

**Gasphasenuntersuchungen
zu Geometrie und Ladungstransfer
von Kohlenstoffclustern**

Im Fachbereich Physik der
Freien Universität Berlin eingereichte

Dissertation

durchgeführt am Max-Born-Institut für
Nichtlineare Optik und Kurzzeitspektroskopie

von

Gero Heusler

1999

1. Gutachter: Prof. Dr. I. V. Hertel

2. Gutachter: Prof. Dr. L. Wöste

Abstract

Carbon clusters have been investigated in the gas phase. A new modular molecular beam apparatus has been set up and allows a variety of experiments.

This work divides up into three parts: In the first part, it is shown that the near-resonant charge transfer reaction $C_{60} + Na(3p) \rightarrow C_{60}^- + Na^+$ exhibits an extraordinary large alignment effect ($\langle \rho_{\sigma\sigma} \rangle = 0.8 \pm 0.2$). In a crossed beam experiment, the sodium is excited using a linearly polarized two mode dye laser. The alignment effect is observed by simultaneously monitoring the dependence of the fluorescence and the C_{60}^- anions on the polarization direction. It is found that practically only sodium atoms with their electronic charge cloud asymptotically aligned along the relative velocity vector lead to charge transfer. The clear effect is interpreted in terms of the “orbital following” model and the strong π -character of the LUMO (*lowest unoccupied molecular orbital*) of C_{60} .

The second part is dedicated to a mass spectrometric characterization of the carbon clusters. Carbon clusters are produced by laser-vaporization and subsequent supersonic expansion. It turns out that the bimodal distribution of carbon cluster cations may even be trimodal. This third mode is explained by the coalescence of smaller fullerenes in the source. The studies using reactive carrier gases (hydrogen and nitrogen) give some insight in the variety of the geometries of carbon cluster cations. Evidence for the formation of long-lived, excited neutral states in large fullerenes is presented.

In the third part, the geometries of the carbon cluster cations are investigated using the technique of gas phase ion chromatography. The mobility of the ions in an inert gas is determined. A comparison with the simulated mobilities of different geometric isomers allows a structural assignment of the different isomers. This will allow future studies of the reactivity of carbon clusters in dependence on their geometry.

Veröffentlichungen

E. E. B. Campbell, R. Ehlich, G. Heusler, O. Knospe, H. Sprang:

„Capture dynamics in collisions between fullerene ions and rare gas atoms“

Chem. Phys. **239**, 299 (1998)

G. Heusler, E. E. B. Campbell:

„Strong alignment effect in quasi-resonant charge transfer between laser-excited sodium atoms and C₆₀“

Phys. Rev. Lett., im Druck

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung	1
2 Experimenteller Aufbau	7
2.1 Aufbau zur Untersuchung der Mobilität	7
2.1.1 Überblick.....	7
2.1.2 Vakuumsystem.....	9
2.1.3 Clusterquelle	10
2.1.4 Flugzeitmassenspektrometer.....	14
2.1.5 Quadrupolmassenspektrometer.....	16
2.1.6 Ionenoptik	17
2.1.7 Driftzelle	20
2.1.8 Datenaufnahme	21
2.1.9 Zusammenfassung der Quellparameter.....	21
2.2 Aufbau zur Untersuchung des Ladungstransfers.....	22
2.3 Der Zweimodenlaser	25

I. Ladungstransfer: Die Reaktion $C_{60} + Na(3p) \rightarrow C_{60}^{-} + Na^{+}$

3 Theoretische Einführung	31
3.1 Orientierung und Alignment	32
3.2 Reaktionstypen	34
3.3 Energetische Betrachtung und Massey-Kriterium.....	36
3.4 Meßtheorie.....	38
3.5 Experimente mit zylindrischer Symmetrie.....	40
3.6 Messung des optisch präparierten Multipolmoments S_{20}	43
3.7 Stark-Effekt	46
3.8 Anregungs- und Reaktionsmechanismen	49
3.9 Das Stoßsystem $Na + C_{60}$	51

4 Meßergebnisse und Datenanalyse	55
4.1 Nachweis des Ladungstransfers.....	58
4.2 Die Ladungstransferreaktion $C_{70} + Na(3p) \rightarrow C_{70}^- + Na^+$	60
4.3 Alignmenteffekte.....	61

II. Massenspektrometrische Untersuchungen

5 Massenspektrometrische Analyse der Kohlenstoffcluster	69
5.1 Magische Zahlen	70
5.2 Korrelationen zwischen Kohlenstoffclustern	76
5.3 Zum Ursprung der trimodalen Verteilung.....	81
5.4 Einfluß des Trägergases	86
5.5 Zusammenfassung	99
6 Hochangeregte Neutralcluster langer Lebensdauer?	101
6.1 Nachweis mit dem Quadrupol.....	102
6.2 Nachweis mit dem MSP	108
6.3 Erklärungsversuche	113

