

Abbildung 61: Links: Schnitt durch das Betragsquadrat der dreidimensionalen Fouriertransformierten der Elektronendichte eines Makromoleküls. Rechts: wie links, jedoch für einen in allen drei Raumrichtungen fünf Elementarzellen großen Kristall des gleichen Makromoleküls der gleichen Orientierung. Die Intensität ist nach einer logarithmischen Farbskala aufgetragen.

# Hamburger Synchrotronstrahlungslabor HASYLAB

Leiter: J.R. Schneider, DESY

**Im Hamburger Synchrotronstrahlungslabor HASYLAB wird die von Positronen bzw. Elektronen in den Speicherringen DORIS III und PETRA II emittierte Synchrotronstrahlung in vielfältiger Weise in Grundlagen- und anwendungsbezogener Forschung auf den Gebieten der Physik, Biologie, Chemie und Kristallographie, in den Material- und Geowissenschaften sowie der Medizin eingesetzt. Dabei wird das weite Spektrum der elektromagnetischen Strahlung vom sichtbaren Licht bis zum harten Röntgengebiet genutzt und ein Energiebereich von etwa 1 eV bis zu 300 keV überstrichen. Zusätzlich zum Betrieb der Nutzereinrichtung beteiligt sich HASYLAB an der Ausbildung von Studenten der Physik über eine enge Zusammenarbeit mit dem Institut für Experimentalphysik der Universität Hamburg.**

Eine Außenstation des Europäischen Labors für Molekularbiologie EMBL sowie drei Arbeitsgruppen für strukturelle Molekularbiologie der Max-Planck-Gesellschaft führen an neun Messplätzen Untersuchungen zur Bestimmung biologischer Strukturen durch. Ein neuer Messplatz für Proteinkristallographie wurde errichtet und von einem Konsortium, bestehend aus dem EMBL, dem Institut für Makromolekulare Biologie (IMB) in Jena und dem Institut für Medizinische Biochemie und Molekulare Biologie des Universitätskrankenhauses Eppendorf (Hamburg) im Herbst 2001 in Betrieb genommen.

Das Engagement von EMBL für seine Außenstation in Hamburg hat kürzlich stark zugenommen. Die Zahl der verfügbaren permanenten Stellen in der Außenstation wird von 29 im Jahr 2000 auf 38 im Jahr 2003 steigen, die Labor- und Büroräume werden um 400 m<sup>2</sup> erweitert.

Nach zwei Jahren Vorbereitung hat die Biotech Firma Thetis-Institut für biomolekulare Naturstoffforschung IBN (Hamburg) ihre Arbeit auf dem DESY Gelände aufgenommen. Thetis bietet in Hamburg das komplette Spektrum der Wirkstoffentwicklung vom ma-

rinen Makro- und Mikroorganismus über Isolierung und Strukturaufklärung der aktiven Substanz, Toxikologie, Struktur-Aktivitäts- und Wirkstoff-Rezeptor-Beziehung bis hin zu den ersten Phasen der klinischen Studien. Die technische Ausstattung der Firma, einschließlich dreier NMR Spektrometer bei 500 und 800 MHz sowie zweier Massenspektrometer, ergänzt hervorragend die Messplätze für molekularbiologische Strukturuntersuchungen am Speicherring DORIS III.

Im Rahmen eines wissenschaftlichen Kolloquiums im März 2001 bei DESY wurden die wissenschaftlichen Perspektiven und die technische Realisierung von TESLA vorgestellt, wie sie auch im Technical Design Report nachzulesen sind. Das Treffen mit mehr als 1000 Teilnehmern, 40% davon aus dem Ausland, hat durch die neuen Forschungsmöglichkeiten, die durch den Linearbeschleuniger und das X-Ray Free Electron Laser (XFEL) Labor in Reichweite kommen, eine ungewöhnliche Aufregung hervorgerufen.

Am Freie-Elektronen Laser der TESLA Test Facility (TTF) wurde die Sättigung des SASE Prozesses am 10. September 2001 bei 98 nm erreicht. Dies ist die kürzeste Wellenlänge, die bisher von einem Freie-Elektronen Laser erreicht wurde. Die Pulsleistung von 1 GW wurde erreicht bei einer Pulslänge von 30–100 fs, die gemessene Pulsbrillanz von  $10^{28}$  Photonen/(sec · mrad<sup>2</sup> · mm<sup>2</sup> · 0.1% Bandbreite) ist tatsächlich um neun Größenordnungen größer als der Wert, der heutzutage an den besten Synchrotronstrahlungsquellen der dritten Generation in diesem Wellenlängenbereich erreicht werden kann. Die mittlere Leistung betrug ungefähr 5 mW, die mittlere Brillanz  $10^{17}$  Photonen/(sec · mrad<sup>2</sup> · mm<sup>2</sup> · 0.1% Bandbreite). Die Strahlung wurde sorgfältig charakterisiert und alle Ergebnisse stimmen sehr gut mit der Theorie überein. Dieser Erfolg wird weltweit als ein Durchbruch auf dem Weg zum 0.1 nm Röntgenlaser gesehen (Abb. 62).

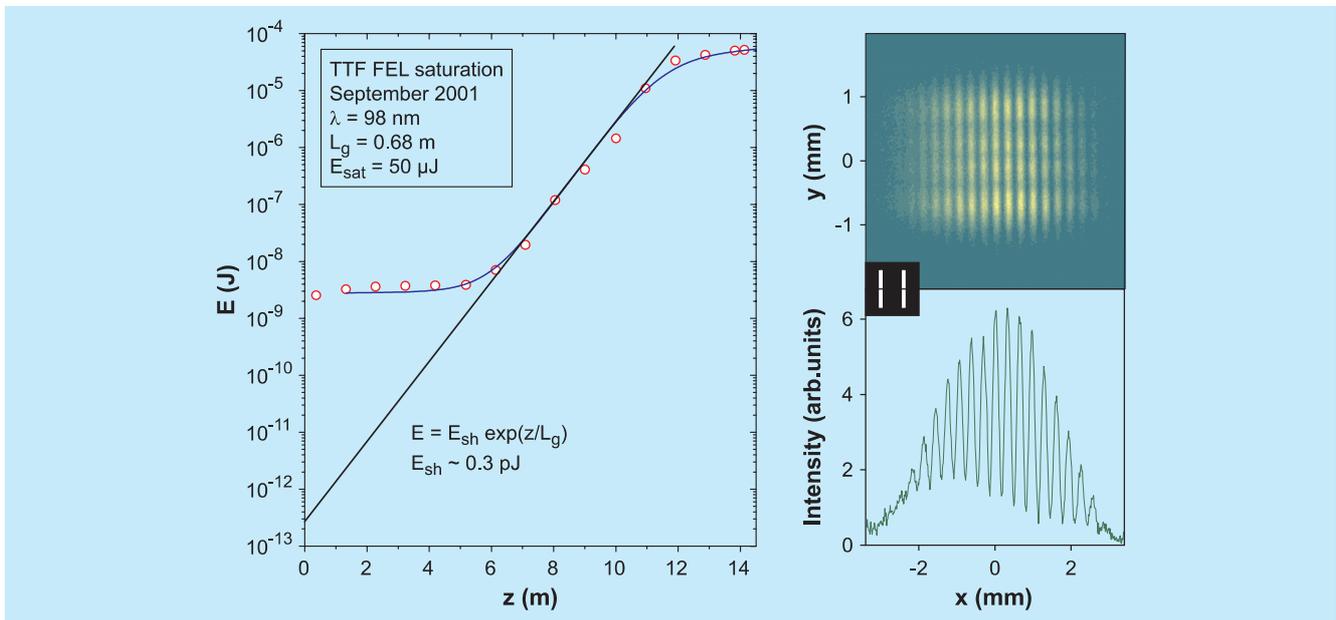


Abbildung 62: Entwicklung der mittleren Strahlungspulsenergie entlang des Undulators. Experimentelle Daten: Kreise, numerische Simulation: durchgezogene Linie. Rechts: Beugung der 95 nm FEL-Strahlung am Doppelspalt, die mit einer CCD-Kamera auf einem Ce:YAG Kristall beobachtet wurde. Die Spalte waren  $200 \mu\text{m}$  breit,  $2 \text{ mm}$  lang und  $1 \text{ mm}$  voneinander getrennt.

