

## FOM-Instituut voor

# Atoom- en Molecuulfysica

KRUISLAAN 407

AMSTERDAM

APPARATUUR VOOR HET OPWEKKEN EN DETECTEREN VAN
BOVENTHERMISCHE HALOGEENATOMEN

G.P. Können

Stichting voor Fundamenteel Onderzoek der Materie

,

INHOUD	pag.nr.
INLEIDING	2
I. Kathodeverstuiving en het toepassen hiervan in molecu-	
laire bundelopstellingen	3
a) Algemeen	3
b) Detectie van moleculaire bundels	4
c) Verstuiven van halogenen	8
d) De snelheidsdistributie bij kathodeverstuiving	11
e) Mogelijke processen	14
II. De apparatuur	19
III. Negatieve oppervlakte-icnisatie	23
LITERATUUR	28

## APPARATUUR VOOR HET OPWEKKEN EN DETECTEREN VAN BOVENTHERMISCHE HALOGEENATOMEN

G.P. Können

#### INLEIDING

Het doel van het apparaat is, de ionenproduktie te bestuderen bij botsingen van halogenen met neutrale deeltjes, in het bijzonder het meten van de ionisatiedoorsnede  $\sigma$ . Als  $E_d$  de energie is, die men nodig heeft om ionenvorming te krijgen, I de ionisatiepotentiaal van het ene deeltje, en A de electronenaffiniteit van het andere deeltje is, dan kan men slechts ionen verwachten als de zwaartepuntenergie van de deeltjes  $E_{zw} \geq E_d$ . Aangezien geldt dat  $E_d \geq e(I-A)$ , en I-A in het algemeen in de orde is van enkele volts, zal ionenvorming alleen kunnen optreden als de energie van deze deeltjes meer dan enkele electronvolts bedraagt.

Reacties in het electronvolt-gebied (zogenaamde hot chemistry) zijn tot nu toe hoofdzakelijk bestudeerd met behulp van de nuclear recoil-methode. Hierbij worden de gewenste deeltjes gemaakt uit isotopen, die bij het verval een kinetische energie van enkele MeV's krijgen. Door botsingen wordt deze energie enkele electronvolts, waar reacties kunnen plaatsvinden. De energie van de deeltjes bij de reactie is echter niet bekend, zodat men slechts een gemiddelde doorsnede voor vorming van het product molecuul kan bepalen. Om de preciese energie-afhankelijkheid van de doorsnede en de drempelenergieën voor reacties te kunnen bepalen, moet men de beschikking hebben over een bundel waarvan de energie goed bepaald is. Om het drempelgedrag van dit soort processen te bestuderen, heeft men bundels nodig van hoge intensiteit van enkele eV, waarvoor men is aangewezen op verstuivingsbronnen. Alleen als de neutralen een dipoolmoment hebben, kan men door middel van dipoolversnelling hetzelfde bereiken (zie ref. 1).

In deze scriptie zullen wij het verstuiven behandelen, de mogelijkheden tot het uitvoeren van diverse experimenten bespreken en de apparatuur beschrijven die in aanbouw is. Tot slot zullen wij enkele experimenten beschrijven over negatieve oppervlakte-ionisatie.

## I. <u>Kathodeverstuiving en het toepassen hiervan in moleculaire bundel-</u> opstellingen

#### a) Algemeen

Onder kathodeverstuiving verstaat men het verstuiven van vaste stoffen door energetische bundels neutralen of ionen. De binnendringende deeltjes geven aanleiding tot zeer hoge plaatselijke verhitting ("hot spots"), waardoor deeltjes met een energie van enkele electronvolts uit het target dampen, en tot "focussing collisions", dat wil zeggen energie-overdracht naar de targetdeeltjes aan het oppervlak, die daardoor hieruit geslagen worden.

Het resultaat hiervan is, dat er deeltjes ontstaan met een energie die met "nozzle beams" of met omladingsprocessen moeilijk te verkrijgen zijn. Het snelheidsspectrum van deze deeltjes bereikt, afhankelijk van het targetmateriaal, een maximum bij ongeveer 3-8000 m/sec., en neemt daarna langzamer af dan een Maxwellverdeling (zie ref. 2, 3, 4 en zie fig. 1). Deze snelheidsverdeling is bijna onafhankelijk van de energie van de invallende deeltjes, als deze hoger is dan 1 keV, terwijl de verstuivingsverhouding (dat is het aantal verdampende targetatomen per invallend ion) in dit energiegebied nog enigszins toeneemt (ref. 5).

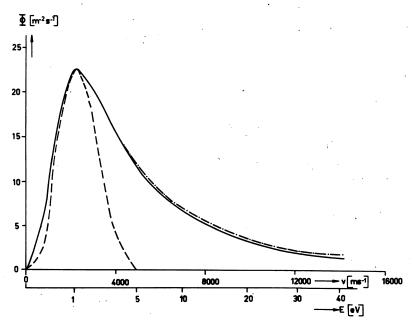


Fig. 1 - De snelheidsverdeling van verstoven kalium. De gebroken lijn is een Maxwellverdeling voor een oven op 7600°K. De getrokken lijn is de fluxdistributie zoals die verkregen wordt door een Pt8%W detector (Politiek, ref. 2).

Indien de massa van de invallende deeltjes klein is, is ook de verstuivingsverhouding en de gemiddelde energie van de verstoven deeltjes laag.

Een nadeel van de verstuivingsbron voor het opwekken van atomaire bundels is, dat de mogelijkheid bestaat dat zich naast atomen X ook moleculen  $X_n$  in de bundel bevinden. Tot nu toe werden metingen hierover alleen bij ionen verricht, volgens Hortig en Müller (ref. 6) bevinden zich bij het verstuiven van Ag met 15 keV Kr $^+$ , naast Ag ionen ook Ag ionen tussen de verstoven deeltjes, waar n loopt van twee tot zestig.

De beperkende factor bij het toepassen van verstuivingsbronnen is de detectiemogelijkheid: in het algemeen wil men de intensiteit van de primaire bundel kunnen meten. Hiertoe staan ons - naast het zeer inefficiënte werken met microweegschalen e.d. - vier methoden ter beschikking: positieve oppervlakteionisatie (PSI), negatieve oppervlakteionisatie (NSI), het ioniseren door electronen-bombardement en het meten met behulp van bolometers.

In het nuvolgende zullen wij de PSI en de NSI bespreken en de resultaten hiervan vergelijken met de bolometers (die de translatie-energie van de deeltjes in warmte omzet) en met detectoren die de deeltjes ioniseren met electronenbombardement, zoals de Brinck-detector.

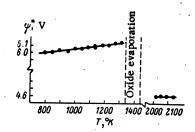
#### b) Detectie van moleculaire bundels

Indien men <u>PSI-detectoren</u> wil toepassen in moleculaire bundelopstellingen, dan blijkt uit de tabellen in ref. 7 dat Pt, Ir, Re en W-O door hun hoge werkfunctie hiervoor het meest geschikt zijn. Pt heeft een smeltpunt van 1769°C, zodat het zeer moeilijk is een platinadraad uit te stoken. Bovendien wordt dit metaal snel zacht, hetgeen het voor de oppervlakte-ionisator minder bruikbaar maakt. Wil men toch platina gebruiken, dan moet men overgaan tot het toepassen van platinalegeringen om de stevigheid op te voeren.

Iridium heeft aanzienlijk betere eigenschappen dan platina voor PSI. Het smelt bij een temperatuur van 2443°C, is veel steviger dan Pt en heeft bovendien de hoogste werkfunctie van de onderzochte metalen (5, 4-5, 8V, zie ref. 8). Het uitstoken op hoge temperaturen is echter ook niet goed mogelijk, terwijl dit materiaal evenals Pt zeer gevoelig is voor verontreiniging door het restgas. De ionisatie-efficiency kan hierdoor zeer klein worden, vooral bij zouten. Ook de ionisatie-efficiency voor atomen kan hier enigszins onder lijden (zie ref. 9, 10).

