

MO 14: Cluster

Zeit: Mittwoch 14:00–16:15

Raum: VMP 6 HS-F

Hauptvortrag MO 14.1 Mi 14:00 VMP 6 HS-F
Hochaufgelöste Rumpfniveau-Spektroskopie von Schwefelhexafluorid-Clustern — ●ROMAN FLESC¹, ERTUGRUL SERDAROGLU¹, ANDREY PAVLYCHEV² und ECKART RÜHL¹ — ¹Freie Universität Berlin, Physikalisches Chemie, Takustr. 3, 14195 Berlin — ²St. Petersburg State University, 198504 St. Petersburg, Russland

Schwach gebundene Cluster stellen das Bindeglied zwischen isolierten Molekülen in der Gasphase und kondensierten Formen der Materie dar. Die Innerschalenanregung hat sich wegen ihrer orts- und elementspezifischen Eigenschaften als empfindliche Sonde hinsichtlich der elektronischen Struktur der Cluster erwiesen. Dies wird für Schwefelhexafluorid-Cluster (SF₆)_n an Hand eines detaillierten Vergleiches der Resultate aktueller Berechnungen von Potentialverläufen auf Grundlage des quati-atomaren Ansatzes mit Ergebnissen von Absorptionsexperimenten an Clustern im Bereich der Schwefel-2p-Anregung gezeigt. Es wird in Übereinstimmung mit Modellrechnungen (Quasiatomarer Ansatz) beobachtet: (a) resonante Strukturen (NEXAFS-Resonanzen) unterhalb der S 2p-Ionisationsgrenze bleiben durch die Clusterbildung nahezu unverändert; (b) Übergänge in Rydbergzustände sind durch die Überlagerung des Coulombpotentials in SF₆ mit Rotationsbarrieren aus der Clusterumgebung unterdrückt; (c) resonante Strukturen oberhalb der S 2p-Ionisationsgrenze (*shape*-Resonanzen) sind zu niedrigerer Energie verschoben und in ihrer Form verändert; (d) Doppelanregungen sind ebenfalls wie die Rydberg-Zustände abgeschwächt. Die experimentellen Resultate werden eingehend in Bezug auf Prognosen, die auf dem Quasiatomaren Ansatz basieren, diskutiert.

MO 14.2 Mi 14:30 VMP 6 HS-F
Dissociation Dynamics of Molecular Diamonds — ●SEBASTIAN SCHORB, RAINER UNTERUMSBERGER, MATTHIAS HOENER, THOMAS MÖLLER, and CHRISTOPH BOSTEDT — Institut für Optik und Atomare Physik, Technische Universität Berlin

Spectroscopy with COLTRIMS (cold target recoil ion momentum spectroscopy) allows a detailed investigation of the fragmentation of molecules and clusters. The vectorial momenta of all ionic fragments and electrons in the full 4π solid angle could be recorded. Using this technique, we performed detailed fragmentation studies of the doubly charged adamantane excited with soft x-ray radiation. Adamantane (C₁₀H₁₆) is the smallest member of a class of perfect mass and structure selected diamond-like carbon clusters, called molecular diamonds or nanodiamonds. A detailed analysis of the momentum balance shows a sequential fragmentation of the cluster into neutral and charged fragments and isomerisation effects during this process.

MO 14.3 Mi 14:45 VMP 6 HS-F
Valence Electron Localization in 3d⁵ Transition Metal Dimer Cations — ●KONSTANTIN HIRSCH¹, ANDREAS LANGENBERG¹, FABIAN LOFINK¹, JÜRGEN PROBST¹, ROBERT RICHTER¹, JOCHEN RITTMANN¹, MARLENE VOGEL¹, VICENTE ZAMUDIO-BAYER¹, THOMAS MÖLLER¹, BERND VON ISSENDORFF², and TOBIAS LAU¹ — ¹Technische Universität Berlin, Institut für Optik und Atomare Physik, EW 3-1, Hardenbergstrasse 36, D-10623 Berlin, Germany — ²Universität Freiburg, Fakultät für Physik, Stefan-Meier-Strasse 21, D-79104 Freiburg, Germany

By combining an intense magnetron sputter source and an ion trap at a third generation synchrotron radiation source, core level spectroscopy on free, mass selected clusters has been established as an experimental technique. We have investigated mass selected transition metal clusters along the 3d series of the periodic table. Probing the unoccupied density of states by means of X-ray absorption spectroscopy shows that the bonding in these systems is clearly dominated by the 3d electrons as one would expect. However the d⁵ dimer systems, namely Chromium, Manganese and binary Chromium-Manganese dimers are a remarkable exception. The bonding mechanism in these systems can directly be deduced from the X-ray absorption spectra and shows a complete localization of the d-electrons at the atomic sites.