Bereits wenige Wochen nach dem Erreichen der Sättigung am TTF FEL wurden erste Ablationsexperimente erfolgreich durchgeführt. Die gemessene Schwelle für die Schädigung von Spiegelmaterialien bei der Festlegung der Beamlines und der optischen Komponenten für die VUV FEL Nutzereinrichtung, die im Jahr 2004 verfügbar sein wird, ist höher als angenommen wurde. In einem weiteren Experiment wurde die Coulomb-Explosion an freien Xenon-Clustern untersucht.

Die Vorstudien für die mögliche Verbesserung der Speicherringe DORIS und PETRA wurden beendet und in einem ersten Schritt mit Vertretern der HASYLAB Hauptnutzerguppen diskutiert.

An den Workshops im Juli und an einem für alle Nutzer offenen Workshop im Oktober haben etwa 150 Nutzer teilgenommen. In Übereinstimmung mit den Empfehlungen des „Komitee für Synchrotronstrahlung“, das die deutsche Synchrotronstrahlungsgemeinde repräsentiert, wurde ganz klar die PETRA-Option bevorzugt, unter der Voraussetzung, dass der Betrieb des

DORIS-Speicherringes in seiner momentanen Konfiguration fortgesetzt wird.

Die Leistung heutiger Quellen der dritten Generation kann bei PETRA übertroffen werden, wenn hier zusätzliche Dämpfungswiggler eingebaut werden (Abb. 63). Ein Abschnitt in der Größe eines Achtels des  $2.3 \text{ km}$  großen Umfangs des PETRA-Speicherringes muss komplett neu gebaut werden, um die Errichtung von etwa 13 Undulatorstrahlrohren zu ermöglichen.

In Übereinstimmung mit den Empfehlungen des Erweiterten Wissenschaftlichen Rates und des Verwaltungsrates von DESY wurde die Entscheidung getroffen, mit der Errichtung einer dedizierten Synchrotronstrahlungsquelle im PETRA-Speicherring im Januar 2007 zu beginnen. Detaillierte Designstudien für diese Einrichtungen sollen im Januar 2002 beginnen.

Als nächstes soll zwischen den Optionen entschieden werden, entweder den existierenden Booster-Ring zu modifizieren oder einen zweiten neuen Ring in den existierenden PETRA-Tunnel einzubauen. Zusätzliche

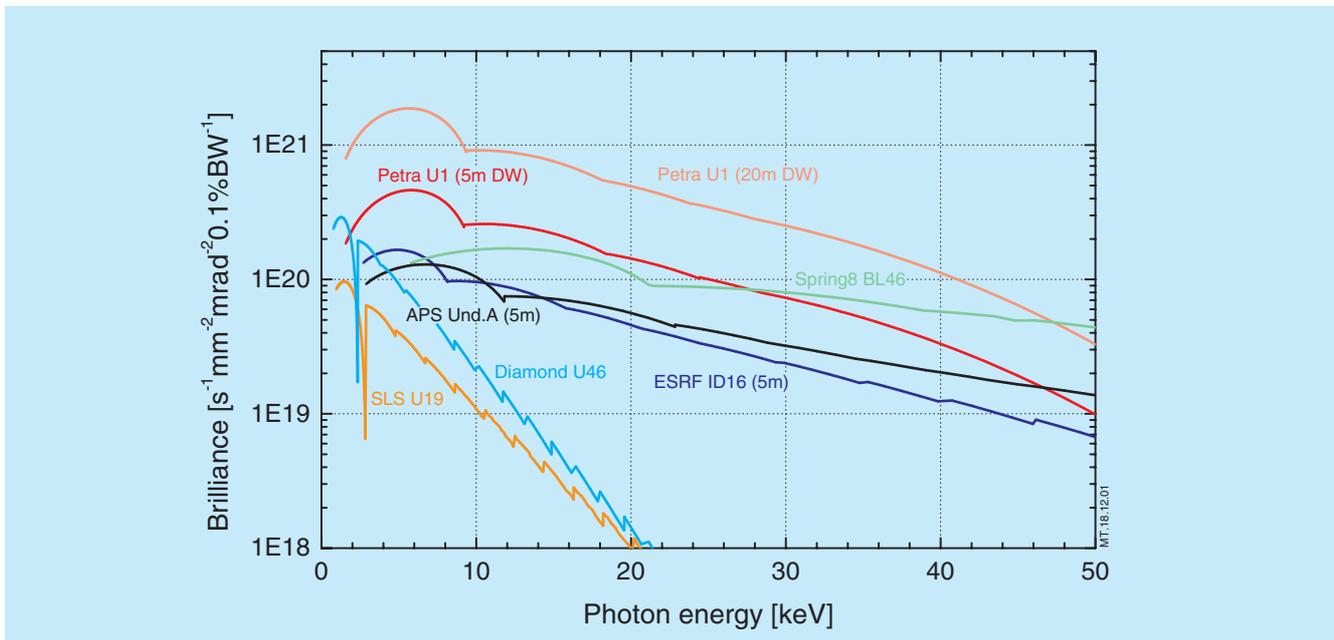


Abbildung 63: Brillanz eines durchstimmbaren Undulators, der für die Verbesserung des PETRA-Speicherringes mit Dämpfungswiggler vorgeschlagen wurde, im Vergleich zu Werten existierender Speicherringe der dritten Generation.

Mittel für Hoch- und Tiefbau, Ausstattung und Personal werden benötigt, um dieses Projekt realisieren zu können.

DORIS III wurde vom 15. Januar bis zum 17. Dezember 2001 mit Positronen bei einer Energie von 4.5 GeV und einem Eingangsstrom von bis zu 150 mA im 5-Bunch Modus betrieben. Typische Strahllebensdauern betragen 10 Stunden zu Beginn und 20 Stunden am Ende eines achtstündigen Runs. 5358 Stunden geplanter dedizierter Strahlzeit wurden, getrennt durch jeweils eine Woche für Wartung, in acht Blöcke von etwa fünf Wochen gruppiert.

Zur Optimierung des DORIS-Betriebes wurden achtstündige Maschinenschichten jeweils am zweiten, dritten und vierten Donnerstag des jeweiligen Strahlzeitblocks eingefügt. Im Juli 2001 wurden zusätzliche kurze Shutdown-Zeiten eingeplant. Für Experimente, die eine spezielle Zeitstruktur benötigten, wurde der Speicherring im so genannten „Reduced Bunch Mode“ für etwa 20% seiner Laufzeit betrieben. Auf Grund technischer Probleme erreichte die Betriebseffizienz von DORIS III

nur 91.7% und damit nicht die Leistung aus dem Jahr 2000 von 94.4%.

Am PETRA-Speicherring konnten im Berichtsjahr 3100 Stunden dedizierter Strahlzeit geliefert werden. Dies wurde ermöglicht durch den Upgrade Shutdown des Lepton-Hadron Beschleunigers HERA. Im dedizierten Nutzerbetrieb beträgt die Strahllebensdauer ungefähr 12 Stunden bei einem mittleren Strom von 37 mA. 21 unterschiedliche Experimente konnten durchgeführt werden.

Während des viermonatigen Winter-Shutdowns 2000/2001 wurden bei DORIS III neue Vakuumkammern für die Quadrupol-Triplets installiert, um die gegenseitige mechanische Kopplung dieser Komponenten zu entfernen. Da bis zu dieser Zeit die drei Injektions Kicker-Magnete nicht fertig wurden, konnten nicht alle neuen Vakuumkammern installiert werden. Dennoch konnte die horizontale Bewegung des Strahlorbitals im Speicherring um einen Faktor fünf reduziert werden, was zu einer signifikanten Verbesserung der Synchrotronstrahlungsstabilität geführt hat. Es ist geplant, im Winter-

Shutdown 2002/2003 neue Kicker-Magnete zu installieren und die verbleibenden neun Vakuumkammern einzubauen.

