

Ladungsaustausch in angeregte Ionenzustände bei Stoßenergien von 2 bis 250 eV

H. SCHLUMBOHM

Institut für Angewandte Physik der Universität Hamburg
(Z. Naturforsch. 23 a, 776—777 [1968]; eingegangen am 9. März 1968)

Es wurden Messungen der Photonenemission durchgeführt, die beim Ladungsaustausch zwischen He^+ - und Ne^+ -Ionen und den Atomen Ar und Kr sowie den Molekülen N_2 , O_2 und CO_2 bei Stoßenergien zwischen 2 und 250 eV auftritt. Da diese Messungen wegen der Lichtemission über die elektronischen Zustände Auskunft geben, die die Stoßpartner nach dem Stoß annehmen, sollten die Ergebnisse zum besseren Verständnis des Ladungsaustausches beitragen. Außerdem besteht an dieser Untersuchung Interesse, da sich im Gegensatz zu bisherigen Vorstellungen an einigen Reaktionen^{1–3} gezeigt hat, daß auch bei Stoßenergien unterhalb des keV-Bereiches beim Ion-Atom-Stoß die Übertragung eines Teiles der kinetischen Energie in innere (Anregungs-) Energie möglich ist.

Die Untersuchungen wurden mit einer Anordnung durchgeführt, die einen elektrostatisch fokussierten Ionenstrahl von 10^{-8} A mit einer Energiebreite unterhalb 1 eV lieferte. Um den Ionenstrahl frei von angeregten Ionen zu halten, wurde die Elektronenstoßquelle mit Spannungen unterhalb des 1. Anregungsniveaus der Ionen und außerdem mit durchströmendem Gas betrieben. Zweierlei Messungen wurden angestellt: Es wurde die spektrale Verteilung der emittierten Photonen zwischen 3500 und 7000 Å bei Stoßenergien von 200 eV für die genannten Systeme aufgenommen und außerdem wurde für ausgewählte enge Spektralbereiche die Abhängigkeit der Intensität von der Energie ausgemessen.

Aus der Analyse der spektralen Intensitätsverteilungen ergibt sich, daß die beobachtete Emission stets von Anregungszuständen des durch den Ladungsaustausch gebildeten Ions herrührt. Bei den Edelgassystemen wurden mehrere Multipletts von Ar^+ und Kr^+ gefunden, bei Ar^+ gut ausgeprägt z. B. $4p^2P, 4p^2D \rightarrow 4s^2P$ und bei $\text{Kr}^+ 5p^4D \rightarrow 5s^2P$. Die Aufstellung der Energiebilanzen⁴ besagt, daß die beobachteten Anregungen nur dadurch möglich sind, daß von der kinetischen Energie ein Betrag von 9 bis 25 eV in innere Energie übertragen wird. Ohne Anregung würden dagegen die Prozesse exotherm ablaufen. Der Vergleich der Wirkungsquerschnitte mit denen für den Gesamtladungsaustausch⁵ zeigt, daß trotz der erforderlichen Übertragung von kinetischer in innere Energie die Reaktionen überwiegend mit Anregung — also endotherm — erfolgen.

¹ M. LIPELES, R. NOVICK u. N. TOLK, Phys. Rev. Letters **15**, 815 [1965].

² N. G. UTTERBACK u. H. P. BROIDA, Phys. Rev. Letters **15**, 608 [1965].

³ D. JAECKS, F. J. DE HEER u. A. SALOP, Physica **36**, 606 [1967].

⁴ Nach: CH. MOORE, Atomic Energy Levels, Vol. I, II. National Bureau of Standards, Washington 1949, 1952.

In Abb. 1 ist ein am System Ne^+/Ar für einen engen Spektralbereich um 4080 Å gemessener Anregungswirkungsquerschnitt abgebildet. Sämtlichen für die verschiedenen Systeme und Anregungsniveaus gemessenen Verläufen ist der Einsatz bei einer bestimmten Schwell-

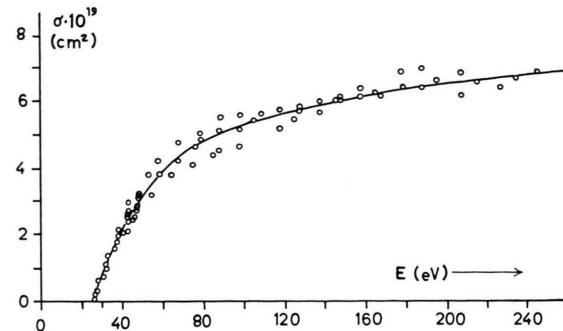


Abb. 1. Wirkungsquerschnitt für die Anregung der Übergänge $\text{ArII } 5s^4P_{1/2, 1/2, 21/2} \rightarrow 4p^4D_{21/2, 1/2, 31/2}$, die durch Stoß von Ne^+ -Ionen im Grundzustand mit Ar Atomen erfolgt. Gemessen mit Interferenzfilter $\lambda = 4080 \text{ Å}$.

lenenergie (zwischen 10 und 25 eV) und ein annähernd konstanter oder schwach ansteigender Verlauf oberhalb 50 bis 100 eV gemeinsam. Die Steilheit des Anstiegs im Schwellenbereich ist wesentlich durch die beiden Stoßpartner und nur wenig durch das spezielle Anregungsniveau bestimmt. Ein Maximum in diesem Bereich konnte im Gegensatz zu¹ nicht beobachtet werden.