Renium heeft een lagere werkfunctie dan de twee hierbovengenoemde stoffen (4,9-5,4 V, zie ref. 11), maar hier staat tegenover dat de mechanische eigenschappen superieur zijn. Het smeltpunt is 3180°C, zodat het zeer goed uitstookbaar is, terwijl dit materiaal – in tegenstelling tot bij-voorbeeld wolfraam – niet zeer bros wordt na afkoeling.

W-0 tenslotte heeft de hoogste werkfunctie van de onderzochte stoffen (6,0-6,7V, zie ref. 12), doch hier staat tegenover dat de draad niet te hoog opgestookt kan worden omdat dan het oxydelaagje verdampt. Deze ver-



<u>Fig. 2</u> - De werkfunctie van wolfraamoxyde bij verschillende temperaturen (Zandberg, ref. 12).

damping begint al bij een temperatuur van 1300°K belangrijk te worden, zodat deze detector boven deze temperaturen niet goed bruikbaar is (fig. 2).

Bij het ioniseren van elementen dient men bij de keuze van het detectormateriaal niet alleen rekening te houden met de werkfunctie van dit materiaal, maar ook met de mate waarin dit materiaal kan worden opgewarmd. Voor de ionisatie-efficiency  $\beta$  van een deeltje met een ionisatiepotentiaal I op een oppervlak, dat een temperatuur T en een werkfunctie  $\phi$  heeft, geldt namelijk

$$\beta = \frac{1}{1 + \frac{1}{A} \exp \frac{e(I - \phi)}{kT}}$$

(zie ref. 7). A is een constante die meestal ongeveer 0,5 is. Uit deze formule volgt, dat ionen op materiaal 1 efficiënter worden geioniseerd dan op materiaal 2 indien

$$\frac{I-\varphi_1}{T_1} < \frac{I-\varphi_2}{T_2}$$

Hier zijn  $T_1$  en  $T_2$  de maximaal bereikbare temperatuur en  $\phi_1$  en  $\phi_2$  de werkfuncties van de draden. Het is dus mogelijk dat met een slecht smeltbaar materiaal met een relatief lage werkfunctie betere resultaten te

verkrijgen zijn dan met een makkelijk smeltbaar materiaal met een hoge werkfunctie. In fig. 3 is weergegeven hoe voor thermische energieën de efficiency van enige detectoren als functie van de ionisatiepotentiaal van de te ioniseren elementen verloopt. Hierbij is aangenomen dat de helft van het polykristallijne draadje een werkfunctie  $\phi_{\min}$  heeft en de andere helft

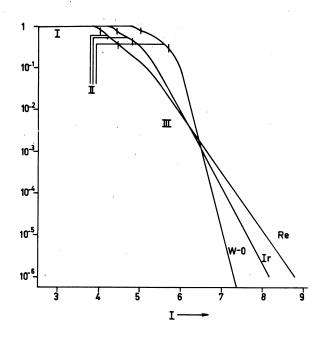


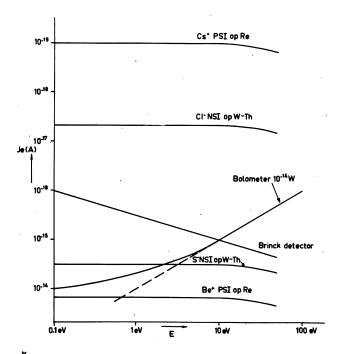
Fig. 3 - De ionisatie-efficiency vocr stoffen met een ionisatiepotentiaal I (vclt) voor W-O, Re, en Ir. In gebied I is  $I < \phi_{min}$ , in gebied II is  $\phi_{min} < I < \phi_{max}$ , en in gebied III is  $I > \phi_{max}$ . In gebied I is als temperatuur van de detector 1100°K aangenomen, in III voor W-O 1300°K en voor Re en Ir de smelttemperatuur. Voor  $\phi_{min}$  en  $\phi_{max}$  zijn de kleinste, resp. grootste werkfunctie op het draadje.

een hogere werkfunctie  $\phi_{max}$ . Voor  $\phi_{min}$  en  $\phi_{max}$  zijn de waarden genomen uit ref. 7. Bij de keuze van detectiemateriaal voor detectoren in het electronvoltgebied dient men behalve met het bovenstaande tenslotte ook rekening te houden met de energie-afhankelijkheid van de efficiency voor de verschillende materialen.

De materialen die zich het beste lenen voor <u>negatieve oppervlakte-ionisatoren</u> zijn W-Th en LaB<sub>6</sub>. Stoffen als Ba-SrO op W voldoen endanks hun zeer lage werkfunctie niet als oppervlakte-ionisator, waarschijnlijk omdat zij niet bestand zijn tegen vergiftiging door het restgas (zie ref. 13). Het aanbrengen van LaB<sub>6</sub>-lagen op metalen is moeilijk te verwezenlijken, zodat W-Th de meest aangewezen detector is voor negatieve ionen.

Het vergelijken van oppervlakte-ionisatie met andere detectie mogelijkheden leidt ons tot de conclusie, dat men voor iedere energie en voor
ieder deeltje een andere techniek zou kunnen toepassen. De efficiency van
de bolometer is recht evenredig met de energie van de deeltjes, en onafhankelijk van de soort deeltjes. De efficiency van de Brincken van andere detectoren waarbij de ionisatie door middel van bombardement
geschiedt is omgekeerd evenredig met de snelheid van de deeltjes. Oppervlakte-ionisatie is betrekkelijk energie-onafhankelijk (Politiek et al.,
ref. 3).

De beste (He-gekoelde) bolometers die tot nu toe ontwikkeld zijn, kunnen (neutrale) bundels detecteren van 10<sup>-16</sup> A, als deze een energie hebben van 100 eV\*. Normale bolometers zijn een factor 10<sup>5</sup> inefficiënter. Als wij nu bij oppervlakte-ionisatoren en bij Brinck-detectoren bij gebruik van een massaspectrometer de ruis van de multiplier als de beperkende factor beschouwen voor het meten van bundels en deze op 10<sup>-19</sup> A stellen en aannemen dat de ionisatie-efficiency voor oppervlakte-ionisatie als functie van de energie voor verschillende stoffen hetzelfde beeld vertonen, dan kunnen wij de efficiency voor de verschillende detectoren als functie van de energie van de bundel uitzetten (fig. 4). Hieruit ziet men, dat voor deeltjes met



tjesflux J voor verschillende detectoren, vermenigvuldigd
met de elementaire lading e, als
functie van de bundelenergie E.
Voor de minimale stroom op de multiplier is 10<sup>-19</sup> A aangenomen (zie
tekst). Oppervlakte-effecten zijn
er de oorzaak van dat de bolometer
bij lage energie niet meer lineair
is.

Deze wordt toegepast in het "Istituo di Fisica" te Genua door G. Scoles (zie ook ref. 4).

een hoge electronenaffiniteit of een lage ionisatiepotentiaal oppervlakteionisatie de meest efficiënte ionisatietechniek is. Is de ionisatie-efficiency
kleiner dan 10<sup>-4</sup>, (en komen de te ioniseren deeltjes niet reeds in het restgas voor) dan is voor lage energieën de Brinckdetector effectiever. Bij zeer
hoge energie (die in moleculaire bundelopstellingen niet voorkomen) zijn de
bolometers weer het best bruikbaar.

Bij het bouwen van moleculaire bundelapparatuur voor onderzoek in het eVgebied is men - door de detectiemogelijkheden - primair aangewezen op bundels van de alkali's, enkele aard-alkali's en zeldzame aarden en op de halogenen. Opstellingen waar alkali's worden opgewekt zijn reeds in twee laboratoria aanwezig (ref. 2, 15). Het ligt nu in onze bedoeling te trachten bundels
van andere elementen op te wekken, waarbij halogeenbundels het eerst in aanmerking komen. In verband met het voorgaande is de detectie hiervan het meestbelovend. Bovendien zijn halogeenbundels in het electronvolt-gebied van belang bij verdere onderzoekingen op organisch-chemisch gebied (ref. 16).

