

Zur Ionenbildung im Stickstoff¹

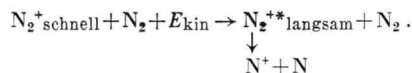
Von F. J. COMES und W. LESSMANN

Institut für Physikalische Chemie der Universität Bonn
(Z. Naturforsch. 17 a, 704–705 [1962]; eingegangen am 4. Juli 1962)

Die bei unelastischen Stößen atomarer Systeme auftretende Wechselwirkung kann zum Austausch oder zur Freisetzung von innerer Energie, elektromagnetischer Strahlung oder von Elektronen führen. Es kann eine Vielzahl von Prozessen auftreten wie Umladung, Ionisation, Austausch von Anregungsenergie, Neutralisation u. a. Wirkungsquerschnitte für solche Reaktionen sind nicht nur für die Stoßtheorie selbst, sondern für viele andere Arbeitsgebiete interessant. Auch für massenspektroskopische Untersuchungen bei höheren Drücken (10^{-4} bis 10^{-3} Torr) ist die Kenntnis unelastischer Stöße für die Deutung der Spektren von Wichtigkeit.

Bei der Photoionisation des Stickstoffs² wurde festgestellt, daß die Ionenausbeutekurve über verschiedene interessante Prozesse Auskunft zu geben vermag, die durch die Absorption von Photonen im Molekül auftreten. Oberhalb der Ionisationsgrenze existieren sowohl angeregte Zustände des Ions, wie angeregte Zustände des neutralen Moleküls, die von Quantensprüngen stärker gebundener Elektronen herrühren.

Erhöht man den Stickstoffdruck in der Ionenquelle, so treten neben den normalen N_2^+ -Ionen außerdem Ionen der Massenzahl 14 auf, die, wie die Messungen zeigten, N^+ -Ionen sind. Bei Quantenenergien direkt oberhalb der Ionisationsspannung ist die N^+ -Bildung unter Absorption eines Photons natürlich unmöglich. Ebenso ist eine Bildung durch Elektronenstoß nicht möglich, da im Ionisationsraum keine Photoelektronen erzeugt werden und das Ionenspektrum selbst bei sehr hohen Photonenintensitäten (10^{11} Quanten/sec) frei von Elektronenstoßionisation ist. Für die N^+ -Ionen, deren Häufigkeit in diesem Experiment bei einem Druck von 10^{-3} Torr etwa 0,5% der primären N_2^+ -Intensität beträgt, wird die Bildung durch Umladung eines N_2^+ -Ions mit einem neutralen N_2 -Molekül im Grundzustand und anschließender Dissoziation des umgeladenen angeregten N_2^+ -Ions vorgeschlagen.



Zur Massenanalyse wurde ein Vierpol-Massenspektrometer benutzt, dessen Eigenschaft, die Ionen unabhängig von ihrer Anfangsenergie zu fokussieren, hier von großem Nutzen ist. Dadurch ist es möglich, alle durch unelastischen Stoß gebildeten Sekundärionen, deren Anfangsenergie zwischen sehr kleinen Werten bis zur an-

nähernd vollen Beschleunigungsspannung liegt, zu messen. Da in diesem Experiment nur hinter dem Massenspektrometer-Eintrittsspalt gepumpt wurde, herrschte über die gesamte Ionenbeschleunigungsstrecke (etwa 10 cm) der gleiche N_2 -Druck. Durch Wahl der eingestrahlten Photonenenergie kann der Anregungszustand, in dem das primäre N_2^+ -Ion gebildet wird, genau vorgegeben werden.

Für die N^+ -Bildung können zunächst drei Reaktionsmechanismen verantwortlich sein:

1. Stoß zweier angeregter neutraler N_2 -Moleküle,
2. Stoß eines N_2^+ -Ions mit einem N_2 , beide im Grundzustand und
3. Stoß eines angeregten N_2^+ -Ions mit einem N_2 im Grundzustand.

Das angeregte N_2^+ -Ion kann dabei sowohl durch direkte Anregung bei der Ionenbildung als auch durch strahlungslosen Zerfall des hochangeregten neutralen Moleküls erzeugt werden.