Die Auswertung hat ergeben, daß die Schwellenergien sich elementar berechnen lassen: Von der kinetischen Energie E des stoßenden Ions kann maximal der Bruchteil $E \cdot m_{\text{Atom}} / (m_{\text{Ion}} + m_{\text{Atom}})$, d. i. die kinetische Energie der Relativbewegung im Schwerpunktssystem, in innere Energie übertragen werden. Setzt man diesen Anteil gleich dem Defizit an innerer Energie, ist damit der Mindestwert E der kinetischen Energie gegeben, bei dem das Defizit gerade aufgefüllt werden kann. Die hiernach berechneten Schwellenwerte stimmen für alle ausgemessenen Übergänge mit den experimentellen Werten überein. Der Abb. 1 wird eine Schwellenenergie von 25 eV entnommen, und für den hier gezeigten Übergang wird 25,0 eV berechnet. Deutet man den Ladungsaustausch im Schema der Potentialkurven des während des Stoßes gebildeten Quasimoleküls, folgt hierfür aus diesem Ergebnis, daß die Überkreuzung der beiden beteiligten Potentialkurven auf der Höhe des asymptotischen Energiewertes der oberen Kurve stattfindet.

Die beim Ladungsaustausch von Ne^+ -Ionen mit N_2 und O_2 gemessenen Anregungen zeigen, daß N_2^+ im

⁵ J. B. HASTED, Proc. Roy. Soc. London A **205**, 421 [1951]. — H. B. GILBODY u. J. B. HASTED, Proc. Roy. Soc. London A **238**, 334 [1957]. — J. B. H. STEDEFORD u. J. B. HASTED, Proc. Roy. Soc. London A **227**, 466 [1955]. — D. W. KOOPMANN, Phys. Rev. **154**, 79 [1967].



$B^2\Sigma_u^+$ -Zustand und O_2^+ im $b^4\Sigma_g^-$ - und zum geringen Teil im A^2II_u -Zustand gebildet werden. Beim CO_2 tritt neben der Strahlung, die vom CO_2^+ herührt, ein ebenso hoher Anteil von CO^+ auf. Das Ion CO^+ entsteht durch dissoziativen Ladungsaustausch aus CO_2 . Trotz der Anregungen bleiben sämtliche Reaktionen mit der Ausnahme des dissoziativen Prozesses um 3 bis 5 eV exotherm. Zur Anregung der beobachteten Kometen-

Schwanz-Banden des CO^+ müssen 3 bis 4 eV von der kinetischen Energie des Ne^+ in innere Energie übertragen werden.

Eine ausführliche Darstellung dieser Untersuchungen befindet sich in Vorbereitung.

Herrn Professor Dr. H. RAETHER danke ich für die Überlassung von Institutsmitteln zur Durchführung dieser Arbeit.

Das Mikrowellenrotationsspektrum des SiO

T. TÖRRING

II. Physikalisches Institut der Freien Universität Berlin
(Z. Naturforsch. 23 a, 777–778 [1968]; eingegangen am 6. März 1968)

In früheren Arbeiten ist über die Spektren der Monoxide von Pb, Ge und Sn¹ berichtet worden. Die Reihe dieser Untersuchungen wurde jetzt mit der Messung des Mikrowellenrotationsspektrums von SiO abgeschlossen. Um SiO in ausreichender Menge zu verdampfen, benötigt man eine Temperatur von annähernd 1300 °C. Heizbare Absorptionszellen^{2,3} sind jedoch nur bis zu etwa 1000 °C brauchbar. Die Messungen wurden deshalb wieder mit dem Molekülstrahl-Mikrowellenspektrometer durchgeführt, das bereits bei den Messungen an den anderen Oxiden dieser Gruppe verwendet wurde. Bei dieser Anordnung werden die Moleküle aus einem Molekülstrahlofen in eine kalte Absorptionszelle hineingedampft. Da sich nur der Ofen auf hoher Temperatur zu befinden braucht, lassen sich leicht Temperaturen bis zu 1800 °C erreichen. Bei einer Verdampfungsrate von einigen 10¹⁹ Molekülen/Sekunde können im Q-Band noch Moleküle mit einer relativen Isotopenhäufigkeit von 1% nachgewiesen werden. Über den Aufbau und die Wirkungsweise dieses Spektrometertyps wird demnächst an anderer Stelle ausführlich berichtet werden.