### c) Verstuiven van halogenen

Indien men een snelle halogeenbundel wil maken, zal men - omdat deze elementen slechts als gas, vloeistof of makkelijk smeltbare vaste stof voorkomen - verbindingen moeten verstuiven. Speciaal de alkali-halogeen verbindingen komen hiervoor in aanmerking, omdat men hier later door op het zuivere alkali te verstuiven kan nagaan welk gedeelte van het signaal afkomstig is van de alkali-component in de bundel en welk van het halogeen. Er zijn verschillende pogingen ondernomen het gedrag van chloriden, bromiden en jodiden bij verstuiving te bestuderen. In de volgende tabel is hiervan een overzicht gegeven; P<sub>1</sub> is hier de stof die verstoven wordt, P zijn de primaire deeltjes, E is de energie hiervan, Sp de secundaire deeltjes, en S is de verstuivings-verhouding in atomen per ion.

TABEL

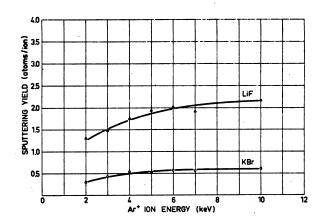
P <sub>1</sub>	Р	E		Sp	S	ref.
K	Ar <sup>+</sup>	1	kV	K	0.8	17
K	Ne <sup>+</sup>	1	kV	K	0.6	17
K	Xe <sup>+</sup>	1	kV	K	1.0	17
к	Ar <sup>+</sup>	.6	kV	K	4	2 *
K	Ar <sup>+</sup>	6	kV	K	6	2 **
K	Xe <sup>+</sup>	28	kV	K	1.6	18 *
K	Xe <sup>+</sup>	28	kV	K	2.5	18 **
ксі	Ar <sup>+</sup>	2-10	kV	Stot	0.3-2.2	19
KCl	K <sup>+</sup>	1.5	kV	C1 C1	0.1	20
KCl	K <sup>+</sup>	1	kV	K <sup>+</sup>	0.1	20
Na.	Ar <sup>+</sup>	1	kV	Na	0.3	17
Na	Ne <sup>+</sup>	1	kV	Na	0.2	17
Na	Хе <sup>+</sup>	1	kV	Na	0.3	17
Na.	He <sup>+</sup>	1	kV	Na	0.05	17
NaC1	Ar <sup>+</sup> K <sup>+</sup> K <sup>+</sup>	2-10	kV	S <sub>tot</sub>	0.3-0.6	19
NaCl	K <sup>+</sup>	1.5	kV	Na.	0.1	20
NaCl	K+	1.5	kV	c1-	0.1	20
KBr	Ar <sup>+</sup>	2-10	kV	Stot	0.3-0.6	19
KBr	K <sup>+</sup>	1.5	kV	Br-	0.1	20
KBr	K <sup>+</sup>	1.5	kV	K <sup>+</sup>	0.1	20
KBr	K <sup>+</sup>	1- 6	kV	K <sup>+</sup>	0.2-0.3	21
KBr	$\kappa_{+}$	1- 6	kV	Br-	0.1	21
CsCl	K+	1- 6	kV	C1-	0.08	21
NaF	K <sup>+</sup>	1.5	kV	F <sup>-</sup>	0.1	20
AgI	Ar <sup>+</sup>	0.5-7	kV	I	1	16
AgI	Ar <sup>+</sup>	0.5-7	kV	AgI	0.1	16
AgI	Ar <sup>+</sup>	0.5-7	kV	Ag	1 _	16
AgI	Ar <sup>+</sup>	0.5-7	kV	I-	< 10 <sup>-5</sup>	16
Cu	Ar <sup>+</sup>	2 -5	kV	Stot	3-5	22
Roestvr.st.	Ar <sup>+</sup>	2 -5	kV	Stot	1.0-2.5	22

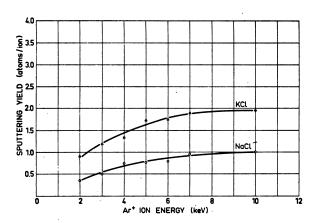
<sup>\*</sup> cos -verdeling aangenomen van de gesputterde deeltjes

<sup>\*\*</sup> cos<sup>2</sup>-verdeling aangenomen van de gesputterde deeltjes

Het is opmerkelijk dat er zich onder de verstoven deeltjes zo weinig negatieve ionen bevinden. De halogenen hebben een positieve electronen-affiniteit, zodat men zou verwachten dat het gedrag van Cl met K en het gedrag van Cl met K<sup>†</sup> te vergelijken zou moeten zijn. Bovendien gelden nog de volgende experimentele feiten voor kathodeverstuiving:

- a) Scheve inval van de invallende bundel geeft een hogere energie van de uitgezonden deeltjes en een hogere verstuivingsverhouding. Deze laatste is maximaal bij een invalshoek van 70°.
- b) Hoe zwaarder het invallend deeltje is, des te hoger is de energie en de verstuivingsverhouding.
- c) Boven <u>+</u> 1 keV neemt de verstuiwingsverhouding slechts langzaam toe met de energie van de invallende deeltjes. De energieverdeling van





<u>Fig. 5</u> - Het verloop van de verstuivingsverhouding als functie van de ionenenergie voor KCl, KBr, NaCl en LiF (Navinšek, ref. 19).

verstoven deeltjes hangt hier niet af van de energie van de invallende deeltjes.

- d) De energieverdeling van de verstoven deeltjes is onafhankelijk van de kristalstructuur en de kristaloriëntatie.
- e) Lichte deeltjes krijgen een lagere energie en een hogere snelheid dan zware deeltjes (zie ref. 2, 5, 23).

Tenslotte schijnt de hoekverdeling van de verstogen deeltjes een cos<sup>2</sup>-verdeling te zijn (ref. 24).

Indien men het verloop van de verstuivingsverhouding van KCl met de energie uit (ref. 19) vergslijkt met die van K (ref. 2, 17) dan ziet men dat deze in dezelfde grootte-orde liggsn. Men kan dus verwachten dat de sputterverhouding van Cl uit KCl ongeveer de helft zal zijn van die van K uit K.

Uit de tabellen in (ref. 7) ziet men, dat Cl de hoogste ionisatiecoëfficiënt voor NSI heeft. Het is echter niet bekend hoe deze efficiency als functie van de energie verloopt. Voor PSI van K op Pt8%W is dit verloop wel gemeten (ref. 3). Momenteel zijn er experimenten gaande over de doorsnede van het ionisatieproces  $K+I \rightarrow K^+ + I^-$ . Uitgaande van deze metingen is het mogelijk de energieafhankelijkheid van NSI voor I te meten, door een snelle jodiumbundel op een thermische kaliumbundel te schieten, en de ionenproductie hiervan te vergelijken met die van een snelle kaliumbundel op thermisch jodium. Omdat het dan mogelijk is absolute metingen te doen, zal het voor bepaalde proeven de voorkeur kunnen verdienen met jodiumbundels in plaats van chloorbundels te experimenteren.

### d) De snelheidsdistributie bij kathodeverstuiving

De snelheidsverdeling van verstoven deeltjes is, zoals reeds opgemerkt, geen Maxwellverdeling. Thompson (ref. 25) heeft voor de snelheidsverdeling van Au en Cu, en voor de verstuivingsverhouding S enkele formules afgeleid, die door Politiek en Kistemaker (ref. 4) op K zijn toegepast.

