmentationskanäle der Explosions-Prozesse sind in der unteren Spalte von Abbildung 5.4 dargestellt. Sowohl Ne- als auch Xe-Cluster fragmentieren hauptsächlich in Monomere. Für Ne ist der bevorzugte Kanal MM, gefolgt von MD. Im Fall der Xe-



**Abbildung 5.4:** Fragmentationskanäle von Ne- und Xe-Cluster für den Spaltungs-Prozess ( $X_{Ne} = 0,5$  und  $X_{Xe} = 0,3$ ) (oben) und den Explosions-Prozess ( $X_{Ne} = 3$  und  $X_{Xe} = 2,8$ ) (unten). Auf der x- bzw. y-Achse ist das erste bzw. zweite nachgewiesene Fragment aufgetragen. Für den Explosions-Bereich von Xe ist das fünfte gegen das sechste Fragment aufgetragen. Die ersten vier Fragmente sind zu 75% Monomere. Die verschiedenen Fragmente sind durch M: Monomer, D: Dimer und T: Trimer abgekürzt. Durch die Farbskala wird die relative Häufigkeit wiedergegeben. Für beide Elemente kann festgestellt werden, dass im Fall der Spaltung die Cluster eher in große Fragmente (Dimere, Trimere) und im Fall der Explosion in kleine Fragmente (Monomere) dissoziiert. Bei den Fragmentationsprozessen von Ne werden so gut wie keine Trimere nachgewiesen.



**Abbildung 5.5:** Schematische Darstellung eines fragmentierenden Clusters. Der Ursprung  $(x,y,z)=(0,0,0)$  der Vektorpfeile (Anfangsimpuls der Fragmente) stellt den Wechselwirkungspunkt dar. Ein externes Feld (Extraction) beschleunigt die Ladungen auf den Ionen-Detektor. In der linken Hälfte der Sphäre ist eine angenommene Emissionscharakteristik für zwei Ionen ( $X < 1$ , Spaltung) dargestellt. In der rechten Hälfte wird eine isotrope Winkel-Verteilung für vier Ionen ( $1 < X$ , Explosion) gezeigt. Die Nummerierung der Vektoren gibt die Reihenfolge an, in der die Ionen auf dem Detektor nachgewiesen werden.

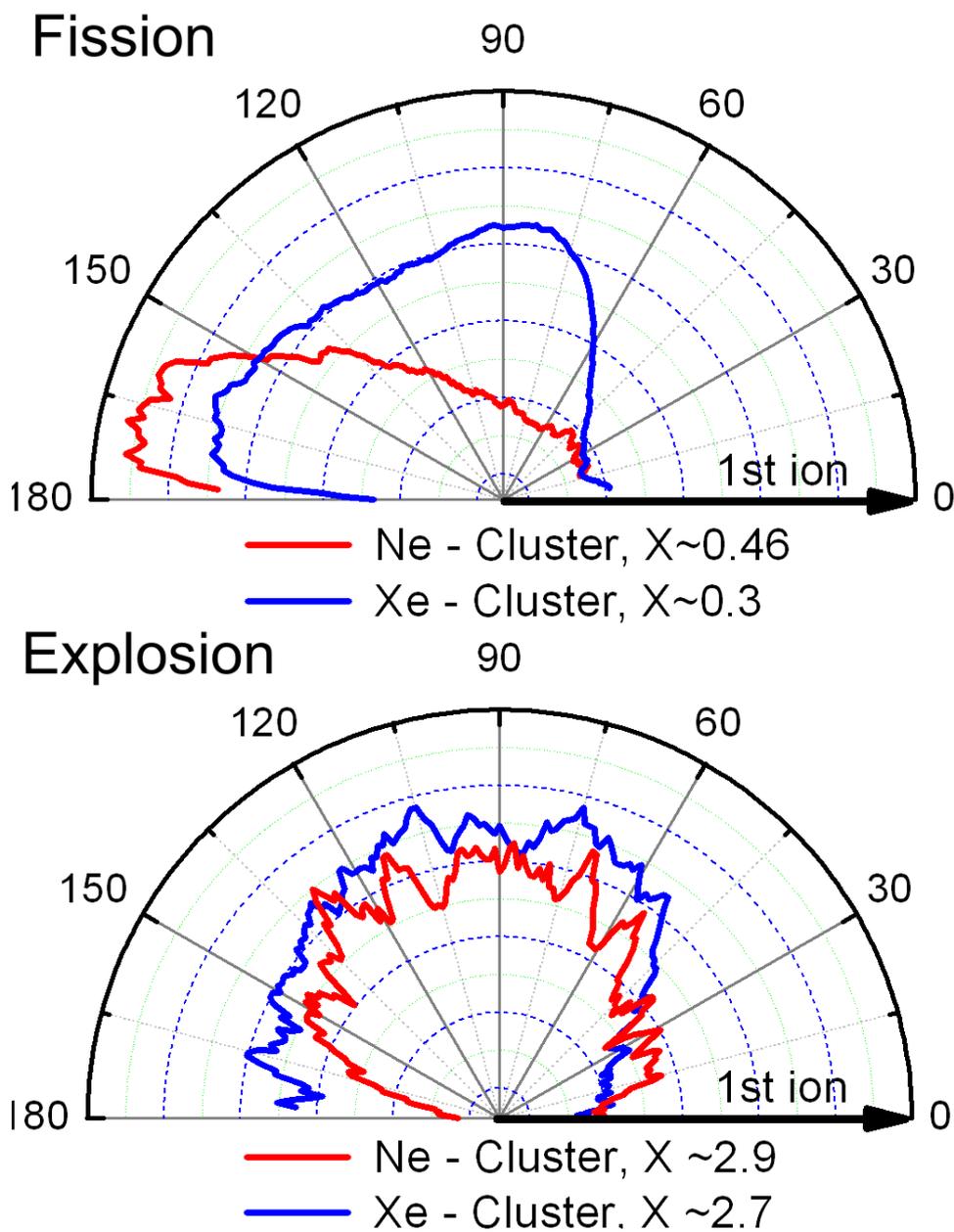
Explosion sind die ersten fünf Fragmente Monomere. Das sechste ist hauptsächlich ein Monomer ( $> 50\%$ ) und zu  $\sim 20\%$  ein Dimer.

Für die Fragmentationskanäle der Spaltungs- und Explosions-Prozesse kann zusammenfassend festgestellt werden, dass sich beide Elemente für den Fall der Explosion gleich verhalten und in guter Übereinstimmung mit den Simulationen von Jortner stehen (s. Kapitel 3.2). Der häufigste Zerfallskanal ist MM. Für die Spaltung haben Ne und Xe-Cluster gemein, dass sie hauptsächlich in größere ( $>$  Monomer) Fragmente zerfallen mit dem Unterschied, dass Ne-Cluster eher symmetrisch (DD) und Xe-Cluster eher asymmetrisch (MD, DT) aufspalten.

Da die Cluster für beide Spaltprozesse eine ähnliche Fissilität besitzen, könnte der Unterschied der Zerfallskanäle in verschiedenen inneren Relaxationsprozessen der Cluster begründet sein, da hier der hauptsächlichste Unterschied der beiden Cluster liegt. Um diese Annahme zu überprüfen, sind weitere Analyseschritte notwendig.

### 5.2.2 Winkelbeziehungen der Impulsvektoren aller Spalt- und Explosions-Fragmente

Der offensichtlichste Unterschied zwischen dem Spaltungs- und dem Explosions-Prozess ist deren Fragmentationsgeometrie (s. Abbildung 3.10). Während für die Spaltung ei-



**Abbildung 5.6:** Winkelverteilung zwischen allen Fragmentationsprodukten von Ne- und Xe-Clustern. Die Richtung des ersten nachgewiesenen Ions wird als Referenzrichtung auf null Grad gelegt. Die Winkel zu allen weiteren Ionen werden bezüglich dieses Ions bestimmt. Im oberen Teil ist die Spaltung ( $X < 1$ ) und im unteren Teil die Explosion ( $1 < X$ ) dargestellt.

ne anisotrope Teilung des Clusters in entgegengesetzte Richtungen [79] erwartet wird, verteilen sich die kleineren Fragmentationsprodukte der Explosion isotrop in alle Raumrichtungen [79]. Da in diesem Experiment alle kinematischen Größen zugänglich sind, kann die Fragmentationsgeometrie rekonstruiert werden. Die dreidimensionalen Impulsvektoren aller Fragmente werden aus den Orts- und Zeitsignalen bestimmt (s. Kapitel 4.5). Das erste nachgewiesene Ion definiert eine Referenzachse, bezüglich der der Raumwinkel zu den nachfolgenden Ionen über ihr vektorielles Skalarprodukt bestimmt wird (s. Abbildung 5.5). Die Winkelverteilung wird durch die Funktion des überstrichenen Raumwinkelelementes  $r^2 \sin \Gamma$  ( $0^\circ < \Gamma < 180^\circ$ ,  $r = 1$ ) normiert. Die sich daraus ergebenden Winkel sind für die Spaltungs- und Explosions-Prozesse von Ne- und Xe-Clustern in Abbildung 5.6 dargestellt. Da das Skalarprodukt zweier Vektoren nur einen Winkel zwischen  $0^\circ$  und  $180^\circ$  bestimmt, kann hier nur ein Halbraum dargestellt werden. Die Diskontinuitäten in den Winkelverteilungen um  $0^\circ$  und  $180^\circ$  resultieren aus der Normierung. Die Verteilung zeigt gute Übereinstimmung mit den Simulationen, aber auch interessante Abweichungen.

### **Betrachtung der Winkelbeziehungen der Impulsvektoren für den Fall der Spaltung**

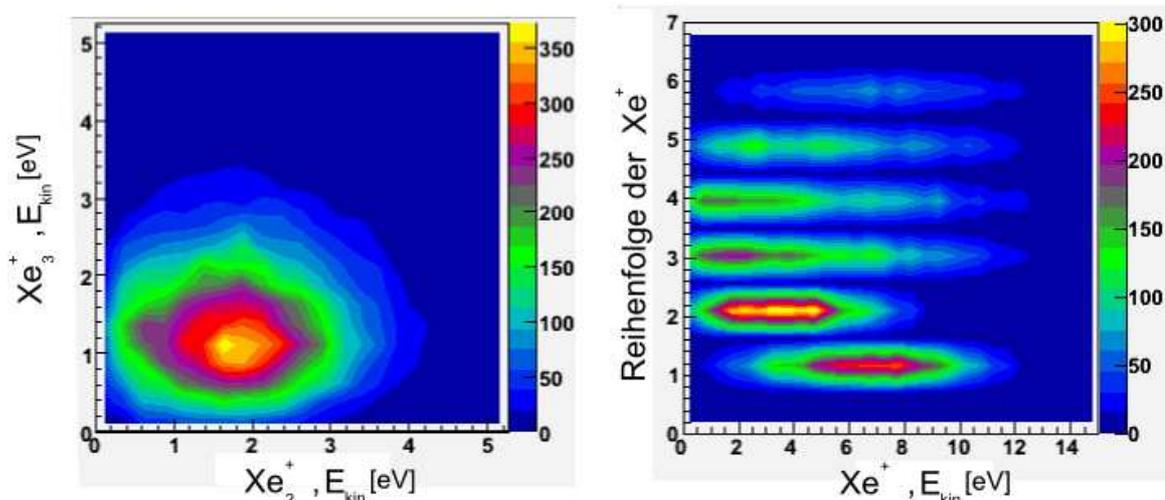
Für den Fall der Spaltung des Ne-Clusters ist eine sehr ausgeprägte Anisotropie in Richtung  $180^\circ$  zu beobachten, vergleichbar mit der eines makroskopischen Tropfens [76]. Dahingegen ist die räumliche Verteilung der Fragmente des Xe-Clusters viel isotroper und weicht somit stark von der Verteilung eines flüssigen Tropfens ab. Die Winkelverteilung für Xe-Fragmente steht somit im Widerspruch zu den Simulationen von Last, während die Winkelverteilung für Ne-Fragmente sehr gut mit den Simulationen übereinstimmen.

### **Betrachtung der Winkelbeziehungen der Impulsvektoren für den Fall der Explosion**

Für den Fall der Explosion verhalten sich die Ne- und Xe-Cluster ähnlich. Beide Winkelverteilungen sind sehr isotrop und stimmen somit gut mit den Simulationen überein (s. Abbildung 3.10).

#### **5.2.3 Analyse der kinetischen Energien und der Ladungstrennungsabstände aller Ne- und Xe-Fragmente**

Um weitere Aussagen über die Dynamik der Fragmentation anstellen zu können, wird die Energie bestimmt, die die einzelnen Fragmente beim Verlassen des Clusters durch die Coulomb Abstoßung mit anderen Ionen erlangen. Dazu werden die Impulskomponenten  $p_x$ ,  $p_y$  und  $p_z$  für jedes Fragment ermittelt und über:



**Abbildung 5.7:** Kinetische Energie von Xe-Cluster Fragmenten. Exemplarisch sind hier die Energien des DT-Kanals ( $Xe_2^+$  und  $Xe_3^+$ ) von Xe für  $X=0,3$  (links) und des MMMMMM-Kanals von Xe für  $X=2,8$  (rechts) dargestellt. Für den DT-Kanal ist auf der x-Achse die kinetische Energie des Dimers aufgetragen und auf der y-Achse die des Trimers. Für den MMMMMM-Kanal (6xM), in dem sechs Monomere ( $Xe^+$ ) nachgewiesen werden, ist auf der x-Achse die kinetische Energie in eV für alle Monomere aufgetragen und auf der y-Achse die Reihenfolge der Monomere. Eine Übersicht über die Energiewerte aller Fragmente wird in Tabelle 5.2 gegeben.

$$E_{kin} = \sqrt{p_x^2 + p_y^2 + p_z^2} \quad (5.2)$$

die gesamt kinetische Energie  $E_{kin}$  des entsprechenden Fragmentes bestimmt. In Abbildung 5.7 sind exemplarisch die kinetischen Energien für zwei Fragmentationskanäle dargestellt. Das linke Bild zeigt die Verteilungen der kinetischen Energien für den Dimer-Trimer Kanal (rel. Häufigkeit 20 %, s. Abbildung 5.4) eines fragmentierenden Xe-Clusters bei  $X=0,3$  (Spaltung). Auf der x-Achse ist die Energie der Dimere ( $Xe_2^+$ ) und auf der y-Achse die Energie der Trimere ( $Xe_3^+$ ) aufgetragen. Es ist zu erkennen, dass das Maximum der kinetischen Energie für die Dimere im Mittel höher liegt ( $\sim 1,8$  eV) als die des Trimers ( $\sim 1,1$  eV). Diese Beobachtung und die Tatsache, dass die Verteilung der Energie relativ breit ist, lässt die Vermutung zu, dass noch weitere Fragmente, die nicht nachgewiesen werden können, also neutrale Fragmente, an dem Prozess beteiligt sind. Die Energie der Fragmente ist statistisch verteilt. Im rechten Diagramm (s. Abbildung 5.7) ist die Energieverteilung aller sechs nachgewiesenen Monomere des MMMMMM Kanals (6xM) (rel. Häufigkeit  $> 50$  %, s. Abbildung 5.4) von Xe bei  $X=2,8$  (Explosion) dargestellt. Auf der x-Achse ist die kinetische Energie der Fragmente ( $Xe^+$ ) in eV aufgetragen und auf der y-Achse die Reihenfolge der Detektion aller Monomere von 1 bis 6. Die sichelförmige Entwicklung der Energieverteilung vom ersten bis zum sechsten Monomer resultiert aus der Art der Detektion. Wenn man annimmt, dass der Cluster isotrop explodiert, werden die Ionen mit einer großen Im-

puls-komponenten (Energie) in Detektorrichtung zuerst nachgewiesen. Es folgen Ionen mit kleinerem Impuls. Ionen mit einer großen Impulskomponente entgegengesetzt zu den Ion Detektor, müssen ihre Richtung im elektrischen Feld erst umkehren und treffen somit später auf den Detektor auf (s. Abbildung 5.5). Auch für diesen Fragmentationskanal ist eine breite Verteilung der kinetischen Energie zu beobachten. Die repulsive Coulombenergie wird statistisch auf alle Fragmente verteilt.

In Tabelle 5.2 sind die kinetischen Energien für alle Fragmente der hier diskutierten Kanäle zusammenfassend dargestellt. Zur Bestimmung der maximalen kinetischen Energie wurde die Energieverteilung mit einer Gauss-Funktion gefittet. Im Allgemeinen zeigt sich, dass gleich große Fragmente auch gleich viel Energie besitzen (symmetrische Energieverteilung), während bei ungleichen Fragmenten die Energien der leichteren Fragmente viel größer sind (asymmetrische Energieverteilung). Diese Beobachtung führt zu der Annahme, dass für symmetrische Kanäle die Fragmente den Cluster gleichzeitig verlassen und für asymmetrische nacheinander.

### Betrachtung der kinetischen Energien und der Ladungstrennungsabstände für den Fall der Spaltung

Unter der vereinfachten Annahme, dass die Fragmente ihre kinetische Energie ausschließlich aus einer elektrostatischen Abstoßung (Coulombenergie) mit anderen Ionen erhalten, lässt sich mit Hilfe des Coulomgesetzes der Abstand ( $CSD^1$ , Ladungstrennungsabstand) bestimmen, den die Ionen beim verlassen des Clusters gehabt haben müssen [44]. Die kinetische Energie  $E_{kin}$  wird mit Gleichung 5.2 aus der Summe der mittleren kinetischen Energien  $\sum E_{kin}$  aller nachgewiesenen Ionen bestimmt. Die Änderung der kinetischen Energien, die die Ionen im Cluster durch Stöße mit neutralen Atomen erfahren und die Reduzierung der Masse der Fragmente durch Abdampfen von neutralen Atomen wird in dieser extrem vereinfachten Abschätzung nicht berücksichtigt. Für die Fragmentation in zwei positiv geladene Fragmente ergibt sich daher für den Ladungstrennungsabstand ( $r_{12}$ ):

$$\sum E_{kin} = E_{Coul} = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \cdot \frac{q_1 \cdot q_2}{r_{12}} \quad (5.3)$$

$$\implies r_{12} = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \cdot \frac{q_1 \cdot q_2}{\sum E_{kin}} \quad (5.4)$$

$$\implies r_{12}(\text{\AA}) = 14,4 \frac{1}{\sum E(\text{eV})} \quad (5.5)$$

---

<sup>1</sup>Charge Separation Distance, engl. Abstand der Ladungen bei der Trennung

Die sich hieraus ergebenden Werte sind in Tabelle 5.2 zusammengefasst. Für den Fall der Spaltung von Ne-Clustern ( $X = 0,5$ ,  $Z = 2$ ), für den schon die stärkste Anisotropie der Fragmentationsgeometrie bestimmt wurde, ist die ermittelte kinetische Energie am geringsten. Somit ist der Abstand der beiden Ladungen beim Verlassen des Clusters sehr groß. Für die symmetrischen Kanäle MM und DD ist der Abstand größer als  $10 \text{ \AA}$  und somit um das drei- bis vierfache größer als der interatomare Abstand im Grundzustand des Clusters.

Für den Fall der Spaltung von Xe-Clustern ( $X = 0,3$ ,  $Z = 2$ ) hingegen, ist die kinetische Energie größer und somit der Ladungstrennungsabstand kleiner. Die abgeschätzten Werte liegen je nach Kanal zwischen  $3,27$  und  $4,8 \text{ \AA}$ , was ungefähr dem Gleichgewichtsabstand von zwei Dimeratomen ( $3,8 \text{ \AA}$ ) entspricht.

### Betrachtung der kinetischen Energien und der Ladungstrennungsabstände für den Fall der Explosion

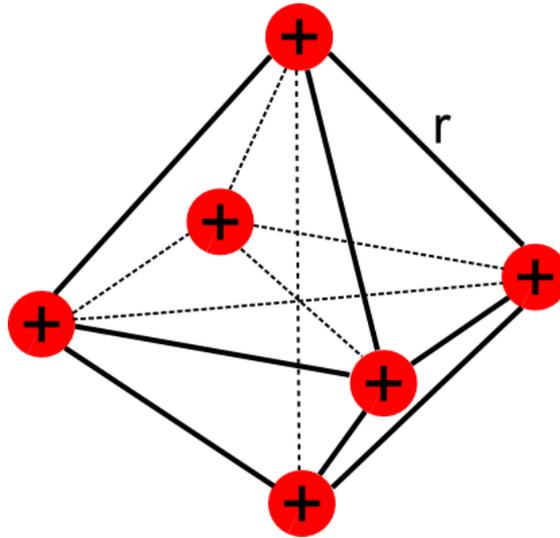
Der Ladungstrennungsabstand, der für den Fall der explodierenden Ne-Cluster ( $(X = 3$ ,  $Z = 2)$ ) bestimmt wird, beträgt je nach Kanal  $2,9$  bzw.  $4,5 \text{ \AA}$ , was ungefähr gleich dem Gleichgewichtsabstand von zwei Ne-Dimeratomen ( $2,7 \text{ \AA}$ ) ist.

