

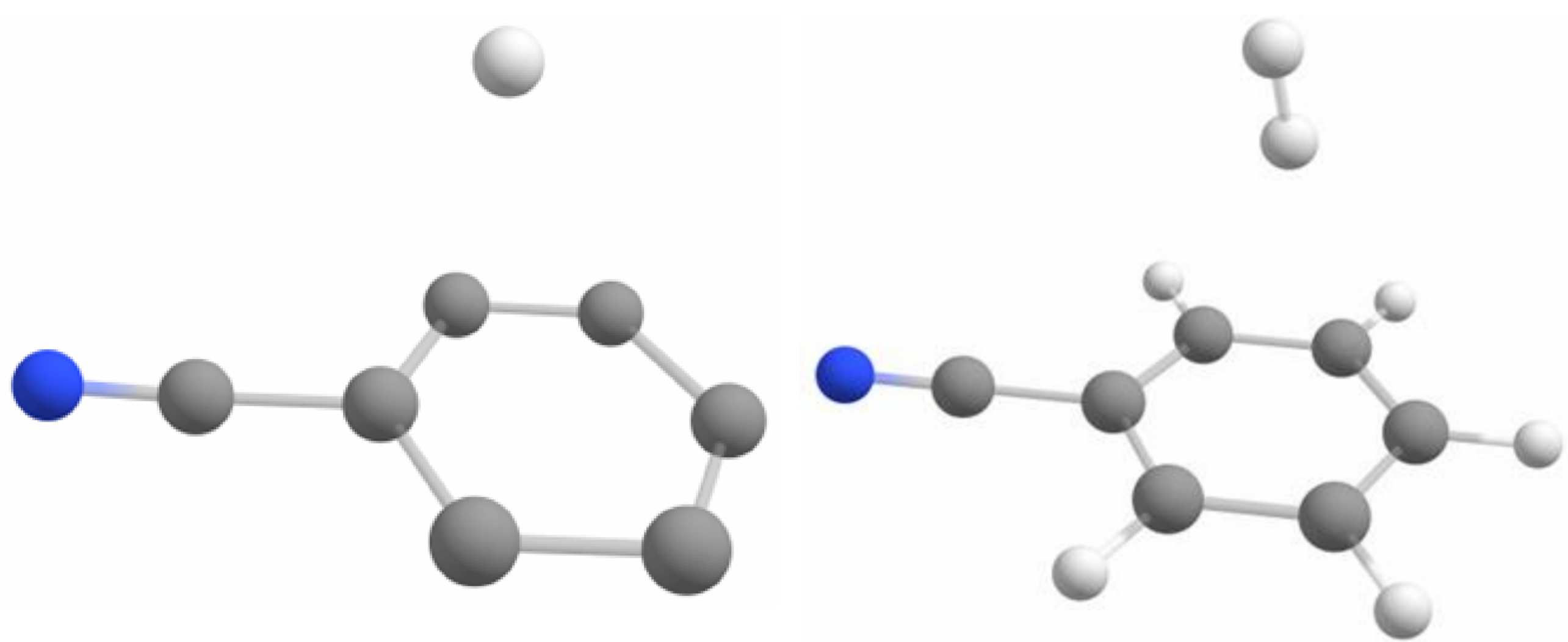
Durch Rotation zur Position

Molekülstrukturaufklärung eines org. Komplexes auf Basis der Rotationspektroskopie

Lily Böyer, Jesko Brachmann, Sina Eikens, Anton Gaida, Dr. Beppo Hartwig, Jun.-Prof. Daniel A. Obenchain

Einleitung

- **Ziel?** Strukturaufklärung eines Van-der-Waals Komplexes aus Benzonitril und Wasserstoff
- **Wie?** Rotationspektroskopie mit Strahlung im Mikrowellenbereich
- **Warum?** BENCh Projekt (Vorhersageverbesserungen)
potentielle Möglichkeit zur Wasserstoffspeicherung



Experimentell ermittelte Struktur (links), vorhergesagte Struktur (rechts).