Om de afhankelijkheid van de collectorstroom  $I_C$  van de snelheid van de bundel te kennen, moet men rekening houden met het feit dat een snelheidsselector een vaste relatieve spreiding in de snelheid geeft. De spreiding  $\Delta v$  is dus evenredig met v, zodat men op de collector niet de snelheidsdistributie  $\Phi(v)$  (voor de selector), zoals die in fig. 1 getekend is waarneemt, maar een stroom  $I_C \propto v \Phi(v)$ . Voor de deeltjesflux onder een ruimtehoek  $d\Omega$  geldt de volgende formule:

$$\Phi(\mathbf{v}) \, \Delta \mathbf{v} = \mathbf{n}(\mathbf{v}) \, \Delta \, \mathbf{v} \, d\mathbf{Q} \, \cos \lambda \tag{1}$$

Hier is  $\lambda$  de hoek die het deeltje met de normaal van het oppervlak maakt, n(v) de snelheidsverdeling. Als  $E_b$  de verdampingswarmte is, en  $E_1$ ,  $E_2$  en  $v_1$ ,  $v_2$  de energie, resp. de snelheid van het deeltje voor en na het verlaten van het oppervlak is, dan geldt wegens energiebehoud:

$$E_{1} = E_{2} + E_{b}$$

$$\frac{1}{2} m v_{1}^{2} = \frac{1}{2} m v_{2}^{2} + E_{b}$$
(2)

dus

$$\frac{\mathrm{d}\mathbf{v}_1}{\mathrm{d}\mathbf{v}_2} = \frac{\mathbf{v}_2}{\mathbf{v}_1} \tag{3}$$

Bovendien geldt impulsbehoud parallel met het oppervlak. Als  $\lambda_1$  de hoek is, die het deeltje <u>in</u> het oppervlak met de normaal maakt, en  $\lambda_2$  de hoek is die

hij buiten het oppervlak hiermee maakt, dan geldt:

$$v_2 \sin \lambda_2 = v_1 \sin \lambda_1 \tag{4}$$

dus

$$\frac{\mathrm{d}\mathbf{v}_2}{\mathrm{d}\mathbf{v}_1} = \frac{\mathbf{v}_1 \cos \lambda_1}{\mathbf{v}_2 \cos \lambda_2} \tag{5}$$

Het aantal deeltjes dat het oppervlak verlaat is gelijk aan het aantal toegevoerde deeltjes. Dus uit formule 1 volgt wegens  $\Phi(v_1) = \Phi(v_2)$ 

$$n(v_1) \triangle v_1 d\Omega_1 \cos \lambda_1 = n(v_2) \triangle v_2 d\Omega_2 \cos \lambda_2$$
 (6)

Uit formule 3 volgt dat  $\Delta v_1 = \frac{v_2}{v_1} \Delta v_2$ , en uit formule 4 en 5 volgt wegens  $d\Omega = \sin \lambda d \lambda d \phi$ 

$$\frac{d\Omega_2}{d\Omega_1} = \frac{\sin \lambda_2}{\sin \lambda_1} \frac{d\lambda_2}{d\lambda_1} = \frac{v_1^2}{v_2^2} \cdot \frac{\cos \lambda_1}{\cos \lambda_2} \tag{7}$$

Wij kijken onder een vaste hoek d $\Omega_2$  en een vaste  $\lambda_2$ . Uit formule 6 en 7 volgt nu

$$n(v_1) = \frac{v_2^3}{v_1^3} \cdot n(v_2)$$
 (8)

Voor de collectorstroom  $I_c$  vinden wij uit formule 1:

$$I_c \propto v_2 \Phi(v_2) \propto \frac{v_2^4}{v_1^3} \cdot n(v_1) \propto \frac{E_2^2}{(E_2 + E_b)^{3/2}}$$
 (9)

Indien wij evenals Thompson (35) stellen dat voor  $\frac{1}{2}mv_1^2 > E_b$  geldt dat  $n(v_1) \propto v_1^{-\alpha}$ , dan is het eindresultaat:

$$I_{c} \propto \frac{E_{2}^{2}}{(E_{2} + E_{b})^{(3+\alpha)/2}}$$
 (10)

Voor Ar<sup>+</sup> op K vindt Politiek (ref. 4) een overeenkomst van 2% als  $E_b = 0.71$  en  $\alpha = 2.05$ . De verdampingswarmte van K is 0.82 eV bij  $760^{\circ}$ C, maar de hogere temperatuur in de botsingscascade kan tot gevolg hebben dat  $E_b$  verlaagd is. In figuur 6 staan de theoretische en experimentele snelheidsverdeling voor K uitgezet. Voor Au en Cu voldoen  $\alpha = 3$  beter (ref. 25).

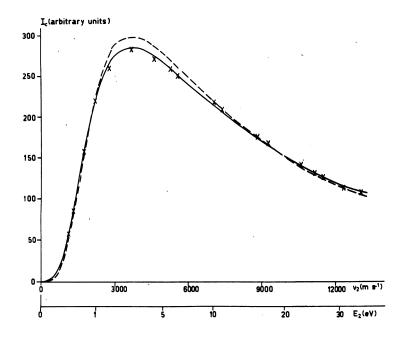


Fig. 6 - De waargenomen snelheidsverdeling na de snelheidsselector. Vergeleken met fig. 1 is de verdeling met een factor v vermenig-vuldigd. De onderbroken lijn is de theoretische curve voor  $\alpha = 2,18$  en  $E_b = 0,82$  en de getrokken lijn voor  $\alpha = 2,05$  en  $E_b = 0,71$  (Politiek et al., ref. 4).

Onder de veronderstelling dat dit model eveneens geldig is voor de heteroatomaire stof KCl, kunnen wij de energieverdeling van verstoven K en Cl voorspellen. Wij nemen hier voor  $\alpha$  de waarde 3 aan, evenals Thompson (ref. 25).

Stellen wij E(K), E(Cl) enz. de verdampingswarmten voor de individuele deeltjes, V de verdampingswarmte voor de KCl moleculen en D de dissociatie-warmte hiervan, dan vinden wij uit kringprocessen de volgende relaties tussen deze grootheden en de ionisatiepotentiaal I van het K, de electronen-affiniteit A van het Cl en de werkfunctie  $\phi$  van het KCl:

$$E(Cl^-) - e\phi + eA = E(Cl)$$
 (a)

$$E(K^{+}) + e\phi - eI = E(K)$$
 (b)

$$E(C1) + E(K) = V + D$$
 (c)

De verdampingswarmte V = 1,02 eV, D = 4,36 V, I = 4,34 V, en A = 3,72 V. Uit (a) en (b) kan men berekenen dat

$$E(Cl^{-}) + E(K^{+}) = 6,0 \text{ eV}$$
 (d)

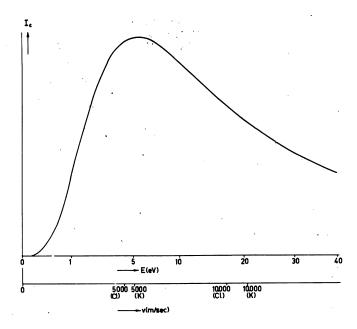
Deze verdampingswarmten worden hoofdzakelijk door de Coulombkrachten bepaald, en deze zijn voor  $K^{+}$  en  $Cl^{-}$  dezelfde. Dus  $E(K^{+}) = E(Cl^{-}) = 3,0$  eV. Onder deze aanname dat  $E(K^{+}) = E(Cl^{-})$  volgt uit (a) en (b)

$$E(K) - E(C1) = eI - eA + 2e\phi$$
 (e)

Indien E(K) = E(C1), dan is E(C1) = 2.7 eV, en  $\phi = 4.0$  eV. Helaas is de werkfunctie van KCl niet bekend, anders was het mogelijk E(K) en E(C1) direct uit (c) en (e) te berekenen. Indien de werkfunctie bv. 4.5 V zou zijn, dan zou E(K) = 3.1 eV en E(C1) = 2.2 eV zijn.

Onder de veronderstelling dat het model van Politiek ook op KCl kan worden toegepast, kunnen wij de verwachte snelheidsverdeling van verstoven K en Cl tekenen. Uit formule (10) volgt, dat deze een maximum vertoont bij

$$E_{\text{max}} = \frac{4E_{\text{b}}}{1-\alpha} \tag{11}$$



<u>Fig. 7</u> - De theoretische energieverdeling bij  $E_b = 2.7$  en  $\alpha = 3$ . Op de x-as staat de snelheid lineair uitgezet.