Die Messungen zeigten, daß

- a) N^+ nur oberhalb des Ionisationspotentials von N_2 gebildet wird und seine Intensität linear von der Anzahl der eingestrahlten Photonen ist,
- b) die N^+ -Intensität eine quadratische Funktion des N_2 -Drucks bis zu dem gemessenen Druck von 10^{-3} Torr ist,
- c) das N^+/N_2^+ -Verhältnis keine Abhängigkeit von der eingestrahlten Photonenenergie bis 19 eV zeigt,
- d) das N^+/N_2^+ -Verhältnis keine Abhängigkeit von der Aufenthaltsdauer der Ionen in der Ionisationskammer bis maximal 10^{-5} sec zeigt und
- e) das N^+/N_2^+ -Verhältnis im allgemeinen eine ansteigende Funktion der Ionenbeschleunigungsspannung zwischen 50 und 400 eV ist.

In einer Untersuchung über Aston-Banden konnten KERWIN und Mitarbeiter³ zeigen, daß im Massenspektrum des N_2 auch N^+ -Ionen auftreten, die durch Stoß mit N_2^+ -Ionen gebildet werden. LINDHOLM und Mitarbeiter⁴ haben sich in einer systematischen Untersuchung zur Frage der Dissoziationsenergie des N_2 mit der Bildung von N_2^+ - und N^+ -Ionen beim unelastischen Stoß verschiedener Atom-Ionen mit N_2 beschäftigt. Während in beiden Fällen die Primärionen durch Elektronenstoß mit nicht monoenergetischen Elektronen erzeugt wurden, konnte in dem vorliegenden Experiment das Primärion sowohl im Grundzustand als auch in einem definierten Anregungszustand erzeugt werden.

Die Meßergebnisse a) bis e) zeigen, daß bis zu einem Druck von maximal 10^{-3} Torr in der Ionenquelle der Reaktionsmechanismus (2) – Bildung des N^+ durch Stoß von N_2^+ mit N_2 im Grundzustand – maßgebend ist. Das Meßergebnis e) ist im Sinne der adiabatischen Theorie von MASSEY⁵ zu erwarten, da unter den vor-

¹ F. J. COMES u. W. LESSMANN, Mitteilung auf der Tagung der Deutschen Bunsen-Gesellschaft in Münster, Mai 1962.

² F. J. COMES u. W. LESSMANN, Z. Naturforsch. 16 a, 1038 [1961].

³ L. KERWIN u. Wm. McGOWAN, Proc. 5th. Int. Conf. on Ionization Phenomena in Gases, Munich Sept. 1961.

⁴ E. LINDHOLM, Ark. Fys. 8, 257 [1954]. – E. GUSTAFSSON u. E. LINDHOLM, Ark. Fys. 18, 219 [1960].

⁵ H. S. W. MASSEY u. E. H. S. BURHOP, Electronic and Ionic Impact Phenomena, Oxford University Press, Oxford 1956.



gegebenen Versuchsbedingungen $(a| \Delta E |)/(h\nu) > 1$ ist.

Bei Erhöhung der Stoßzahl in der Ionenquelle und Steigerung der Primärionenintensität stellt die Kombination aus Vierpol-Massenspektrometer und UV-Monochromator ein gutes Instrument dar zur Untersuchung von Reaktionen angeregter Moleküle im neutralen und Ionenzustand mit Gasen.

On the 'Stability' of the Plasma Boundary Layer

By G. ECKER

University of California, Lawrence Radiation Laboratory,
Berkeley, U.S.A.

and

J. J. McCLURE

Institut für theoretische Physik, Universität Bonn

(Z. Naturforschg. 17 a, 705—706 [1962]; eingegangen am 7. Juli 1962)

If a uniform plasma of particle densities (n_{\pm}) and temperatures (T_{\pm}) is in contact with an insulated wall it develops a disturbed region near the wall which is called the boundary layer. In this boundary layer we distinguish several model regions¹, one of them being the inertia limited zone (ILZ) immediately in front of the wall. Its extension is of the order of one ion mean free path.

It is important to know whether the boundary layer has a stationary solution, or better, whether it is stable.