Der HASYLAB Jahresbericht 2001 ist wie in den vergangenen Jahren als CD-Rom erschienen und im Internet veröffentlicht worden ([www-hasylib.desy.de/science/annual\\_reports/2001\\_report/main.htm](http://www-hasylib.desy.de/science/annual_reports/2001_report/main.htm)).

Im Jahr 2001 waren 252 Institute und etwa 1662 Wissenschaftler an der Vorbereitung und Durchführung von Experimenten am HASYLAB beteiligt. Auf dem Gebiet der Strukturbiologie arbeiteten 392 Wissenschaftler aus mehr als 86 Instituten, hauptsächlich aus Europa, an den EMBL Messplätzen und nutzten die Infrastruktureinrichtungen bei DESY (Abb. 64).

Beispiele für HASYLAB-eigene Forschung, die in den letzten drei Jahren von HASYLAB Mitarbeitern und Wissenschaftlern permanenter Gastgruppen auf dem DESY-Gelände durchgeführt wurden, sind in einer neuen Broschüre mit dem Titel „Research at HASYLAB“ gesammelt worden. Das Heft ist im HASYLAB Sekretariat erhältlich. Ein wesentliches Ziel dieser Broschüre ist es, Studenten und junge Wissenschaftler zu überzeugen, sich an Forschung mit Synchrotronstrahlung zu beteiligen.

Im Jahr 2001 sind zahlreiche Auszeichnungen für Forschungsarbeiten mit Synchrotronstrahlung verliehen worden:

Herr Prof. Kenneth Holmes vom Max-Planck-Institut für Medizinische Forschung Heidelberg hat den European Latsis Award für seine Pionierarbeiten auf dem Gebiet der Synchrotronstrahlung erhalten, sowie den Gregori-Aminoff-Award für seine bahnbrechenden Entwicklungen auf dem Gebiet der Strukturuntersuchungen von biologischen Makromolekülen wie Muskelproteinen.

Herrn Prof. Jochen R. Schneider, HASYLAB, ist der Preis der European Crystallographic Association für seine Pionierarbeiten zur Anwendung von  $\gamma$ -Strahlungsspektroskopie und hochenergetischer Synchrotronstrahlung sowie für seine Beiträge für die Entwicklung eines Freie-Elektronen-Lasers verliehen worden.

Herr Dr. Helmut Ehrenberg vom Institut für Materialwissenschaften der TU Darmstadt hat den Max-von-

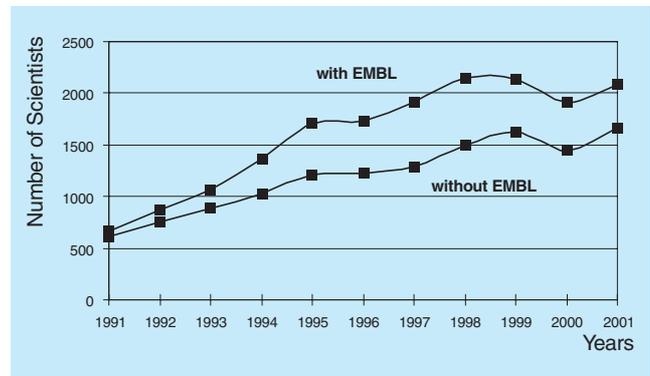


Abbildung 64: Anzahl der Nutzer, die in den letzten elf Jahren bei HASYLAB Experimente durchgeführt haben. (Nutzer, die mehr als einmal zur Messzeit kamen, wurden nur einmal pro Jahr gezählt.)

Laue Preis der Deutschen Kristallographischen Gesellschaft und den Adolf-Messer Preis der TU Darmstadt für seine außergewöhnlichen Arbeiten zur Pulverdiffraktometrie erhalten.

Herrn Dr. Harald Reichert vom Max-Planck-Institut für Metallforschung in Stuttgart ist der Walter-Schottky-Preis der Deutschen Physikalischen Gesellschaft für seine innovativen Arbeiten, die zur Entdeckung von lokalen fünffachen Symmetrien in flüssigem Blei geführt haben, verliehen worden.

Herr Prof. Gerhard Materlik wurde zum Chief Executive Officer der neuen englischen Synchrotronstrahlungsquelle DIAMOND am Rutherford Appleton Laboratory berufen.

## Erste Experimente an Clustern mit Gigawatt-Pulsen aus dem VUV-FEL

Hochintensive Strahlung aus Lasern im sichtbaren und infraroten Spektralbereich hat in den letzten Jahren ganz neue Forschungsfelder in der Physik und Chemie erschlossen und wichtige Entwicklungen in der optischen Technologie vorangetrieben. Bisher waren diese leistungsstarken Laser auf den optischen und angrenzenden ultravioletten Spektralbereich begrenzt.

Der Freie-Elektronen Laser (FEL) für den Vakuum-Ultravioletten Spektralbereich (VUV), basierend auf dem SASE-Prinzip („self-amplification of spontaneous emission“), liefert erstmals hochintensive Pulse im VUV und ermöglicht damit die Untersuchung optisch nichtlinearer Prozesse wie beispielsweise die Multiphoton-Ionisation.

Nur wenige Tage nachdem der FEL im September 2001 die Sättigung erreicht hatte, konnte mit ersten Experimenten an Molekülen und Clustern mit FEL-Strahlung begonnen werden. Ziel dieser Untersuchungen war, die Wechselwirkung extrem intensiver VUV-Pulse mit Materie zu studieren. Die ersten Experimente wurden an Edelgasatomen und Clustern durchgeführt. Der Vergleich von kondensierter Materie in Form von Clustern und Atomen in der Gasphase erlaubt es, intra-atomare Effekte und kollektive Phänomene, die durch die Kondensation hervorgerufen werden, zu unterscheiden.

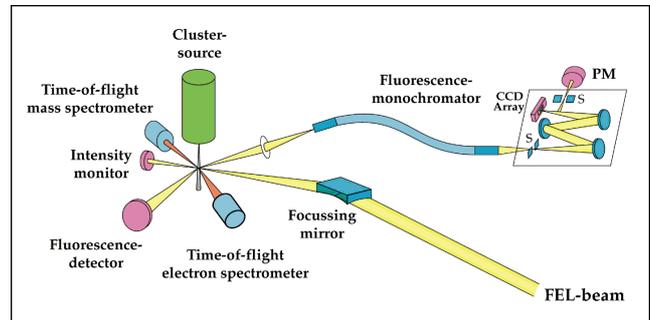


Abbildung 65: Schematische Darstellung des Clusterexperimentes im Tunnel des VUV-FELs.

Die Experimente wurden am HASYLAB mit einer Molekularstrahlapparatur durchgeführt, die am Tunnelende des TTF-Beschleunigers installiert war. Der schematische Aufbau ist in Abbildung 65 dargestellt.