Als Ausgangssubstanz diente reines SiO in kristalliner Form. Mit gleichem Erfolg konnte ein Gemisch aus Si und SiO_2 verwendet werden. Der Molekülstrahlofen bestand aus Tantal. Chemische Schwierigkeiten, die bei den anderen Oxiden dieser Gruppe das Arbeiten sehr erschwert hatten, traten nicht auf.

Zwischen 42 373 und 43 424 MHz wurden 6 Absorptionslinien gefunden. Sie sind dem Rotationsübergang $J=0 \rightarrow 1$ der Molekülisotopen $Si^{28}O^{16}$ in den Schwingungszuständen $v=0$ bis $v=3$, sowie $Si^{29}O^{16}$ und $Si^{30}O^{16}$ im Schwingungszustand $v=0$ zuzuordnen. Tab. 1 zeigt die gemessenen Linienfrequenzen. Da alle Kerne den Spin $I=0$ oder $I=1/2$ haben, tritt keine Quadrupolhyperfeinstruktur auf. Eine magnetische Hyperfeinstruktur am $Si^{29}O^{16}$ konnte nicht aufgelöst werden.

Isotop	%	v	ν MHz	$\Delta\nu$ MHz
$Si^{28}O^{16}$	92,2	0	43 423,76 ± 0,1	+ 0,03
		1	43 122,03 ± 0,1	- 0,03
		2	42 820,48 ± 0,1	+ 0,02
		3	42 519,34 ± 0,1	- 0,02
$Si^{29}O^{16}$	4,7	0	42 879,82 ± 0,1	+ 0,03
$Si^{30}O^{16}$	3,1	0	42 373,34 ± 0,1	- 0,04

Tab. 1. Gemessene Frequenzen des Übergangs $J=0 \rightarrow 1$.

Zur Auswertung wurde der Ausdruck von DUNHAM⁴ für die Energie des schwingenden Rotators verwendet:

$$E_{J,v} = \sum Y_{l,j} (v + 1/2)^l J^j (J+1)^j. \quad (1)$$

Für die Frequenzen der Übergänge $J \rightarrow J+1$, $\Delta\nu = 0$ erhält man:

$$\begin{aligned} \nu = & 2 Y_{01} (J+1) + 2 Y_{11} (v + 1/2) (J+1) \\ & + 2 Y_{21} (v + 1/2)^2 (J+1) + 4 Y_{02} (J+1)^3 + \dots \end{aligned} \quad (2)$$

Höhere Glieder der Entwicklung wurden bei der Auswertung vernachlässigt. Aus den $Y_{l,j}$ lassen sich die Entwicklungskoeffizienten für das Potential bestimmen, in dem sich die Kerne bewegen.

$$\begin{aligned} V(r) = & a_0 \xi^2 (1 + a_1 \xi + a_2 \xi^2 + a_3 \xi^3 + \dots) \\ & + B_e J(J+1) (1 - 2 \xi + 3 \xi^2 - 4 \xi^3 + \dots) \end{aligned} \quad (3)$$

mit

$$\xi = (r - r_e) / r_e, \quad B_e = h / (8 \pi^2 r_e^2 \mu),$$

μ = reduzierte Masse; r_e = Gleichgewichtsabstand der Kerne.

Die $Y_{l,j}$ stehen mit den bei der Auswertung von Bandspektronen meist verwendeten Konstanten in folgendem Zusammenhang:

$$\begin{aligned} Y_{01} \cong & B_e, \quad Y_{10} \cong \omega_e, \quad Y_{20} \cong -\omega_e x_e, \\ Y_{02} \cong & -D_e, \quad Y_{11} \cong -\alpha_e, \quad Y_{21} \cong \gamma_e. \end{aligned} \quad (4)$$

Die Konstante Y_{02} konnte aus unseren Messungen nicht direkt ermittelt werden, da nur der Rotationsübergang $J=0 \rightarrow 1$ gemessen wurde. Sie lässt sich aber aus der Beziehung

$$-Y_{02} \cong D_e = 4 B_e^3 / \omega_e^2 \quad (5)$$

³ D. R. LIDE, P. CAHILL u. L. P. GOLD, J. Chem. Phys. 40, 156 [1964].

⁴ J. L. DUNHAM, Phys. Rev. 41, 721 [1932].

¹ T. TÖRRING, Z. Naturforsch. 19 a, 1426 [1964]; 21 a, 287 [1966]; 22 a, 1234 [1967].

² J. HOEFT, Z. Naturforsch. 19 a, 1134 [1964].