

Dissoziation von H_2^+ und H_3^+ beim Stoß an Kr im Energiebereich 6–60 keV

B. Lehmann

I. Institut für Experimentalphysik der Universität Hamburg

(Z. Naturforsch. 31a, 1303–1307 [1976]; eingegangen am 3. Juni 1976)

Dissociation of H_2^+ and H_3^+ by Collision with Kr in the Energy Range between 6 to 60 keV

H_2^+ and H_3^+ ions, produced in a H_2 plasma of a radio-frequency ion source, were accelerated to 6–60 keV and directed into a gas target of Krypton. The cross sections for the formation of H^+ and H^- resp. H_2^+ , H^+ and H^- have been measured. In the case of H^+ , obtained from the dissociation of H_2^+ , 2 maxima have been found in the present energy range. A third is known to be at about 100 keV. We discuss the applicability of the Massey' adiabatic hypothesis, known from the analysis of charge-exchange experiments, to the maxima in the cross-section vs. energy curve for dissociation experiments.

In der vorliegenden Arbeit wurden die totalen Wirkungsquerschnitte für die Bildung einfach-ioni- sierter Bruchstücke beim Stoß von H_2^+ und H_3^+ auf Kr gemessen. Für das H_2^+ als Projektil wurde zu- dem eine Zuordnung der Maxima in der H^+ -Wir- kungsquerschnittskurve zu vermuteten Reaktions- kanälen unternommen.

Der gewählte Energiebereich 6–60 keV ent- spricht der Tatsache, daß die Wirkungsquerschnitte für Stöße zwischen atomaren Systemen (Elektronen, Atome, Moleküle) eine Funktion der Relativge-

schwindigkeit sind, weniger der Energie. Benötigt z. B. ein Elektron eine Energie von 20 eV für einen Dissoziationsprozeß, so muß ein H-Atom oder Pro- ton ca. 40 keV besitzen.

Apparatur

Abbildung 1 zeigt den Versuchsaufbau. Die Ionen werden in einer Hochfrequenzquelle erzeugt.

Bei optimaler Einstellung der Quellenparameter, vorwiegend des Gasdrucks und der Senderleistung, beträgt der Anteil an H_2^+ am gesamten extrahierten

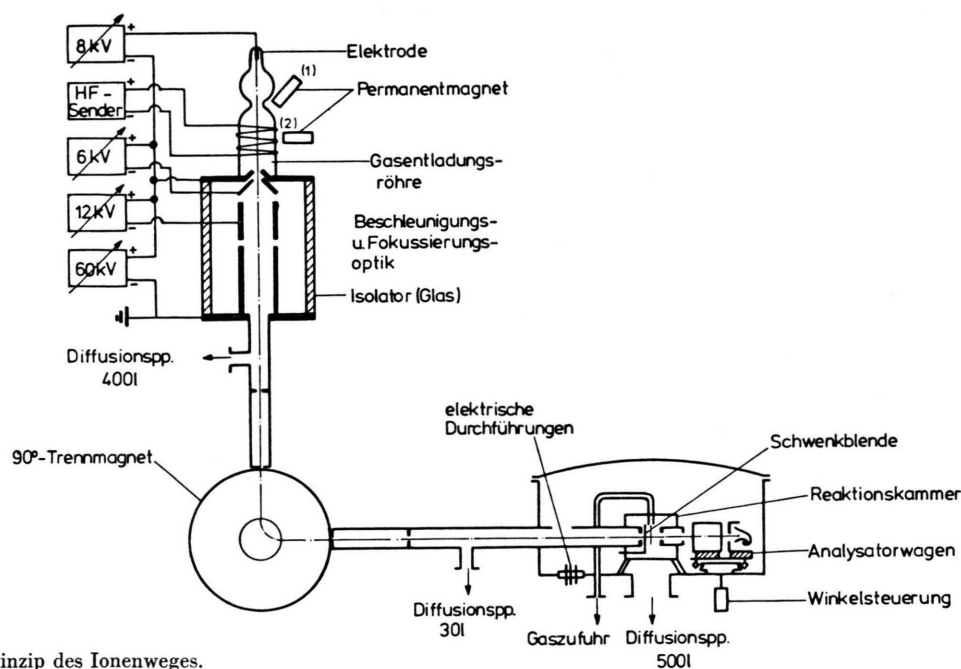


Abb. 1. Prinzip des Ionenweges.