MO 14.4 Mi 15:00 VMP 6 HS-F
Ultraschnelle Ionisationsdynamik von freien NaCl Nanopartikeln — ●EGILL ANTONSSON, JÜRGEN PLENGE, ANDREAS WIRSING, RENE LEWINSKI, BURKHARD LANGER und ECKART RÜHL — Physikalische und Theoretische Chemie, Institut für Chemie und Biochemie,

Freie Universität Berlin, Takustr. 3, 14195 Berlin

Bei der Wechselwirkung von intensiven Laserpulsen mit Clustern wird die Emission von hochgeladenen Ionen und von schnellen Elektronen beobachtet. Diese Effekte werden auf die kollektive Anregung von quasifreien Elektronen in Metall-Clustern bzw. auf die Erzeugung eines Nanoplasmas in Edelgas-Clustern durch die intensive Laserstrahlung zurückgeführt. Während die Ionisationsdynamik von Metall und Edelgas-Clustern eingehend untersucht wurde, gibt es nur wenige Untersuchungen zu nichtmetallischen, ionisch gebundenen Nanopartikeln. Es werden Experimente vorgestellt, in denen die Ionisationsdynamik von freien NaCl Nanopartikeln (ca. 100 nm) nach Anregung mit intensiven Femtosekunden-Laserpulsen (λ = 804 nm, τ = 85 fs) untersucht wurde. Dazu wurden Einfarben Anregungs-Nachweis-Experimente durchgeführt, in denen die emittierten Elektronen mit Hilfe eines Photoelektronen-Imaging Spektrometers detektiert wurden, so dass die Winkelverteilung und die Energieverteilung der Photoelektronen zugänglich sind. Die zeitabhängigen Photoelektronenausbeuten der NaCl Nanopartikel zeigen charakteristische Resonanzen, die auf eine erhöhte Ionisation des primär angeregten, expandierenden Nanopartikels zurückgeführt werden. Die Ergebnisse werden im Zusammenhang mit Ionisationsmechanismen von Clustern diskutiert.

MO 14.5 Mi 15:15 VMP 6 HS-F
Observing Phase Transitions in Supersonic Molecular Beams — ●WOLFGANG CHRISTEN and KLAUS RADEMANN — Institut für Chemie, Humboldt-Universität zu Berlin, 12489 Berlin

One question of current interest is the maximum cooling and slowing that can be achieved in supersonic beam expansions [1]. While pulsed jets from compressed gases are successfully used to transfer nonvolatile and thermally labile molecules into the gas phase [2,3], the influence of thermodynamic properties (pressure, temperature, aggregation state) on beam velocity and beam temperature remains unclear to a large extent.

We therefore address the question, both theoretically and experimentally, if phase transitions of a substance can be probed using high-resolution time-of-flight analysis of supersonic beam expansions. We compare the validity of different formulas describing supersonic beam characteristics and present experimental results for a wide range of stagnation pressures and stagnation temperatures, including the gas-liquid, gas-supercritical, and liquid-supercritical phase transitions of ethylene and propane.

[1] Wolfgang Christen and Klaus Rademann, *Phys. Rev. A* **77**(1), 012702 (2008).

[2] Wolfgang Christen, Stephanie Geggier, Svitlana Grigorenko, and Klaus Rademann, *Rev. Sci. Instrum.* **75**(11), 5048-5049 (2004).

[3] Wolfgang Christen, Tim Krause, and Klaus Rademann, *Int. J. Mass Spectrom.* **277**(1-3), 305-308 (2008).