In figur 7 is de verwachte energieverdeling voor  $\alpha=3$  en  $E_b=2.7$  eV uitgezet. De vorm van deze curve blijkt niet sterk te variëren met  $E_b$ . In figur 7 is ook de snelheid aangegeven voor K en Cl. Omdat de massa's verschillen, zijn deze niet precies gelijk.

#### e) Mogelijke processen

Voor de potentiaal tussen twee geladen deeltjes kan de volgende benaderingsformule gegeven worden:

$$V = \frac{e^2}{4\pi \, \epsilon_o \, R} + b \, R^{-n} \tag{1}$$

waarin b en n constanten zijn. De eerste term is de Coulombwisselwerking tussen de deeltjes en de tweede term het repulsieve deel, dat op grotere afstand verwaarloosd kan worden. Vergeleken met de Coulombpotentiaal kan men de Van der Waalspotentiaal eveneens als constant beschouwen.

In de door ons beschouwde processen (en in alle gevallen behalve die van Cs en NO<sub>2</sub>) is de ionisatie-energie I van het ene deeltje groter dan de electronenaffiniteit A van het andere deeltje. Daarom zal de potentiaal-curve voor de ionogene toestand in het oneindige boven die der atomen lopen. Deze curven kunnen elkaar snijden, zodat er een kans bestaat dat de deeltjes van de ene toestand naar de andere overgaan (fig. 8). Deze overgang

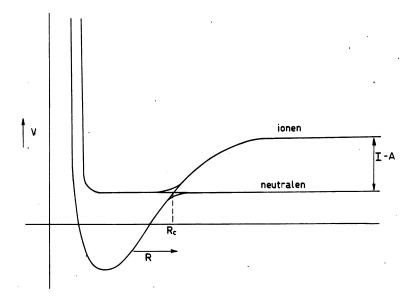


Fig. 8 - Potentiaalcurven van geladen en neutrale deeltjes. Indien de deeltjes elkaar tot R<sub>C</sub> naderen en hun energie voldoende is, kunnen zij overgaan in de andere toestand.

kan alleen plaatsvinden als de energie van de deeltjes zodanig is dat de onderlinge afstand kleiner kan worden dan de afstand  $R_{\rm C}$  waar de curven elkaar snijden.

Indien  $R_{\rm C}$  zich in een gedeelte bevindt waar de repulsieve krachten geen rol spelen dan is het mogelijk de doorsnede voor ionisatie globaal te berekenen. Voor  $R_{\rm C}$  geldt:

$$\frac{e^2}{4\pi \, \varepsilon_0 \, R_c} = e(I - A) , \qquad (2)$$

Als wij R in A en I en A in Volt uitdrukken krijgen wij (aangenomen dat de deeltjes éénvoudig geToniseerd worden) de volgende practische formule:

$$R_{c} = \frac{14,42}{1-A} \text{ A} \tag{3}$$

Als de atomen elkaar tot de afstand  $R_c$  naderen is er een kans P, die afhangt van de energie, dat zij overgaan in ionen. Bij het weer uit elkaar vliegen is de kans dat zij ionen blijven 1-P. De kans dat er ionen gevormd worden is 2P(1-P) omdat er twee wegen zijn die tot ionenvorming kunnen

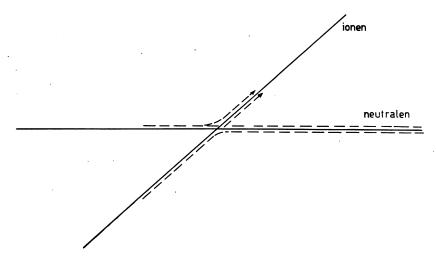


Fig. 9 - De twee mogelijke wegen bij een diabatische overgang.

leiden (zie fig. 9). Deze factor is maximaal 0,5 als P=0,5. Indien wij het probleem driedimensionaal beschouwen moet men zich realiseren dat er zich niet alleen kop-kop-botsingen voordoen, zodat men 2P(1-P) moet middelen over alle radiële energieën van de deeltjes. Het blijkt dan dat deze factor maximaal 0,452 kan worden (zie ref. 26). De doorsnede voor ionisatie is dus maximaal

$$\sigma_{\text{max}} = 2P(1-P)_{\text{max}} \pi R_c^2 = \frac{295}{(I-A)^2} A^2$$
 (4)

Formules 3 en 4 zijn grafisch uitgezet in fig. 10.

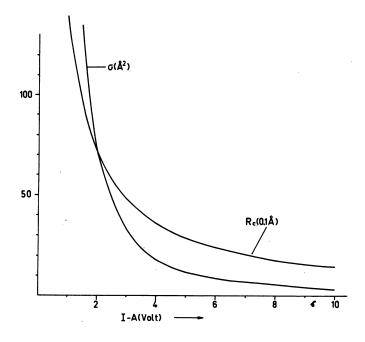


Fig. 10 - De maximale doorsnede voor ionenvorming σ en de afstand tot waar de deeltjes elkaar moeten naderen om ionen te vormen voor verschillende I-A.

Het aantal positieve resp. negatieve ionen dat gevormd wordt is

$$I_{\pm} = \sigma_{\text{max}} g n_1 n_2 V = \sigma_{\text{max}} n_2 J 1$$
 (5)

Hier is  $n_1$  de deeltjesdichtheid van de primaire bundel,  $n_2$  de dichtheid van de secundaire bundel, g de relatieve snelheid, V het botsingsvolume, J het aantal primaire deeltjes dat per seconde het botsingscentrum passeert en 1 de lengte van het botsingscentrum.

De minimale energie waarop wij ionen kunnen verwachten is  $E_d = e(I-A)$ , en ligt in de orde van enkele electronvolt. Indien de potentiaalcurven elkaar echter in het repulsieve deel snijden dan kan deze energie  $I_c > E_d$  zijn zodat men dan informatie over de vorm van de ourven krijgt (fig. 11). Voor  $\sigma_{max}$  geldt dan nog formule 4, d.w.z. het eerste deel daarvan.

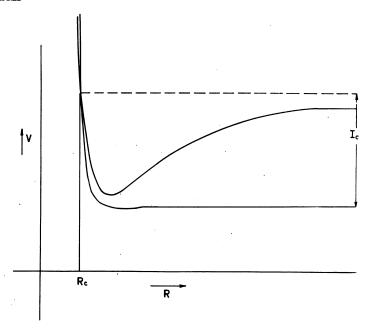
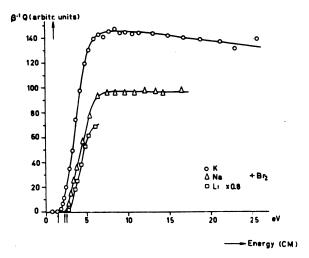


Fig. 11 - Indien de curven elkaar in het repulsieve deel snijden, kan de energie waarbij ionen gevormd kunnen worden I<sub>c</sub>, groter zijn dan I-A.

Bij het onderzoek van chemisohe reacties met moleculaire bundelapparatuur zal men primair die reacties onderzoeken die een hoge werkzame doorsnede hebben, dus waar I-A klein is. Alkali-halogeenreacties zijn hiervoor zeer geschikt, bijvoorbeeld bij het systeem K+Br<sub>2</sub> is I-A=1,5 V, zodat R<sub>c</sub> = 9,6 Å en  $\sigma$  = 130 Å<sup>2</sup>. Het verloop van  $\sigma$  (gedeeld door de efficiency van de detector) is afgebeeld in fig. 12 (Baede et al., ref. 27).



<u>Fig. 12</u> - De doorsnede voor ionenvorming voor K, Na en Li op Br<sub>2</sub>, gedeeld door de detectorefficiency, naar metingen van Baede et al., (ref. 27).