Reprint requests to Dr. Bernd Lehmann, Dringsheide 33, D-2000 Hamburg 74.

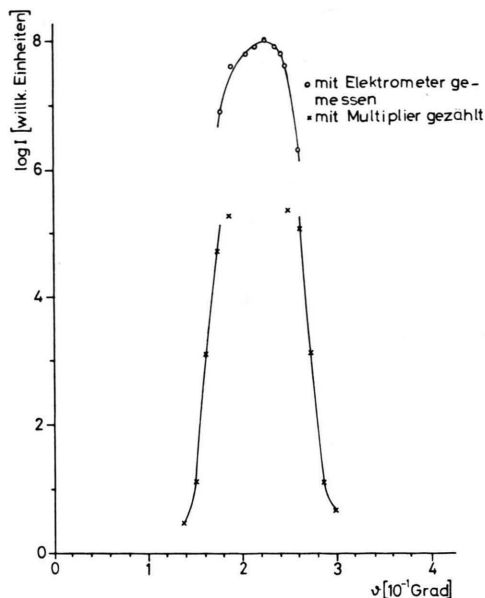


Dieses Werk wurde im Jahr 2013 vom Verlag Zeitschrift für Naturforschung in Zusammenarbeit mit der Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften e.V. digitalisiert und unter folgender Lizenz veröffentlicht: Creative Commons Namensnennung-Keine Bearbeitung 3.0 Deutschland Lizenz.

Zum 01.01.2015 ist eine Anpassung der Lizenzbedingungen (Entfall der Creative Commons Lizenzbedingung „Keine Bearbeitung“) beabsichtigt, um eine Nachnutzung auch im Rahmen zukünftiger wissenschaftlicher Nutzungsformen zu ermöglichen.

This work has been digitalized and published in 2013 by Verlag Zeitschrift für Naturforschung in cooperation with the Max Planck Society for the Advancement of Science under a Creative Commons Attribution-NoDerivs 3.0 Germany License.

On 01.01.2015 it is planned to change the License Conditions (the removal of the Creative Commons License condition “no derivative works”). This is to allow reuse in the area of future scientific usage.

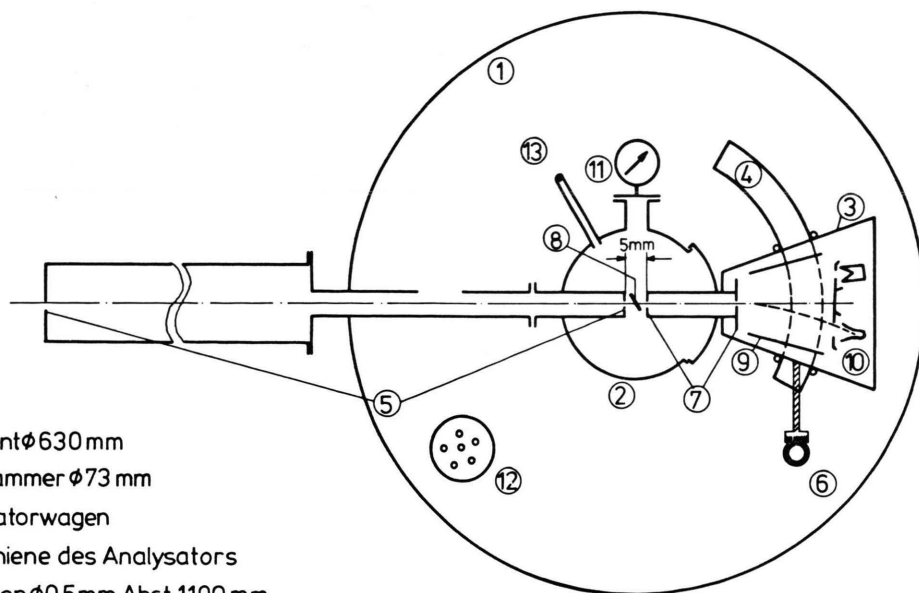
Abb. 2. Primärer Ionenstrahl (hier: 40 keV H_3^+).