Die Bestimmung des Ladungstrennungsabstandes für den Explosionsprozess von Xe-Clustern ist wesentlich komplizierter, da hier sechs Ionen nachgewiesen werden. Die Positionierung der Ionen im Cluster nach dem Ladungstransfer auf benachbarte Atome ist nicht eindeutig. Um den Ladungstrennungsabstand trotzdem abschätzen zu können, wird angenommen, dass sich die sechs Ionen an den Eckpunkten eines gleichseitigen Oktaeders positionieren, bevor sie den Cluster verlassen (s. Abbildung 5.8). Die kinetische Energie ( $E_{kin}$ ) zur Bestimmung des Ladungstrennungsabstandes ergibt sich aus der Summe der Mittelwerte der kinetischen Energien aller sechs nachgewiesenen Monomere ( $\sum E_{kin}$ ) (s. Abbildung 5.7). Für den mittleren Abstand der sechs Ionen  $\bar{r}$  (12 mal  $r$  bzw. 3 mal  $\sqrt{2}r$ ) ergibt sich daher:

$$\sum E_{kin} = E_{Coul} = \frac{q_1}{4\pi\epsilon_0} \sum_i \frac{q_i}{r_i} \quad (5.6)$$

$$= \frac{q_1 \cdot q_2}{4\pi\epsilon_0} \cdot \left( \frac{12}{r} + \frac{3}{\sqrt{2}r} \right) \quad (5.7)$$

$$\Rightarrow \bar{r} = \frac{q_1 \cdot q_2}{4\pi\epsilon_0} \cdot \left( \frac{12\sqrt{2} + 3}{\sqrt{2} \sum E_{kin}} \right) \quad (5.8)$$



**Abbildung 5.8:** Die Positionierung von sechs Ionen, die von einem sechsfach geladenen Atom auf Nachbaratome transferiert werden, ist nicht eindeutig. Für die Bestimmung des Ladungstrennungsabstandes wird angenommen, dass die Ionen sich in einem gleichseitigen Oktaeder anordnen. Die Seitenkanten entsprechen dem Abstand  $r$  und die drei Diagonalen  $\sqrt{2}r$ .

$$\Rightarrow \bar{r}(\text{\AA}) = 203 \cdot 10^{-8} \frac{1}{\sum E_{kin}(eV)} \quad (5.9)$$

Die Tatsache, dass der so ermittelte Wert für den Ladungstrennungsabstand ( $8,5 \text{ \AA}$ ) von der gleichen Größe wie der Clusterradius ist, zeigt, dass dies eine sinnvolle Annahme ist.

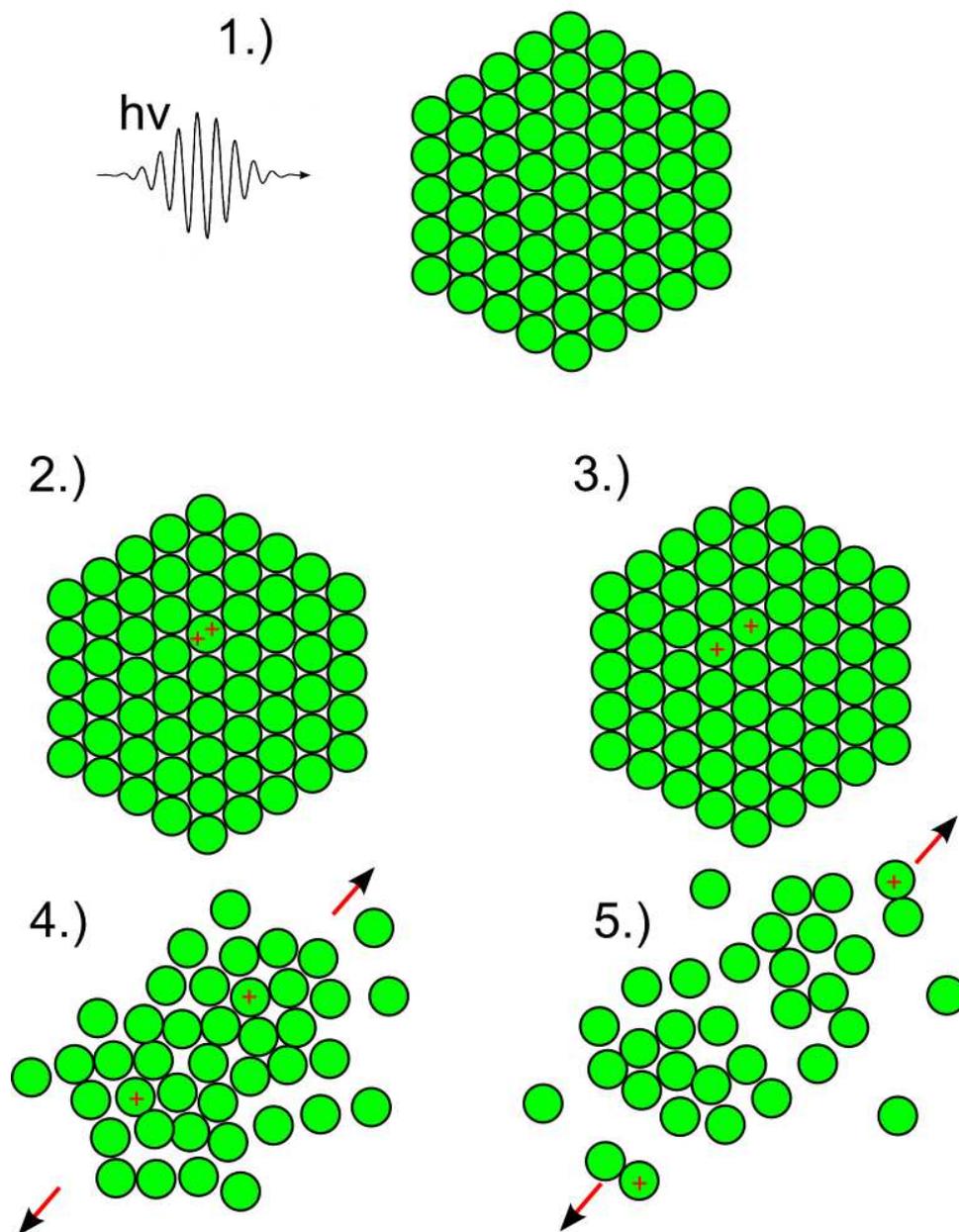
#### 5.2.4 Fragmentationsmodelle der untersuchten Spaltungs- und Explosionsprozesse für Ne- und Xe-Cluster

Im Folgenden werden Modelle für die Fragmentationsprozesse, Spaltung und Explosion, für die untersuchten Cluster und Fissilitäten auf Basis der hier diskutierten Daten präsentiert.

##### Fragmentationsmodelle für den Fall der Spaltung ( $X < 1$ ) von Ne- und Xe-Clustern

In Abbildung 5.9 ist die Spaltung eines Ne-Clusters auf der Basis der hier diskutierten Daten schematisch dargestellt. Nachdem durch Photoionisierung und anschließendem Auger-Zerfall ein Cluster-Atom zweifach geladen ist ( $1+2$ ), wird eine der beiden Ladungen auf ein Nachbaratom transferiert (3). Die nun folgende Relaxation des Clusters hängt vom Transport der Ladungen ab. Wie in Kapitel 3.1 ausführlich diskutiert, gibt es Hinweise dafür, dass Ladungen in einem Cluster sowohl durch hole hopping als auch durch Ionen mit einer hohen Mobilität transportiert werden können. Welcher dieser

## Spaltung eines Ne-Clusters, $X=0,5$



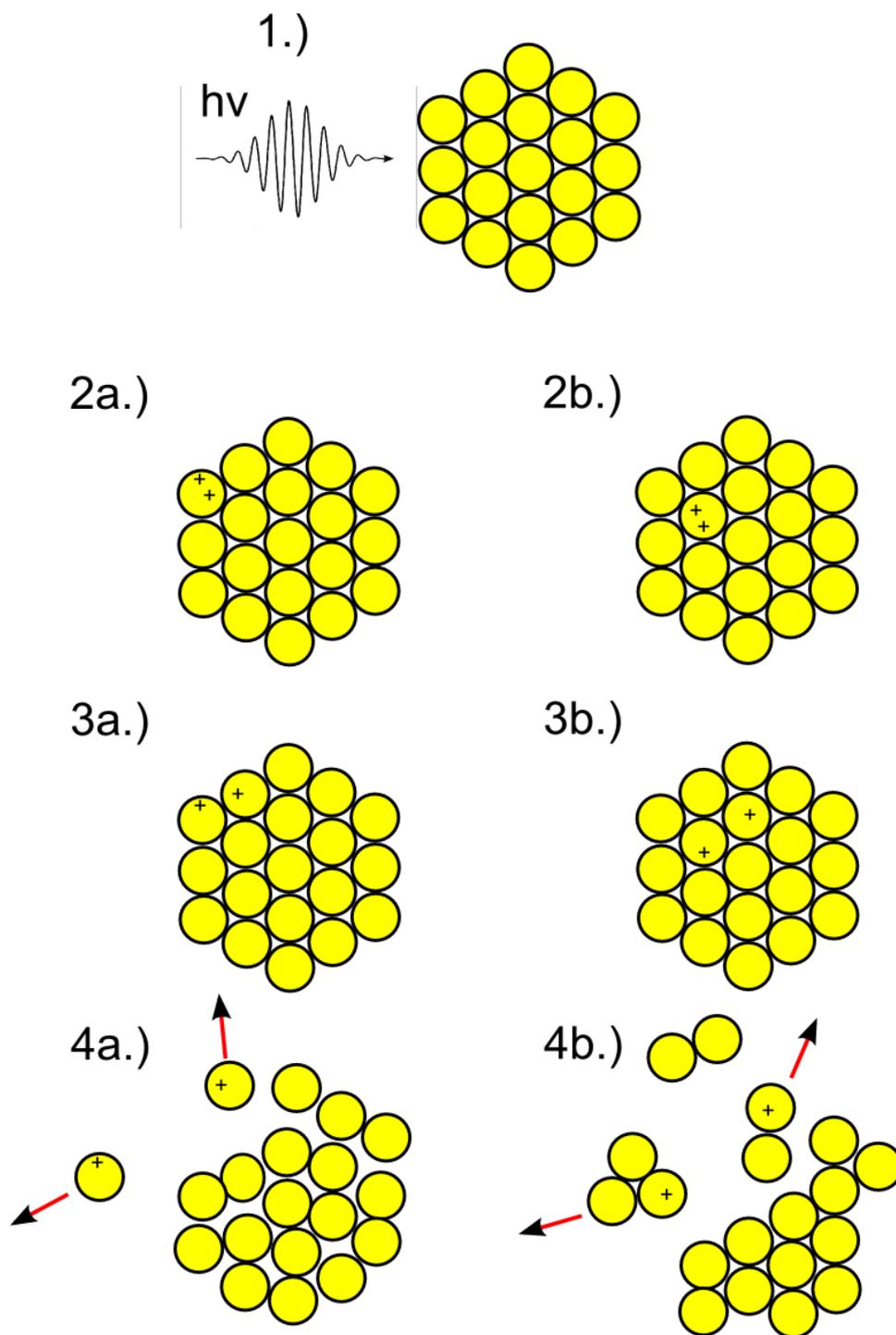
**Abbildung 5.9:** Schematische Darstellung der Spaltung eines flüssigen Ne-Clusters ( $\langle N \rangle = 350$ , 5 Schalen) (1). Nachdem ein Clusteratom durch Photoionisation und Auger-Zerfall zweifach geladen ist (2+3), wird eine Ladung auf ein Nachbaratom transferiert (4). Durch die abstoßende Coulomb-Kraft bewegen sich die Ladungen im Cluster in entgegengesetzte Richtungen. Die starke Verformung und die bei der Lokalisierung der Ladungen frei werdende Bindungsenergie führt zur Fragmentation des Clusters (5).

beiden Prozesse tatsächlich stattfindet, konnte bisher nicht geklärt werden [120]. Die Daten, die in dieser Arbeit gewonnen werden konnten, sprechen für den Spaltungsprozess von Ne-Clustern für eine Kombination dieser beiden Prozesse. Zunächst werden die positiven Ladungen durch den schnellen Prozess des hole hoppings von einem Atom zum nächsten transportiert. Aufgrund der gleichnamigen Ladungen der Löcher bewegen sie sich angetrieben durch die Coulomb Kraft in entgegengesetzte Richtungen auf dem Cluster (4). Wie in Kapitel 3.1 bereits erwähnt kann angenommen werden, dass sich die Ladungen mit 1000 m/s bewegen. Sie legen somit in  $10^{-12}$  s (s. Tabelle 3.2) 1 nm zurück. Die Zeit  $10^{-12}$  s entspricht der Zeit bis zur Lokalisierung der Ladungen. Die hier untersuchten Cluster besitzen jedoch einen Durchmesser von 3,5 nm. Die lokalisierten Ladungen befinden sich demnach noch mitten im Cluster. Bei der Lokalisierung der Ladungen zu Dimeren wird Bindungsenergie frei. Für ein Ne-Dimer sind das 1,3 eV (bei der Bildung von zwei Dimeren wird entsprechend die doppelte Menge an Energie frei). Diese Energie wird auf die benachbarten neutralen Atome in Form von thermischer Schwingung übertragen. Da neutrale Ne-Atome im Cluster nur sehr schwach gebunden sind, kommt es so zum Abdampfen vieler neutraler Atome. Weil sich die beiden positiven Ladungen immer noch abstoßen, bewegen sie sich durch den aufweichenden Cluster, ohne viel Energie an neutrale Nachbaratome abzugeben. Die Tatsache, dass sich die Ionen in entgegengesetzte Richtungen bewegen, weist darauf hin, dass Ionen in weichen Ne-Clustern eine hohe Beweglichkeit besitzen. Der Ladungstrennungsabstand, den wir aus der Summe der gemessenen kinetischen Energien der positiv geladenen Fragmente auf 10,3 Å (für den DD-Kanal, rel. Häufigkeit 50 %) bestimmt haben, stimmt sehr gut mit dem abgeschätzten Abstand der Löcher zum Zeitpunkt der Lokalisierung überein. Die stark anisotrope Winkelverteilung, die für den Spaltungsprozess von Ne-Cluster gemessen wurde, lässt sich gut mit der Annahme, dass sich die positiven Ladungen in entgegengesetzte Richtungen bewegen und es somit zu einer prolaten Verformung des Clusters kommt, vereinbaren (5).

Im Gegensatz zu den Ne-Clustern ist der Ladungstrennungsabstand bei der Spaltung von Xe-Clustern (3,3- 4,8 Å) von der Größenordnung des interatomaren Abstandes (3,8 Å). Aufgrund dieser Daten kann angenommen werden, dass die geladenen Fragmente den Cluster direkt nach dem Ladungstransfer von dem zweifach geladenen Clusteratom auf ein Nachbaratom verlassen. Ein mehrfacher Transfer der positiven Ladung durch hole hopping auf andere neutrale Clusteratome, wie es für Ne-Cluster angenommen wird, findet somit nicht statt. Die beiden positiven Ladungen lokalisieren somit direkt nach dem ersten Ladungstransfer. Dieses Verhalten lässt sich mit der Annahme vereinbaren, dass ein zweifach geladenes Edelgasclusteratom kurzzeitig zu einem doppelt geladenen Dimer stabilisieren kann (s. Kapitel 3.1) [43, 55, 56, 57]. Durch den reduzierten Abstand erhöht sich die Lochtransferwahrscheinlichkeit und das doppelt geladene Dimer zerfällt in zwei einfach geladene Monomere. Aufgrund der starken Abstoßung bewegen die Ionen sich auseinander. Wenn die geladenen Fragmente den Cluster nicht sofort verlassen, können sie mit neutralen Atomen Bindungen eingehen. Diese Werte lassen sich gut mit der eher isotropen Winkelverteilung der Xe-Fragmente (s. Abbildung 5.6) vereinbaren.

Ein Modell für den stattfindenden Fragmentationsprozess ist in Abbildung 5.10 sche-

## Spaltung eines Xe-Clusters, $X=0,3$



**Abbildung 5.10:** Schematische Darstellung der Spaltung eines Xe-Clusters ( $\langle N \rangle = 55$ ). Da hier 75% aller Atome an der Oberfläche des Clusters sitzen, werden zwei Fragmentationskanäle dargestellt. Nachdem ein Clusteratom durch Photoionisation und Auger-Zerfall zweifach geladen ist (2a+2b), wird eine der Ladungen auf ein benachbartes Atom transferiert (3a+3b). Abhängig von der Position der Ladungen fragmentiert der Cluster in kleinere oder größere geladenen Fragmente (4a+4b). Bei beiden Prozessen ist der neutrale Rest des Clusters beteiligt.

matisch dargestellt. Da sich bei der hier betrachteten Clustergröße ( $\langle N \rangle = 55$ ) 75 % aller Atome auf der Clusteroberfläche befinden, sind zwei verschiedene Fragmentationsprozesse dargestellt. Während in einem Fall ein Oberflächenatom ionisiert wird, kommt es im anderen Fall zur Ionisierung eines Volumenatoms.

Da Oberflächenatome als Nachbaratome mehr Oberflächenatome besitzen als Volumenatome, ist die Wahrscheinlichkeit, dass eine der Oberflächenladungen auf ein anderes Oberflächenatom transferiert wird, höher, als dass sie auf ein Volumenatom transferiert wird (2a+3a). Findet der Transfer zu einem benachbarten Oberflächenatom statt, können die Ionen aufgrund ihrer Coulomb-Abstoßung den Cluster sofort verlassen (4a). Der verbleibende neutrale Cluster fungiert als dritter Stoßpartner und nimmt somit einen Rückstoßimpuls auf. Die beiden Ionen werden den Cluster aufgrund ihrer Ladung niemals in die gleiche Richtung verlassen. Da die Impulse jedoch statistisch auf die drei beteiligten Körper verteilt werden können und die Position untereinander kleinen Variationen unterliegt, ergibt sich eine breite Winkelverteilung von  $75^\circ$ - $165^\circ$  (s. Abbildung 5.6).

Wird ein Volumenatom zweifach ionisiert, ist die Wahrscheinlichkeit höher, dass eine der beiden Ladungen auf ein anderes Volumenatom transferiert wird, als dass es auf ein Oberflächenatom übertragen wird (2b+3b). Da die Bindungsenergien der neutralen Xe-Atome im Cluster verhältnismäßig groß sind, die Cluster somit als fest bezeichnet werden können, besitzen die Ionen im Cluster eine äußerst geringe Mobilität. Das führt dazu, dass die Ionen nach dem Transfer vorerst auf ihrem Platz bleiben. In dieser kurzen Zeit können sie Bindungen mit benachbarten, neutralen Xe-Atomen eingehen. Bei der Bildung eines Dimers wird die Bindungsenergie von  $\sim 1$  eV frei. Diese Energie führt zur thermisch aktivierten Schwingung des Clusters und bei der geringen hier vorliegenden Clustergröße ( $\langle N \rangle = 55$ ) zur Fragmentation. Sobald der Cluster aufbricht, können die beiden Ionen ihrer gegenseitigen abstoßenden Kraft nachgehen und verlassen den Cluster in entgegengesetzte Richtungen (4b). Auch hier bilden die neutralen Clusteratome Stoßpartner, die Impulse aufnehmen und zu einer breiten Winkelverteilung führen.

