

Reaktion, Solvation und Energietransfer in Natrium-Wasser-Clustern

Inaugural-Dissertation

zur Erlangung des Doktorgrades

der Freien Universität Berlin

Fachbereich Physik

vorgelegt von

Christiana Bobbert

aus Höxter

Berlin 2001

Gutachter dieser Arbeit waren:

1. Gutachter: Prof. Dr. I.V. Hertel
2. Gutachter: Prof. Dr. K. Moebius

Tag der Prüfung: 24.4.2001

Die Arbeit wurde durchgeführt am

Max-Born-Institut für nichtlineare Optik und Kurzzeitspektroskopie (MBI)

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Experimentelle Methoden	5
2.1	Clusterpräparation	5
2.1.1	Molekularstrahlen	6
2.1.2	Clusterbildung	7
2.1.3	Mittlere Clustergröße nach Hagen	8
2.1.4	Präparation von Mischclustern: das Pick-up-Verfahren	10
2.2	Spektroskopische Methoden	11
2.2.1	Depletionspektroskopie	11
2.2.2	Pump-Probe-Spektroskopie	15
3	Experimenteller Aufbau	19
3.1	Die Molekularstrahlapparatur	19
3.1.1	Die Clusterquelle	21
3.2	Steuerung und Datenaufnahme	27
3.3	Lasersysteme und spektroskopische Aufbauten	27

3.3.1	Zur Depletionspektroskopie	27
3.3.2	Zur Pump-Probe-Spektroskopie	30
4	Die Natrium-Wasser-Reaktion	33
4.1	Einführung	33
4.2	Experimentelle Resultate	36
4.2.1	Massenspektren nach Ionisation mit einer Wellenlänge von 266 und 355 nm	36
4.2.2	Der Pick-up-Prozeß	43
4.3	Zusammenfassung und Diskussion	44
5	Solvatation, Stand der Forschung	47
5.1	Gelöste Elektronen in der Flüssigkeit	47
5.2	Negativ geladene polare Molekül-Cluster	49
5.3	Metallatom-Wassermolekül-Cluster	52
5.4	Natrium-Ammoniak-Cluster	58
6	Spektroskopische Eigenschaften des A-Zustands	63
6.1	Experimentelle Resultate	63
6.1.1	Die Absorptionsspektren	64
6.1.2	Absorptionsquerschnitt und Oszillatorstärke	67
6.1.3	Einfluß der Fragmentation auf die Spektren	69
6.1.4	Diskussion der Absorptionsspektren	71
6.2	Vergleich mit quantenchemischen Rechnungen	76

<i>INHALTSVERZEICHNIS</i>	5
6.3 Vergleich mit ähnlichen Systemen	82
7 Dynamik des A-Zustands	89
7.1 Messungen mit einer Laserpulsdauer von 200 fs	89
7.1.1 Zeitkonstante der Na(H ₂ O) _n -Komplexe	90
7.1.2 Zeitkonstante der Na(D ₂ O) _n -Komplexe	95
7.2 Messungen mit einer Laserpulsdauer von sub-30 fs	99
7.3 Zusammenfassung und Diskussion	100
7.3.1 Interne Konversion und Fragmentation	101
7.3.2 Größenabhängigkeit	102
7.3.3 Isotopeneffekt	107
7.3.4 Weitere dynamische Prozesse	110
7.3.5 Fragmentation	112
7.3.6 Vergleich mit Natrium-Ammoniak-Komplexen	113
8 Zusammenfassung	115
A Anhang	119
A.1 Spektroskopische Eigenschaften von Na(H ₂ O) _n -Clustern	119
A.2 Spektroskopische Eigenschaften von Na(NH ₃) _n -Clustern	122

