

Zeitaufgelöste Photodissoziation gespeicherter Goldcluster

M. Vogel¹, K. Hansen^{1,2}, A. Herlert¹, U. Rieth², L. Schweikhard¹, C. Walther²

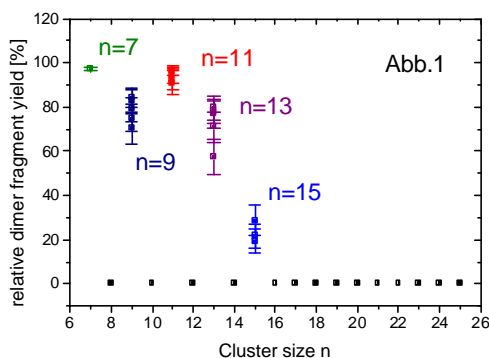
¹Institut für Physik, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, D-55099 Mainz

²Institut für Kernchemie, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, D-55099 Mainz

In einer Penningfalle [1] gespeicherte Goldclusterionen Au_n^+ , $n=7-26$ werden mit einem Laserpuls optisch angeregt und ihre Fragmentation zeitaufgelöst beobachtet. Die Analyse der Produktfragmente erfolgt in einem Flugzeitmassenspektrometer mit Einzelionennachweis.

Auf diese Weise können einerseits die Fragmentationskanäle der Goldclusterionen bestimmt werden, andererseits ermöglicht die zeitaufgelöste Beobachtung eine Bestimmung der Zerfallszeitkonstanten in Abhängigkeit von der Clustergröße n und der Anregungsenergie E . Unter Verwendung statistischer Modelle für die Fragmentation eines über seine Dissoziationsschwelle D hinaus angeregten Clusters aus n Atomen, können die Dissoziationsenergien $D(n)$ bestimmt werden. Zur Anwendung kommen hierbei neben dem RRK- und QRRK-Modell [2,3] insbesondere Phasenraummodelle nach Weisskopf in Ausformulierungen nach Engelking [4] und Hansen [5].

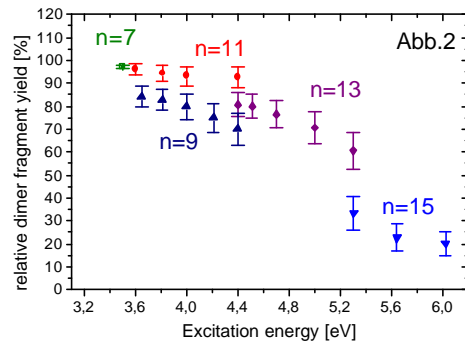
Für die Fragmentationskanäle zeigt sich eine ausgeprägte Struktur: Während für Clusterionen mit geradzahligem n stets nur Monomere evaporieren werden, findet für Clusterionen mit ungeradzahligem n Konkurrenz in der Evaporation von Monomeren und Dimeren statt (Abb. 1). Diese verlagert eine Dominanz



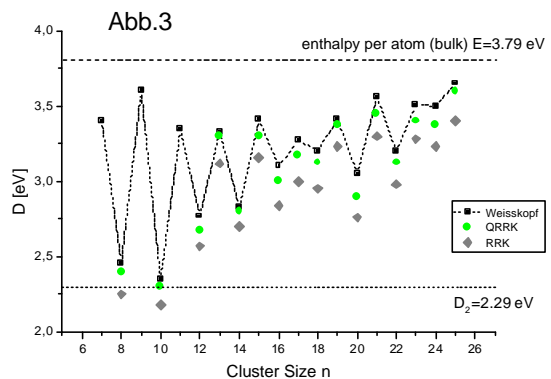
der Dimerevaporation im Fall von $n=7$ in eine Dominanz der Monomerevaporation im Fall von $n=15$, sodaß für größere Clusterionen stets nur Monomerevaporation stattfindet. Auch zeigt sich eine Energieabhängigkeit der Dimer-zu-Monomerverhältnisse, die für alle betrachteten Größen dasselbe (negative) Vorzeichen hat (Abb. 2).

Sowohl die Verzweungsverhältnisse als auch ihre Abhängigkeit von der Anregungsenergie

werden im Rahmen des Hansen-Modells erklärt. Ebenso können damit sowohl Monomer- als auch Dimer-Dissoziations-



energien berechnet werden, die in Abb. 3 als Funktion der Clustergröße n aufgetragen sind und mit den aus dem RRK- und QRRK-Modell ermittelten Werten verglichen werden.



Die Dissoziationsenergien nach Hansen sind zur Führung des Auges mit einer Linie verbunden. Sie zeigen einen großen Gerade-Ungerade-Effekt, der auf die elektronische Struktur der Cluster zurückgeht. Ebenfalls sind die erhöhten, relativen Stabilitäten der Cluster mit $n=9$ und $n=21$ zu sehen. Diese entsprechen abgeschlossenen, elektronischen Schalen mit 8 respektive 20 Elektronen. Die erhöhte relative Stabilität von Au_9^+ ist außer in Abb. 3 auch in Abb. 1 und Abb. 2 als verminderter relativer Dimeranteil in der Evaporation zu sehen.

[1] S. Becker et al., Rev. Sci. Instrum. 66 (1995) 4902

[2] O.K. Rice et al., J. Am. Chem. Soc. 50 (1928) 617

[3] L.S. Kassel, J. Chem. Phys. 32 (1928) 225

[4] P.C. Engelking, J. Chem. Phys. 87 (1986) 936

[5] K. Hansen, Phil. Mag. B 79,9 (1999) 1413