Die Betrachtung der Fragmentationskanäle, der Fragmentationsgeometrie und des Ladungstrennungsabstandes zeigen, dass Ne-Cluster, in denen der interatomare Ladungstransfer durch hole hopping zu erklären ist und deren schwache Bindung zu einer hohen Ionenmobilität führt, eher mit den theoretischen Vorhersagen zur Clusterfragmentation [79] übereinstimmen als Xe-Cluster, für die der Ladungstransferprozess durch hole hopping keine Rolle spielt und deren Ionenmobilität geringer ist. Außerdem kann angenommen werden, dass der Zerfallskanal vom Ort der Ionisierung abhängt. Für die Spaltung der weichen Ne-Cluster lässt sich somit eher ein Verhalten erkennen wie man es von makroskopischen Tröpfchen kennt, als wie für feste Xe-Cluster. Diese zeigen eine starke Abweichung von diesem Verhalten.

### Fragmentationsmodelle für den Fall der Explosion ( $X > 1$ ) von Ne- und Xe-Clustern

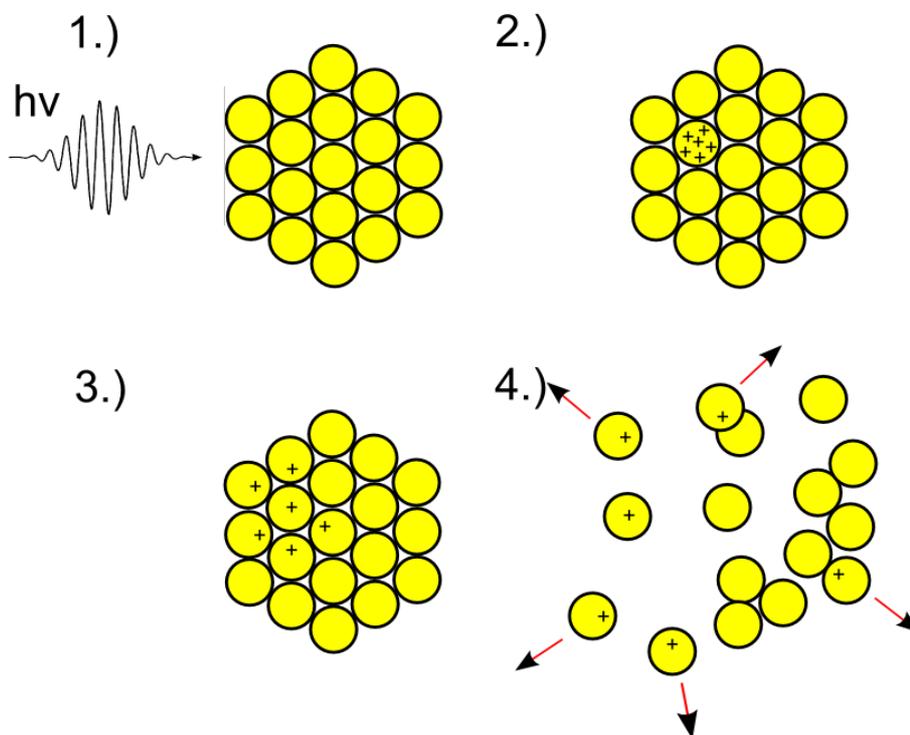
Während der Spaltungsprozess von Ne und Xe sehr unterschiedlich verläuft, verhalten sich die beiden Systeme für den Explosionsbereich ( $X > 1$ ) sehr ähnlich. Neben der isotropen Fragmentationsgeometrie weisen beide eine hohe kinetische Energie auf (s. Tabelle 5.2).

Nachdem ein Xe-Clusteratom durch Photoionisierung und anschließenden Auger-Zerfällen sechsfach geladen ist (2), werden die Ladungen auf Nachbaratome transferiert (3). Durch die extrem große abstoßende Coulombkraft (s. Tabelle 5.2) können sich keine größeren, stabilen Fragmente bilden. Der Cluster explodiert sofort nach dem Transfer (4). Aus dem selben Grund spielt es keine Rolle, ob ein Oberflächen- oder ein Volumenatom ionisiert wird. Der relativ große Ladungstrennungsabstand von Xe von  $8,5 \text{ \AA}$ , was ungefähr den doppelten interatomaren Abstand entspricht, kann dadurch erklärt werden, dass für die komplette Disintegration des Clusters sämtliche interatomaren Bindungen aufgebrochen werden müssen. Die dazu benötigte Energie könnte der Grund dafür sein, dass wir einen relativ großen Ladungstrennungsabstand bestimmen. Andere Gründe dafür könnte eine, bedingt durch den hohen Ladungszustand, Expansion des Clusters vor der Dissoziation [121], oder die stark vereinfachte Annahme der Tetraederform sein.

In Abbildung 5.11 ist schematisch der Prozess der Explosion von Xe-Clustern so dargestellt, wie man ihn sich auf der Basis der hier diskutierten Daten vorstellen kann.

Der Explosionsprozess der Ne-Cluster ist auf den ersten Blick sehr überraschend. Die Fissilität wird erhöht, indem die Clustergröße reduziert wird. Die auf dem Cluster deponierte Ladung bleibt hingegen die gleiche wie bei der Spaltung ( $Z = 2$ ). Die Anregungsenergie beträgt hier jedoch  $890 \text{ eV}$  und übersteigt somit die Energie, die für die Doppelsonionisierung von Ne notwendig ist. Die überschüssige Energie wird zum Teil durch die emittierten Elektronen in Form von kinetischer Energie weggeführt, geht zum Teil jedoch auch auf den Cluster und verursacht ein Aufheizen. Entgegen der intuitiven Annahme, dass sich zwei Ladungen in einem Cluster immer in zwei entgegengesetzte Richtungen voneinander weg bewegen, wie es für die Spaltung von Ne-Clustern beobachtet wurde, wird eine isotrope Winkelverteilung über den gesamten Raumwinkel gemessen. Ein interatomarer Ladungstransfer durch hole hopping spielt daher keine Rolle. Die ermittelten Ladungstrennungsabstände von  $2,9$  und  $4,5 \text{ \AA}$  sind von der gleichen Größenordnung wie der interatomare Abstand von Ne ( $2,74 \text{ \AA}$ ) (s. Tabelle 5.2). In Abbildung 5.12 ist der Explosionsprozess eines Ne-Clusters schematisch dargestellt. Da sich bei dieser Clustergröße ( $\langle N \rangle = 55$ )  $75\%$  aller Atome auf der Oberfläche des Clusters befinden, werden zwei Fragmentationsprozesse dargestellt. Während sich die Ladungen in einem Fall auf der Oberfläche befinden (2a), sitzen sie im anderen Fall zunächst im Inneren des Clusters (2b). Im Fall des zweifach geladenen Oberflächenatoms ist die Wahrscheinlichkeit höher, dass eine der Ladungen auf ein anderes Oberflächenatom transferiert wird, als dass es auf ein Volumenatom übertragen wird (3a). Nach dem Ladungstransfer können die beiden Monomere aufgrund ihrer gegenseitigen Coulomb-Abstoßung des Cluster verlassen (4a). Der verbleibende neutrale Rest des

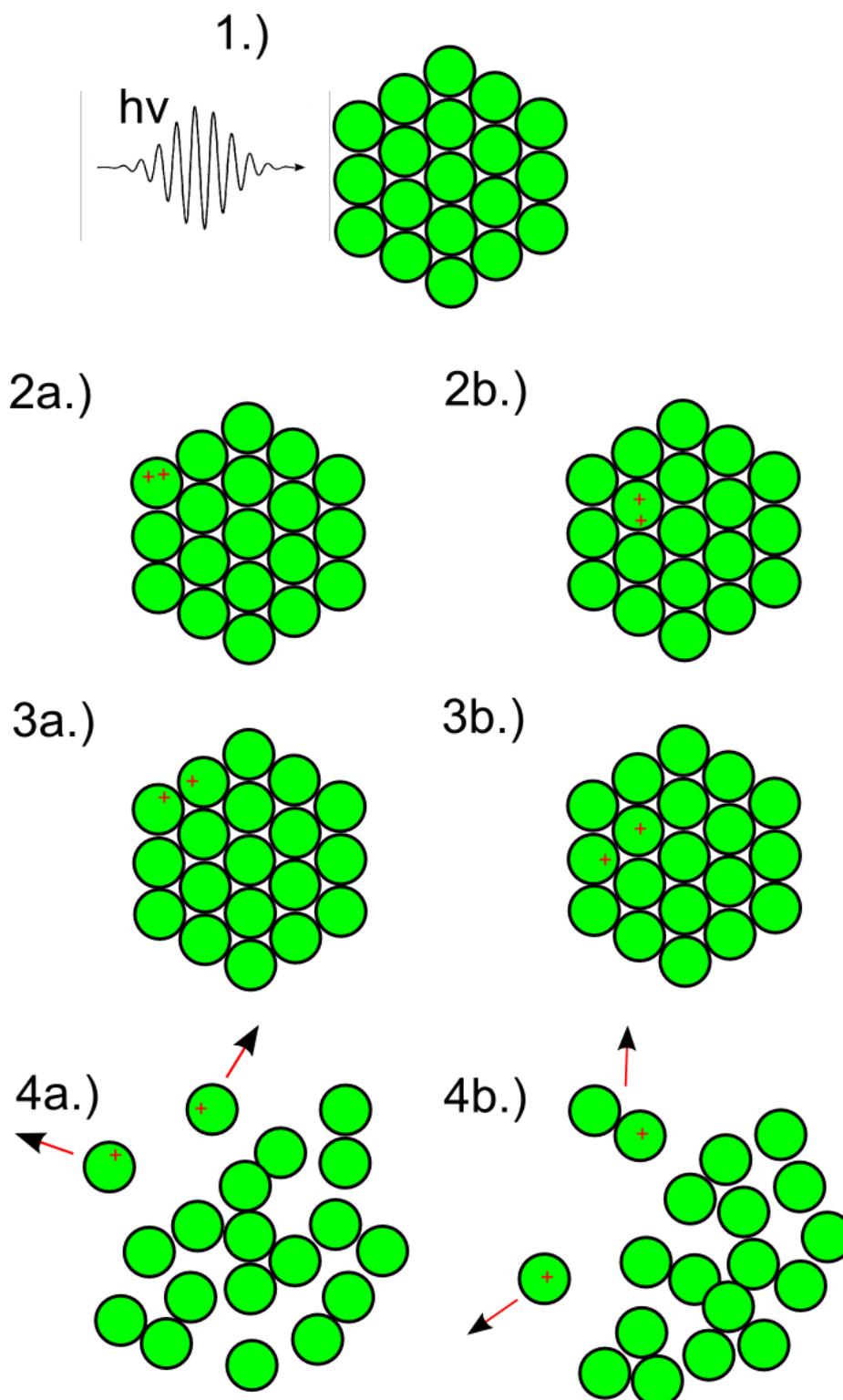
### Explosion eines Xe-Clusters, $X=2,8$



**Abbildung 5.11:** Schematische Darstellung der Explosion eines Xe-Clusters. Nach dem Ionisierungsprozess (1+2) werden die Ladungen auf Nachbaratome transferiert (3). Die starke Coulomb-Abstoßung zwischen den Ionen führt zur kompletten Dissoziation des Clusters (4). Die Fragmente verlassen den Cluster isotrop.

Clusters nimmt einen Teil des Impulses auf. Durch die statistische Verteilung der Impulse auf die drei beteiligten Stoßpartner, ist die Winkelverteilung der Impulsvektoren ebenfalls statistisch verteilt. Die hohe gemessene kinetische Energie und der geringe Ladungstrennungsabstand (s. Tabelle 5.2) stimmen qualitativ mit diesem Bild überein. Befindet sich das ionisierte Atom im Inneren des Clusters (2b) kann es eine der Ladungen sowohl an ein Oberflächen- als auch an ein Volumenatom abgeben (3b). Wird eine Ladung auf ein Oberflächenatom transferiert, kann dieses Ion den Cluster aufgrund der schwachen Bindung und der starken Abstoßung direkt verlassen. Das verbleibende Ion im Inneren des Clusters wird durch Stöße mit umliegenden neutralen Atomen abgebremst und kann eine Bindung mit einem neutralen Atom eingehen. Die dadurch frei werdende Energie führt zur thermischen Anregung des Clusters und letztendlich zur Dissoziation. Das Dimer verlässt ohne große kinetische Energie den Cluster (s. Tabelle 5.2). Andere Zerfallskanäle konnten nicht beobachtet werden.

## Explosion eines Ne-Clusters, $X=2,7$



**Abbildung 5.12:** Schematische Darstellung der Explosion eines Ne-Clusters. Da sich bei dieser Clustergröße ( $\langle N \rangle = 55$ ) 75% aller Atome auf der Oberfläche des Clusters befinden, sind zwei verschiedene Prozesse dargestellt. Nachdem eine der beiden erzeugten Ladungen auf ein Nachbaratom transferiert wird (3a+3b), fragmentiert der Cluster aufgrund der abstoßenden Coulomb-Kraft zwischen den Ionen. Je nachdem, wo die Ladungen generiert wird, entstehen kleine oder große Fragmente. Die Richtung der Fragmente ist statistisch über den gesamten Raumwinkel verteilt.

| Element.  | $E_{photon}$ (eV) | N   | Z | Fissilität X | $r_0$ (Å) | D (Å) | Kanal | rel. Häufigkeit (%) | $E_{kin}$ (eV)          | CSD (Å) |
|-----------|-------------------|-----|---|--------------|-----------|-------|-------|---------------------|-------------------------|---------|
| Spaltung  |                   |     |   |              |           |       |       |                     |                         |         |
| Ne        | 80                | 350 | 2 | 0,5          | 2,74      | 35    | MM    | 20                  | 0,78/0,35               | 13,1    |
| Ne        |                   |     |   |              |           |       | MD    | 30                  | 1,34/0,83               | 6,9     |
| Ne        |                   |     |   |              |           |       | DD    | 50                  | 0,75/0,65               | 10,3    |
| Xe        | 80                | 55  | 2 | 0,3          | 3,8       | 18    | MM    | 10                  | 2,2/2,5                 | 3,27    |
| Xe        |                   |     |   |              |           |       | MD    | 20                  | 2,5/1,3                 | 3,79    |
| Xe        |                   |     |   |              |           |       | DD    | 10                  | 1,6/1,7                 | 4,4     |
| Xe        |                   |     |   |              |           |       | DT    | 20                  | 1,7/1,3                 | 4,8     |
| Explosion |                   |     |   |              |           |       |       |                     |                         |         |
| Ne        | 890               | 55  | 2 | 3            | 2,7       | 13    | MM    | 50                  | 2,3/2,7                 | 2,9     |
| Ne        |                   |     |   |              |           |       | MD    | 40                  | 2,9/0,3                 | 4,5     |
| Xe        | 1160              | 55  | 6 | 2,8          | 3,8       | 18    | 6xM   | >50                 | 6,8/3,4/1,9/1,2/3,9/6,6 | 8,5     |

**Tabelle 5.2:** Zusammenfassung der Spaltungs- und Explosions-Parameter von Ne- und Xe-Cluster für die hier diskutierten Kanäle. Die Tabelle ist in Spaltung und Explosion unterteilt. Aufgelistet sind die verschiedenen Clustermaterialien (Element), die Anregungsenergie ( $E_{photon}$ ), die Größe der Cluster ( $N$ ), die daraus resultierende Fissilität ( $X$ ), der mittlere Gleichgewichtsabstand der Atome im Cluster ( $r_0$ ), der Durchmesser der Cluster ( $D$ ), der Kanal, die relative Häufigkeit der Kanäle, die kinetische Energie der Fragmente ( $E_{kin}$ ) und der Abstand, den die Fragmente beim Verlassen des Clusters hatten ( $CSD$ ).

### 5.3 Abschließende Bemerkungen

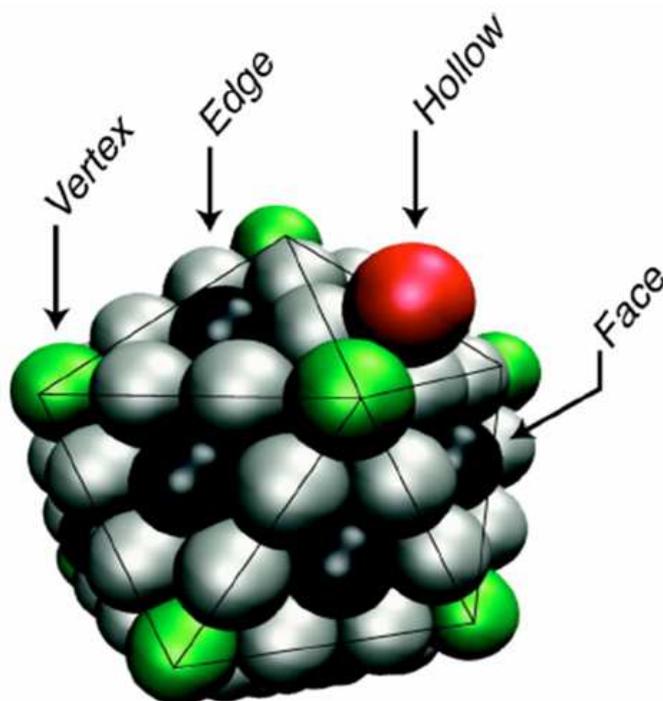
In diesem Kapitel wurden die Ergebnisse zur multikoinzidenten und impuls aufgelösten Untersuchung des Fragmentationsverhalten von weichen Ne- und festen Xe-Clustern im Bereich der Rayleigh-Instabilitäts-Barriere ( $X = 1$ ) diskutiert.

Für den Bereich der Spaltung ( $X < 1$ ) konnte nur für weiche Ne-Cluster die theoretischen Vorhersagen einer anisotropen Spaltung in größere Fragmente mit wenig kinetischer Energie bestätigt werden. Die Bewegung der positiven Ladungen im Ne-Cluster nach ihrer Erzeugung auf einem Atom kann durch den Prozess des hole hoppings erklärt werden. Aufgrund ihrer gegenseitigen Coulombabstoßung breiten sie sich in entgegengesetzte Richtungen aus, bis sie auf dem Cluster lokalisieren. Die bei der Lokalisierung eventuell entstehenden Dimere setzen ihre Bewegung, ohne weitere Energie durch Stöße zu verlieren, fort. Der Grund hierfür könnte eine erhöhte Ionenmobilität in Ne-Clustern sein, die man aufgrund der geringen Bindungsenergie vermuten kann. Wurden die Ladungen im Clusterinneren erzeugt, geben sie auf ihrem Weg zur Oberfläche durch Stöße mehr Energie an neutrale Atome ab, als wenn sie auf der Clusteroberfläche erzeugt wurden. Dies spiegelt sich in dem Ladungstrennungsabstand wieder. Die Bewegung in entgegengesetzte Richtungen ist in der anisotropen Winkelverteilung wiederzuerkennen. Die Fragmentationsgeometrie von Xe-Clustern ist hingegen deutlich isotroper. Ladungstransfer durch hole hopping scheint hier keine Rolle zu spielen. Die Ionen verlassen den Cluster direkt von ihrem anfänglichen Einbauplatz ohne sich im Cluster zu bewegen, wie es bei Ne der Fall ist. Der geringe Ladungstrennungsabstand, der in dieser Arbeit gemessen wurde, könnte ein Hinweis für die geringe Ionenmobilität in Xe-Clustern sein. Für die Explosion ( $1 < X$ ) fragmentieren beide Systeme in kleine, schnelle Ionen in einer isotropen Winkelverteilung. Dieses Verhalten korrespondiert sehr gut mit den theoretischen Vorhersagen.

Die Daten zeigen, dass besonders für die Spaltung der Cluster die innere Struktur und die Bindung der Konstituenten und somit die Ionenmobilität eine wichtige Rolle für den Fragmentationsprozess spielen könnten.

In dieser Arbeit wurden ausschließlich Daten diskutiert, die mit dem Ionendetektor aufgenommen wurden. Die Elektronensignale wurden hier nur als Startsignale für Messungen verwendet. Es sei jedoch ausdrücklich betont, dass der Elektronendetektor des Reaktionsmikroskops genauso leistungsfähig ist wie der Ionendetektor. Es sind Experimente geplant, bei denen sowohl alle Elektronen als auch alle Ionen in Multikoinzidenz nachgewiesen werden. Auf diese Art kann im Detail der Ladungstransfer zwischen den Atomen untersucht werden. Außerdem kann sehr genau bestimmt werden, welche Rolle der Ort der Ionisierung (Clusteroberfläche oder -volumen) auf den Fragmentationskanal des Clusters hat.