Ionenstrahl einer H_2 -Entladung ca. 30%. Der Anteil an H_3^+ läßt sich andererseits bis auf ca. 15% steigern.

Der aus der Ionenquelle extrahierte Strahl erreicht nach Durchlaufen einer Beschleunigungs- und Fokussierungsoptik einen 90° -Magneten zur Massentrennung und passiert zwei Blenden von 0,5 mm Durchmesser und 1100 mm Abstand. Der in die Kammer eintretende Ionenstrahl hat somit bei einem mittleren Durchmesser von 0,5 mm eine Divergenz von 26×10^{-3} grad (siehe Abbildung 2).

In der Reaktionskammer befindet sich Krypton von $1,3 \times 10^{-3}$ Torr als Target. Der Ionenstrahl durchläuft etwa 5 mm dieses Targets, was einer effektiven Targetdicke von $2,1 \times 10^{13}$ Teilchen pro cm^2 entspricht. Da die mittlere freie Weglänge der Ionen bei diesem Druck von der Größenordnung 5 cm ist, sind Einzelstoßbedingungen gewährleistet.

Die geladenen Dissoziationsprodukte werden mit Hilfe eines Analysators erfaßt, der um die Mittelachse der Kammer drehbar gelagert ist (siehe Abbildung 3).



- ① Rezipient $\varnothing 630$ mm
- ② Streukammer $\varnothing 73$ mm
- ③ Analysatorwagen
- ④ Laufschiene des Analysators
- ⑤ 2 Blenden $\varnothing 0,5$ mm, Abst. 1100 mm
- ⑥ Antrieb des Analysatorwagens
- ⑦ 2 Blenden $\varnothing 0,07$ mm, Abst. 105 mm
- ⑧ Schwenkblende für Primärstrahl
- ⑨ elektrostatische Ablenkung
- ⑩ Nachweis der Stoßprodukte
- ⑪ Vakuummeßröhre
- ⑫ elektrische Durchführungen
- ⑬ Gaseinlaß

Abb. 3. Aufbau des Vakuumkessels.

Die beiden Eintrittsblenden von 0,07 mm Durchmesser bei einem Abstand von 105 mm ergeben ein Winkelauflösungsvermögen von 38×10^{-3} Grad. Mit Hilfe eines elektrostatischen Analysators werden die Ionen nach ihrer Ladung separiert und auf das Channeltron als Nachweiselement gelenkt.

Für ein gutes Auflösungsvermögen eines nicht-fokussierenden elektrostatischen Feldes ist neben einer guten Geschwindigkeitshomogenität des Strahls auch eine möglichst geringe Winkeldivergenz erforderlich. Der Öffnungswinkel sollte im vorliegenden Fall maximal 0,1 Grad betragen.

Es treten jedoch durchaus Streuwinkel von einigen Grad auf, so daß grundsätzlich alle Experimente in Form von Messung der Intensität als Funktion des Winkels durchgeführt wurden.

Meßergebnisse und Diskussion

H_2^+

Als geladene Dissoziationsprodukte des H_2^+ traten sowohl H^+ als auch H^- auf. Abbildung 4 gibt die gemessene Energieabhängigkeit der Wirkungsquerschnitte wieder.

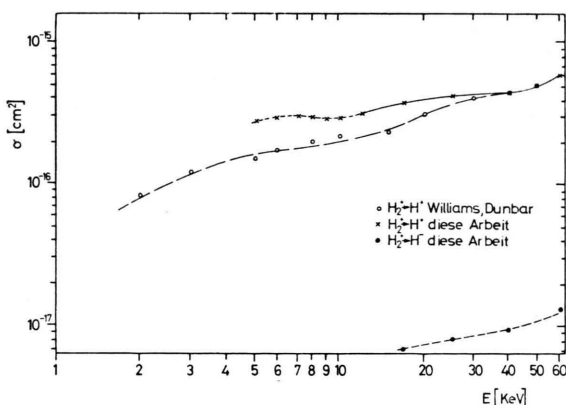
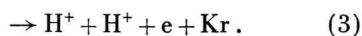
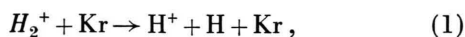


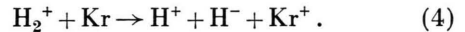
Abb. 4. Dissoziation von H_2^+ .