MO 14.6 Mi 15:30 VMP 6 HS-F
Cluster Growth beyond Scaling Laws — ●WOLFGANG CHRISTEN and KLAUS RADEMANN — Institut für Chemie, Humboldt-Universität zu Berlin, 12489 Berlin

The phenomenon of homogeneous nucleation is of fundamental relevance in fields such as atmospheric chemistry and materials science.

Continuing our earlier work on high-pressure jet expansions [1–3], we have studied the condensation of propane to small clusters in pulsed supersonic beams as a function of stagnation pressure and stagnation temperature, including the gaseous, liquid, and supercritical state, using mass-resolved time-of-flight analysis. While the well-known scaling law of cluster growth seems to be valid at lower pressures, unexpected and significant deviations are observed for pressures close to the phase boundary and for the supercritical state.

[1] Wolfgang Christen, Klaus Rademann, and Uzi Even, *J. Chem. Phys.* **125**(17), 174307 (2006).

[2] Wolfgang Christen, Tim Krause, and Klaus Rademann, *Rev. Sci. Instrum.* **78**(7), 073106 (2007).

[3] Wolfgang Christen and Klaus Rademann, *Phys. Rev. A* **77**(1), 012702 (2008).

MO 14.7 Mi 15:45 VMP 6 HS-F

Spectroscopy of PTCDA molecules attached to large hydrogen clusters — ●OLIVER BÜNERMANN, MATTHIEU DVORAK, and FRANK STIENKEMEIER — Physikalisches Institut, Universität Freiburg, Hermann-Herder-Str. 3, 79104 Freiburg

Up to now, the two helium isotopes ^3He , ^4He are the only observed bulk superfluids. However, theoretical calculations have predicted a superfluid phase also for molecular hydrogen under certain conditions [1]. The calculated transition temperature has been calculated to lie well below the tripelpoint for solidification. Experimentalists have attempted to supercool hydrogen by different means, but so far, the phase transition has not been observed. An alternative method to supercool a gas is given by a supersonic expansion into vacuum. In our laboratory we followed this approach and formed a beam of large parahydrogen clusters in this way. To check the state of aggregation we doped the clusters with an organic molecule and probed its electronic spectrum with laser induced fluorescence (LIF) techniques. The width and shift as well as the line shape of transitions give us information about the interaction of the molecule with the hydrogen clusters. We will present LIF spectra of PTCDA attached to hydrogen, argon and helium clusters. The measurements suggest that hydrogen clusters are solid. However, a comparison with similar measurements performed by Momose et al. [2] show peculiar differences.

[1] Maris et al., J.LowTemp.Phys 51, 471 (1983)

[2] Kuma et al., J.Chem.Phys. 127, 214301 (2007)

MO 14.8 Mi 16:00 VMP 6 HS-F
Intermolecular Coulombic Decay in Water Clusters investigated with a Magnetic Bottle Spectrometer — ●MELANIE MUCKE¹, MARKUS BRAUNE², SILKO BARTH¹, MARKO FÖRSTEL^{1,3}, TORALF LISCHKE¹, VOLKER ULRICH¹, TIBERIU ARION¹, UWE BECKER², and UWE HERGENHAHN¹ — ¹Max-Planck-Institut für Plasmaphysik, EURATOM Association, Boltzmannstr. 2, 85748 Garching — ²Fritz-Haber-Institut der Max-Planck-Gesellschaft, Faradayweg 4-6, 14195 Berlin — ³Max-Planck-Institut für Kernphysik, Saupfercheckweg 1, 69117 Heidelberg

To probe predictions [1] for Intermolecular Coulombic Decay in a biologically relevant environment, water clusters have been generated in a supersonic molecular expansion process. Electrons emitted after inner valence photoionisation by synchrotron radiation have been detected with a magnetic bottle type spectrometer. Analysis of coincident electron pairs gives the first experimental proof of IC Decay (a non-local autoionisation process) in hydrogen bonded matter. The energy spectrum of autoionisation electrons is featureless and ranges from 0 to 8 eV of kinetic energy.

[1] L.S. Cederbaum, J. Zobeley and F. Tarantelli, Giant Intermolecular Decay and Fragmentation of Clusters, Phys. Rev. Lett. 79, 4778-4781 (1997)