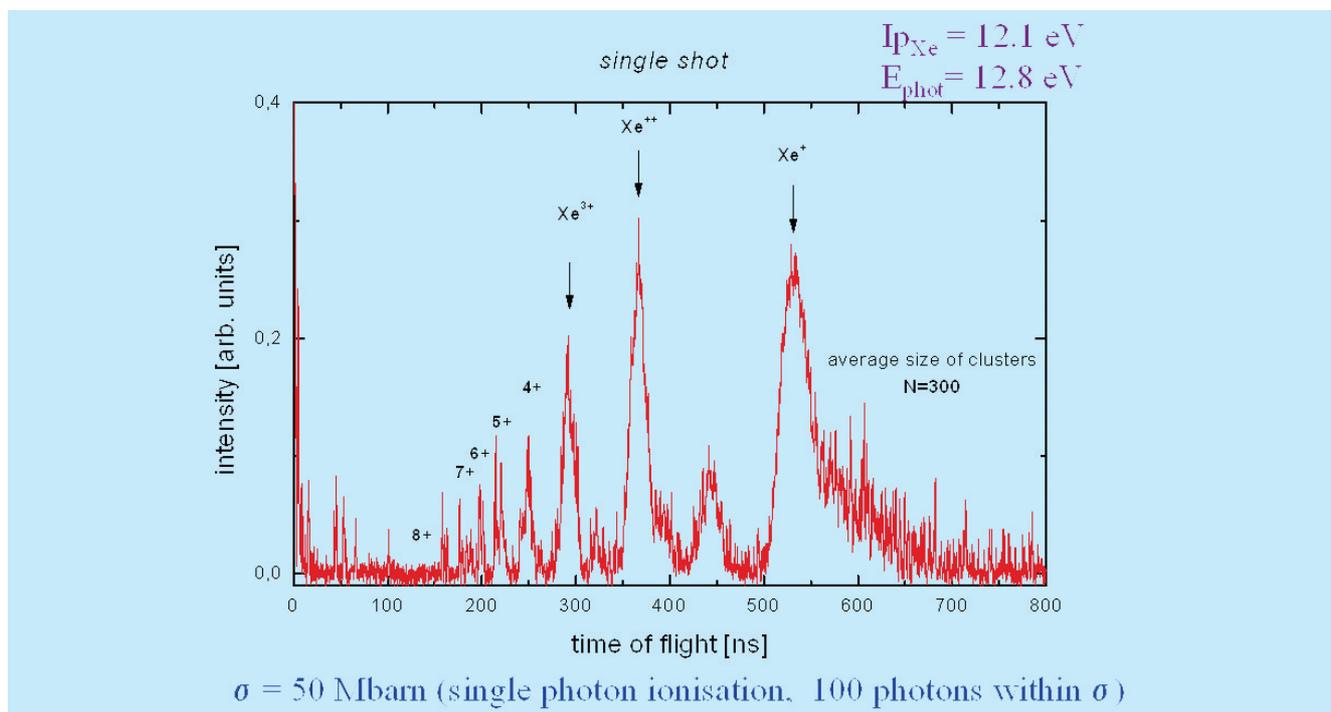


Abbildung 66: Flugzeitmassenspektrum, das nach der Ionisation von Xenon-Clustern aus im Mittel 300 Atomen mit einem Schuss des FELs aufgenommen wurde. Die einzelnen Linien können atomaren Xenon-Ionen mit einer kinetischen Energie von einigen hundert eV zugeordnet werden. Die Aufspaltung einiger Linien rührt von der geringen Transmission des Detektors für Ionen mit einer hohen Geschwindigkeit senkrecht zum Detektor her.

Ein gepulster Strahl von Edelgasclustern wird durch die Expansion eines Gases bei hohem Druck durch eine kleine Düse hergestellt. Die Größe der Cluster kann durch den Druck an der Düse kontrolliert werden. Der Clusterstrahl tritt durch einen Skimmer in die Hauptkammer des Experimentes ein. Die FEL-Strahlung mit einer Wellenlänge von 98 nm (Bandpass 0.5 nm) wird mit einem elliptischen Spiegel auf den Clusterstrahl fokussiert. Bei einem Fokusbereich von 20  $\mu\text{m}$  und einer Pulslänge von etwa 100 fs beträgt die Leistungsdichte im Fokus bis zu  $10^{14} \text{ W/cm}^2$ . Sie kann um zwei Größenordnungen reduziert werden, indem der Clusterstrahl aus dem Fokus bewegt wird. Die bei der Wechselwirkung mit dem FEL-Strahl erzeugten Ionen und Elektronen wurden mit Flugzeitspektrometern nachgewiesen und mit einem digitalen Oszilloskop mit einer Repetitionsrate von 1 Hz registriert. Die Intensität eines FEL-Pulses ist so hoch, dass ein komplettes Flugzeitmassenspektrum in einem einzigen Schuss aufgenommen werden kann.

Abbildung 66 zeigt ein Flugzeitmassenspektrum, das nach der Beleuchtung von Xenon-Clustern mit einer mittleren Clustergröße von 300 Atomen aufgenommen wurde. Überraschenderweise werden lediglich atomare Xenon-Ionen mit bis zu achtfachem Ladungszustand beobachtet. Dies steht in krassm Gegensatz zu Experimenten mit geringer Leistungsdichte, bei denen schwere Clusterionen nachgewiesen werden, deren Masse der neutralen Cluster entspricht. Die Linien im Massenspektrum sind stark verbreitert und zum Teil aufgespalten. Dies lässt sich mit der hohen kinetischen Energie der Ionen erklären. Aus der Verbreiterung der Linien und der Aufspaltung kann die Energie der Ionen bestimmt werden. Sie nimmt mit dem Ladungszustand zu und beträgt bis zu 2.5 keV bei  $\text{Xe}^{7+}$ . Molekulare Fragmente ( $\text{Xe}^{2+}$ ,  $\text{Xe}^{3+}$ ,  $\text{Xe}^{4+}$ ...) wurden bei der höchsten Leistungsdichte von  $10^{14} \text{ W/cm}^2$  nicht beobachtet. Dies deutet darauf hin, dass die Cluster mehrfach ionisiert werden und anschließend komplett zerfallen. Bei der Ionisation werden einzelne atomare Ionen erzeugt, die sich aufgrund der Coulomb-Wechselwirkung abstoßen. Diesen Prozess bezeichnet man als Coulomb-Explosion (Abb. 67).

Die Ionisationsprozesse hängen stark von der Leistungsdichte der Strahlung ab (Abb. 68). Bei reduzierter Leistungsdichte nimmt die Intensität von hochgeladenen Ionen ab. Dies zeigt, dass bei den hohen Leistungs-

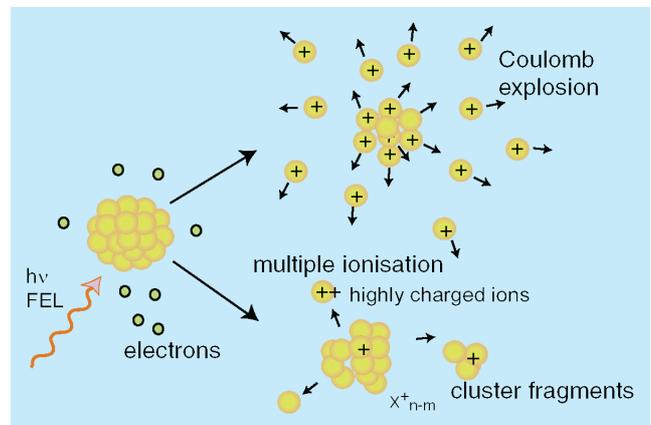


Abbildung 67: Schematische Illustration der Ionisationsdynamik von Edelgasclustern. Bei moderater Leistungsdichte (bis  $10^9 \text{ W/cm}^2$ ) dominiert die Fragmentation in einige wenige Bruchstücke. Bei sehr hoher Leistungsdichte ( $> 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ) zerfällt der Cluster komplett durch Coulomb-Explosion.

dichten optisch nichtlineare Prozesse in den Clustern induziert werden. Bei großen Clustern werden mit dem FEL bis zu 250 eV pro Atom deponiert, dies entspricht der Absorption von etwa 20 Photonen pro Atom. Dieser Wert kann aus der kinetischen Energie der Xenon-Ionen bestimmt werden. Die Ionisationsdynamik hängt stark von der Größe der Cluster ab.