Für die Abspaltung von H^+ aus H_2^+ sind wohl hauptsächlich drei Reaktionskanäle verantwortlich:



Der Wirkungsquerschnitt für die Bildung von H^+ wäre dann die Summe aus den Werten für die Kanäle (1), (2) und dem doppelten für (3).

Der Nachweis von H^- deutet auf einen zusätzlichen geringen Anteil hierzu von folgender Reaktion hin:



Wirkungsquerschnitte für die Bildung von H^+ wurden schon von Williams und Dunbar¹ gemessen. Sie sind in Abb. 4 mit eingetragen. In unserer Kurve für H^+ deuten sich zwei Maxima bei etwa 7 und 35 keV an.

Es sei jetzt der Versuch unternommen, die Lage dieser Maxima mit Hilfe des Adiabaten-Kriteriums zu erklären. Dieses Kriterium wurde von Massey² 1949 für Stoßprozesse vorgeschlagen, die zu Umladungen und/oder Anregung der Stoßpartner führen.

Um die Anwendung auf Dissoziationsprozesse zu begründen, soll der Gedankengang dieses Kriteriums kurz skizziert werden.

Für einen inelastischen Prozeß der eben genannten Art läßt sich ein Energiedefekt ΔE zwischen Ausgangs- und Eingangskanal definieren, gewöhnlich als Differenz zwischen den Potentialkurven der Kanäle bei unendlichem Zustand der Stoßpartner. Diesem Energiedefekt (auch Resonanzenergie genannt) kann eine quantentheoretische Frequenz $\nu_{\Delta E}$ zugeordnet werden, die Übergangsfrequenz zwischen Eingangs- und Ausgangszustand

$$\nu_{\Delta E} = \Delta E/h.$$

Auf der anderen Seite erzeugt ein als Projektil bezeichnetes Teilchen am Ort eines Targets ein elektrisches Wechselfeld, dessen Fourier-Zerlegung ein Maximum bei der Frequenz ν_v zeigt:

$$\nu_v = v/a$$

v : Relativgeschwindigkeit,
 a : Wechselwirkungslänge.

Nach Art einer Resonanzwechselwirkung beider Frequenzen zeigt sich, daß bei einer solchen Geschwindigkeit v_{\max} ein Maximum des Wirkungsquerschnitts auftritt, bei dem beide Frequenzen gleich sind:

$$\Delta E/h = v_{\max}/a.$$

Hasted³ hat eine Vielzahl von Umladungsprozessen auf die Gültigkeit dieser Überlegungen hin analysiert. Er erhielt für die empirische Größe a , die Wechselwirkungslänge, als typischen Wert

$$a \approx 7/m \text{ \AA} \quad m: \text{Zahl der umgeladenen Elektronen.}$$

Behält man den grundlegenden Gedanken einer Resonanz zwischen zwei Frequenzen bei, so kann bei der Übertragung auf Dissoziation noch nach der Zwangsläufigkeit der Definition von $\nu_{\Delta E}$ gefragt werden. Die Dissoziation eines Moleküls wird als Übergang von der Potentialkurve des Moleküls im Eingangszustand auf den repulsiven Teil der den Ausgangszustand beschreibenden angesehen. Demzufolge sollte die Übergangsfrequenz $\nu_{\Delta E}$ über die Energiedifferenz der Potentialkurve für den aktuellen Kernabstand des Moleküls bestimmt werden. Dies sei anhand der Abb. 5 für das H_2^+ -Molekül erläutert.

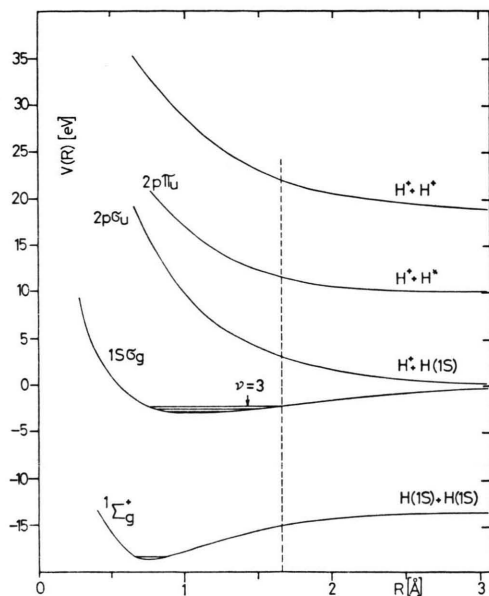


Abb. 5. Potentialschema für $\text{H}_2^+ \rightarrow \text{H}^+ + \text{R}$.