Simulationen von Jortner und anderen ergaben, dass die Fragmentation mehrfach geladener Proteine ebenfalls durch das modifizierte LDM beschrieben werden kann [75]. Um das Fragmentationsverhalten von komplexeren Systemen zu untersuchen, sind Experimente geplant, die das Fragmentationsverhalten von dotierten Edelgasclustern untersuchen (s. Abbildung 5.13). Dabei werden die Cluster, wie in Kapitel 2.2 beschrieben, kontrolliert dotiert. Durch Variation der Anregungsenergie und des Dotierverhältnisses

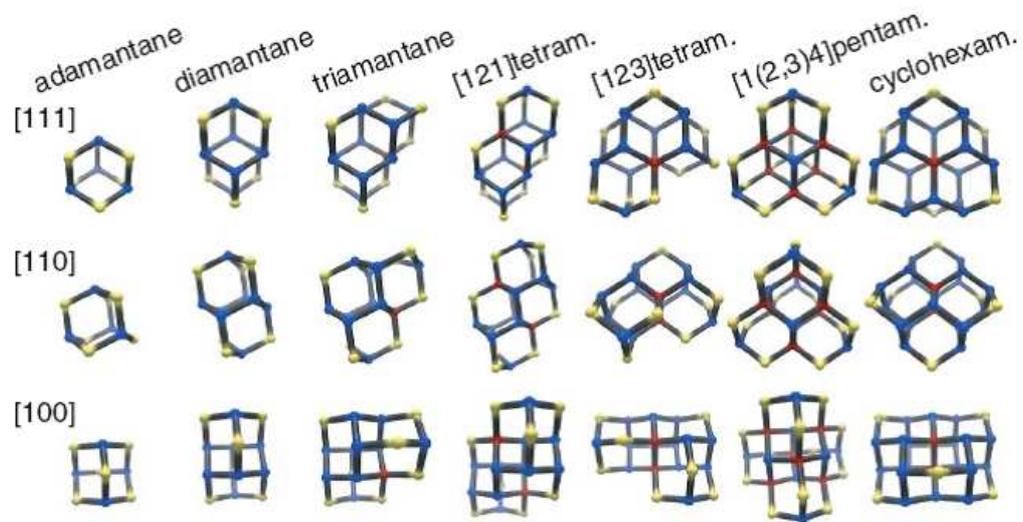


**Abbildung 5.13:** Mit Kr dotierter Ar Cluster [19]. Durch die Dotierung der Edelgascluster kann das Fragmentationsverhalten von komplexeren Systemen untersucht werden. Je nach Dotierungsgrad und -methode ändert sich die Struktur des Clusters.

kann der Ladungstransfer und die Fragmentationskanäle dieser komplexeren Struktur untersucht werden. Ein Ziel ist es die Nachweisteknik der Detektoren derart zu verbessern, dass die Fragmentation von großen, komplexen Molekülen untersucht werden kann.

Neben den impuls aufgelösten Messungen an Edelgasclustern sind auch Experimente an gröÙenselektierten Kohlenstoffclustern (Diamantoide) geplant (s. Abbildung 5.14) [122, 123]. Diese Diamantoide liegen in Pulverform gröÙen- und isomeraselektiert vor. Sebastian Schorb, Diplomand in der AG Möler, hat eine Molekularstrahlquelle entwickelt, die es ermöglichen soll, die Diamantoide in einen gerichteten Strahl in die Wechselwirkungszone des Reaktionsmikroskops zu transportieren. Diese Messungen werden die ersten impuls aufgelösten Experimente an komplexen Molekülverbindungen sein.

Die Entwicklung von neuen Lichtquellen wie den Freien Elektronen Lasern (s. Kapitel 2.4) ermöglicht es, Atome, Moleküle und Cluster bis hin zu hohen Ladungszuständen zu ionisieren. Durch die effektive Energieabsorption treten in den Proben viele neuartige physikalische Prozesse auf (s. Kapitel 3.3). Eine impuls aufgelöste Messung aller bei diesen Prozessen entstehenden Fragmente wurde bisher nur für Atome und kleine Moleküle durchgeführt [124]. Für komplexere Systeme wie Cluster jedoch nicht. Durch den hohen Ladungszustand den die Probe durch die Wechselwirkung erfährt, sind sehr



**Abbildung 5.14:** Chemische Struktur der Diamantoide von Adamantane bis Cyclohexan. Die Stoffe liegen gröÙenselektiv vor. [122]

viele geladene Fragmente zu erwarten. Somit stellen diese Experimente hohe Anforderungen an den Mehrfach-Nachweis der Detektoren.



## Kapitel 6

# Wechselwirkung von hoch intensiven XUV-Pulsen mit heterogenen Edelgasclustern

## Ionen Rekombination und unterdrückte Coulomb Explosion

In diesem Kapitel werden Ergebnisse zur Untersuchung der Wechselwirkung von hoch intensiven, ultra kurzen XUV-Pulsen mit dotierten Edelgasclustern diskutiert.

Der FLASH FEL lieferte zu Beginn (damals TTF<sup>1</sup> FEL) im VUV-Bereich Photonen mit einer Wellenlänge von  $\sim 98 \text{ nm}$  ( $\cong 12.7 \text{ eV}$ ) und maximale Intensitäten von  $7 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ . Die bis dahin einzigartigen Experimente zur Wechselwirkung von intensiver VUV-Pulsen mit Materie ergaben überraschende Ergebnisse: Edelgascluster absorbieren bei gleichen Wellenlängen und gleichen Puls-Intensitäten sehr viel mehr Energie aus dem elektromagnetischen Feld als die entsprechenden Atome [91]. Dieser Effekt der erhöhten Energieabsorption wurde bereits in Kapitel 3.3 diskutiert.

Auf diesen Ergebnissen aufbauend wurde im Rahmen der vorliegenden Arbeit der durch FEL-Pulse induzierte Ladungs- und Energietransfer zwischen verschiedenen Clusterkonstituenten untersucht. Durch das gezielte Dotieren von Ar-Clustern mit Xe-Atomen (s. Kapitel 2.2) kann der Ladungs- und Energietransfer zwischen verschiedenen Bereichen des Clusters untersucht werden. Über die Intensitätsverteilung der verschiedenen Clusterkonstituenten im Flugzeitspektrum werden Prozesse beobachtbar, die in reinen Clustern nicht sichtbar wären. Der durch die FEL-Pulse induzierte Fragmentationsprozess in den XeAr-Core-Shell-Systemen zeigt eine starke Größenabhängigkeit. Während für kleine ( $\langle N \rangle = 400$ ) XeAr-Cluster ein starkes Xe-Signal gemessen wird, ist dieses Signal für große ( $\langle N \rangle = 4000$ ) XeAr-Cluster sehr schwach. Die genaue Analyse dieses Ergebnisses führt, wie im Folgenden dargestellt wird, zu der Annahme, dass

---

<sup>1</sup>Tesla test facility

die Coulomb-Explosion des hoch angeregten Clusters unterdrückt wird. Diese Unterdrückung ist für zukünftige Imaging-Experimente mit hoch intensiven Röntgenpulsen von großem Interesse.

Die Ergebnisse, die im Folgenden diskutiert werden, sind in [121] veröffentlicht.

## 6.1 Experimenteller Aufbau zur Flugzeitspektroskopie von Coulomb explodierenden heterogenen Edelgascluster

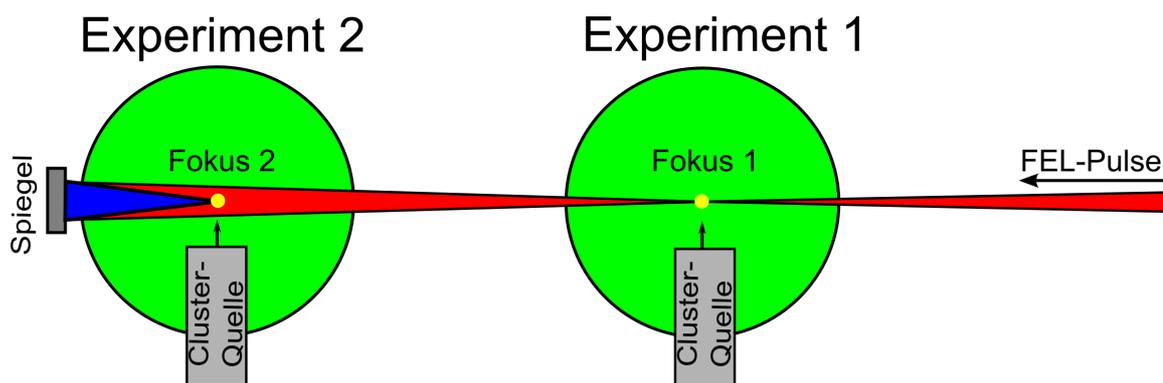
Bevor im Detail auf die erzielten Ergebnisse eingegangen wird, soll das Experiment, das am FLASH-FEL in Hamburg durchgeführt wurde, vorgestellt werden. Die wesentlichen Parameter der verwendeten Lichtquelle (FLASH-FEL, s. Kapitel 2.4) sind wie folgt:

- Photonenenergie / Wellenlänge: 90,5 eV / 13,7 nm, FWHM 0,15 nm [34]
- Repititionsrate des FELs: 5 Hz
- Durchschnittliche Pulsenergie: 20 - 30  $\mu$ J
- Pulsintensität:  $\sim 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>
- 1. Fokus: 30  $\mu$ m bis 50  $\mu$ m, 2. Fokus:  $\sim 5 \mu$
- Pulsdauer:  $\sim 10$  fs

In Abbildung 6.1 ist eine schematische Darstellung des experimentellen Aufbaus zu sehen.

Es ist zu erkennen, dass zwei Experimente am selben Strahlrohr (Beamline 2) von FLASH aufgebaut sind. Die beiden Experimentierkammern (*1. Experiment*, *2. Experiment*) sind durch ein Edelstahlrohr (hier nicht zu sehen) miteinander verbunden und so ausgerichtet, dass die FEL-Pulse durch die Wechselwirkungszonen in der Mitte der Kammern laufen. Die Positionierung von zwei Kammern hintereinander hat den Vorteil, dass zwei unabhängige Experimente durchgeführt werden können. Die Kammern sind durch ein Ventil voneinander trennbar, so dass z. B. das zweite Experiment belüftet werden kann, während im ersten Versuche durchgeführt werden. Die Wechselwirkungszone der ersten Kammer (*1. Experiment*) befindet sich genau im Fokus des Strahlrohres. Der sich aufweitende Strahl passiert zunächst die Wechselwirkungszone der zweiten Kammer (*2. Experiment*) und wird dann durch einen sphärischen Multi-Layer<sup>2</sup>-Spiegel refokussiert, so dass der Fokus in der Wechselwirkungszone der zweiten Kammer liegt. Hier kreuzen die FEL-Pulse den Cluster-Strahl direkt unter der Apertur eines TOF-Spektrometers (s. Abbildung 6.2 und 6.3). Die in dieser Arbeit diskutierten Ergebnisse wurden ausschließlich in der zweiten Kammer aufgenommen. Die Brennweite des Spiegels beträgt 30 cm und der Fokus hat einen Durchmesser von  $\sim 5 \mu$ m. Die Werte können

<sup>2</sup>Dieser sphärische Si/Mo Schmalband-Multi-Layer Spiegel mit einer Reflektivität von 68 % [125] wurde in hoher Qualität für die industrielle EUV-Lithographie entwickelt [126].



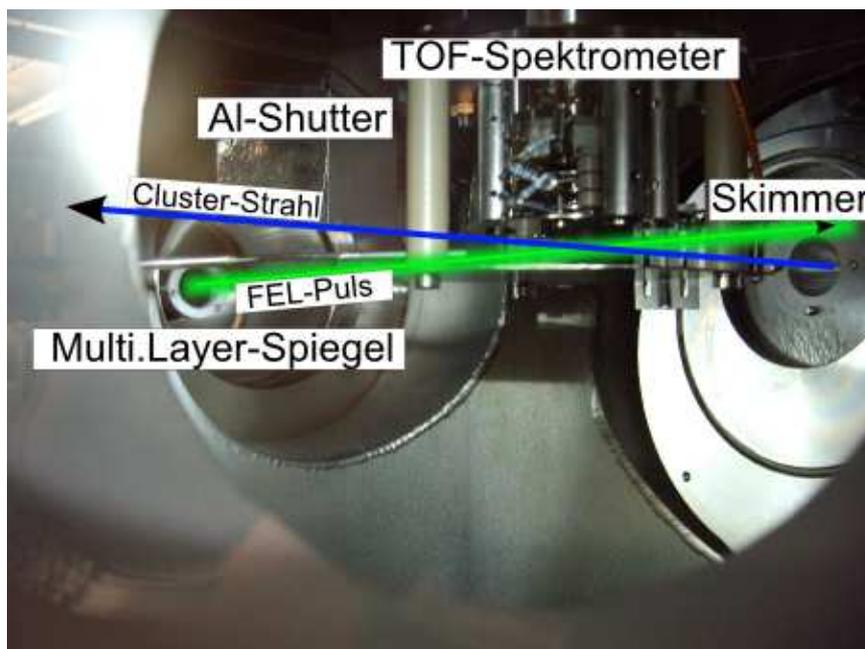
**Abbildung 6.1:** Schematische Darstellung der zwei Experimentierkammern am FLASH-FEL (Draufsicht). Die beiden Kammern, hier als Kreise dargestellt (*1. Experiment, 2. Experiment*), sind so ausgerichtet, dass die Pulse des FELs die Wechselwirkungszone der Kammern kreuzen (gelbe Scheiben). Der Fokus des Strahlrohres 2 (*Fokus 1*) liegt in der Kammer des *1. Experimentes*. Die sich aufweitenden Pulse werden durch einen Multi-Layer-Spiegel in der zweiten Kammer refokussiert (*Fokus 2*). In den Foki kreuzen die Clusterstrahlen den FEL-Strahl. Über den Wechselwirkungszone sind jeweils TOF-Spektrometer installiert, mit denen die geladenen Fragmente nachgewiesen werden können. Auf eine detail- und maßstabstreue Darstellung wurde übersichtshalber verzichtet.

minimal von diesen Werten abweichen, da die einfallenden Pulse nicht parallel verlaufen.

Der Spiegel ist über einen xyz-Manipulator justierbar. Zum Justieren wird das Signal des Spektrometers mit einem Oszilloskop ausgelesen und der Spiegel so lange verstellt bis ein Signal (z. B. Xe) nachgewiesen wird. Dies impliziert, dass der Cluster- bzw. Atom-Strahl und der FEL-Puls sich schneiden. Im Weiteren wird der Spiegel in kleinen Schritten so verstellt, bis die Signale von höheren Ladungszuständen maximal werden. Dominiert das Signal von höheren Ladungszuständen gegenüber einfach geladenen Atomen, befindet sich der Fokus (höchste Lichtintensität) direkt unter der Spektrometer-Apertur. Zwischen dem Spektrometer und dem Spiegel befinden sich Kaskaden von Kupfer-Blenden, die untereinander einen Abstand von 5 mm haben (in den Abbildungen sind die Blenden nicht zu sehen). In den Blenden befindet sich mittig ein Loch, das sich in Richtung Spektrometer von 15 mm (berechneter Durchmesser des aufgeweiteten Strahls) auf 7 mm verjüngt. Die Kupfer-Blenden absorbieren sehr effektiv senkrecht einfallendes Streulicht, das am Spiegel erzeugt wird. Auf die gleiche Weise wird Streulicht aus dem Strahlrohr eliminiert.

Vor den Spiegel kann mit einem z-Manipulator ein Stück Al-Folie (Al-Shutter) gefahren werden, um den Einfluss der einfallenden FEL-Pulse auf das TOF-Spektrum zu untersuchen (s. Abbildung 6.2).

Als Probe dienen reine Ar- und Xe-Cluster und Ar Cluster, die mit Xe dotiert werden. Die Cluster werden, wie in Kapitel 2.1 beschrieben, hergestellt. Damit der Gasdruck in allen Kammern so gering wie möglich ist, wird die Quelle in der gleichen Repetitionsrate wie der FEL betrieben (5 Hz). Die Öffnungszeit der Quelle beträgt 3-5 ms.

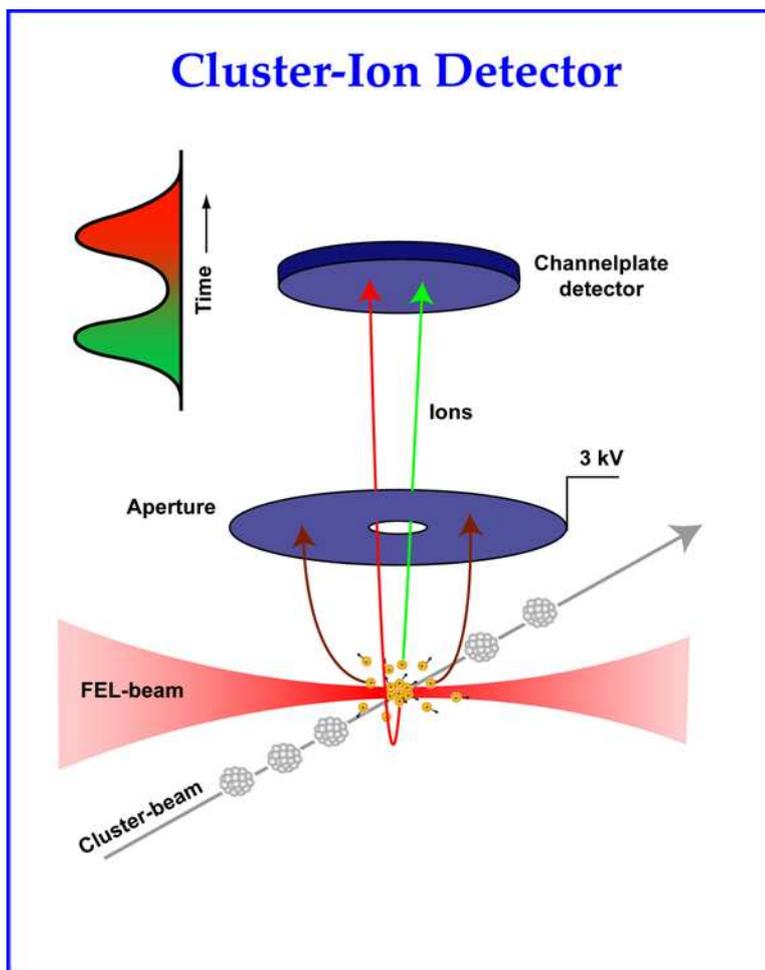


**Abbildung 6.2:** Der einfallende FEL-Puls passiert die Wechselwirkungszone des TOF-Spektrometers (dicke grüne Linie) und wird durch den Multi-Layer-Spiegel in die Wechselwirkungszone refokussiert (dünne grüne Linie). Der Clusterstrahl tritt durch eine 1 mm Skimmeröffnung in die Kammer und kreuzt den FEL-Puls unter der TOF-Apertur. Mit dem Al-Shutter kann der Spiegel abgeschattet werden, um den ionisierenden Einfluss der einfallenden Pulse zu untersuchen.

Der Trigger-Puls für die Steuerung der Quelle wird vom FEL geliefert und muss derart verzögert werden, dass der Clusterstrahl (ca. 500 m/s) in der Wechselwirkungszone mit dem FEL-Puls zusammentrifft. Die Cluster wurden mittels Querstrahl und Mischgas wie in Kapitel 2.2 beschrieben dotiert. Die dünne Kapillare (1 mm) des Querstrahls ist in der Verlängerungskammer (s. Abbildung 2.3) installiert. Der Abstand zwischen Kapillare und Cluster Strahl beträgt ca. 1,5 cm. Der Gasdruck des Querstrahls wird über ein Nadelventil und einer Vakuummessröhre gemessen.