Theorie

Quantenmechanischer Hintergrund

- Quantisierung der Energie: nur diskrete (bestimmte) Energiewerte erlaubt, nicht kontinuierlich
- Energieniveaus: Stufen der Energie die ein System besetzen kann
- Quantenzahlen charakterisieren Zustand eines Systems vollständig
- Anzahl und Bedeutung der Quantenzahlen abhängig von System (Körperform der Rotation)
- Unterscheidung in Translations-/ Rotations- und Vibrationsenergie
- Rotationsübergänge: Wechsel der Rotationszustände, die bestimmten Regeln folgen

Wasserstoff-Formen

- *ortho*-Wasserstoff rotiert zusätzlich zur Moleküldrehung
- *para*-Wasserstoff rotiert nicht (im Grundzustand)

Dipol Moment

- Räumliche Ausrichtung vom elektrischen/magnetischen Feld im Molekül
- Permanentes Dipolmoment als Voraussetzung für Rotationspektroskopie

Überschallexpansion

- Isentrope Expansion ins Vakuum mit Überschallgeschwindigkeit → gleiche Geschwindigkeit → schmaler Peak in Boltzmann-Verteilung → Temperaturabfall

Methodik

BENCh

- Berechnung theoretischer Rotationskonstanten im Zuge des BENCh Projektes
- Grundlegende Vorhersage der Messungen
- Rotationsübergang suchen, bei der Frequenz messen

Probe

- Pulsen der Probe mit Trägergas in Messkammer
- Abkühlen der Probe ($-270\text{ }^{\circ}\text{C}$) aufgrund der Überschallexpansion

Strukturinformation

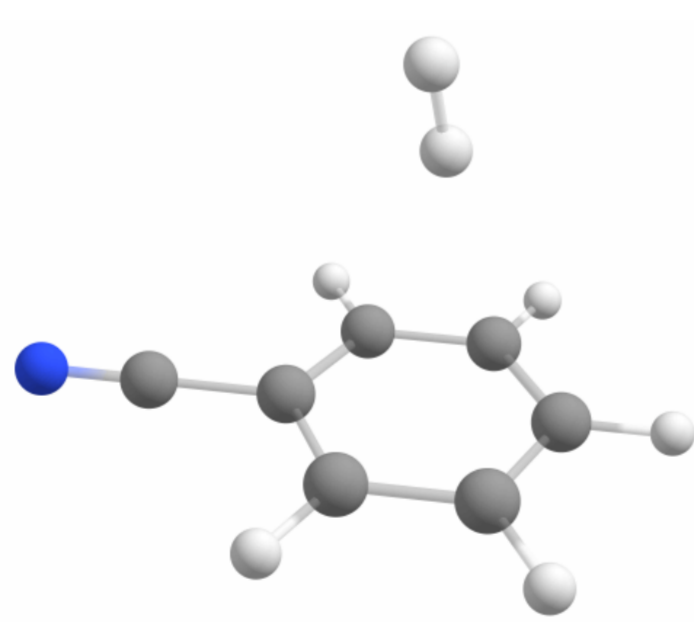
- Rotationskonstanten aus Gesamtspektrum → 3D-Struktur