Man kann davon ausgehen, daß das H_2^+ -Molekül im $1\sigma_g$ -Zustand Maxima in der Aufenthaltswahrscheinlichkeit für etwa $0,8 \text{ \AA}$ und $1,65 \text{ \AA}$ Kernabstand besitzt⁴. Beide Punkte entsprechen den Umkehrpunkten des Schwingungszustands $\nu = 3$. Offensichtlich dominiert die Übergangswahrscheinlichkeit vom größeren Kernabstand aus⁵.

Der energetisch niedrigste Übergang ist der vom Grundzustand des H_2^+ ($1\sigma_g$) in den abstoßenden $2p\sigma_u$ -Zustand. Entsprechend dem eben Gesagten wird ihm als ΔE der Abstand der Potentialkurven für $R = 1,65 \text{ \AA}$ zugeordnet: $\Delta E_1 = 5,3 \text{ eV}$ [s. Reaktion (1)]. Der Reaktion (2), dem Übergang $1\sigma_g \rightarrow 2p\pi_u$, kommt als Energiedifferenz der Wert $13,9 \text{ eV}$ zu. Entsprechend ist ΔE für die Reaktion (3), den Übergang zu $\text{H}^+ + \text{H}^+ + e$, ca. $24,2 \text{ eV}$.

Ordnet man dem erwähnten energetisch niedrigsten Übergang das erste Maximum in der Messung des Wirkungsquerschnitts zu, so läßt sich die Wechselwirkungslänge a berechnen zu

$$a_{(1)} = h v_{\max} / \Delta E \approx 6,4 \text{ \AA}.$$

Bei der Zuordnung des zweiten Maximums zum Übergang $1\sigma_g \rightarrow 2p\pi_u$ ergibt sich

$$a_{(2)} \approx 5,4 \text{ \AA}.$$

Diese beiden Werte stehen in guter Übereinstimmung mit der von Hasted ermittelten Wechselwirkungslänge von 7 \AA für Umladungsprozesse. Dabei ist die kleinere Wechselwirkungslänge für Dissoziationen durchaus verständlich. Für größere Energietransfers (speziell der 2. Reaktion) ist sicher eine größere Durchdringung der Stoßpartner erforderlich (was gleichbedeutend mit einer kleineren Wechselwirkungslänge ist).

Unterstellt man die Tendenz, daß a mit zunehmendem ΔE kleiner wird und berechnet auf der Basis von a_2 ein v_{\max} für die Reaktion (3), dem Übergang zu zwei Protonen, so erhält man

$$\begin{aligned} v_{\max(3)} &= a_{(2)} \cdot \Delta E / h = 5,4 (24,2/h) \text{ \AA} \cdot \text{eV} \\ &\approx 3,1 \cdot 10^6 \text{ m/s}. \end{aligned}$$

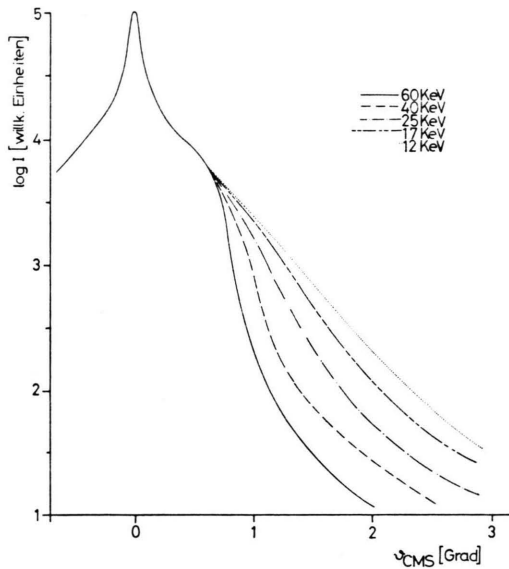
Dies entspricht einem erwarteten Maximum bei 102 keV . Tatsächlich ist ein Maximum an H^+ bei etwa 100 keV von Guidini⁶ beobachtet worden, allerdings beim Stoß von H_2^+ auf Ar.