Men zou ook botsingen van atomen op ingewikkelder moleculen kunnen bestuderen. In dit geval kan er naast ionisatie ook dissociatie optreden van de moleculen. Ook hier geldt dat de maximale doorsnede het grootst is voor deeltjes met een lage  $E_d$ . De stoffen die voor dit soort proeven in aanmerking komen zijn chloor (het element met de hoogste electronenaffiniteit) en bijvoorbeeld aniline, dat een ionisatiepotentiaal van 7,61 V heeft (ref. 28). In dit geval zou  $R_c = 3.7$  Å  $\sigma = 17$  Å  $^2$  en  $E_d = 3.9$  V bedragen. Bij hogere energie zou men brokstukken als  $NH_2^+$  kunnen verwachten. Om dit te onderzoeken zou men dus naar massa moeten selecteren. Het voordeel van dit onderzoek is, dat men ook met primaire deeltjes zou kunnen schieten die niet met behulp van oppervlakte-ionisatie gedetecteerd kunnen worden; reeds de verhouding van de intensiteiten van de verschillende massa's geeft informatie over de moleculen.

#### II. De apparatuur

Het apparaat bestaat uit drie kamers (hoeden) die vacuum gepompt kunnen worden. In principe is het hetzelfde als beschreven in ref. 2.

In de eerste hoed bevindt zich een ionenbron waar een Ar<sup>+</sup>-bundel van 0,5 mA en 10 kV kan worden opgewekt. Deze bundel treft een brok KCl dat draaibaar is opgesteld. De verstoven deeltjes worden gecollimeerd door een spleet die transleerbaar en roteerbaar opgesteld is. Twee afbuigplaatjes zorgen er voor dat er zich geen geladen deeltjes in de bundel kunnen bevinden. Tot slot bevindt zich een chopperwiel in de eerste hoed om lock-in metingen mogelijk te maken.

In de tweede hoed bevindt zich een snelheidsselector. Deze bestaat uit acht schijven die met een hoge snelheid roteren. In deze schijven zijn op regelmatige afstanden gleuven aangebracht. De schijven zijn enigszins ten opzichte van elkaar gedraaid, en wel zo dat er slechts deeltjes van een bepaalde snelheid doorgelaten kunnen worden; voor alle andere snelheden is

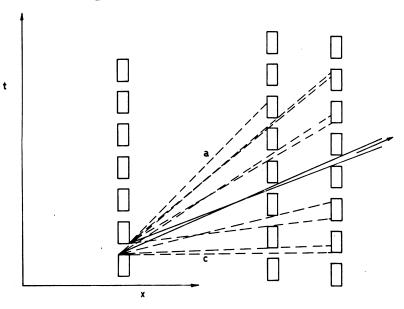


Fig. 13 - Schematische weergave van de baan van een deeltje door een snelheidsselector. Slechts deeltjes met snelheid tussen a en c kunnen de eerste schijf passeren. Uiteindelijk is de selector maar
voor een klein snelheidsinterval "open".

de selector "dicht" (zie figuur 13). De selector laat snelheden door van 1000-15000 m/sec, de spreiding van de snelheid is over het hele gebied constant, ongeveer 10%.

Achter de selector is een monitor opgesteld, waarmee door middel van oppervlakte-ionisatie op Ir of Re de K-atomen in de bundel gemeten kunnen worden. Als men het K-signaal op de monitor ijkt met het Cl-signaal op de negatieve oppervlakte-ionisator kan men bij sommige proeven misschien volstaan met de monitor. Omdat PSI-detectoren klein zijn passen deze nog juist in de tweede hoed. Achter de monitor bevindt zich nog een tweede spleet.

In de derde hoed staat een detectiedraad voor halogenen en een analysatormagneet opgesteld. Hierachter bevindt zich een multi-channel-spuitje,
waarmee de secundaire bundel wordt opgewekt. Deze wordt gecondenseerd op
een koelval, zodat het vacuum hierdoor niet verstoord wordt. Boven en
onder het betsingscentrum bevinden zich plaatjes waarmee de totale hoeveelheid gevormde ionen gemeten kan worden. Hierachter bevindt zich een quadrupool waarmee de ionen naar massa geselecteerd kunnen worden.

Het vacuumsysteem bestaat uit drie olie-diffusiepompen, een ionengetterpomp, een roterende pomp en eventueel een kleine ionenpomp achter de quadrupool. In figuur 14 is het principe van de vacuumschakeling gegeven. De oliepompen zijn gevuld met convalex-10 olie. Dit is een polyvinylether waarmee
in een ideale ruimte een druk van 5.10<sup>-10</sup> torr te halen is (tegen 10<sup>-7</sup>
met apiëzonolie). Deze olie is goed bestand tegen verbranding en vormt
- omdat het geen siliconen bevat - geen isolerende laagjes.

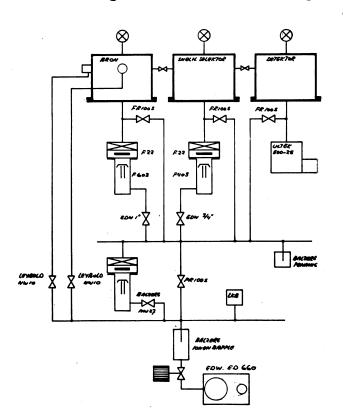


Fig. 14 - Schema van het vacuumsysteem.

Onder de eerste en tweede hoed bevinden zich 6" resp. 4" oliepompen met freongekoelde baffles. Onder de derde hoed bevindt zich de ionengetterpomp, die als voordeel heeft dat er zich geen oliedampen boven vormen.

Voor deze pompen bevindt zich een 2" oliepomp die gebruikt kan worden om de derde hoed voorvacuüm te zuigen en het voorvacuüm van de 4" en 6" pompen te verbeteren. Het geheel wordt tenslotte voorvacuüm gepompt door een Edwards ED660 roterende pomp met een pompsnelheid van 600 1/min. Deze pomp bereikt een maximaal vacuüm van 10<sup>-4</sup> torr.

In ref. 2 waarin de geometrie wat betreft de eerste twee hoeden dezelfde was, was de druk in de eerste hoed  $3 \cdot 10^{-6}$  met werkende ionenbron. Aangezien de gebruikte pompen vergelijkbaar zijn, kunnen wij op ongeveer dezelfde druk rekenen. De druk in de tweede en derde hoed zal in het  $10^{-7}/10^{-8}$  torr gebied liggen, zodat de strooiïng van de bundel door het restgas bijna geheel in de eerste hoed zal plaatsvinden. Indien men de doorsnede voor verstrooiïng Q op ongeveer 400 % stelt, en weet dat de afstand van de target tot de spleet ongeveer 20 cm is, kan men uitrekenen hoeveel deeltjes er over blijven. Er geldt:

$$I = I_0 e^{-nQl}$$

Hier is 1 de lengte van het botsingscentrum, dus 20 cm. Het blijkt dat de bundelintensiteit bij een restgasdruk van 3.10<sup>-6</sup> met 8% en bij een restgasdruk van 2.10<sup>-5</sup> met 50% afneemt. Indien men zich realiseert dat Q niet de totale botsingsdoorsnede is, omdat in ons geval een lichte verstrooiing niet ten gevolge hoeft te hebben dat een deeltje uit de bundel verdwijnt, zal men begrijpen, dat de verliezen nog kleiner zullen zijn.

Het ongeselecteerde signaal bedroeg bij Politiek et al. (ref. 2) 2.10<sup>-11</sup> A voor K op een 50  $\mu$  draadje Pt8% als de ionenstroom van de bron 0,5 mA bedroeg en de versnelspanning 8 kV. De eerste spleet had een opening d<sub>1</sub> van 35  $\mu$  en de afstand r<sub>1</sub> hiervan tot de detectiedraad was 112 cm. In ons apparaat zal de spleetbreedte ongeveer 500  $\mu$  bedragen, de energie en stroomsterkte van de Ar<sup>+</sup>-bundel hetzelfde zijn en de afstand van de spleet tot de detectiedraad 60 cm zijn. De dikte d<sub>2</sub> van de detectiedraad voor Cl zal 75  $\mu$  zijn, die van de mcnitor 100  $\mu$ . Deze laatste bevindt zich op 45 cm van de spleet. De efficiency van de Cl detector  $\beta$  is  $\pm$  40 keer kleiner dan die van de monitor. De sputterverhouding S is voor K resp. Cl uit KCl ongeveer de helft van die van K uit K. Voor de gemeten stroom I geldt nu:

$$I \subset S \times d_1 \times \beta \times d_2/r_1^2$$

Hieruit volgt dat de monitor een signaal zal leveren dat  $90 \times$  zo groot en de Cl detector dat  $0.9 \times$  zo groot is als in ref. 2. De primaire bundel wordt gekruist met een secundaire, afkomstig uit een multichannel-oven. Deze bestaan uit een aantal zeer dunne pijpjes, zodat de bundel een zeer kleine hoekspreiding heeft; volgens Ackerman et al. (ref. 32) is de hoekverdeling rond de normaal een cos verdeling.