In Abbildung 69 sind Massenspektren von Clusterstrahlen und einem Atomstrahl verglichen. Während in großen Clustern aus bis zu 30000 Atomen die höher geladenen Ionen überwiegen, zeigt sich, dass Xenon-Atome unter den gleichen Bedingungen lediglich einfach ionisiert werden. Dies bedeutet, dass die Atome im Cluster die FEL-Strahlung wesentlich intensiver absorbieren als in isolierten Atomen. Neben Atomen und Clustern wurden auch Moleküle untersucht ( $\text{N}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}$ ). Ganz generell zeigen die Messungen, dass die Ionisation in Molekülen und Clustern viel effektiver als in isolierten Atomen abläuft. Vermutlich erfolgt die starke Absorption durch sequentiell ablaufende Multi-Photonprozesse. Mögliche Absorptionsprozesse in Clustern sind inverse Bremsstrahlung und Plasmonen-Absorption. Effektive Absorption und Dissoziation von Clustern, insbesondere Coulomb-Explosion, ist ein Phänomen, das auch bei der Bestrahlung von Clustern mit Hochleistungs-Infrarot-Lasern beobachtet wird. Die Ionisation erfolgt im Infraroten

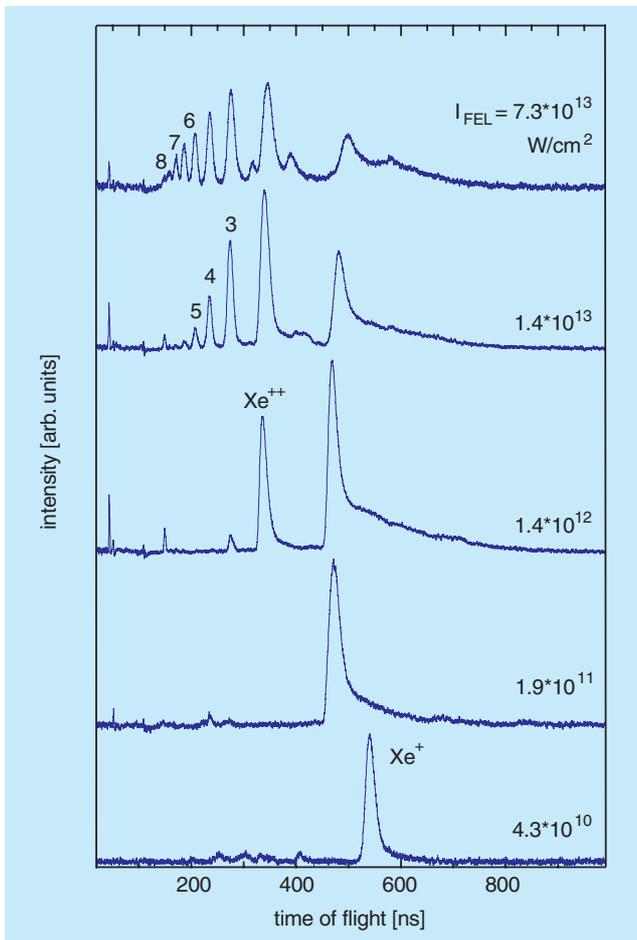


Abbildung 68: Flugzeitmassenspektren von Xenon-Clustern, aufgenommen bei verschiedenen Leistungsdichten.

vorzugsweise durch Feldionisation. Im VUV sind vermutlich andere Prozesse dominant, insbesondere die Multi-Photonabsorption, da die Feldionisation wegen der hohen Frequenz der Strahlung nicht so effektiv ist. Zur detaillierten Interpretation der Ergebnisse sind weitere Experimente und theoretische Arbeiten notwendig.

Die ersten Experimente belegen, dass auch bei kurzen Wellenlängen optisch nichtlineare Prozesse eine wichtige Rolle spielen. Sie zeigen darüber hinaus, dass der VUV-FEL völlig neue und aufregende Forschungsmöglichkeiten im Bereich der nichtlinearen Optik und der Multi-Photonprozesse eröffnet.

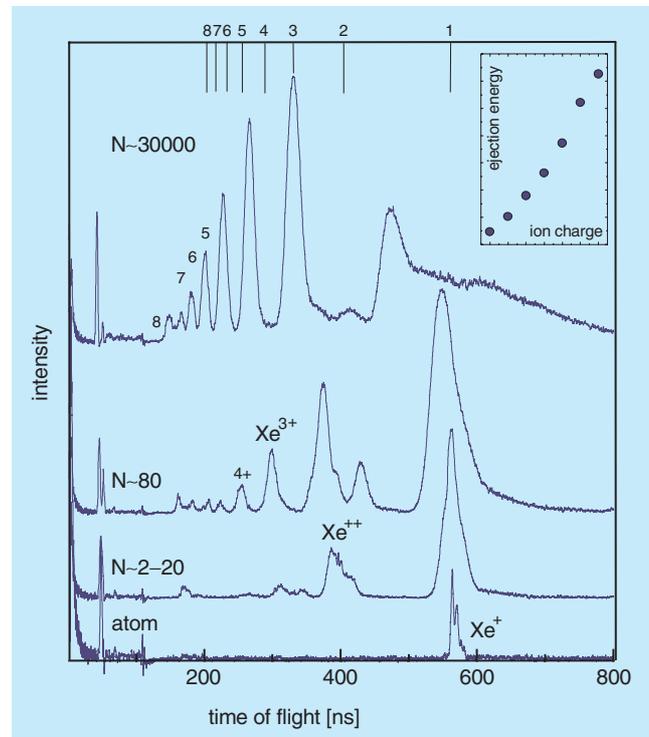


Abbildung 69: Flugzeitmassenspektren von Xenon-Clustern unterschiedlicher Größe im Vergleich mit einem am Atomstrahl aufgenommenen Spektrum. Die für ruhende Ionen berechneten Flugzeiten sind im oberen Teil der Abbildung markiert. Die Verschiebung der Linien ist ein Maß für die kinetische Energie der Ionen. Man erkennt deutlich, dass höhere Ladungszustände und die kinetische Energie der Ionen mit der Clustergröße zunehmen.

## Texturuntersuchungen mittels hochenergetischer Synchrotronstrahlung

Die meisten technisch genutzten Werkstoffe sind vielkristallin. Sie bestehen aus sehr vielen kleinen Kristalliten, die zusammen das polykristalline Gefüge bilden. Da die meisten Eigenschaften von Kristallen anisotrop sind, hängen die Eigenschaften des vielkristallinen Stoffes außer von denen der Kristallite auch von der räumlichen Anordnung und der Orientierung der Kristallachsen der Kristallite im