Zum Nachweis der positiv geladene Clusterfragmente wird ein TOF-Spektrometer verwendet (s. Abbildung 6.3). In diesem Detektor werden die geladenen Teilchen durch ein elektrisches Feld auf ein MCP-Detektor beschleunigt, das zum Nachweis der geladenen Teilchen dient. Eine detaillierte Beschreibung des Spektrometers ist in [93] zu finden. Die elektrischen Spannungen, die verwendet wurden, sind im Folgenden aufgelistet:

- Vorderseite MCP ( $CP_{in}$ ): 1,8 kV
- Rückseite MCP ( $CP_{out}$ ): geerdet
- Beschleunigungsspannung (entr. $e^-$ , Basisplatte): 3 kV
- Beschleunigungsspannung (entr.ion): geerdet



**Abbildung 6.3:** Der Cluster-Strahl kreuzt die FEL-Pulse unter der TOF-Apertur. Die Ionen werden durch +3kV auf einen Channel Plate Detektor beschleunigt. Ionen, die zunächst vom Detektor weg fliegen, haben eine längere Flugzeit. Die Apertur lässt nur Ionen zu, die direkt in die Richtung des Detektors fliegen. [93]

Die Feldgeometrie ist so dimensioniert, dass eine Wiley-McLarren Zeitfokussierung erster Ordnung (s. Kapitel 4.2) erreicht wird.

Damit nur Ionen, die bei gleichen Puls-Intensitäten erzeugt wurden, nachgewiesen werden, ist die TOF-Apertur parallel zum FEL-Strahl  $< 500 \mu\text{m}$  lang ( $<$  Rayleighlänge <sup>3</sup>) und senkrecht zum Strahl 2 mm.

Das Signal wird zusammen mit dem GMD<sup>4</sup>-Signal über den Acqiris Transientenrekorder (s. Kapitel 4.3) aufgenommen. Das GMD-Signal liefert Information zur Puls-Intensität für jeden FEL-Schuss. Mit dem von Heiko Thomas entwickelten Programm FBI<sup>5</sup> können die Einzelschusspektren nach Puls-Intensitäten sortiert werden.

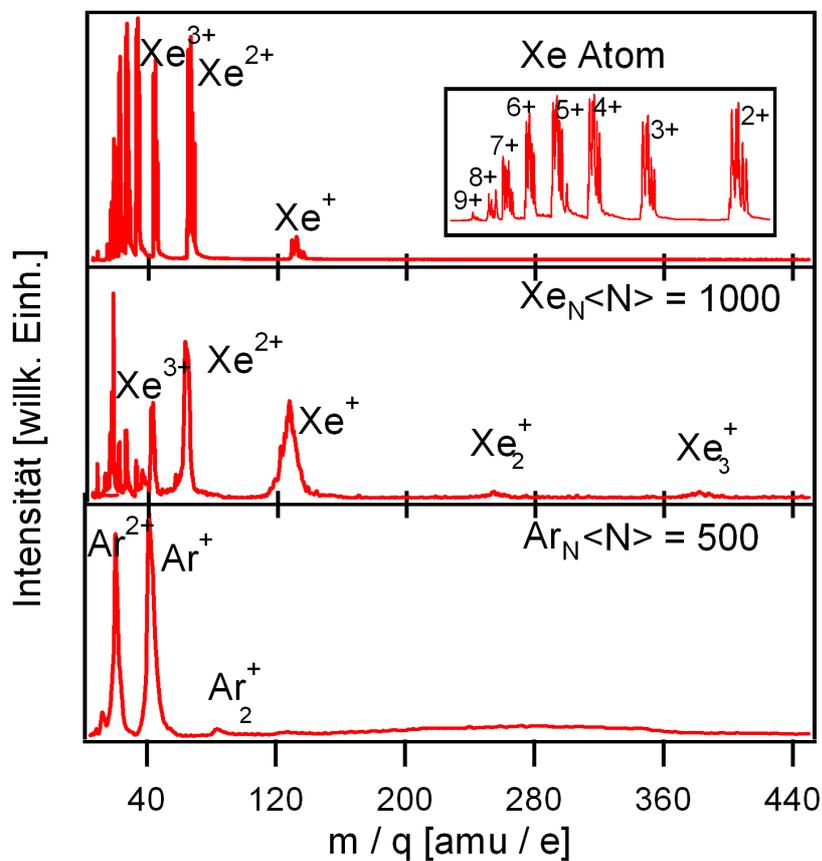
<sup>3</sup>Die Rayleighlänge gibt an, in welchem Abstand von der Strahltaile sich der Strahldurchmesser um  $\sqrt{2}$  aufweitet.

<sup>4</sup>GMD: Gas Monitor Detector

<sup>5</sup>FBI: file to binary IGOR, IGOR: EDV Programm

## 6.2 Ergebnisse und Diskussion: Ladungsrekombination und verzögerte Coulomb-Explosion in heterogenen Edelgasclustern

Wie eingehend erläutert, wurde in dem hier beschriebenen Experiment durch die Dotierung der Cluster der Ladungs- und Energietransfer zwischen den Clusteratomen untersucht. Durch den Nachweis der verschiedenen, geladenen Fragmente kann festgestellt werden, zwischen welchen Atomen der Ladungstransfer stattfindet. Im Folgenden werden Flugzeit-Spektren präsentiert an Hand derer diese Prozesse diskutiert werden. In Abbildung 6.4 sind drei Referenzspektren von reinen Clustern, die für die wei-



**Abbildung 6.4:**  $q/m$  Spektren von Xe-Atomen, reinen Xe- und Ar-Clustern. Oben: Xe-Atom, Ionen bis  $q=9$  können nachgewiesen werden (s. inset), mitte:  $Xe_N$  Cluster mit  $\langle N \rangle = 1000$  fragmentieren in Dimere, Trimere und höher geladene Monomere. Ganz links ist Wasser als Restgas sichtbar, unten:  $Ar_N$ -Cluster mit  $\langle N \rangle = 500$  fragmentieren in Dimere und höher geladene Monomere.

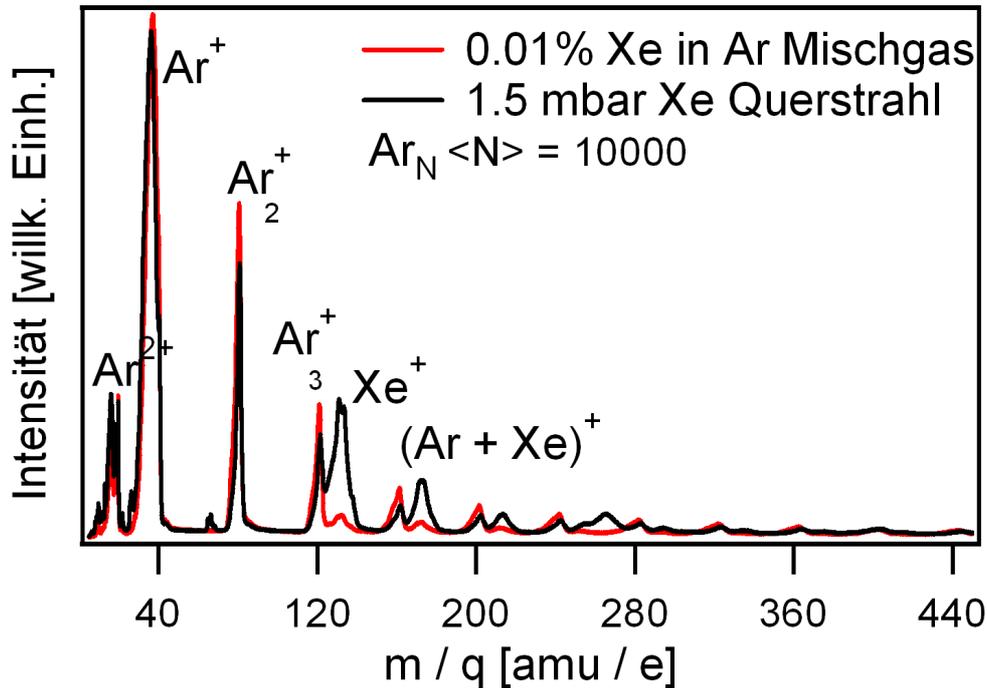
tere Diskussion hilfreich sind, dargestellt (oben: Xe-Atome, mitte:  $Xe_N$ -Cluster mit  $\langle N \rangle = 1000$ , unten:  $Ar_N$ -Cluster mit  $\langle N \rangle = 500$ ). Im Fall von Xe-Atomen konnten unter den oben genannten Bedingungen bis 9-fach ionisierte Atome nachgewiesen werden (s. inset). Der hohe Ladungszustand kann, bedingt durch die kurze Wellenlänge und

| Schalen       | 1  | 2  | 3   | 4   | 5   | 6   | 7    | 8    | 9    | 10   | 14    |
|---------------|----|----|-----|-----|-----|-----|------|------|------|------|-------|
| # Atome       | 13 | 55 | 147 | 309 | 561 | 923 | 1415 | 2057 | 2869 | 3871 | 10179 |
| Volumen       | 0  | 1  | 13  | 55  | 147 | 309 | 561  | 923  | 1415 | 2057 | 6525  |
| Grenzeschicht | 1  | 13 | 42  | 92  | 162 | 252 | 362  | 492  | 642  | 812  | 1692  |
| Oberfläche    | 12 | 41 | 92  | 162 | 252 | 362 | 492  | 642  | 812  | 1022 | 1962  |
| 0,01 %        | 0  | 0  | 0   | 0   | 0   | 0   | 0    | 0    | 0    | 0    | 1     |
| 0,6 %         | 0  | 0  | 1   | 2   | 3   | 6   | 8    | 12   | 17   | 23   | 61    |
| 15-25 %       | 2  | 11 | 30  | 62  | 112 | 184 | 283  | 411  | 573  | 774  | 2035  |
| 50 %          | 6  | 27 | 73  | 154 | 280 | 461 | 707  | 1028 | 1434 | 1935 | 5089  |

**Tabelle 6.1:** Magische Clustergrößen (Schalen) mit entsprechenden Anzahlen von Atomen im Clustervolumen, -grenzschicht und -oberfläche. Im unteren Teil der Tabelle ist für verschiedene Mischungsverhältnisse (0,01 %, 0,6 %, 15-25 %, 50 %) die entsprechende absolute Anzahl der Atome angegeben.

die hohe Intensität, durch sequentielle Photoionisation erklärt werden [125]. Durch die verschiedenen Xe-Isotope besitzen die Flugzeit-Linien der Fragmente kleine Sub-Linien. Die Anregung von mittelgroßen Xe- und Ar-Clustern ( $\langle N \rangle = 500, 1000$ ) führt zur Fragmentation in Dimere ( $X_2^+$ ), Trimere ( $X_3^+$ ) (nur für Xe) und mehrfach geladene Ionen. Einfach und zweifach geladene Ionen dominieren die Spektren. Schwerere Fragmente kommen so gut wie nicht vor. Da alle Clusterfragmente durch den Dissoziationsprozess (Coulomb-Abstoßung) einen Impuls erfahren, sind die Flugzeit-Linien verbreitert. Deswegen ist eine Isotopenaufspaltung, wie sie im atomaren Spektrum zu sehen ist, nicht mehr zu beobachten. Die Linien-Breite lässt eine klare Unterscheidung zwischen Cluster-Fragmenten und atomarem Restgas zu. Der Ursprung des langen, flachen Bandes im Ar-Spektrum um 280 amu/e konnte bisher nicht geklärt werden. Die Ar-Linien sind aufgrund einer besseren Statistik glatter. In allen Spektren ist im vorderen Bereich Wasser aus dem Restgas zu erkennen. Das Wasser-Signal im  $Xe_N$  ( $\langle N \rangle = 1000$ ) Spektrum ist besonders ausgeprägt, da dieses Spektrum kurz nach Wiederanpumpen aufgenommen wurde und sich im Restgas somit noch sehr viel Wasser befand. Aus diesen Spektren kann man schließen, dass die Cluster beinahe komplett in mehrfach geladene Ionen fragmentieren.

Um ein detailliertes Verständnis für den Ladungs- und Energietransfer zu erlangen, wird das Fragmentationsverhalten von dotierten Clustern untersucht. In Tabelle 6.1 wird eine Übersicht für einige Schalen (Magische Zahlen, s. Kapitel 2.1) mit der entsprechenden Anzahl von Volumen-, Grenzschnitt- und Oberflächen-Atomen gegeben. Im unteren Teil der Tabelle ist die Anzahl der Dotieratome verschiedenen Clustergrößen für verschiedene prozentuale Anteile aufgelistet. Die gewählten Anteile entsprechen den hier diskutierten Werten.



**Abbildung 6.5:**  $q/m$  Spektren von  $\text{Ar}_N$ -Cluster mit  $\langle N \rangle = 10000$  dotiert durch einen 1,5 mbar Xe-Atom Querstrahl und einem 0,01 % Xe- in Ar-Mischgas. Das Spektrum zeigt reine Xe- und Ar- und gemischte XeAr-Fragmente. Die Spektren sind aufgrund verschiedener Abzugsspannungen leicht gegeneinander verschoben.

### 6.2.1 Fragmentationsdynamik von hoch angeregten, schwach dotierten Ar-Clustern

In Abbildung 6.5 sind zwei  $q/m$ -Spektren von  $\text{Ar}_N$ -Clustern ( $\langle N \rangle = 10000$ )<sup>6</sup> dargestellt, die auf zwei verschiedene Weisen und somit in verschiedenen Bereichen des Clusters dotiert werden. Die Daten wurden bei einer Wellenlänge von 13,7 nm und einer Intensität von  $\sim 10^{14} \text{ W/cm}^2$  aufgenommen. Die schwarze Kurve zeigt die Fragmente von Clustern, die durch einen 1,5 mbar Xe-Querstrahl dotiert sind (s. Kapitel 2.2). Die rote Kurve zeigt die Fragmente von dotierten Clustern, die durch die Expansion eines Mischgases (0,01 % Xe in Ar) erzeugt werden. In beiden Fällen werden die Cluster durch die Expansion eines Gases ins Vakuum erzeugt (s. Kapitel 2.1). Der Ar-Gasdruck beträgt bei beiden Messungen 28 bar und die Düsentemperatur 300 K. Der Hintergrunddruck in der Hauptkammer beträgt während des Experimentes  $3 \times 10^{-8}$  mbar. Wie bereits in Kapitel 2.2 ausführlich dargestellt, wird ein Cluster, der durch ein 0,01 % Xe in Ar-Mischgas erzeugt wird, statistisch im Volumen dotiert. Auf 10000 Ar-Atome kommt ein Xe-Atom (s. Tabelle 6.1). Die Bindungsenergie, die bei einer Ar-Xe-Bindung frei wird, kann durch Schwingung des großen Clusters ( $\langle N \rangle = 10000$ ) und durch Abdamp-

<sup>6</sup>Obwohl die Hagedorn-Skalierungsgesetze (s. Kapitel 2.1) nur für reine Cluster Gültigkeit haben, werden sie hier als Orientierung auch für dotierte Systeme benutzt.

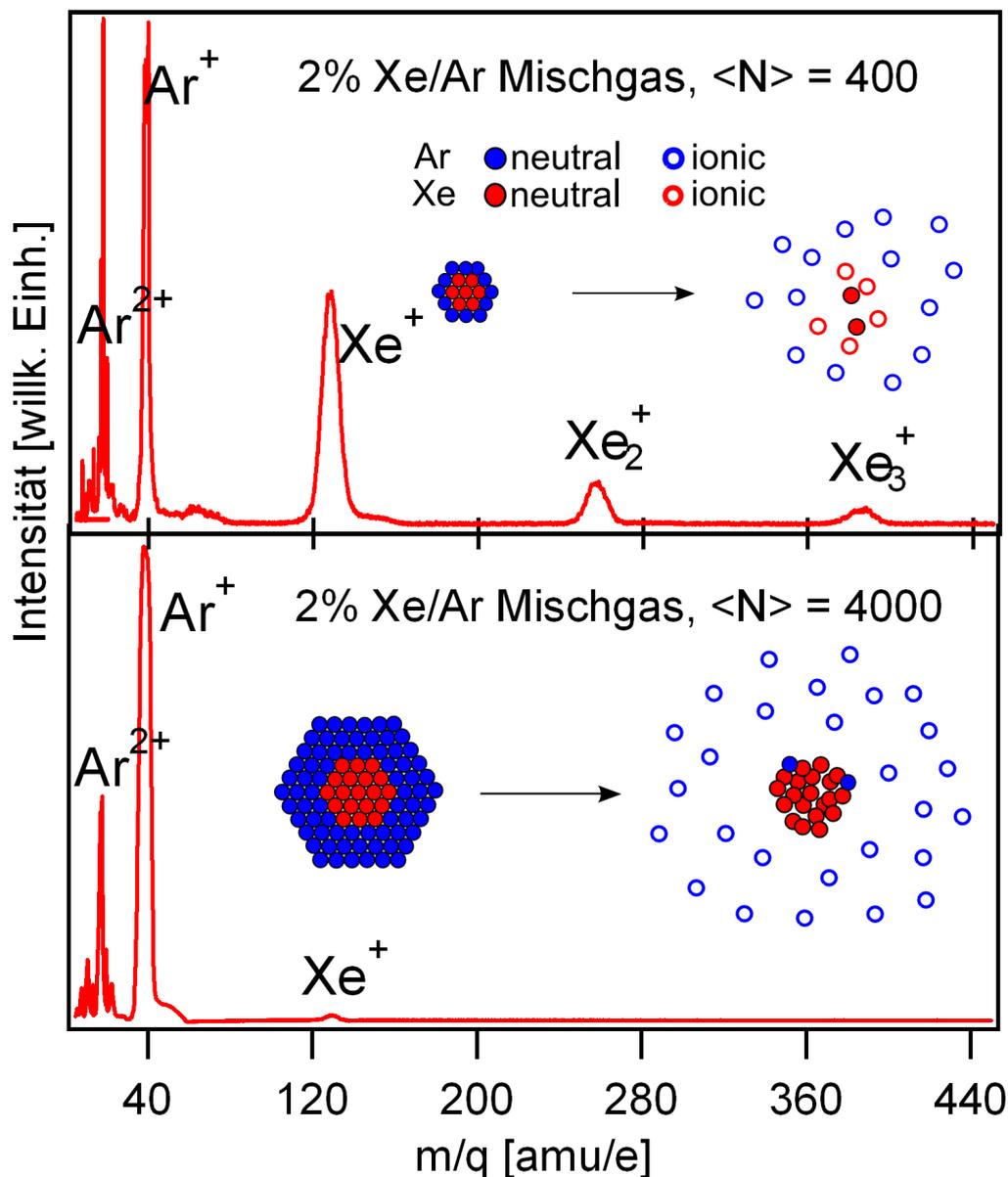
fen einzelner Ar-Atome kompensiert werden [20].

Im Fall der Dotierung per Querstrahl ist der Druck (1,5 mbar) und der Abstand zum Wirtclusterstrahl (ca. 1,5 cm) so gewählt, dass die Oberfläche der Ar-Cluster nur statistisch von Xe-Atome besetzt wird [23].

Beide Spektren werden dominiert durch eine intensive, breite Ar<sup>+</sup>-Linie. Außerdem sind mehrfach geladene Ar-Fragmente wie Ar<sup>2+</sup> und Ar<sup>3+</sup> sichtbar. Im Querstrahl Spektrum ist ein schwaches Xe<sup>2+</sup>-Linien erkennbar. Aufgrund der geringen Breite kann jedoch davon ausgegangen werden, dass es kein Clusterfragment ist, sondern doppelt geladene Xe-Atome aus dem Restgas. Neben den einfach geladenen Ar- und Xe-Ionen ist molekulares ArXe<sub>N</sub><sup>+</sup> als Clusterfragmente in beiden Spektren vertreten. Aufgrund der geringen Xe-Dotierung ist eigentlich ein sehr viel schwächeres Xe-Signal zu erwarten. Vergleicht man jedoch die Intensitäten der Ar- und Xe-Signale erhält man einen unerwartet hohen Anteil an Xe. Für die Gasmischung (0,01 % Xe in Ar) ergibt sich ein Xe-Anteil von 1,7 %. Das entspricht einer Anreicherung von 170, wenn man annimmt, dass alle Cluster-Atome ionisiert werden. Die Anzahl der abdampfenden Ar-Atome ist somit sehr viel größer als erwartet. Ein weiterer Grund für diese starke Anreicherung könnte sein, dass Xe-Atome besser zu Cluster kondensieren als Ar-Atome (s. Kapitel 2.1). Die Bildung von Xe-Xe bzw. Ar-Xe-Bindungen ist von vornherein energetisch begünstigt.

Die Tatsache, dass keine mehrfach geladenen Xe-Ionen nachgewiesen werden (s. Abbildung 6.4, oben) spricht für einen sehr schnellen (fs-Zeitskala [47]), effizienten Ladungstransfer vom hoch geladenen Xe- zu benachbarten Ar-Atomen. Dieser Transfer muss abgeschlossen sein, bevor der Cluster explodiert. Der ursprüngliche Anteil von Xe- im Ar-Cluster war so gering, dass jedes Volumen-Xe-Atom 12 Ar-Nachbarn hatte, zu denen es Ladung transferieren konnte.