Es fällt auf, daß für die bisherigen Überlegungen zu den Dissoziationsreaktionen des H_2^+ beim Stoß an Krypton nur die Zustände bzw. Zustandsänderungen des H_2^+ herangezogen wurden. Trotzdem ergab sich eine bemerkenswerte Übereinstimmung mit dem Experiment.

Messungen von Williams und Dunbar¹ deuten zudem bei allen Stoßexperimenten von H_2^+ auf N_2 , He, Ne, Ar, Kr und Xe Maxima an vergleichbarer Stelle etwas unterhalb 10 keV bzw. zwischen 30 und 40 keV an, ein Anzeichen dafür, daß tatsächlich die Lage der Maxima offensichtlich vom Target unabhängig ist.

Ein weiteres Indiz dafür liefert die Winkelabhängigkeit für das Auftreten von H^+ . Abbildung 6 zeigt diese Abhängigkeit für verschiedene Stoßenergien des H_2^+ auf Krypton. Mit zunehmender Energie bildet sich verschärfend eine Schulter in der Kurve für $\pm 0,5$ Grad heraus.

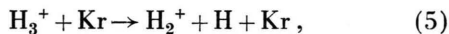
McClure⁴ hat eine ähnliche Struktur für den Stoß von H_2^+ auf H_2 aufgezeigt und sie wiederum aus

Abb. 6. Winkelabhängigkeit der Dissoziation $H_2^+ \rightarrow H^+ + R$.

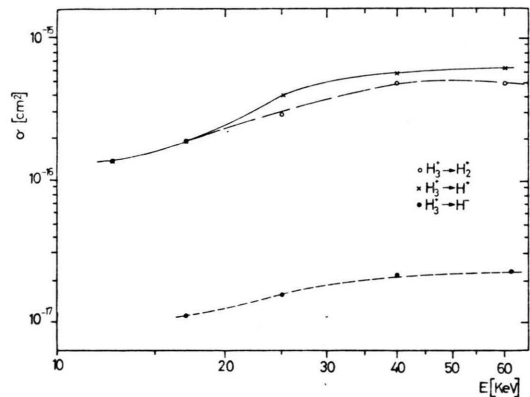
dem Potentialschema des H_2^+ heraus zu erklären versucht [siehe auch (4)].

H_3^+

Da ein H_2^- -Ion nicht stabil ist, konnten bei der Dissoziation des H_3^+ nur H_2^+ , H^+ und H^- nachgewiesen werden. Die für die Bildung dieser Ionen vermuteten Reaktionen sind



Wie die Messungen (s. Abb. 7) zeigen, spielt (7) relativ zu (5) und (6) eine nur untergeordnete Rolle. Dies könnte, vergleichbar mit den Verhält-

Abb. 7. Dissoziation von H_3^+ .

nissen bei der Dissoziation des H_2^+ , mit der Energiebilanz zusammenhängen. In beiden Fällen ist der zusätzliche Energieverlust durch Ionisierung des Kryptons wesentlich größer als der zusätzliche Energiegewinn über die Elektronenaffinität des Produkts H^- .

Mein Dank gilt Herrn Prof. Dr. H. Neuert für sein förderndes Interesse an den Messungen und kritische Diskussionen bei der Erstellung dieser Arbeit.

¹ J. F. Williams u. D. N. Dunbar, Phys. Rev. **149**, 62 [1966].

² H. S. W. Massey, Rep. Prog. Phys. **12**, 248 [1949].

³ J. B. Hasted, Adv. Electronics Electron Phys. **13**, 1 [1960].

⁴ G. W. McClure, Phys. Rev. **140**, A 769 [1965].

⁵ J. M. Peek, Phys. Rev. **140**, A 11 [1965].

⁶ J. Guidini, C. R. Acad. Sci. Paris **253**, 829 [1961].