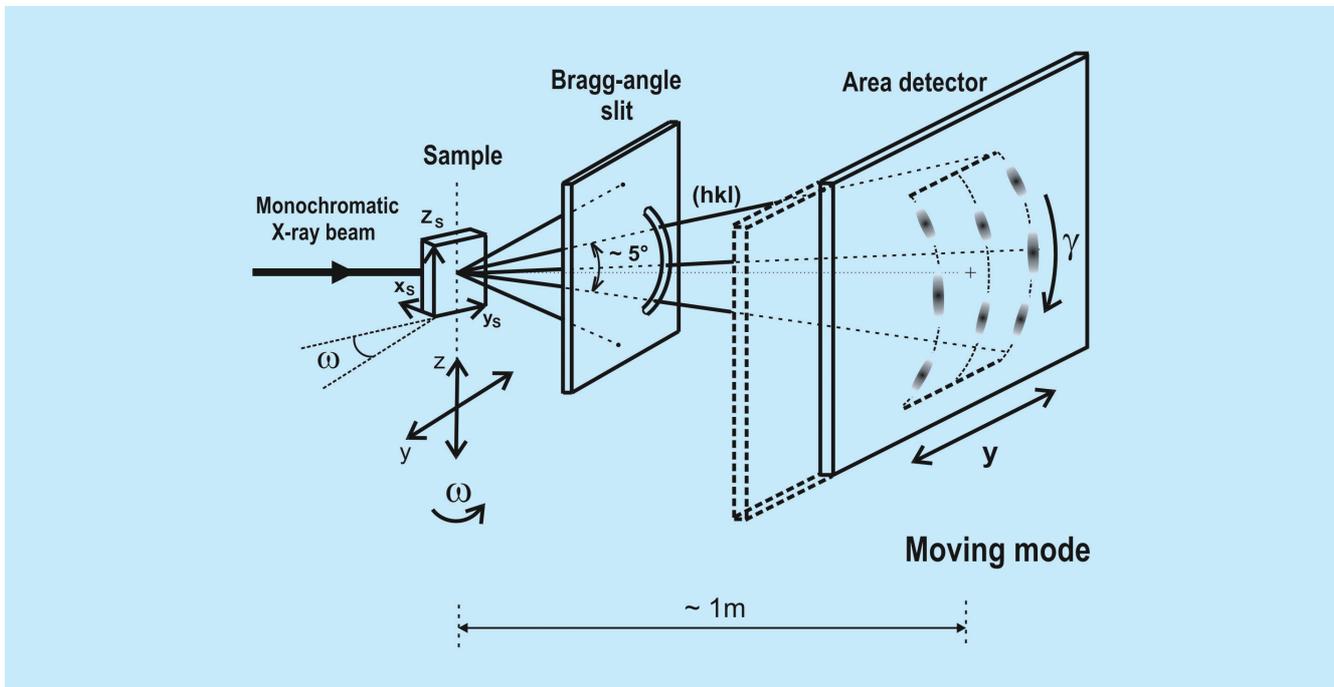


Abbildung 70: Schematischer Aufbau der Beugungsapparatur zur Gefügeabbildung. Sie enthält eine Bragg-Winkel Blende und einen kontinuierlich beweglichen Flächendetektor, dessen Bewegung mit Probentranslation oder -rotation gekoppelt werden kann. Auch zeitliche Veränderungen oder der Einfluss äußerer Parameter können abgebildet werden.

Gefüge ab. Die Eigenschaften der Kristallite können als bekannt vorausgesetzt werden, wenn man die chemische Zusammensetzung der Stoffe und damit die Kristallstrukturen kennt. Größe, Form, Anordnung und Orientierung der Kristallite, das heißt die Orientierungsstereologie, hängen aber entscheidend von der Vorgeschichte des Materials ab, zum Beispiel von dessen technologischen Herstellungsparametern.

Um die Eigenschaften eines vielkristallinen Stoffes verstehen zu können, muss man daher die Gefügeparameter kennen, das heißt drei Orts- und drei Orientierungskoordinaten jedes Kristalliten  $\{xyz, \omega\gamma\psi\}_i$ .

Die Ortskoordinaten allein kann man mit mikroskopischen Methoden bestimmen (quantitative Metallographie). Die Orientierungskoordinaten allein erhält man mit konventionellen Beugungsmethoden (Texturanalyse). Beide Parameter gleichzeitig liefert die Elektronenbeugungs-Raster-Mikroskopie. Wegen der

geringen Eindringtiefe der Elektronen ist diese Technik aber auf die Oberfläche des Materials beschränkt, die nicht immer repräsentativ für das gesamte Material ist.

Die Beschränkung auf die Oberfläche besteht bei der im Folgenden skizzierten Methode der Beugungsabbildung des Gefüges mittels hochenergetischer Synchrotronstrahlung nicht. Zur kontinuierlichen Abbildung verschieden orientierter Schnittflächen und Projektionen des sechsdimensionalen Orientierungs-Ortsraumes wird ein kontinuierlich bewegter Flächendetektor verwendet. Diese Technik wurde bereits früher mit photographischem Film als Flächendetektor und konventioneller Röntgenstrahlung angewendet. Die erforderliche Orts- und Winkelauflösung erreicht man aber nur aufgrund der hohen Brillanz von Synchrotronstrahlung und bei Eindringtiefen, die groß gegenüber der Korngröße sind. Dies ist nur mit kurzwelliger Strahlung möglich, wie sie zum Beispiel an der Beamline BW5 im HASYLAB zur Verfügung steht.

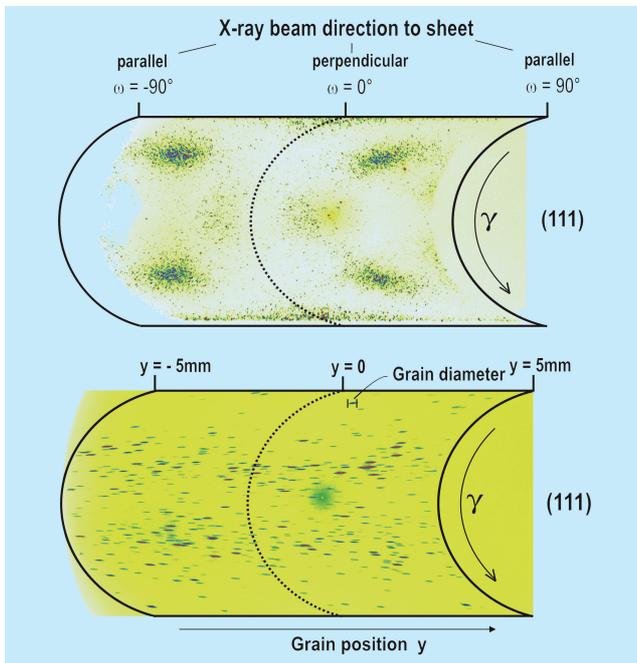


Abbildung 71: Orientierungs- und Ortsabbildung eines kornaufgelösten Gefüges. Die Probe ist ein rekristallisiertes Nickelblech.

Der schematische Aufbau des Instrumentes ist in Abbildung 70 skizziert. Ein fein ausgeblendeter, bereits monochromatisierter Röntgenstrahl fällt auf die polykristalline Probe und erzeugt dort ein System von Debye-Scherrer Kegeln. Mit Hilfe einer Bragg-Winkel Blende wird daraus nur ein Sektor eines Kegels (hkl) ausgeblendet und fällt auf den Flächendetektor. Dieser wird während der Belichtung kontinuierlich in y-Richtung bewegt, während gleichzeitig die Probe in drei Richtungen {xyz} verschoben und um drei Winkel  $\{\omega\chi\varphi\}$  gedreht werden kann. Dadurch wird ein beliebiger „Pfad“ des Orientierungs-Ortsraumes auf die Detektorkoordinate y abgebildet. Die zweite Koordinate des Flächendetektors ist der Orientierungswinkel  $\gamma$  (speziell wurden solche Orientierungs-Orts Pfade benutzt, bei denen nur um  $\omega$  gedreht wird).

Abbildung 71 (oben) zeigt einen Orientierungsscan eines rekristallisierten Nickel-Blech. In ihm sind die Normalrichtungen der Netzebenen (hkl) der Kristallite durch ihre Winkelkoordinaten  $\{\omega\gamma\}$  abgebildet. Die dritte Winkelkoordinate, die Drehung  $\psi$  um den Beugungsvektor, die zur eindeutigen Beschreibung der

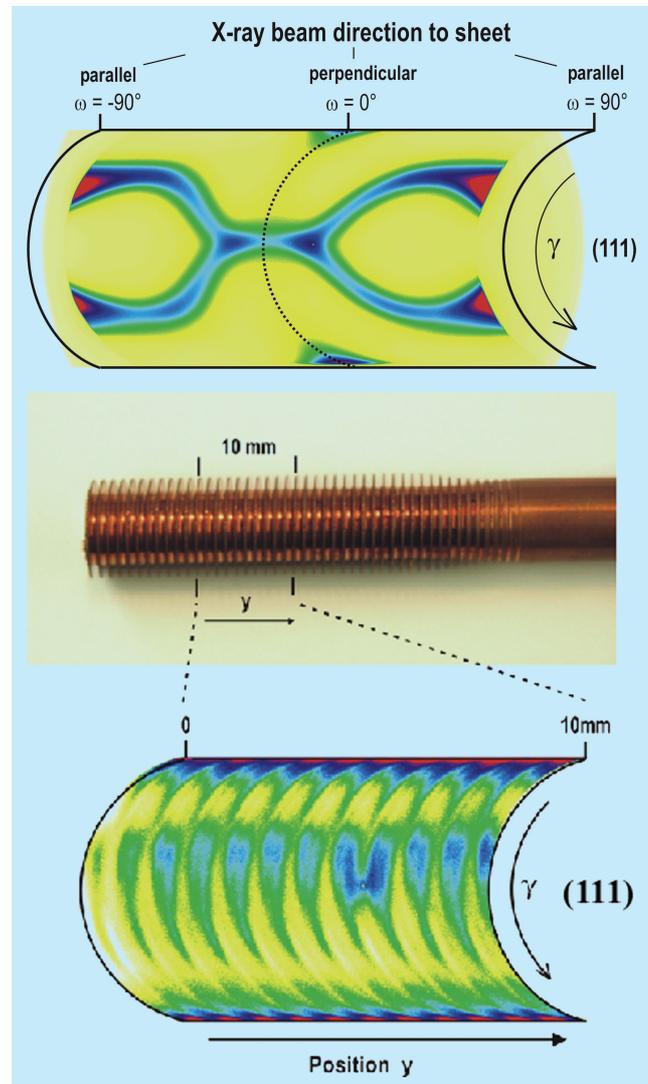


Abbildung 72: Orientierungs- und Ortsabbildung nicht-aufgelöster Gefüge: Orientierungsabbildung eines kaltgewalzten Nickelbleches (oben) und Ortsabbildung eines Rippenrohres aus Kupfer (unten).