Für die Messung an den Querstrahl dotierten XeAr-Clustern beträgt der Anteil des nachgewiesenen Xe zum Gesamtsignal sogar 13 %. Da bei der Dotierung per Querstrahl nicht genau bestimmen werden kann, wie groß der Xe-Anteil vor der Wechselwirkung mit den XUV-Pulsen war, ist es schwer abzuschätzen, wie groß die Anreicherung ist. Zieht man jedoch in Betracht, dass die bei der Bindung von Xe-Atomen mit Ar-Oberflächenatomen frei werdende Bindungsenergie zum Abdampfen von Ar-Atomen führt, ist eine Anreicherung zu erwarten. Zusätzlich zu der freiwerdenden Bindungsenergie wird der Cluster durch die auftreffenden Xe-Atome ( $v = 500$  m/s) aufgeheizt. Dies führt ebenfalls zum Abdampfen von neutralen Ar-Atomen und somit zu einer Anreicherung von Xe. Da sich bei dieser Art der Dotierung die Gastatome auf der Oberfläche des Clusters anlagern, können sie nach der Ionisierung relativ schnell den Cluster verlassen. Die Ionen haben also weniger Zeit ihre Ladung auf Nachbaratome zu übertragen. Die Tatsache, dass Oberflächenatome weniger Nachbarn haben als Volumenatome verstärkt den Effekt an reduzierter Transfereffizienz. Nichtsdestotrotz ist ein starker Ladungstransfer von hoch geladenen Xe zu Ar erkennbar.



**Abbildung 6.6:** m/q-Spektren von Xe dotierten Ar-Clustern verschiedener Größen erzeugt durch ein 2% Xe in Ar-Mischgas. Oben: kleine  $\text{Ar}_N$ -,  $\langle N \rangle = 400$ , Cluster. Die Cluster fragmentieren sowohl in Ar- als auch in Xe-Ionen. Unten: große  $\text{Ar}_N$ -Cluster,  $\langle N \rangle = 4000$ . Das Xe-Signal ist stark unterdrückt. Die  $\text{Ar}^+$ -Linie dominiert das Spektrum.

### 6.2.2 Ladungsrekombination und verzögerte Coulomb-Explosion in hoch angeregten XeAr-Core-Shell-Clustern

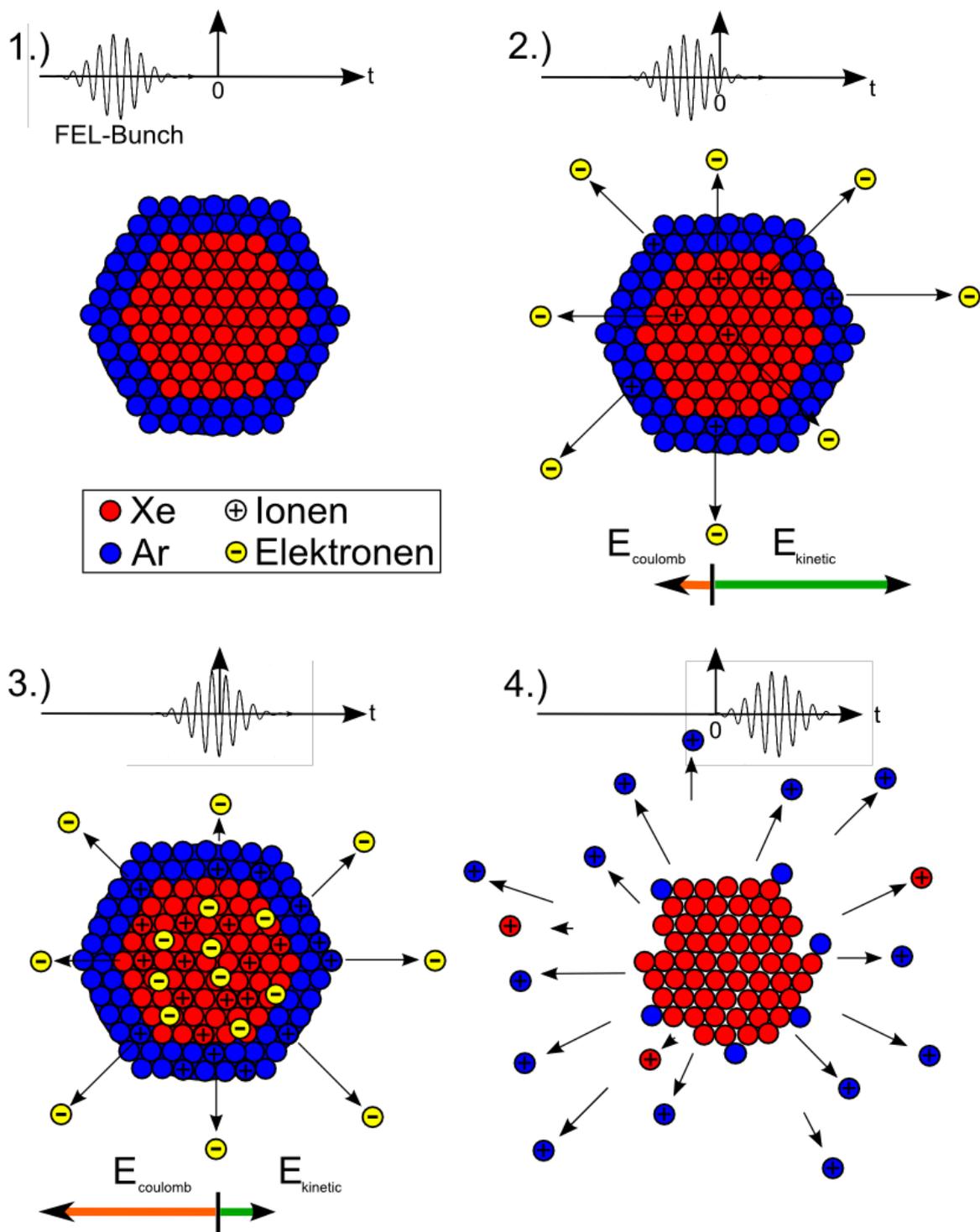
Im Folgenden werden Daten von verschiedenen großen ( $\langle N \rangle = 400$ ,  $\langle N \rangle = 4000$ ) XeAr-Clustern mit einer Core Shell Struktur vorgestellt. Die Anzahl der den Xe-Kern umschließenden Ar-Schalen wird durch die Größe des Clusters festgelegt. Wie es zur Ausbildung der Core Shell Struktur und zur Anreicherung der Gastatome kommt, wird ausführlich in Kapitel 2.2 diskutiert.

Für kleine Cluster,  $\langle N \rangle = 400$ , wird eine 2 % Xe in Ar-Gasmischung unter einem Gasdruck von 7 bar und einer Düsentemperatur von 300 K ins Vakuum expandiert (s. Abbildung 6.6). Die Fragmente mit der größten relativen Häufigkeit sind  $\text{Ar}^+$ ,  $\text{Xe}^+$ ,  $\text{Xe}_2^+$  und  $\text{Xe}_3^+$ . Größere Fragmente werden nicht beobachtet. Mehrfach geladene Xe-Ionen, wie sie in den atomaren und Xe-Cluster Spektren beobachtbar sind (s. Abbildung 6.4), werden hier nicht detektiert. Dies lässt wieder den Schluss zu, dass ein Ladungstransfer von hoch geladenen Xe-Atom zu den Atomen in der umliegenden Ar-Schale stattgefunden haben muss.

Messungen von anderen Gruppen zur Anreicherung von Gastatomen in Wirtskluster ergaben, dass für eine zwei prozentige Mischung von Xe in Ar eine Anreicherung von 7,5 bis 12,5 (somit insgesamt 15-25 %) erzielt wird [19, 21]. Die starke Anreicherung der Gastatome im Wirtskluster kann durch die größere Bindungsenergie der Xe-Atome im Vergleich zu Ar-Atomen erklärt werden. Die bei der Bindung von Xe-Atomen freiwerdende Energie führt zum Abdampfen von Ar-Atomen vom sich bildenden Cluster. Je höher das Mischungsverhältnis ist, desto stärker ist der Effekt der Anreicherung. Ein weiterer wichtiger Punkt ist, dass Xe-Atome besser clustern als Ar-Atome (s. Kapitel 2.2). Diese Anreicherung ergäbe einen Xe-Kern, der aus zwei Schalen besteht und von zwei Ar-Schalen umgeben wird (s. Tabelle 6.1 und 6.2).

Die Analyse des gemessenen Flugzeit- bzw  $q/m$ -Spektrums ergibt, dass das integrierte Signal des nachgewiesenen Xe genau so groß ist wie das von Ar, die Anreicherung also sogar noch größer ist als erwartet ( $\sim 50\%$ ). Die Abweichungen von den Werten die von anderen Gruppen ermittelt wurden, könnten sich durch verschiedene Expansionsbedingungen erklären lassen. Für eine Clustergröße von  $\langle N \rangle = 400$  ergibt sich demnach ein Xe-Kern bestehend aus drei Schalen, der von einer Ar-Schale umgeben ist (s. Tabelle 6.1 und 6.2).

Dem gegenüber steht das Fragmentationsverhalten von großen ( $\langle N \rangle = 4000$ ) Core-Shell XeAr-Clustern. Das TOF-Spektrum (s. Abbildung 6.6, unten) weicht stark von dem Spektrum für kleinere Cluster ab. Der detektierte relative Anteil des integrierten Xe-Signals zum Gesamtclustersignal beträgt nur noch 0,6 % und nicht wie bei den kleinen ( $\langle N \rangle = 400$ )  $\sim 50\%$ . Im starken Kontrast zu den kleineren XeAr-Clustern ( $\langle N \rangle = 400$ ) (s. Abbildung 6.6, oberer Teil) und den reinen Ar-Clustern (s. Abbildung 6.4, unterer Teil) ist die  $\text{Ar}^+$ -Linie das dominierende Signal. Große Xe-Fragmente (s. Abbildung 6.6, unterer Teil) und mehrfach geladene Xe-Ionen (s. Abbildung 6.4) werden nicht detektiert. Da wir annehmen können, dass die Xe-Atome mehrfach ionisiert werden (s. Abbildung 6.4), muss ein sehr effektiver Ladungstransfer zwischen den Ar- und Xe-Atomen stattfinden.



**Abbildung 6.7:** Schematische Darstellung der Wechselwirkung eines kurzen, hoch intensiven XUV-Pulses mit großen ( $\langle N \rangle = 4000$ ) XeAr-Clustern. 1.) Vor dem Puls besteht der Cluster aus einem Xe-Kern und einer Ar-Hülle. 2.) Zu Beginn des Pulses verlassen schnelle Photoelektronen von Ar- und Xe-Atomen den Cluster. Die kinetische Energie der Xe-Elektronen  $E_{kinetic}$  ist größer als die anziehende Coulombkraft  $E_{coulomb}$  (dargestellt durch zwei Vektoren). Der Cluster lädt sich positiv auf. 3.) Elektronen, die zu einem späteren Zeitpunkt im Kern angeregt werden, können das starke positive Coulomb-Feld nicht mehr verlassen und bilden als quasi-freie Elektronen zusammen mit den Ionen ein Nanoplasma (Coulombkraft ist größer als die kinetische Energie der Elektronen). Die äußere Ar-Hülle lädt sich weiter auf. 4.) Während die Ar-Hülle in einer Coulomb-Explosion disintegriert, rekombinieren die Ladungsträger im Kern zu neutralen Xe-Atomen. Aufgrund der thermischen Bewegung des Plasmas, expandiert der Kern sehr langsam.

| $\langle N \rangle$ | Schalen | Xe/Ar<br>Verhält. | erw.<br>Anreich. | Schale/Kern<br>Struktur | tats.<br>Anreich. | Schale/Kern<br>Struktur |
|---------------------|---------|-------------------|------------------|-------------------------|-------------------|-------------------------|
| 400                 | 4       | 2 %               | 15-25 %          | 2/2                     | 50 %              | 1/3                     |
| 4000                | 10      | 2 %               | 15-25 %          | 4/6                     | 0,6 %             | 8/2                     |
| $10^4$              | 14      | 0,01 %            | -                | stat.                   | 1,7 %             | stat.                   |
| $10^4$              | 14      | 1,5 mbar          | -                | stat.                   | 13 %              | stat.                   |

**Tabelle 6.2:** Zusammenstellung der wichtigsten experimentellen Parameter der XeAr-Cluster. Neben der mittleren Clustergröße ( $\langle N \rangle$ ) ist die Anzahl der Schalen (*Schalen*), das Mischungsverhältnis (*Xe/Ar Verh.*), die nach [19, 21] zu erwartende Anreicherung des Gastmaterials im Wirtcluster (*erw. Anreich.*), die daraus resultierende Struktur des Clusters (*Schale/Kern Struktur*), d.h. die Anzahl der inneren Xe-Schalen und die Anzahl der äußeren Ar-Schalen, die tatsächliche Anreicherung (*tats. Anreich.*) und die daraus resultierende Struktur des Clusters (*Schale/Kern Struktur*) aufgeführt.

Erzeugt werden die Cluster ebenfalls aus einem 2 % Xe in Ar-Gasgemisch. Der Prozess und die Stärke der Anreicherung des Gastatoms sollte somit der gleiche sein, wie bei den  $\langle N \rangle = 400$  Clustern. Der Expansionsdruck beträgt 17,6 bar und die Düsentemperatur 300 K. Aus den Daten muss zunächst die Annahme gezogen werden, dass der Xe-Kern aus nur 23 Atomen (0,6 %) (s. Tabelle 6.1) besteht und von ungefähr acht Ar-Schalen umgeben wird (s. Tabelle 6.2). Die Tatsache, dass wir nur einen sehr geringen Anteil an Xe nachweisen, ist sehr überraschend, da der eigentliche Anteil als viel größer angenommen werden kann (für Cluster mit  $\langle N \rangle = 400$  wurde ein Anreicherungsfaktor von 25 bestimmt). Verwendet man als Anreicherung den in [19, 21] bestimmten Faktor von 7,5-12,5, ergibt sich für die Clusterstruktur vor der Wechselwirkung ein Xe-Kern bestehend aus sechs Schalen und einer Ar-Hülle aus vier Schalen (s. Tabelle 6.2).

Da der gemessene relative Anteil von Xe für kleine Cluster ( $\langle N \rangle = 400$ , gleiches Gasgemisch) groß ist, muss die starke Abnahme des nachgewiesenen Xe-Anteils für große Cluster ( $\langle N \rangle = 4000$ ) in verschiedenen Fragmentationsprozessen begründet sein. Dieser Fragmentationsprozess scheint eine Größenabhängigkeit und somit eine Strukturabhängigkeit zu besitzen. Die Ar-Ionen, die vom Spektrometer detektiert werden, scheinen ihren Ursprung in den äußeren Schalen des Clusters zu haben, während die Xe-Ionen im Kern des Clusters neutralisiert werden und nicht nachgewiesen werden können. Wenn die Dicke der explodierenden äußeren Schale unabhängig von der Clustergröße ist, nimmt die Zahl der Ionen im Kern, die durch Rekombination neutralisieren können, mit der Clustergröße zu. Somit ist die Zahl der Ionen, die im  $\langle N \rangle = 4000$  Cluster rekombinieren können, größer als in  $\langle N \rangle = 400$  Clustern. Diese Ergebnisse und Interpretationen werden unterstützt durch aktuelle theoretische Arbeiten über Ladungs- und Energietransfer und Rekombination in Clustern nach Anregung durch kurze XUV Pulse [98, 127].

Um die starke Größenabhängigkeit zu verstehen, muss man sich den Ionisierungsprozess im Detail anschauen. Die einzelnen Schritte sind in Abbildung 6.7 schematisiert dargestellt. Elektronen, die zu Beginn des Laserpulses angeregt werden, absorbieren aus dem Feld genügend Energie, um den Cluster zu verlassen (Photoionisierung). Während-

dessen baut der sich positiv aufladende Cluster ein starkes Coulombfeld auf. Ionisierungsprozesse, die jetzt noch stattfinden (Photoionisierung, Auger-Effekte), führen zur *Inneren Ionisation* (s. Kapitel 3.3) [97]. Die Elektronen werden von einzelne Atomen getrennt, besitzen jedoch nicht genügend Energie, um das starke Coulombpotential des hoch geladenen Clusters zu verlassen. Das positive Coulombpotential des Clusterkerns ist so stark, dass Elektronen von Ar-Atomen aus der Hülle in den Kern gezogen werden. Die quasi-freien Elektronen und die Xe-Ionen bilden ein Nanoplasma. Während die stark geladene äußere Ar-Hülle durch die starke Coulombabstoßung vom Cluster getrennt wird (Coulomb-Explosion), kommt es im Kern zur Rekombination der Ladungsträger. Die geladenen Ar-Ionen aus der Clusterhülle können somit nachgewiesen werden, während die neutralisierten Xe-Atome aus dem Clusterkern für den Detektor unsichtbar sind (s. Abbildung 6.6). Da die Gesamtenergie, die benötigt wird, um  $N$  Elektronen aus einem Cluster mit  $N$  Atomen zu lösen, mit  $N^{5/3}$  <sup>7</sup> skaliert, ist es offensichtlich, dass der Anteil von Elektronen, die den Cluster verlassen können, stark mit der Clustergröße abnimmt.

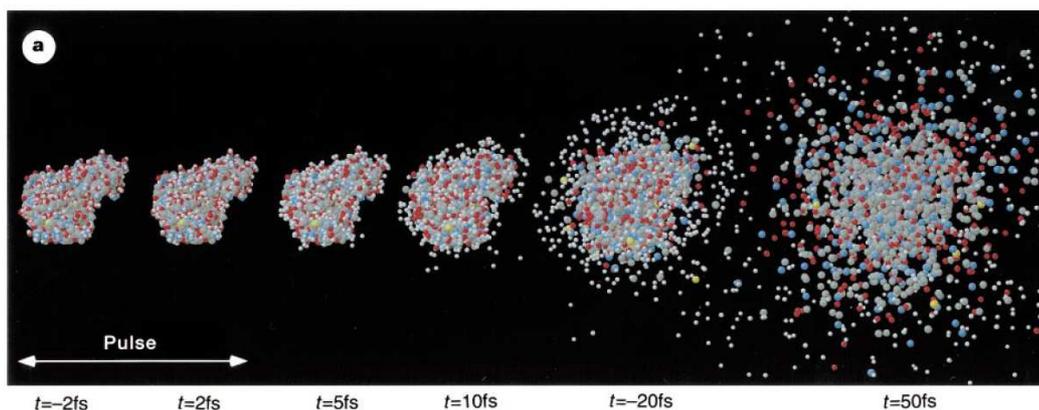
Für große reine Cluster erwarten wir ein ähnliches Verhalten. Hier ist der Nachweis der Rekombination jedoch sehr schwierig. Simulationen zeigen, dass während der Ladungsumverteilung und Neutralisierung der Kern des Clusters langsam expandiert [128]. Diese Hydrodynamische-Expansion (s. Kapitel 3.3) verläuft sehr viel langsamer ( $>ps$ ) [128] als die Coulomb-Explosion.

Diese gebremste oder verzögerte Expansion könnte sehr hilfreich sein für zukünftige Imaging-bzw. Streuexperimente mit intensiven XUV- oder Röntgen-Pulsen. In Kapitel 3.5 wurden bereits die Probleme, denen man bei Streuexperimenten mit intensiven Röntgen-Pulsen ausgesetzt werden könnte, dargestellt. Zukünftige Freie Elektronen Laser werden hoch intensive Röntgen-Pulse liefern mit denen strukturbestimmende Messungen mit atomare Auflösung möglich werden sollen. Die zunächst relativ lange Pulsdauer von 100-230 fs führt jedoch dazu, dass sich die Probe, die untersucht werden soll, schon während der Wechselwirkung derart verformt, dass Informationen über die Struktur verloren gehen. Simulation von S.P. Hau-Riege zeigen, dass diese, durch Coulomb Kräfte verursachte, Verformung verzögert werden kann, indem man um die zu untersuchende Probe eine Schutzschicht aus Wasser legt (s. Kapitel 3.5).