III. Geometrie der Kohlenstoffcluster

7 Mobilität und Diffusion von Ionen in Gasen	121
7.1 Definition	121
7.2 Bedingung des schwachen Feldes	122
7.3 Reduzierte Mobilität.....	124
7.4 Theoretische Ankunftszeitverteilung	124
7.5 Experimentelle Bestimmung der Mobilität	127
7.6 Berechnung der Mobilität eines Clusterions	128
7.7 Auflösung	131
8 Messungen der Mobilität von Kohlenstoffclustern	133
9 Zusammenfassung und Ausblick	149
10 Literaturverzeichnis	155

Danksagung

Prof. E. E. B. Campbell danke ich für die Bereitstellung des Themas und die wissenschaftliche Betreuung dieser Arbeit, die gerade in der Phase größerer räumlicher Trennung an Intensität gewann. Für ihr unermüdliches Engagement möchte ich ihr herzlich danken, ebenso für die kritische Durchsicht des Manuskripts.

Prof. I. V. Hertel danke ich für die Möglichkeit, diese Arbeit am Max-Born-Institut durchzuführen und sein stetes Interesse am Fortschritt der Arbeit.

Prof. W. Raith danke ich für die Aufmunterung und hilfreiche Ideen in einer kritischen Phase des Experimentes.

Prof. L. Wöste danke ich für die Übernahme des Zweitgutachtens und sein Interesse an dieser Arbeit.

Ohne die Unterstützung und tatkräftige Mithilfe der Diplomanden wäre diese Arbeit nicht möglich gewesen. Andreas Thamm hat die Kohlenstoffclusterquelle aufgebaut, mit der ein faszinierender Einblick in die Welt der Kohlenstoffcluster möglich wurde, und den Zweimodenlaser wieder in Betrieb genommen. Sven Ebert hat die Simulationsrechnungen zur Bestimmung der Mobilität der Kohlenstoffcluster durchgeführt. Thomas Neudeck hat die Ionenoptik simuliert und aufgebaut. Allen dreien möchte ich für ihre Mitarbeit im Labor und die überaus angenehme Zusammenarbeit danken.

Allen Mitarbeiterinnen und Mitarbeitern des Bereichs A möchte ich für die kollegiale Arbeitsatmosphäre und Mithilfe danken. Dies richtet sich insbesondere an die Teerunde. Hervorzuheben ist außerdem das besondere Engagement von Roman Peslin, der alle mechanischen Arbeiten präzise und ideenreich ausgeführt hat. Peter Brockhaus hat die Arbeiten des Natriumexperimentes begleitet. Es wäre ohne seine Ideen sicher nicht zustande gekommen. Dafür möchte ich mich herzlich bedanken.

Ein besonderer Dank gilt meiner Familie für ihre stete Unterstützung. Meinem Vater danke ich für die kritische Durchsicht des Manuskripts, meinem Bruder für seine theoretische Hilfestellung. Khassia Borisovna danke ich insbesondere für das leckere Borschtsch, das das Zusammenschreiben so angenehm gestaltet hat.

Meine Frau Anna hat mich durch alle Hochs und Tiefs der Arbeit begleitet. Mein Dank für ihre Unterstützung läßt sich nur schwer in Worte fassen.

Lebenslauf

Persönliche Daten

Name Gero Heusler
geboren am 7. 9. 1969 in Heidelberg
Familienstand verheiratet

Schulbildung, Wehrdienst

1979-88 Gymnasium in Heidelberg
Mai 1988 Abschluß mit Abitur
Okt. 1988 - Sept. 1989 Wehrdienst, Abhörfunk Russisch, Frankenberg/Eder

Hochschulstudium und Promotion

Okt. 1989 - Juli 1995 Studium der Physik an der Universität Heidelberg und Tomsk (Rußland). Diplomarbeit am Max-Planck-Institut für Kernphysik unter der Betreuung von Prof. Dr. D. Schwalm mit dem Thema:
Indirekte Untersuchung der astrophysikalischen $^{12}\text{C}(\alpha,\gamma)^{16}\text{O}$ Einfangrate mit der α -Transferreaktion $^{12}\text{C}({}^7\text{Li},t)^{16}\text{O}$
26. 7. 1995 Abschluß mit Diplom
Okt. 1995 Beginn der Promotion am Max-Born-Institut in Berlin/Adlershof unter der Betreuung von Prof. Dr. I. V. Hertel und Prof. Dr. E. E. B. Campbell

Praktika, Stipendien und Auslandsaufenthalte

Okt. - Dez. 1985 Trimester an der Roch Valley High School in Littleborough, Großbritannien
Juli/Aug. 1988 International Summer Science Institute am Weizmann-Institut in Rehovot, Israel
Sept. 1988 Praktikum in den Forschungslabors der Isabellenhütte GmbH KG in Dillenburg
1990-1995 Mitglied der Studienstiftung des deutschen Volkes
Aug. 1991 - Juli 1992 DAAD-Stipendium zum Studium an der Universität Tomsk, Rußland
Aug./Sept. 1992 Sommerstudent am CERN in Genf, Schweiz