Kristallorientierung erforderlich ist, bleibt dabei unerkannt. Außerdem muss man für diese Technik in y-Richtung eine breite Blende verwenden. Dann bleiben die Ortskoordinaten x und y unerkannt. Nur die z-Koordinate der Kristallite kann durch die Blende festgelegt werden.

Abbildung 71 (unten) zeigt einen Ortsscan desselben Nickel-Blech in y-Richtung. Hier sind ebenfalls die Normalrichtungen der Ebenen (hkl) zu sehen, jedoch

nur von denjenigen Kristalliten mit  $\omega = 0^\circ$ . Jeder Kristallit reflektiert den Röntgenstrahl, während er durch den Strahlquerschnitt läuft. Neben dem Orientierungswinkel  $\gamma$  zeigt Abbildung 71 unten daher die Ortskoordinate  $y$  des Kristalliten und seinen Durchmesser in dieser Richtung. Auch hier bleibt der dritte Orientierungswinkel  $\psi$  unerkannt. Die  $z$ -Koordinate ist durch die Blendenöffnung in dieser Richtung festgelegt. Die  $x$ -Koordinate bleibt jedoch unerkannt.

Wegen der hohen Brillanz der Synchrotronstrahlung können Blendengrößen im Mikrometer-Bereich eingesetzt werden. Damit können Korngrößen dieser Größenordnung aufgelöst werden. Auch Materialien mit noch kleineren Korngrößen können mit dieser Methode untersucht werden. Dann überlappen sich die Reflexe der einzelnen Kristallite, und man sieht nur noch Dichteverteilungen von Kristalliten.

Abbildung 72 (oben) zeigt die Orientierungsdichte der Normalrichtungen der Ebenen ( $hkl$ ) eines kaltverformten Nickel-Blechtes. Das entspricht einer ( $hkl$ ) Polfigur der konventionellen Texturmesstechnik. Ein Beispiel mit starker Ortsabhängigkeit der Orientierungsdichte ist in dem Ortsscan in Abbildung 72 (unten) zu sehen. Es ist ein Rippenrohr aus Kupfer, das hier mit einer Ortsauflösung von 0.1 mm abgebildet wurde.

## Untersuchung zur Strukturbestimmung von einzelnen makromolekularen Partikeln mit XFEL-Strahlung

Ein Verständnis der Funktion von Biomolekülen auf molekularer oder atomarer Basis ist in den meisten Fällen ohne die Kenntnis der dreidimensionalen Molekülstruktur nicht möglich. Diese bildet die Grundlage für viele weitergehende Untersuchungen bezüglich möglicher Interaktionen mit anderen Molekülen.

In den meisten Fällen wird diese Information neben der NMR-Spektroskopie und der Elektronenmikroskopie durch die Proteinkristallographie zur Verfügung gestellt. Auf dem Weg von der Kenntnis eines Gens zum Verständnis der Funktion des darin kodierten Proteins ist neben der Expression in einem geeigneten Orga-

nismus die Kristallisation der Biomoleküle eines der am schwierigsten zu überwindenden Hindernisse und damit der geschwindigkeitsbestimmende Schritt. Jede Methode, die dieses Problem umgehen könnte, und die dennoch die dreidimensionale Struktur mit hinreichender Genauigkeit zu bestimmen in der Lage ist, wäre von sehr großem Nutzen.

In bestimmten Fällen sind dazu die bereits erwähnte NMR-Spektroskopie bzw. die Kryo-Elektronenmikroskopie in der Lage. Erstere ist sowohl in ihrer Genauigkeit als auch in der Größe des zu bestimmenden Moleküls beschränkt, letztere ist immer noch weit davon entfernt, in den Bereich der atomaren Auflösung vorzustoßen.

Eine völlig neue Möglichkeit wird sich durch die kurzen und sehr intensiven Röntgenstrahlungspulse des TESLA-XFELs ergeben. Molekulardynamische Rechnungen des Verhaltens eines einzelnen Proteinmoleküls unter Einwirkung eines sehr kurzen und intensiven Röntgenpulses und unter Berücksichtigung der inelastischen Wechselwirkung mit der Strahlung ergeben folgendes Bild:

- Die auf Grund der inelastischen Wechselwirkungen mit der Strahlung auftretenden Strukturänderungen während der Zeit des Pulses sind um so kleiner, je kürzer die Zeit ist, in der eine gegebene Anzahl von Photonen auf die Probe trifft. Da es sich bei der überwiegenden Anzahl der inelastischen Streuprozesse um Photoionisationen handelt, bedeutet dies, dass die das Molekül zerstörende Coulomb-Explosion durch die Trägheit der Atomkerne vergleichsweise „langsam“ in Gang kommt. Der quantitative Zusammenhang ist in Abbildung 73 wiedergegeben.
- Da im allgemeinen die inelastischen Wechselwirkungsquerschnitte mit zunehmender Photonen-Energie abnehmen, sind höhere Energien von Vorteil.
- Bei der für den XFEL zu erwartenden Pulslänge von 100 fs sind die zu erwartenden Strukturänderungen bei einer Photonen-Energie von 12 keV und einer Flußdichte von etwa  $5 \times 10^{10}$  Photonen auf einer Fläche von  $(100 \text{ nm})^2$  noch tolerabel.

Diese Berechnungen geben eine Abschätzung für die Stabilität biologischer Proben unter dem Einfluss kur-