In den hier diskutierten Experimenten an XeAr-Mischclustern stellt die äußere Ar-Hülle genau so eine Schutzhülle dar, wie sie in den Simulationen angenommen wurde. Während die Ionen im Xe-Clusterkern mit den quasi freien Elektronen rekombinieren und somit die Expansion oder Verformung des Xe-Kerns verzögert wird, explodiert die hoch geladene Ar-Hülle und ihre geladenen Fragmente können nachgewiesen werden. Die Messungen zeigen somit zum ersten Mal, dass eine Verzögerung der Expansion eines Clusters durch eine Schutzhülle möglich ist.

---

<sup>7</sup>Für ein Atom skaliert die Energie um  $Z$  Ladungen  $e$  ins Kontinuum anzuheben mit  $Z^2$ . Für einen  $N$ -atomigen Cluster mit dem Radius  $r$  gilt  $r \sim N^{1/3}$ . Außerdem gilt  $E \sim Z^2/r$ . Somit skaliert die Energie, die benötigt wird mit  $N^2/N^{1/3} = N^{5/3}$ :



**Abbildung 6.8:** Simulation des Verhaltens eines T4 Lysozyms nach Anregung durch einen Röntgen-FEL-Puls (2 fs lang, 12 keV Photonenenergie, 1 Å Wellenlänge,  $3 \times 10^{12}$  Photonen pro  $100 \text{ nm}^2$ ). Durch kurze hochintensive Röntgenblitze wird es in Zukunft möglich sein, Momentaufnahmen in atomarer Auflösung von großen Biomolekülen zu erstellen. [129]

### 6.3 Abschließende Bemerkungen

In diesem Kapitel wurde der Fragmentationsprozess von Core-Shell XeAr-Cluster nach Anregung mit hoch intensiven XUV-Pulsen diskutiert. Das Fragmentationsverhalten zeigt eine starke Größen- und Strukturabhängigkeit der Cluster. Bei geringem Xe-Anteil findet ein effizienter Ladungstransfer von hoch geladenen Xe-Atomen zu benachbarten Ar-Atomen statt. Die Fragmentationsprodukte sind sowohl Ar-Ionen als auch molekulare XeAr-Ionen (s. Abbildung 6.5). Große Core-Shell XeAr-Cluster mit einem kleinen Xe-Kern, die von einer Ar-Schalen umgeben sind, zeigen eine sehr ungewöhnliche Fragmentationsdynamik. Die extrem reduzierte Intensität von Xe-Ionen im Flugzeitspektrum stützt die Annahme, dass Xe-Atome im Kern, die zu Beginn des Pulses ionisiert werden, mit quasi-freien Elektronen rekombinieren. Während die geladenen, äußeren Ar-Lagen eine Coulomb-Explosion vollführen, wird die Expansion des Xe-Kerns verzögert.

Die Verzögerung der Expansion einer Probe könnte für zukünftige Streuexperimente mit intensiven Röntgen-Pulsen [36, 106], in denen atomare Auflösung erzielt werden soll, von entscheidender Bedeutung sein. In erster Linie wird eine hohe Auflösung durch eine hohe Leistungsdichte und eine kurze Pulslänge erreicht. Da die Röntgenlaser jedoch lange Pulse ( $> 100 \text{ fs}$ ) erzeugen werden, muss die Leistungsdichte reduziert werden, damit auch bei längeren Pulsen atomare Auflösung erzielt werden kann. Ist eine Probe, zum Beispiel ein Lysozym, einem langen ( $\sim 50 \text{ fs}$ ) Lichtpuls ausgesetzt, verformt sich die Probe aufgrund abstoßender Coulomb-Kräfte und anschließender Coulomb-Explosion. Wenn die Explosion durch eine Schutzschicht verzögert wird, kann auch mit langen Pulsen eine hohe Ortsauflösung erzielt werden. Fraglich ist weiterhin, ob die innere Struktur der Probe erhalten bleibt, oder ob sie so stark gestört wird, dass jegliche Information verloren geht. In Abbildung 6.8 ist ein T4 Lysozym dargestellt, dass einem extrem kurzen (2 fs), intensiven ( $3 \times 10^{12}$  Photonen pro  $100 \text{ nm}^2$ ) Röntgenpuls (12 keV

Photonenenergie,  $1 \text{ \AA}$  Wellenlänge) ausgesetzt ist. Man sieht sehr deutlich, dass die Verformung (Coulomb-Explosion) erst lange nach dem Puls einsetzt. Auf diese Weise sollen in Zukunft mittels ultrakurzen Röntgenblitzen Momentaufnahmen von Clustern und Molekülen mit atomarer Auflösung erzielt werden.

# Kapitel 7

## Zusammenfassung und Ausblick

### 7.1 Zusammenfassung

Diese Arbeit hatte das Ziel, die Wechselwirkung von Pulsen weicher Röntgenstrahlung mit Nanoteilchen zu untersuchen. Um ein detailliertes Verständnis zu gewinnen, wurde die Fragmentationsdynamik von homogenen und heterogenen Edelgasclustern mit unterschiedlichen inneren Strukturen studiert.

Diese Untersuchungen wurden in zwei verschiedenen Regimen durchgeführt. Am Messplatz BW3 am HASYLAB/DESY wurde mit konventioneller Synchrotronstrahlung die durch Ein-Photonen-Prozesse induzierte Fragmentationsdynamik untersucht. Als Detektorsystem wurde ein mulikoinzidenzfähiges, impulsauflösendes Reaktionsmikroskop verwendet. Das Reaktionsmikroskop wurde im Rahmen dieser Arbeit aufgebaut und auf die speziellen Anforderungen der Clusterphysik optimiert.

Extrem intensive XUV-Pulse des FLASH FELs am HASYLAB/DESY ermöglichten die Untersuchung der Wechselwirkungsprozesse und der Fragmentationsdynamik im nicht linearen Regime.

Das Ziel der Synchrotron-Experimente war, das Fragmentationsverhalten von Edelgasclustern um die Rayleigh-Instabilitäts-Barriere ( $X = 1$ ) zu untersuchen. Dafür wurden Ne-Cluster und Xe-Cluster verwendet. Diese beiden Cluster stellen aufgrund ihrer komplementären inneren Struktur sehr interessante Systeme dar. Durch die gezielte Präparation und Ionisierung der Cluster konnten die verschiedenen Bereiche um die Rayleigh-Instabilitäts-Barriere untersucht werden. Für große, schwach geladene Cluster war nach dem Modell für flüssige Tropfen eine Spaltung zu erwarten ( $X < 1$ ) und für kleine, hoch geladene Cluster eine Explosion ( $X > 1$ ). Das klassische Modell für flüssige Tropfen von Lord Rayleigh wurde von Jortner und Mitarbeitern für Morse Cluster modifiziert. Ob dieses Modell auch für van der Waals gebundene Edelgascluster uneingeschränkt Gültigkeit besitzt, konnte bisher nicht nachgewiesen werden. Die Verwendung eines impulsauflösenden Reaktionsmikroskops ermöglichte es erstmals detaillierte Informationen über die Fragmentationsgeometrie von Clustern zu erhalten.

Die positiv geladenen Fragmente der Ne-Cluster zeigen für den Bereich der Spaltung ( $X < 1$ ) eine stark anisotrope Winkelverteilung und einen großen Ladungstrennungsabstand. Diese Ergebnisse lassen die Vermutung zu, dass sich die positiven Ladungen per hole hopping auf dem Cluster in entgegengesetzte Richtungen bewegen. Nach der Lokalisierung der Ladungen zu Dimeren heizt sich der Cluster durch die frei werdende Bindungsenergie auf und fragmentiert. Die anisotrope Winkelverteilung deutet darauf hin, dass die sich auseinander bewegenden geladenen Dimere auf ihrem Weg aus dem Cluster nicht durch Stöße mit neutralen Atomen abgelenkt werden. Die Ionen scheinen somit in den ohnehin schon als weich angenommenen Ne-Cluster eine hohe Mobilität zu besitzen. Dieses Ergebnis befindet sich in sehr guter Übereinstimmung mit den theoretischen Arbeiten zu den Fragmentationsprozessen von Morse-Clustern.

Die gemessene Winkelverteilung der Impulsvektoren aller geladenen Fragmente für den Fall der Spaltung von Xe-Clustern ist nahezu isotrop und der Ladungstrennungsabstand ist von der Größenordnung des interatomaren Abstandes und steht somit im Widerspruch zu dem Tröpfchen Modell. Die Ionen verlassen den Cluster von ihrem ursprünglichen Einbauplatz. Ladungstransfer zwischen den Atomen durch hole hopping scheint demnach nicht stattzufinden. Aus den Daten kann ebenfalls geschlossen werden, dass die Mobilität der Ionen in festen Xe-Clustern sehr gering ist.

In dem Bereich der Explosion ( $X > 1$ ) verhalten sich die Ne- und Xe-Cluster sehr ähnlich. Die Cluster fragmentieren isotrop in kleine geladene Fragmente. Aus der Bestimmung des Ladungstrennungsabstandes kann geschlossen werden, dass die Ionen den Cluster direkt nach dem Ladungstransfer verlassen. Diese Beobachtung stimmt mit den Simulationen von Jortner für Morse Cluster überein.

Aus den Daten kann man den starken Einfluss der inneren Struktur auf die Fragmentation von geladenen Systemen, speziell auf die Spaltung, erkennen. Während sich die Fragmentation der Ne Cluster sehr gut mit dem Modell für flüssige Tröpfchen erklären lässt, bestehen zur Spaltung von Xe-Cluster große Unterschiede.

Das in dieser Arbeit aufgebaute und für die Clusterphysik modifizierte Reaktionsmikroskop hat sich als ein sehr geeignetes Detektorsystem zur Untersuchung von Fragmentationsprozessen von Edelgasclustern erwiesen. Durch den impuls aufgelösten Nachweis aller positiv geladener Fragmente, die während eines Wechselwirkungsprozesses entstanden sind, war es möglich ein sehr detailliertes Bild des Fragmentationsprozesses zu erhalten.

Mit dem FLASH FEL steht seit Kurzem eine Lichtquelle für intensive XUV-Pulse zur Verfügung. Durch die Wechselwirkung der hoch intensiven, kurzwelligen Pulsen wird jedes Atom im Cluster ionisiert. Bisherige Untersuchungen zur Fragmentation hoch angeregten Systeme wurden ausschließlich an homogenen Clustern einer Atomsorte durchgeführt. In dem in dieser Arbeit vorgestellten Experiment wurde das Fragmentationsverhalten von mehrfach ionisierten heterogenen XeAr-Clustern mit einem Flugzeitspektrometer untersucht. Durch die Verwendung von zwei verschiedenen Clusterkonstituenten konnte anhand des Flugzeitspektrums der Ladungstransfer innerhalb des Clusters rekonstruiert werden. Es hat sich eine starke Abhängigkeit der Fragmentation von der Clusterzusammensetzung gezeigt. Für eine geringe Konzentration von Xe-Atomen in Ar-Clustern wurde ein effizienter Ladungstransfer des hochgeladenen Xe

zu den umgebenden Ar-Atomen beobachtet. Als Fragmentationsprodukte ergaben sich Ar-Ionen und XeAr-Mischfragmente. Große XeAr-Cluster, deren kleiner Xe-Kern von einer dicken Ar-Hülle (vier Atomlagen) umgeben wird, zeigen ein sehr erstaunliches Fragmentationsverhalten. Die geringe Häufigkeit von Xe-Fragmenten im Flugzeitspektrum lässt die Vermutung zu, dass Xe-Atome im Inneren des Clusters, die zu Beginn des Laser Pulses ionisiert wurden, zu einem späteren Zeitpunkt mit quasi-freien Elektronen zu neutralen Atomen rekombinieren. Während die hoch geladene Ar-Hülle in einer Coulomb-Explosion abgestoßen wird, kommt es zu einer Verzögerung der Expansion des Kerns. Diese Verzögerung könnte für zukünftige abbildende Verfahren mit Röntgenlasern von großer Bedeutung sein, da sie die strengen Anforderungen an die Pulslängen entspannt. Die Ergebnisse werden durch aktuelle theoretische Arbeiten gestützt.

## 7.2 Ausblick

In den hier vorgestellten Untersuchungen zur Clusterfragmentation mit einem Reaktionsmikroskop sind ausschließlich die positiv geladenen Fragmente analysiert worden. Die Dynamik der Elektronen, die auf einer fs-Zeitskala abläuft, ist gegenwärtig experimentell nicht untersucht und damit unverstanden. Durch die Bestimmung der kinetischen Energien der Elektronen ist eine genaue Unterscheidung zwischen Oberflächen- oder Volumenionisierung möglich. Auf diese Weise soll in zukünftigen Experimenten im Detail untersucht werden, welche Abhängigkeiten zwischen Fragmentationskanal und Ort (Oberfläche oder Volumen) der Ionisierung bestehen.

Bevor impuls aufgelöste Spektroskopie an fragmentierenden Makromolekülen wie z.B. Proteinen durchgeführt werden kann, für die erwartungsgemäß viele Fragmente nachzuweisen sein werden, muss die Mehrfach-Nachweis-Fähigkeit des Detektors verbessert werden. Diese Experimente könnten für das Verständnis der Relaxationsprozesse eines durch Strahlung geschädigten Biomoleküls von großer Bedeutung sein: Der Erfolg von Rückstreuungsmethoden zur Abbildung der atomaren Struktur von einzelnen Makromolekülen hängt nämlich wesentlich von der Stärke der Strahlenschäden ab. Auf dem Weg zu dem ambitionierten Ziel der Strukturbestimmung sollen zunächst die Relaxationsdynamiken von kleineren heterogenen Systemen wie dotierte Edelgascluster und größenselektierte Nanodiamanten untersucht werden.

Die Experimente zur Wechselwirkung hochintensiver XUV-Pulsen mit heterogenen Clustern haben eine Möglichkeit aufgezeigt, wie mit zukünftigen Röntgenlasern abbildende Untersuchungen mit atomarer Auflösung durchgeführt werden könnten.

Für das grundlegende Verständnis der Wechselwirkung von Materie mit hochintensiven Röntgenlasern, die ab 2009 in Stanford (USA) und ab 2011 in Hamburg in Betrieb genommen werden, sind Experimente notwendig, die die Energieabsorption von Atomen und Clustern untersuchen. Durch die hohe Intensität, die erstmals für diesen Wellenlängenbereich zugänglich sein wird, werden bisher nicht beobachtbare Effekte, wie die mehrfach Ionisation der atomaren K-Schale oder die *Giant Coulomb Explosion*,

erwartet [106]. Diese Experimente sind für alle weiteren Projekte an diesen neuartigen Lichtquellen von größter Bedeutung.

Die Zusammenführung des im Rahmen dieser Arbeit aufgebauten und für die Clusterphysik modifizierten Reaktionsmikroskops mit den neuartigen intensiven Röntgenlasern verspricht sehr interessante Ergebnisse zur Aufklärung der Fragmentationsdynamik von hochangeregten Proben zu liefern. Die multikoinzidente und impulsauflösende Messmethode könnte einen tiefen Einblick in bisher nicht beobachtbare, neuartige physikalische Prozesse der Energieabsorption und Fragmentationsdynamik von hoch angeregten Clustern bis hin zu komplexeren Molekülstrukturen liefern.

# Abbildungsverzeichnis

|      |  |    |
|------|--|----|
| 2.1  | Struktur von Edelgasclustern . . . . .   | 4  |
| 2.2  | P-T-Diagramm für Xenon . . . . .   | 5  |
| 2.3  | Skizze der Clustererzeugung und der Dotierung durch einen Querstrahl<br>(Pick-Up Cluster-Dotierung) . . . . .                                | 8  |
| 2.4  | Undulator-Magnetstruktur . . . . .   | 11 |
| 2.5  | Vergleich der Synchrotronstrahleigenschaften verschiedener Synchrotron-<br>generationen . . . . .  | 13 |
| 2.6  | SASE . . . . .   | 14 |
| 2.7  | Erzeugung von Mikrobunchen . . . . .   | 15 |
| 2.8  | Vergleich der Brillanzen verschiedener Strahlungsquellen . . . . .   | 16 |
| 3.1  | Wechselwirkungsquerschnitt $\sigma$ für Xenon . . . . .  | 18 |
| 3.2  | Nichtstrahlende Relaxationsprozesse . . . . .  | 19 |
| 3.3  | Zerfallskanäle von Xe $4d^{-1}$ . . . . .  | 20 |
| 3.4  | Flugzeitspektren von Xe-Atom gemessen bei verschiedenen Anregungs-<br>energien . . . . .   | 21 |
| 3.5  | Interatomic Coulombic Decay in einem Edelgasdimer. . . . .   | 24 |
| 3.6  | Fragmentationskanal für einen innerschalen angeregten Edelgascluster .   | 25 |
| 3.7  | PePiPiCo-Messung von Argon . . . . .   | 26 |
| 3.8  | Form der überlagerten Flugzeit-Signale von $\text{Ar}^+/\text{Ar}_2^+$ in Abhängigkeit<br>von der Clustergröße ( $N = 4, 10, 60$ ) . . . . . | 27 |
| 3.9  | Darstellung der Spaltungs-Barrier für einen geladenen Tropfen . . . . .  | 28 |
| 3.10 | Simulation der Explosion und Spaltung von Morse Clustern . . . . .   | 30 |

---

|      |  |    |
|------|--|----|
| 3.11 | Nicht lineare Ionisationsprozesse in starken Laserfeldern . . . . .                                      | 32 |
| 3.12 | TOF-Spektren von Clustern verschiedener Größe in hochintensiven VUV-Laserfeldern . . . . .               | 34 |
| 3.13 | Coulombpotential des Clusters zu drei verschiedenen Zeitpunkten der Wechselwirkung . . . . .             | 36 |
| 3.14 | Skizze eines Imaging-Experimentes . . . . .  | 37 |
| 3.15 | Pulsanforderungen für zukünftige Streuexperimente mit intensiver Röntgenstrahlung . . . . .              | 38 |
| 3.16 | Reduzierung der Cluster-Verformung durch eine Schutzhülle . . . . .                                      | 39 |
| 4.1  | Schematische Darstellung des COLTRIMS Detektors . . . . .  | 42 |
| 4.2  | Abzug der Ionen nach Wechselwirkung . . . . .  | 43 |
| 4.3  | Querschnitt eines MCPs . . . . .   | 44 |
| 4.4  | Prinzip der Delay Line Anode . . . . .   | 45 |
| 4.5  | Prinzip des Zusammenspiels MCP-DLA . . . . .   | 45 |
| 4.6  | Simulation von Trajektorien für die erste Version des COLTRIMS . . . . .                                 | 47 |
| 4.7  | Foto vom Reaktionsmikroskop Innenleben . . . . .   | 49 |
| 4.8  | Simulation der Trajektorien von Elektronen und Xe-Ionen der zweiten Reaktionsmikroskop-Version . . . . . | 50 |
| 4.9  | Zweite Version des Reaktionsmikroskops . . . . .   | 51 |
| 4.10 | Helmholtzspulen um die Kammer installiert . . . . .  | 52 |
| 4.11 | Flugzeitspektrum von atomaren Xe mit Isotopenaufspaltung . . . . .                                       | 52 |
| 4.12 | Vakuumdurchführung mit Pinzuordnung . . . . .  | 53 |
| 4.13 | Nachweiseffizienz eines MCP-Stacks als Funktion der kinetischen Energie . . . . .                        | 54 |
| 4.14 | Widerstandsverhältnisse der Abzugsfelder . . . . .   | 54 |
| 4.15 | Decouplingbox . . . . .  | 55 |
| 4.16 | Spannungsversorgung des Ionen-Detektors . . . . .  | 56 |
| 4.17 | Spannungsversorgung des Elektronen-Detektors . . . . .   | 57 |
| 4.18 | Signalverstärkung und -mischung . . . . .  | 59 |
| 4.19 | BitMask des Ionen-Detektors . . . . .  | 60 |
| 4.20 | FWHM vs. Signalhöhe des Ionen-Detektors . . . . .  | 61 |