Om te bepalen welke druk men maximaal in de secundaire bundel kan handhaven kan men als volgt te werk gaan. De deeltjes die geïoniseerd zijn verdwijnen uit de bundel, zodat de intensiteit van de primaire bundel voortdurend afneemt. Als deze op afstand x is afgenomen tot  $I_x$ , dan is het aantal gevormde ionen uit de primaire bundel  $dI_x$ , dus het aantal verdwijnende primaire deeltjes, over een afstand dx volgens formule 5

$$dI_x = \sigma n I_x dx$$

Integratie van deze vergelijking van nul naar l<br/> geeft het aantal overgebleven deeltjes  $\mathbf{I}_1$ . Het aantal ionen is dus

$$I_{+} = I_{0} - I_{1} = I_{0} (1 - e^{-\sigma nl}) = I_{0} (\sigma \frac{nl}{1!} - \frac{(\sigma nl)^{2}}{2!} + \cdots)$$

De doorsnede is dus lineair met I als de hogere termen verwaarloosbaar zijn ten opzichte van de eerste term. Stelt men  $\sigma$  op  $17\text{\AA}^{2}$  en l op 5 cm dan vindt men dat de tweede term minder dan één procent is van de eerste als  $n \simeq 2 \cdot 10^{12}$  deeltjes/cm<sup>3</sup>, dus als de druk kleiner is dan  $10^{-4}$  torr. Dit alles geldt voor het geval energieverlies van de neutrale deeltjes door elastische botsingen te verwaarlozen is. Uit deze bovengrens voor de druk laat zich de maximale ionenstroom berekenen; deze is met een geselecteerde bundel ongeveer  $10^{-12}$  A. Ongeselecteerd is dit een factor 10-20 meer. Hierbij moet nog worden opgemerkt dat de zwaartepuntsenergie van de deeltjes groter moet zijn dan de drempelenergie voor ionisatie,  $E_{\rm d}$ . Voor chloor zal deze energie in het laboratoriumsysteem bij schieten op aniline 5,3 eV zijn, voor broom 7,7 en voor jodium 10,6 eV. Doordat wij naar snelheid selecteren zal het in alle gevallen waarschijnlijk even makkelijk zijn deze energie te bereiken.

Tot slot volgt hier nog een tabel van de te verwachten stromen bij een druk in de secundaire bundel van  $10^{-4}$  torr, een lengte van het botsingscentrum van 5 cm en een docrsnede van 17  $^{\circ}$  voor chloor op aniline.

<sup>\* (</sup>dit is de 0,4  $\pi R_c^2$  voor Cl op aniline).

TABEL

	Geselecteerd	Ongeselecteerd
monitor NSI-detector ionenstroom	2 · 10 <sup>-11</sup> 2 · 10 <sup>-13</sup> 10 <sup>-12</sup>	2 · 10 <sup>-9</sup> 2 · 10 <sup>-11</sup> 10 <sup>-11</sup>
drempelenergie (labsyst.)	5,3 eV	· <del></del>

#### III. Negatieve oppervlakte-ionisatie

Bij het gebruik van NSI-detectoren staan ons twee methoden ter beschikking om de ionen van de electronen te scheiden, te weten de massaspectrometermethode en de magnetronmethode (ref. 7). De eerste methode heeft tot voordeel dat de scheiding practisch volledig is en het bovendien mogelijk is verschillende deeltjes te onderscheiden. Men dient hierbij overigens goed te bedenken dat oppervlakte-ionisatoren in het algemeen geen onderscheid kunnen maken tussen atomen en verbindingen van dezelfde elementen. De magnetronmethode heeft tot voordeel dat minder omvangrijke apparatuur nodig is zodat de detector eenvoudig en handzaam kan blijven. Het is echter onmogelijk de electronen geheel van de collector te houden, want botsingen van de electronen met de bundeldeeltjes hebben tot gevolg dat het signaal vergezeld zal gaan van een ruis, waardoor zelfs een bundel van niet-ioniseerbare neutralen aanleiding zal geven tot een (zwak) negatief signaal.

In een voorbereidende proef werd de NSI bestudeerd van KCl op W2%Th, met de magnetronmethode. Hierbij werden het draadje en de detector in een magnetisch veld geplaatst. Een goede scheiding wordt verkregen als de collector groot, het magnetisch veld hoog en de versnelspanning tussen collector en draad laag is, terwijl de restgasdruk laag moet worden gehouden om de achtergrond die veroorzaakt wordt door botsingen van de electronen tegen het restgas zo laag mogelijk te houden (zie ref. 29). De collector moet van een magnetisch niet-geleidend materiaal zijn om het magneetveld zo homogeen mogelijk te houden. In figuur 15 staat het gebruikte apparaat afgebeeld.

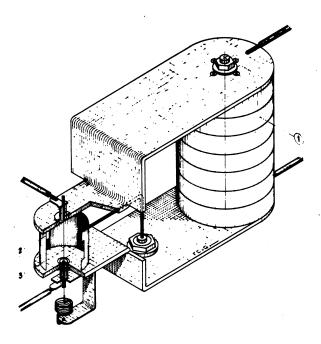


Fig. 15 - Schets van de negatieve oppervlaktedetector. 1 is de magneet, 2 de collector en 3 het W-Th-draadje. Het veld bij de collector is 350 G.

1 is de permanente magneet, 2 de collector en 3 het W-Th-draadje. Een spleet van  $\frac{1}{2}$  mm collimeerde de bundel. Het veld bij de collector had een sterkte van 350 Gauss. De signalen van de detector worden gemeten met behulp van een General Radio DC-amplifier, en zichtbaar gemaakt op een X-Y-recorder.

De KCl bundel werd opgewekt met behulp van een thermisch oventje, dat een spleet van 0,3 mm bij 3 mm had. Dit oventje bevond zich op 50 mm afstand van het draadje. De temperatuur van het oventje werd gemeten met een thermokoppel, maar omdat de temperatuur van het koudste gedeelte van de oven niet bekend was bleek het niet mogelijk de efficiency van het draadje direct te berekenen. Om de deeltjes flux te bepalen werd daarom de PSI van KCl op W bepaald, zodat men bij het schatten van de NSI efficiency niet met de geometrie of de nauwkeurigheid in de temperatuurmeting te rekenen had.

Het activeren van het W-Th geschiedde door het draadje gedurende twee minuten op 2300°K uit te gloeien (in ons geval was de gloeistroom dan ongeveer 1,2 A). Als de versnelspanning 2V bedroeg, was de ruis van de elec-

tronen die via botsingen tegen het restgas de collector bereikten bij een temperatuur van het draadje van  $1800^{\circ}$ K (= 0,7 A),  $10^{-13}$  A. De druk in het systeem was  $10^{-6}$  torr. Indien de magneet er niet was geweest zou de electronenstroom ongeveer  $10^{-2}$  A geweest zijn. Het magneetveld onderdrukt de electronenstroom dus wel effectief.

Het bleek, dat op dit apparaat de K<sup>+</sup>-stroom, veroorzaakt door PSI van KCl op W 7,0.10<sup>-8</sup> A bedroeg bij een oventemperatuur van 650°C. Dit signaal was 5.10<sup>-8</sup> voor K op W-Th, zodat de activatie het signaal met 30% heeft doen afnemen. Voorts bleek het NSI signaal 10<sup>-9</sup> A te bedragen.