Fit

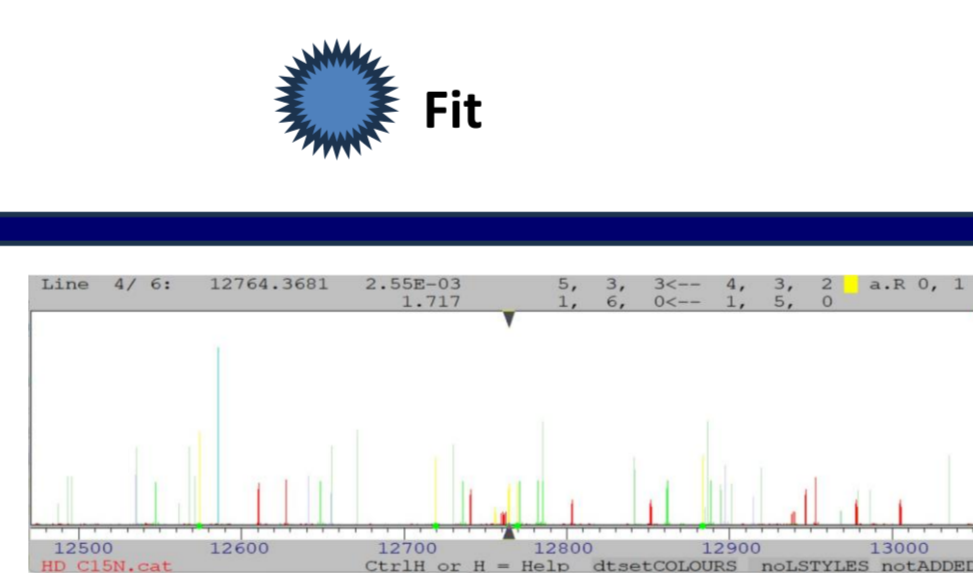
- Verbesserung des Gesamtspektrums durch gemessene Daten
- Ausreichendes Gesamtspektrum nach Zuordnung von 150 Übergängen