---

|      |   |     |
|------|---|-----|
| 4.21 | Signale der Anoden und der MCPs . . . . .   | 62  |
| 4.22 | Skizze der Koinzidenz-Schaltung . . . . .   | 63  |
| 4.23 | Skizze des Data-Processings . . . . .   | 64  |
| 4.24 | Skizze des Reaktionsmikroskops mit allen für die Datenauswertung relevanten Größen . . . . .        | 66  |
| 4.25 | Darstellung von vier Elektronen-Trajektorien . . . . .  | 68  |
| 4.26 | x-fish-Diagramm . . . . .   | 69  |
| 4.27 | Skizze der Gyrationbahn eines Elektrons . . . . .   | 70  |
| 5.1  | Schematische Darstellung von Vakuumkammer und COLTRIMS . . . . .                                    | 74  |
| 5.2  | Ionen-Detektorbilder mit Ortsfilter . . . . .   | 77  |
| 5.3  | Flugzeitspektrum von Xe <sub>55</sub> -Cluster nach Anregung mit $h\nu = 80$ eV . . . . .           | 79  |
| 5.4  | Fragmentationskanäle von Ne- und Xe-Cluster unterschiedlicher Fissilität . . . . .                  | 81  |
| 5.5  | Emissionscharakteristik der Ionen . . . . .   | 82  |
| 5.6  | Winkelverteilung von Ne und Xe-Cluster-Fragmente für die Spaltung und Explosion . . . . .           | 83  |
| 5.7  | Kinetische Energie von Xe-Cluster-Fragmente . . . . .   | 85  |
| 5.8  | Anordnung von sechs Ionen in einem Cluster . . . . .  | 88  |
| 5.9  | Darstellung der Spaltung eines Ne-Clusters . . . . .  | 89  |
| 5.10 | Darstellung der Spaltung eines Xe-Clusters . . . . .  | 91  |
| 5.11 | Darstellung der Explosion eines Xe-Clusters . . . . .   | 94  |
| 5.12 | Darstellung der Explosion eines Ne-Clusters . . . . .   | 95  |
| 5.13 | Simulierte Struktur eines dotierten Edelgasclusters . . . . .                                       | 98  |
| 5.14 | Diamantoide . . . . .   | 99  |
| 6.1  | Skizze des Experiments am FLASH FEL . . . . .   | 103 |
| 6.2  | Refokussierung des FEL Pulses . . . . .   | 104 |
| 6.3  | TOF Spektrometer . . . . .  | 105 |
| 6.4  | q/m Spektren von Xe-Atomen und reinen Xe- und Ar-Clustern . . . . .                                 | 106 |
| 6.5  | q/m Spektren von Ar <sub>N</sub> -Clustern mit $\langle N \rangle = 10000$ dotiert mit Xe . . . . . | 108 |

|     |   |     |
|-----|---|-----|
| 6.6 | q/m Spektrum von $\text{Ar}_N$ -Clustern dotiert mit Xe . . . . .   | 110 |
| 6.7 | Schematische Darstellung des Ionen-Rekombinationprozesses . . . . . | 112 |
| 6.8 | Explosion eines T4 Lysozyms . . . . .                               | 115 |

# Tabellenverzeichnis

|     |   |     |
|-----|---|-----|
| 2.1 | k-Parameter für verschiedene Edelgase . . . . .   | 5   |
| 3.1 | Relative Häufigkeit der Ladungszustände von Xe-Atomen nach dem An-<br>regen verschiedener Photonenenergien. . . . . | 20  |
| 3.2 | Beschreibung der Cluster-Licht-Wechselwirkung in sechs Schritten nach<br>H. Haberland [42]. . . . .                 | 22  |
| 5.1 | Auflistung der gemessenen Fissilitäten . . . . .  | 75  |
| 5.2 | Zusammenfassung aller Fragmentationsparameter für Ne und Xe . . . . .   | 96  |
| 6.1 | Magische Zahlen und Schalenbau . . . . .  | 107 |
| 6.2 | Core-Shell Strukturen der gemessenen Mischcluster . . . . .   | 113 |



# Literaturverzeichnis

- [1] A. W. Castleman Jr. and P. Jena, PNAS **103**, 10552 (2006).
- [2] A. W. Castleman Jr. and P. Jena, PNAS **103**, 10554 (2006).
- [3] P. Jena and A. W. Castleman Jr., PNAS **103**, 10560 (2006).
- [4] P. Cheng, J. Spencer Baskin, and A. Zewail, PNAS **103**, 10570 (2006).
- [5] F. Federmann, O. Bjørneholm, A. Beutler, and T. Möller, Phys. Rev. Lett. **73**, 1549 (1994).
- [6] O. Bjørneholm, F. Federmann, F. Fössing, and T. Möller, Phys. Rev. Lett. **74**, 3017 (1995).
- [7] J. Stapelfeld, J. Wörmer, and T. Möller, Phys. Rev. Lett. **62**, 98 (1989).
- [8] L. Bergmann, C. Schäfer, and K. Kleinermanns, *Lehrbuch der Experimentalphysik: 5. Gase, Nanosysteme, Flüssigkeiten*, Wilhelm Raith, Walter de Gruyter, 2005.
- [9] D. Miller, *Atomic and molecular beam methods, Free jet expansion*, volume 1, Scoles, G., 1988.
- [10] M. Joppien, *Lumineszenzspektroskopische Untersuchung der elektronischen Anregung von Helium- und Neon-Clustern*, Dissertation, DESY, 1994.
- [11] O. Hagen and W. Obert, J. of Chem. Phys. **56**, 1793 (1972).
- [12] O. Hagen, Phys. of Fluids **17**, 984 (1974).
- [13] O. Hagen, Surf. Sci. **106**, 101 (1981).
- [14] J. Stapelfeld, *CLULU: Ein neues Experiment für Fluoreszenzuntersuchungen an Edelgas-Clustern vom Dimer zum Mikrokristall*, Dissertation, DESY, 1989.
- [15] O. Hagen, Z. Phys. **D4**, 291 (1987).
- [16] U. Buck, *Methods for Production of (nearly) Mass Selected Neutral Cluster Beams*, volume 52 of *Springer Series in Chemical Physics*, Haberland, H., 1994.
- [17] U. Buck and H. Meyer, Phys. Rev. Lett. **52**, 109 (1984).

- 
- [18] U. Buck and R. Krohne, *J. Chem. Phys.* **105**, 5408 (1996).
- [19] M. Tschaplyguine et al., *Phys. Rev. A* **69**, 0312011 (2004).
- [20] M. Lengen, M. Joppien, R. Müller, J. Wörmer, and T. Möller, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 2362 (1992).
- [21] O. Danylchenko, Y. Doronin, S. Kovalenko, and V. Samovarov, *JETP Letters* **84**, 324 (2006).
- [22] A. Lindblad et al., *Phys. Chem. Chem. Phys.* **8**, 1899 (2006).
- [23] T. Laarmann, *Elektronische und geometrische Eigenschaften von dotierten Edelgasclustern mit Schalenstruktur*, Dissertation, DESY, 2001.
- [24] R. von Pietrowski, *Spektroskopische Untersuchungen an edelgasdotierten Edelgasclustern*, Dissertation, DESY, 1997.
- [25] M. Rutzen, S. Kakar, C. Rienecker, R. von Pietrowski, and T. Möller, *Z. Phys. D* **38**, 89 (1996).
- [26] R. von Pietrowski et al., *Eur. Phys. J. D* **38**, 323 (2006).
- [27] H. Vach, *Journ. of Chem. Phys.* **113**, 1097 (2000).
- [28] H. Vach, *Phys. Rev B* **59**, 13413 (1999).
- [29] H. Vach, *Journ. of Chem. Phys.* **111**, 3536 (1999).
- [30] I. Fugol, *Advances in Physics* **27**, 1 (1978).
- [31] D. Attwood, *Soft x-rays and extreme ultraviolet radiation, principles and applications*, Cambridge University Press, 2000.
- [32] <http://de.wikipedia.org>.
- [33] [www.HASYLAB.de](http://www.HASYLAB.de).
- [34] W. Ackermann and et al., *Nature Photonics* **1**, 336 (2007).
- [35] J. Schneider, *FLASH. The Free-Electron Laser in Hamburg*, DESY, 2007.
- [36] J. Schneider and et al., *XFEL Design Report*, HASYLAB, DESY, 2001.
- [37] C. Larsson et al., *Nuc. Ins. Meth. Phys. Res. Section A* **337**, 603 (1994).
- [38] B. Bransden and C. Joachain, *Physics of Atoms and Molecules*, Prentice Hall, 2003.
- [39] B. Bransden and C. Joachain, *Introduction to Quantum Mechanics*, Longman Scientific and Technical, 1989.
- [40] U. Becker and D. A. Shirley, *VUV and soft x-ray photoionization*, Physics of atoms and molecules, Plenum, 1996.

- [41] D. Chattaji, *The Theorie of Auger Transitions*, Academic Press London, New York, San Francisco, 1976.
- [42] H. Haberland, *Clusters of Atoms and Molecules*, volume 52 of *Springer Series in Chemical Physics*, Haberland, H., 1994.
- [43] E. Rühl, *Int. J. M. Spec.* **229**, 117 (2003).
- [44] E. Rühl et al., *J. Chem. Phys.* **95**, 6544 (1991).
- [45] M. Gisselbrecht et al., *J.Chem.Phys.* **123**, 194301 (2005).
- [46] D. Rolles et al., *Phys. Rev. A* **75**, 031201 (2007).
- [47] H. Haberland, *Surface Science* **156**, 305 (1985).
- [48] N. Ashcroft and N. Mermin, *Solid State Physics*, Cengage Learning / Thomson, 1976.
- [49] N. Schwentner, E. Koch, and J. Jortner, *Electronic Excitations in Condensed Rare Clusters*, volume 107 of *Springer Tracts in Modern Physics*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York Tokyo, 1985.
- [50] L. Cederbaum, J. Zobeley, and F. Tarantelli, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 4778 (1997).
- [51] J. Zobeley, R. Santra, and L. Cederbaum, *J. Chem. Phys.* **115**, 5076 (2001).
- [52] T. Jahnke et al., *Phys. Rev. Lett.* **93**, 163401 (2004).
- [53] R. Santra, J. Zobeley, and L. Cederbaum, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 4490 (2000).
- [54] S. Marburger, O. Kugeler, U. Hergenhahn, and T. Möller, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 203401 (2003).
- [55] P. Dehmer and S. Pratt, *J. Chem. Phys.* **76**, 843 (1982).
- [56] H. Langhoff, *J. Phys. B* **27**, L706 (1994).
- [57] H. Langhoff, *Optics Communications* **68**, 31 (1988).
- [58] G. Zimmerer, *Creation, Motion and Decay of Excitons in Rare-Gas Solids, Excited-State Spectroscopy in Rare-Gas Solids*, Soc. Italiana di Fisica, 1987.
- [59] D. Hagan and J. Eland, *Rapid Comm. in M. Spec.* **3**, 186 (1989).
- [60] J. Eland, *Molec. Phys.* **61**, 725 (1987).
- [61] S. Hsieh and J. Eland, *Rapid Comm. in M. Spec.* **9**, 1261 (1995).
- [62] S. Hsieh and J. Eland, *J. Phys. B-Atomic Mol. Opt. Phys.* **30**, 4515 (1997).
- [63] P. Morin, M. Lavollée, and M. Simon, *Proceeding of the 10th VUV conference, Paris*, 211 (1992).

- [64] A. de Fanis et al., J. Phys. B: Atomic, Mol. Opt. Phys. **37**, 235 (2004).
- [65] L. Rayleigh, Philos. Mag. A **94**, 184 (1882).
- [66] J. Gay and B. Berne, Phys. Rev. Lett. **49**, 194 (1982).
- [67] R. Casero, J. Saenz, and J. Soler, Phys. Rev. Lett. **37**, 1402 (1988).
- [68] O. Echt et al., Phys. Rev. A **38**, 3236 (1988).
- [69] N. Bohr and J. A. Wheeler, Phys. Rev. Lett. **56**, 426 (1939).
- [70] O. Hahn and F. Strassmann, Naturwissenschaften **27**, 426 (1939).
- [71] L. Meitner and O. Frisch, Nature **400**, 242 (1939).
- [72] U. Näher, S. Bjørneholm, F. S., F. Garcias, and C. Guet, Phys. Rep. **285**, 245 (1997).
- [73] F. Chandezon et al., Phys. Rev. Lett. **87**, 153402 (2001).
- [74] I. Last, Y. Levy, and J. Jortner, J. Chem. Phys. **123**, 154301 (2005).
- [75] J. Jortner, L. Isidore, and Y. Levy, Int. J. M. Spec. **249-250**, 184 (2006).
- [76] D. Duft, T. Achtzehn, R. Müller, B. Huber, and T. Leisner, Nature **421**, 128 (2003).
- [77] F. Buff and R. Lovett, *Simple Dense Fluids*, Academic Press, Frisch, H.L, 1968.
- [78] J. Barker, Mol. Phys. **80**, 815 (1993).
- [79] I. Last, Y. Levy, and J. Jortner, PNAS **99**, 9107 (2002).
- [80] J. Krause, K. Schaefer, and K. Kulander, Phys. Rev. Lett. **68**, 3535 (1992).
- [81] A. LHuillier and P. Balcou, Phys. Rev. Lett **70**, 774 (1993).
- [82] P. Bucksbaum, Science **317**, 766 (2007).
- [83] H. Kapteyn, Science **317**, 775 (2007).
- [84] E. Goulielmakis, Science **317**, 769 (2007).
- [85] V. Bonacic-Koutecky, R. Mitric, U. Werner, L. Wöste, and R. Berry, PNAS **103**, 10594 (2006).
- [86] J. Purnell, E. Snyder, S. Wei, and A. J. Castleman, Chem. Phys. Lett. **229**, 333 (1994).
- [87] T. Ditmire et al., Nature **398**, 489 (1999).
- [88] T. Ditmire, Phys. Rev. A **57**, 4094 (1998).
- [89] T. Ditmire et al., Phys. Rev. Lett. **78**, 3121 (1997).

- 
- [90] L. Keldysh, JETP **20**, 1307 (1965).
- [91] H. Wabnitz et al., Nature **420**, 482 (2002).
- [92] V. Ayvazyan and et al., Eur. Phys. J. D **37**, 297 (2006).
- [93] H. Wabnitz, *Interaction of Intense VUV Radiation from a Free-Electron Laser with Rare Gas Atoms and Clusters*, Dissertation, DESY, 2003.
- [94] T. Laarmann et al., Phys. Rev. Lett. **95**, 063402 (2005).
- [95] T. Laarmann et al., Phys. Rev. Lett. **94**, 02301 (2004).
- [96] H. Wabnitz et al., Phys. Rev. Lett. **94**, 023001 (2005).
- [97] I. Last and J. Jortner, Phys. Rev. B **62**, 013201 (2000).
- [98] C. Siedschlag and J. Rost, Phys. Rev. Lett. **93**, 043402 (2004).
- [99] C. Siedschlag and J. Rost, Phys. Rev. A **67**, 016404 (2003).
- [100] K. Gaffney and H. Chapman, Science **316**, 1444 (2007).
- [101] H. Chapman and et al., Nature Physics **2**, 839 (2006).
- [102] C. Bostedt et al., (to be publishes).
- [103] M. Drescher and et al., Nature **419**, 803 (2002).
- [104] H. Chapman and et al., Nature **448**, 676 (2007).
- [105] S. Hau-Riege, R. London, G. Hultdt, and H. Chapman, Phys. Rev. E **71**, 61919 (2005).
- [106] R. Freeman, P. Bucksbaum, K. Kulander, L. Young, and R. Falcone, *LCLS, The first experiments-Atomic Physics Experiment*, SLAC, 2000.
- [107] S. Hau-Riege et al., Phys. Rev. Lett. **98**, 145502 (2007).
- [108] J. Ullrich et al., Rep. Prog. Phys. **66**, 1463 (2003).
- [109] R. Dörner et al., Phys. Rep. **330**, 96 (2000).
- [110] R. Dörner, H. Giesen, R. Moshhammer, and H. Rottke, Physik. Bltter **49** (2001).
- [111] T. Weber et al., Nature **405**, 658 (2000).
- [112] T. Weber et al., Phys. Rev.Lett. **84**, 443 (2000).
- [113] T. Weber, *Untersuchung der verschränkten Bewegung freier Elektronenpaare emittiert aus Ein- und Zweizentren Coulomb-Potentialen in Photonenabsorptionsprozessen*, Dissertation, Institut für Kernphysik Frankfurt, Frankfurt a. M., 2003.

- 
- [114] RoentDek, Position and time sensitive multi-hit mcp delay-line detector system, [www.roentdek.com](http://www.roentdek.com).
- [115] W. Wiley and I. McLaren, *The Review of Scientific Instruments* **26**, 1150 (1955).
- [116] M. Schoffler, *Grundzustandskorrelationen und dynamische Prozesse untersucht in Ion-Helium-Sten*, Dissertation, Institut für Kernphysik Frankfurt, Frankfurt a. M., 2006.
- [117] CERN, An object-oriented data analysis-framework, <http://root.cern.ch/>.
- [118] M. Hoener et al., to be published (2007).
- [119] H. Murakami, K. Nagaya, Y. Ohmasa, H. Iwayama, and M. Yao, *J. Chem. Phys.* **126**, 054306 (2007).
- [120] Diese Aussage basiert auf einer Diskussion mit Prof. E. Rühl.
- [121] M. Hoener et al., to be published (2007).
- [122] T. Willey et al., *Phys. Rev. Lett.* **95**, 113401 (2005).
- [123] K. Lenzke et al., *J.Chem. Phys.* **127**, 84320 (2007).
- [124] R. Moshhammer et al., *Phys. Rev. Lett.* **98**, 203001 (2007).
- [125] A. Sorokin et al., *Phys. Rev. Lett.* **99**, 213002 (2007).
- [126] T. Feigel, S. Yulin, N. Benoit, and N. Kaiser, *Microelectronic Engineering* **83**, 703 (2006).
- [127] M. Rusek and A. Orłowski, *Phys. Rev. A* **71**, 043202 (2005).
- [128] B. Ziaja, H. Wabnitz, E. Weckert, and T. Möller, to be published (2007).
- [129] R. Neutze, R. Wouts, D. van der Spoel, E. Weckert, and J. Hajdu, *Nature* **406**, 752 (2000).

# Danksagung

Auf diesem Weg möchte ich mich bei all denjenigen bedanken, die zu dem Erfolg dieser Arbeit beigetragen und mich während der gesamten Zeit unterstützt haben.

Zunächst möchte ich mich bei Thomas Möller dafür bedanken, dass er mir die Möglichkeit gegeben hat, diese Arbeit anzufertigen, und dafür dass er mich durch seinen Enthusiasmus und Spass an der Physik stets motiviert hat. Dieser Dank gilt auch Christoph Bostedt, der mich durch seine uneingeschränkte Betreuung in allen Belangen unterstützt hat.

Peter Zimmermann danke ich für die Übernahme des zweiten Berichters dieser Arbeit und die freundliche Aufnahme unserer neuen Arbeitsgruppe im IAPF an der TU Berlin. Heiko Thomas möchte ich ganz besonders danken für die Zeit, die wir im Labor und während den Messzeiten zusammen verbracht haben, sowie für die entspannte Atmosphäre.

Besonderer Dank gilt auch Sebastian Schorb, der während den letzten Monaten sehr tatkräftig an dem COLTRIMS Projekt mitgearbeitet und einen großen Beitrag zum Erfolg geleistet hat.

Außerdem möchte ich mich bei Horst Schmidt-Böcking, Reinhard Dörner und Ottmar Jagutzki für die vielen hilfreichen Diskussionen und Hilfestellungen bezüglich des COLTRIMS Detektors bedanken. Hervorgehoben sei die Hilfe von Lutz Foucar, der die Software zur Datenaufnahme und -analyse geschrieben hat und uns immer mit Rat und Tat zur Seite stand.

Lasse Landt, Rainer Unterumsberger, Katja Eremina und Tobias Lau danke ich für die vielen Diskussionen sowie den Rest der AG Möller für die nette Arbeitsatmosphäre. Der elektronischen und mechanischen Werkstatt des IOAPs danke ich für alle Sachen, die sie für mich angefertigt haben.

Hubertus Wabnitz möchte ich danken für die vielen hilfreichen Diskussionen und für die Unterstützung während allen Messzeiten.

Besonderer Dank gilt meiner gesamten Familie und allen Freunden für ihre Interesse an dem was ich da so mache und Christine für ihr unendliches Verständnis.

Diese Arbeit wurde durch das Virtuelle Institut VH-VI-103 und durch das BMBF 05KS4KTC1 und 05KS7KT1 finanziell gefördert.