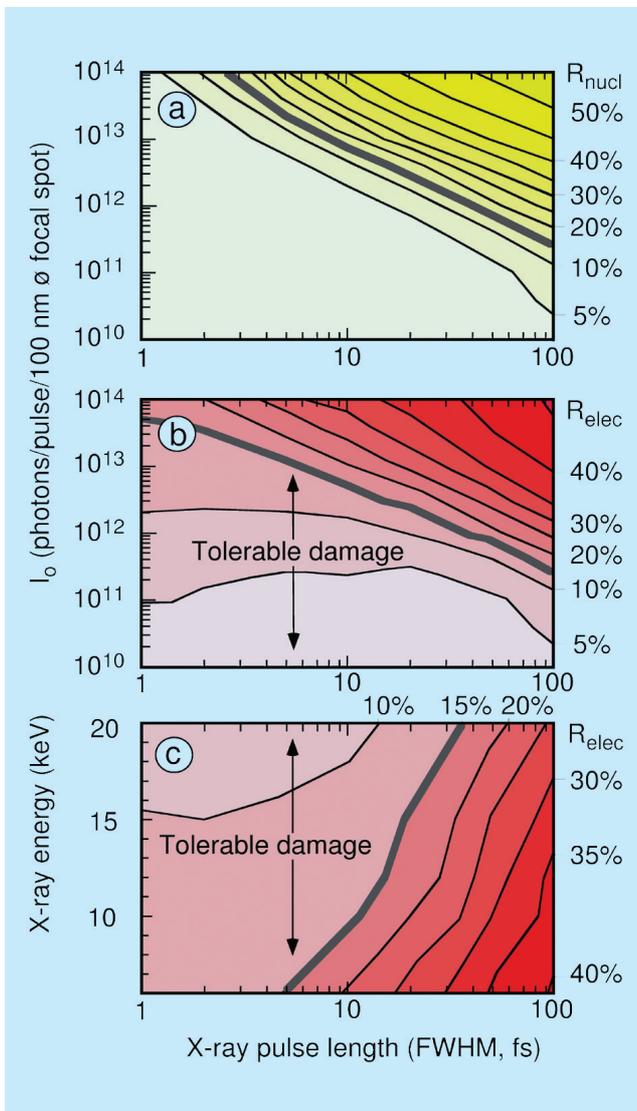


Abbildung 73: Probenschädigung als Funktion der Pulslänge für verschiedene Photonenzahlen pro Puls und als Funktion der Photonen-Energie. Als Bewertungskriterium  $R$  wurde der Unterschied zwischen den Beugungsbildern ungestörter und unter Strahlungseinwirkung modellierter Proben herangezogen. In a) wurde hierbei vernachlässigt, dass die Strahlenschädigung nicht nur die Atompositionen sondern auch die Elektronenhülle selbst ändert. Der Unterschied zwischen a) und b) macht deutlich, dass bei sehr kurzen Pulsen die Atomkerne „sehr lange“ auf ihren Positionen verharren, bevor die Coulomb-Explosion einsetzt. In c) wurde die Anzahl der elastisch gestreuten Photonen konstant gehalten und die Energieabhängigkeit der Schädigung untersucht.

zer, intensiver Röntgenpulse und dienen als Grundlage für weitere Betrachtungen. Berechnet man unter Berücksichtigung dieser Ergebnisse und unter idealisierten experimentellen Bedingungen die gestreute Intensität eines XFEL-Pulses an einem einzelnen Makromolekül, so ist diese sehr gering. Die Situation ändert sich bei der Beugung an großen makromolekularen Komplexen, wie zum Beispiel der Hülle eines Virus. Selbst in diesem Fall ist die gestreute Intensität klein, sie sollte jedoch ausreichen, um die Orientierung des Moleküls während der Belichtung aus den Streudaten mit hinreichender Genauigkeit zu rekonstruieren (Abb. 74). Die dazu notwendigen Verfahren wurden bereits für die Einzelpartikel-Rekonstruktion in der Tieftemperatur-Elektronenmikroskopie entwickelt. Dadurch sollte es möglich sein, die dreidimensionale Streudichteverteilung eines derartigen makromolekularen Komplexes aus einer großen Anzahl von Einzelaufnahmen zu rekonstruieren.

Das bei der Strukturlösung von Kristallen auftretende Phasenproblem, das heißt nur die Amplituden und nicht die Phasen der gebeugten Wellen sind experimentell zugänglich, wirkt sich bei den nicht translationsperiodischen Streudichteverteilungen nichtkristalliner Objekte weniger gravierend aus als bei Kristallen. Zur Illustration ist in Abbildung 61 der Unterschied der Intensitätsverteilung im reziproken Raum von einem einzelnen Makromolekül und einem Nanokristall des gleichen Moleküls gezeigt. Es wird deutlich, dass für einen Kristall Intensitäten nur an den reziproken Gitterpunkten gemessen werden können. Damit verringert sich der Informationsgehalt im Vergleich zu einem nicht translationsperiodischen Objekt dramatisch. Neuere Arbeiten haben gezeigt, dass es durch numerische Verfahren relativ einfach möglich ist, die Elektronendichte aus einer kontinuierlichen Streudichteverteilung zu bestimmen.

Die Beugung eines sehr intensiven Röntgenpulses an einem derart kleinen Objekt wie einem einzelnen Virus stellt besondere Anforderungen an die Reduzierung des experimentell bedingten Untergrunds der Messung. Hierbei kann man auf die bereits gut entwickelte Technik der Elektrospray-Massenspektrometrie zurückgreifen. Mit diesem Verfahren ist es möglich, einzelne Partikel mit einer Hydrathülle definierter Dicke in einen Vakuumrezipienten zu injizieren. Die technisch an-

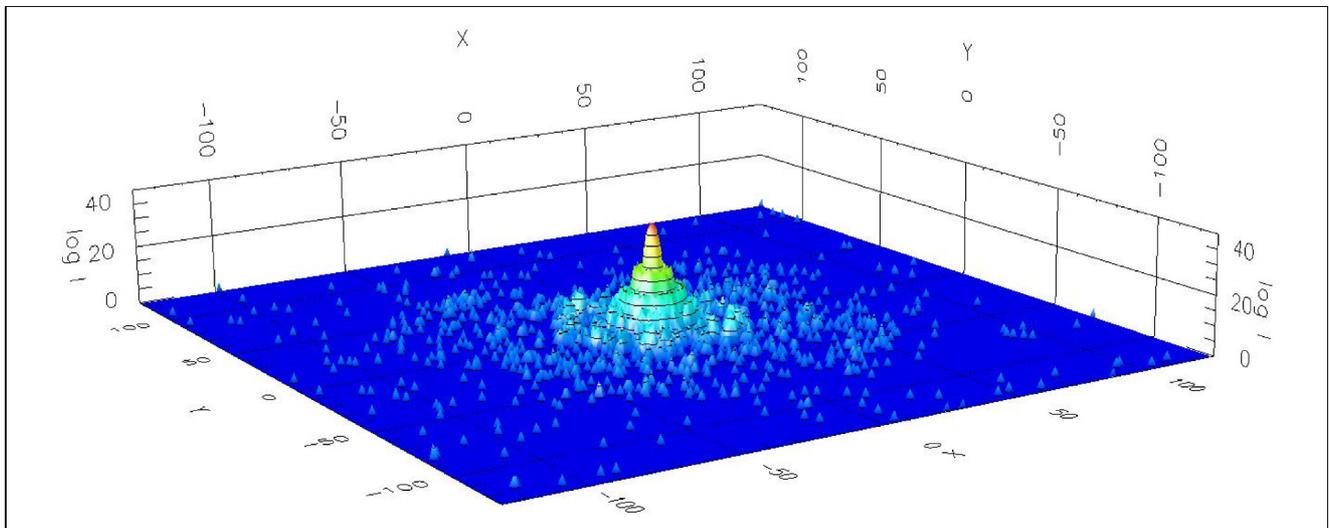


Abbildung 74: Streubild der Hülle eines BTV-Virus für einen Puls von  $5 \cdot 10^{10}$  Photonen fokussiert auf  $0.1 \mu\text{m}$ ; Photonen-Energie:  $12.4 \text{ keV}$ ; Detektorabstand  $1800 \text{ mm}$ , Pixelgröße:  $0.78 \text{ mm}$ ; die Intensität ist nach einer logarithmischen Farbskala aufgetragen. Die Intensitäten sind als Funktion der Pixelkoordinaten in X- und Y-Richtung aufgetragen. Nur durch das Mitteln einer sehr großen Anzahl derartiger Beugungsbilder kann die komplette 3D-Streudichte rekonstruiert werden.

spruchsvolle Aufgabe wird sein, den Partikelstrahl mit dem fokussierten XFEL-Strahl zur Deckung zu bringen. Das Clusterexperiment am TTF1 hat jedoch gezeigt, dass dies durchaus machbar ist. Da in einer derartigen Anordnung die Wechselwirkung zwischen Strahlung und Probe im Vakuum ohne Probenhalter stattfindet, sollte der zusätzliche Streuuntergrund minimal sein.

Die mit einem derartigen Verfahren erreichbare Auflösung, das heißt die Präzision der Atompositionen, hängt im Wesentlichen von zwei Faktoren ab: von der Streuung der Atomanordnungen der einzelnen Partikel untereinander und von der Genauigkeit, mit der im Nachhinein die Orientierung jedes einzelnen Partikels festgestellt werden kann. Vor allem der zweite Punkt ist derzeit Gegenstand theoretischer Untersuchungen.