Strukturinformation

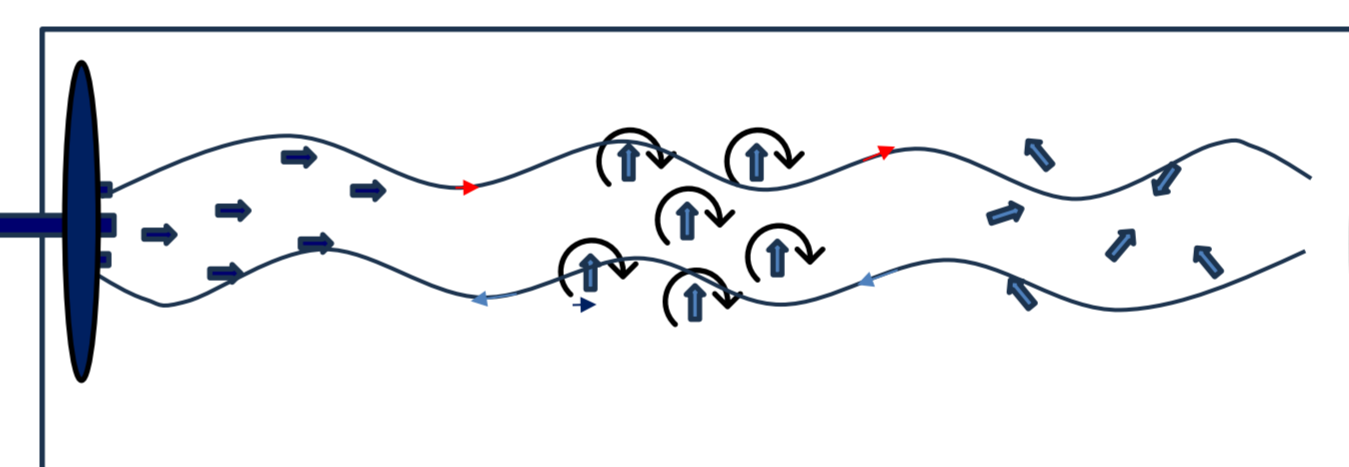


Schematische Darstellung des experimentellen Vorgehens



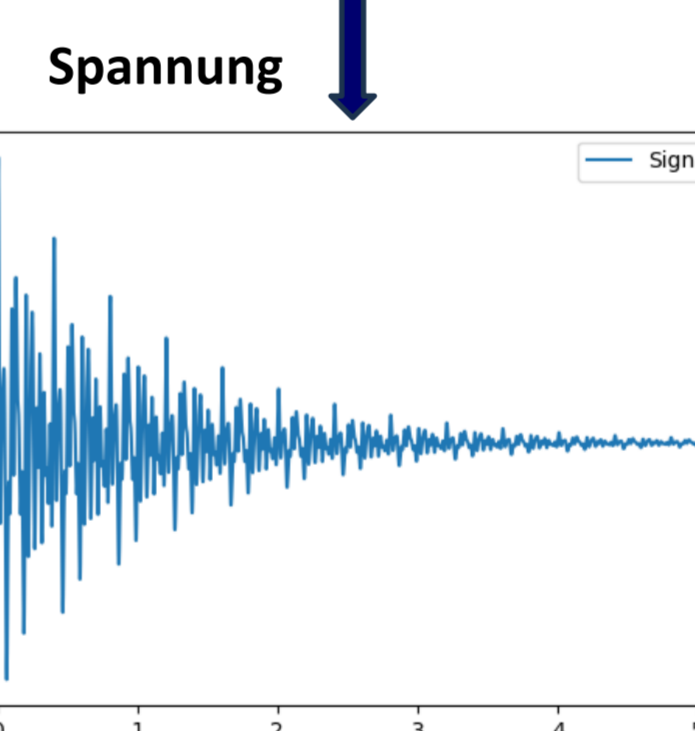
Spektrum

- Zuordnung der zusammengehörigen Peaks (Doppler)
- Komplexität der Spektren (durch quantenmechanische Effekte) → Auswertung z.T. 15 min
- Experimentelle Frequenz zu jedem Rotationsübergang

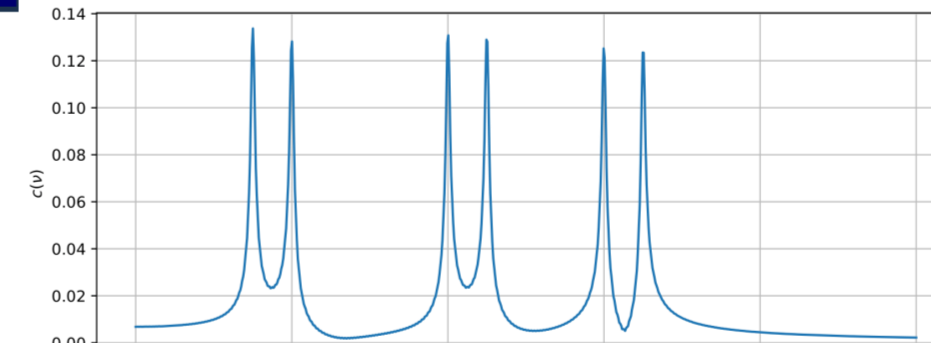


Vakuumkammer

- Aussenden von Mikrowellenstrahlung
- Reflexion der Strahlung → Dopplereffekt
- Anregung der Komplexe in höhere Rotationszustände
- Synchronisation der Rotationsbewegung
- Dephasierung und Abfallen in den Ausgangszustand → messbare Spannung
- Signal in Form von statistisch basierendem „free induction decay“
- Erkennbare Frequenzpeaks nach Fourier-Transformation
- Dopplereffekt → zwei Peaks pro Übergang
- Messdauer bis zu 30 min



Fourier-Transformation



Ergebnis

- Modifikation charakteristischer Größen (Winkel, Bindungslängen)
- Vorhersage basiert auf *para*-H₂ Struktur durch *ortho*-H₂ → Ungenauigkeit
- Mathematische Einschränkung aufgrund Isotopenmessung → fehlende Atome

Ausblick

- Messung weiterer Isotopologe zur Vervollständigung der Struktur
- Aufklärung von Strukturunterschieden zwischen *ortho*- und *para*-Komplexen
- Weiterführung des BENCh-Projektes
- Grundlagenforschung zur H₂-Speicherung