Een K-bundel die hetzelfde PSI-signaal op W-Th gaf, bleek door botsingen met de electronen een signaal af te geven van 10<sup>-10</sup> A als de collector een positieve potentiaal had ten opzichte van het draadje. Dit signaal moet dus worden beschouwd als ruis en van het NSI signaal voor KCl worden afgetrokken.

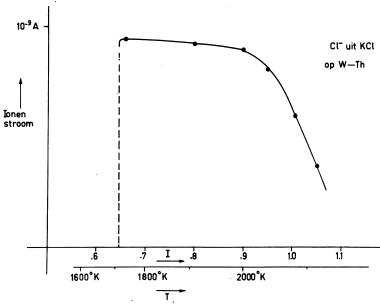


Fig. 16 - Het aantal Cl ionen als functie van de temperatuur van het draadje.

Uit het feit dat de PSI efficiency van KCl op W 94% is (zie ref. 30) en uit de verhouding van de Cl stroom op W-Th en de K stroom op W kan men de ionisatie efficiency voor NSI van KCl op W-Th bepalen. Deze bleek ongeveer 1,3% te zijn.

In figuur 16 ziet men dat variëren van de gloeistroom van het draadje van 0,65 tot 0,95 A (= 1730°K - 2150°K) zeer weinig invloed heeft op het signaal. Hierna begint het signaal af te nemen, terwijl de achtergrond bij toenemende temperatuur toeneemt.

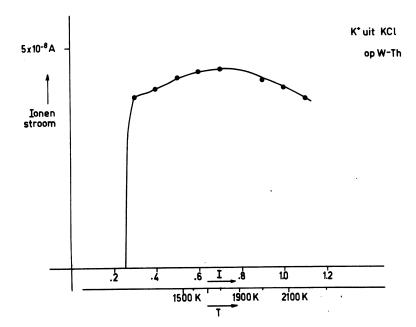


Fig. 17 - Het aantal K<sup>+</sup> ionen als functie van de temperatuur van het draadje.

In figurr 17 is het PSI-signaal als functie van de temperatuur van de W-Th draad uitgezet. Het flauwe maximum in deze curve geeft aan, dat de draad niet voor 100% geactiveerd was. Ook de relatief hoge efficiency voor PSI en de lage efficiency voor NSI wijst hierop. Uit het teruglopen van de PSI-efficiency en het vergelijken van het NSI-signaal met (28) volgt, dat de draad voor ongeveer 50% met Th bedekt was.

Tenslotte is in figuur 18 de afhankelijkheid van het PSI en NSI signaal als functie van de oventemperatuur uitgezet. Het verband tussen de oventemperatuur en de dampspanning in de oven is volgens (31):

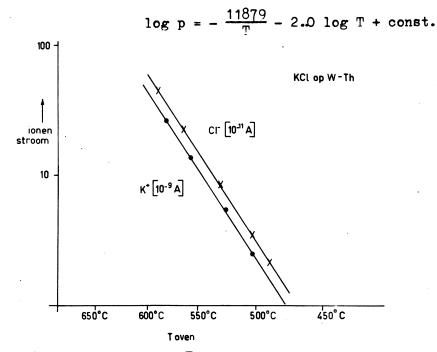


Fig. 18 - Het K, resp. Cl signaal als functie van de oventemperatuur.

De X-as is zo uitgezet dat 1/T lineair is als T in K gemeten is.

De ionenstroom I uit de oven is evenredig met n.v, waar n de deeltjesdichtheid en v de snelheid is. Bovendien is  $p \sim nT$ , zodat wij de volgende relatie vinden:

$$log I = -11879 T^{-1} + 2,5 log T^{-1} + const.$$

Dus vinden wij voor de helling:

$$\frac{d \log I}{dT^{-1}} = -11879 + 2,5 T$$

Voor  $T = 600^{\circ}$ K is de laatste term 1500 en voor  $T = 900^{\circ}$ K is hij 2250, zodat het verband tussen  $T^{-1}$  en log I in dit temperatuurgebied bijna lineair is.

In figuur 18 is dit verband weergegeven. Men ziet dat het verband inderdaad lineair is en de lijnen parallel lopen. Hieruit volgt dat ook het signaal dat wordt gevormd door deeltjes die botsen met de electronen lineair is met het aantal deeltjes.

Tenslotte bleek, dat een W-draad bedekt met Ba-SrO geen NSI gaf. Dit is in overeenstemming met (13).

#### LITERATUUR

- 1 A.C.M. Moutinho; Doctoraalverslag (Leiden, 1968).
- 2 J. Politiek, P.K. Rol, J. Los, P. Ikelaar; Rev.Sci.Instr. 39 1147 (1968).
- 3 J. Politiek, J. Los; Rev.Sci.Instr. 40 1576 (1969).
- 4 J. Politiek, J. Kistemaker; Rad. Effects 2 139 (1969).
- 5 R.V. Stuart, G.K. Wehner, G.S. Anderson; J.Appl.Phys. 40 803 (1969).
- 6 G. Hortig, M. Müller; Z.Physik 221 119 (1969).
- 7 G.P. Können; FOM 27323, Amolf 68/338.
- 8 E.Ya. Zandberg, A.Ya. Tontegode; Sov. Phys. Techn. Phys. 13 550 (1968).
- 9 E.Ya. Zandberg, A.Ya. Tontegode; Sov. Phys. Techn. Phys. <u>12</u> 1548 (1968).
- 10 E.Ya. Zandberg, A.Ya. Tontegode; Sov. Phys. Techn. Phys. 13 573 (1968).
- 11 E.Ya. Zandberg, V.I. Paleev; Sov. Phys. Techn. Phys. 10 1014 (1966).
- 12 E.Ya. Zandberg, Y.Kh. Rasulev; Sov. Phys. Techn. Phys. 13 1446 (1969).
- 13 J.G. King, J.R. Zaccharias; Advances in electronics and electron physics, deel 8 (New York, 1956).
- 14 M. Cavallini, G. Gallinaro, G. Scoles; Z. Naturforschg 224 413 (1967).
- 15 E. Hulpke, V. Kempter; Z.Physik 197 41 (1966).
- 16 F. Schmidt-Bleek, G. Ostrom, S. Datz; Rev.Sci.Instr. 40 1351 (1969).
- 17 R.C. Bradley; Phys.Rev. <u>93</u> 791 (1964).
- 18 E. Hulpke, Ch. Schlier; Z. Physik 207 294 (1967).
- 19 B. Navinšek; J.Appl.Phys. 36 1678 (1965).
- 20 G.M. Batanov; Sov. Phys. Sol. St. 4 1306 (1963).
- 21 I.A. Abroyan, V.P. Lavrov; Sov. Phys. Sol. St. 4 2386 (1963).
- 22 A.L. Southern, W.R. Willis, M.T. Robinson; J.Appl.Phys. 34 153 (1963).
- 23 I.A. Abroyan; 8th Int. Ion. Conf. (Leningrad, 1967).
- 24 P.K. Rol; Proefschrift (Amsterdam, 1960).
- 25 M.W. Thompson; PhilMag. 18 390 (1968).
- 26 N.F. Mott, H.S.W. Massey; The theory of atomic collisions, Oxford, 1965.
- 27 A.P.M. Baede, A.M.C. Moutinho, A.E. de Vries, J. Los; Chem. Phys. Letters 3 530 (1969).
- 28 E.Ya. Zandberg, U.Kh. Rasulev; Sov. Phys. Techn. Phys. <u>13</u> 1450 (1968).
- 29 A. Persky, E.F. Greene, A. Kuperman; J.Chem. Phys. 49 2347 (1968).
- 30 N.I. Aleeksev, D.I. Kaminskii; Sov. Phys. Techn. Phys. 9 1177 (1965).
- 31 Landolt-Börnstein; Zahlenwerte und Funktionen, deel 13.
- 32 M. Ackerman, E.F. Greene, A.L. Moursund, J. Ross; J.Chem.Phys. 41 1183 (1964).