BOHM² has analysed a part of this problem by investigating whether the space charge region (SCR) of the boundary layer introduces a non-stationarity or not. His well-known 'stability criterion' claims that the space charge region is 'stable' only if the kinetic energy of the ions entering the SCR is larger or equal to $kT_-/2$. His argument is based on the following assumptions:

1. plane geometry,
2. BOLTZMANN distribution of the electrons,
3. free fall of the ions,
4. negligible electric field (E_0) at the edge of the SCR,
5. equal particle densities ($n_{-0} = n_{+0}$) at the edge of the SCR.

The basic assumptions (2, 3) for the particle motion are actually characteristic for the inertia limited region. The extension of the space charge region may be larger or smaller than that of this inertia limited zone.

If it is larger, then BOHM's calculations should be restricted to the ILZ. If it is smaller, then his calculations should be extended to the whole ILZ since the part of the inertia limited zone outside the SCR might well have a bearing on the question of stationarity and stability.

Consequently we investigate here whether there is a stationary solution for the inertia limited region and whether its existence is limited by BOHM's criterion.

Die hier vorliegenden Messungen sind vorläufige Ergebnisse einer vor dem Abschluß stehenden Untersuchung, über die später ausführlich berichtet werden soll.

Wir danken Herrn Professor Dr. W. GROTH für die ständige Förderung unserer Arbeit und dem Cambridge Research Directorate für die Bereitstellung von Mitteln für ihre Durchführung.

In doing this we take into account that at the edge of the ILZ, assumptions (4) and (5) do not necessarily hold. As a matter of fact from the calculation of the diffusion disturbed region¹ we can estimate the values of $\delta = n_{-0}/n_{+0}$ and E_0 and find that they may violate the conditions (4) and (5). The importance of the non-vanishing field at the edge of the SCR has already been mentioned by HALL³.

Under these circumstances the stationary state of the inertia limited region is described by

$$\frac{d^2\eta}{ds^2} = \left(1 + \frac{2}{\gamma}\eta\right)^{-\frac{1}{2}} - \delta \exp(-\eta) \quad (1)$$

where we have used

$$\eta = eV/(kT_-), \quad s = x/l_D, \quad \gamma = Mv_{+0}^2/(kT_-), \\ \delta = n_{-0}/n_{+0}, \quad l_D^2 = kT_-/(4\pi e^2 n_{+0}). \quad (2)$$

V ist the negative of the electrostatic potential and v_{+0} is the velocity of the ions with mass M entering the ILZ.

Equation (1) may be integrated once, yielding

$$\left(\frac{d\eta}{ds}\right)^2 = 2\gamma \left[\left(1 + \frac{2}{\gamma}\eta\right)^{\frac{1}{2}} - 1\right] + 2\delta[\exp(-\eta) - 1] + \varepsilon_0^2 \quad (3)$$

where we have used the boundary conditions

$$\eta_0 = 0, \quad (d\eta/ds)_0 = \varepsilon_0. \quad (4)$$

Because of the positive definite character of the left hand side of equation (3), BOHM's criterion

$$\gamma \geq 1 \quad (5)$$

would follow from an expansion of the right hand side of equation (3) if we made use of the assumptions (4) and (5).

However, according to the above argument these assumptions may not be true at the edge of the ILZ and consequently the situation may be different.

To show this we find for a given value of ε_0 and δ the lower limit of γ for which the right hand side of equation (3) is positive definite for all values of η .

This has been done by choosing a value of ε_0 and then finding the value of $\eta = \eta^*$ for which the right hand side of equation (3) has a minimum. One obtains

$$\delta = \left(1 + \frac{2}{\gamma}\eta^*\right)^{-\frac{1}{2}} \cdot \exp(\eta^*). \quad (6)$$

¹ UCRL Report No. 10 128.

² D. BOHM, in the 'Characteristics of Electrical Discharges in Magnetic Fields', A. GUTHRIE and R. K. WAKERLING, eds.,

McGraw-Hill Book Co., Inc., New York 1949, Chap. III.

³ L. S. HALL, Phys. Fluids 4, 388 [1961].