

## MASTER

### Totale botsingsdoorsneden van metastabiele edelgas atomen (Ar\*, Kr\*)

Vlugter, J.C.

*Award date:*  
1985

[Link to publication](#)

#### **Disclaimer**

This document contains a student thesis (bachelor's or master's), as authored by a student at Eindhoven University of Technology. Student theses are made available in the TU/e repository upon obtaining the required degree. The grade received is not published on the document as presented in the repository. The required complexity or quality of research of student theses may vary by program, and the required minimum study period may vary in duration.

#### **General rights**

Copyright and moral rights for the publications made accessible in the public portal are retained by the authors and/or other copyright owners and it is a condition of accessing publications that users recognise and abide by the legal requirements associated with these rights.

- Users may download and print one copy of any publication from the public portal for the purpose of private study or research.
- You may not further distribute the material or use it for any profit-making activity or commercial gain

Totale botsingsdoorsneden van  
metastabiele edelgas atomen ( Ar<sup>\*</sup>, Kr<sup>\*</sup> )

J.C. Vlugter  
VDF/NO 83-13

Dit afstudeerwerk werd  
verricht onder begeleiding van  
Dr. H.C.W. Beijerinck.

INHOUD.

blz.

## SAMENVATTING

## INLEIDING

1.	<u>ELASTISCHE BOTSINGEN TUSSEN EDELGAS-ATOMEN</u>	2
1.1	Enkele begrippen uit de theorie	2
1.2	Botsingen met metastabielen	6
1.3	Classificatie van moleculaire electronentoestanden	8
1.4	Moleculaire toestanden en potentialen van de edelgas-excimeren	10
1.5	Verwachte bijdragen aan de totale botsingsdoorsnede	18
2.	<u>ANALYSE VAN DE EXPERIMENTEN</u>	21
2.1	Semi-klassieke beschrijving van kleine hoekverstrooiing in het glory-regime	21
2.2	Modelfuncties voor de verstrooiings-amplitude $f(\theta)$	24
3.	<u>DE OPSTELLING</u>	28
3.1	De holle kathode boog	28
3.2	De thermische metastabielen bron (TMB)	30
3.3	De detector voor de metastabielen	31
4.	<u>EXPERIMENTELE BEPALING VAN DE TOTALE BOTSINGSDOORSNEDE</u>	33
4.1	De calibratie van het strooicentrum	33
4.2	De bepaling van het nl-product	34
4.3	De bepaling van de deeltjesstroom $\dot{N}$	36
4.4	De bepaling van de skimmerinteractie $F_{sk}$	38
4.5	De bepaling van de virtuele bron	40

INHOUD (vervolg)

5. <u>RESULTATEN EN DISCUSSIE</u>	43
5.1 Het systeem Ar <sup>*</sup> -Kr	43
5.2 Het systeem Ar <sup>*</sup> -Ar	44
5.3 Discussie	47
<u>APPENDIX A</u>	49
<u>APPENDIX B</u>	51
<u>LITERATUUR</u>	52

SAMENVATTING.

In de energiegebieden  $0.04 < \epsilon(\text{eV}) < 0.15$  en  $0.4 < \epsilon(\text{eV}) < 10$  zijn voor de systemen  $\text{Ar}^* - \text{Kr}$  en  $\text{Ar}^* - \text{Ar}$  metingen verricht aan de totale werkzame doorsnede voor elastische verstrooiing. Voor  $\text{Ar}^* - \text{Kr}$  zijn experimenteel de  $N = 2.5$  tot  $N = 1$  glory waarneembaar, inclusief het eerste gedeelte van het overgangsgebied. Deze oscillaties geven informatie over de Van der Waals put in de  $\Omega = 2$  potentiaal, met als experimenteel gevonden waarde  $\epsilon_{\text{m}} = 600 \text{ K}\text{\AA}$ . Glory oscillaties t.g.v. de diepe  $\Omega = 0^-, 1$  potentiaal zijn niet waargenomen.

Voor  $\text{Ar}^* - \text{Ar}$  zien we alleen een ongestoorde  $N = 1$  glory; de glory's met hogere rangnummers zijn sterk gedempt. Deze demping is het gevolg van de verschillen in  $\epsilon_{\text{m}}$ -waarden van de drie potentialen ( $0_{\text{g}}^-, 1_{\text{g}}$ ),  $2_{\text{g}}$  en  $2_{\text{u}}$ . Een gemiddelde waarde voor dit systeem is  $\epsilon_{\text{m}} = 300 \text{ K}\text{\AA}$ . IJking van het strooicentrum levert de absolute waarde van  $Q$  en daarmee van de Van der Waals constante. De gevonden waarden,  $C_6(\text{Ar}^* - \text{Kr}) = 43.6 \cdot 10^{-78} \text{ Jm}^6$  en  $C_6(\text{Ar}^* - \text{Ar}) = 27 \cdot 10^{-78} \text{ Jm}^6$ , zijn in goede overeenstemming met de overeenkomstige alkali-edelgas systemen.

INLEIDING.

In de groep Atomaire en Optische Wisselwerkingen wordt o.a. onderzoek verricht aan de elastische en inelastische botsingsprocessen van edelgas atomen. Inelastische botsingsprocessen van edelgas atomen spelen een belangrijke rol in gasontladingen en hun toepassingen, zoals de He-Ne laser. Dit heeft geresulteerd in een toenemende belangstelling voor de intermoleculaire interacties van deze metastabiele atomen. Elastische verstrooiing is echter ook belangrijk voor dit gebied van onderzoekingen.

De beschikbare ab-initio berekeningen van potentiaal oppervlakken zijn meestal uitgevoerd voor kleine internucleaire afstanden; bijv. voor  $\text{Ar}^* - \text{Ar}$  tot 12 a.u. (1 a.u. = 0.528 Å). Voor grotere onderlinge afstanden waar de Van der Waals krachten domineren en de quantisering van het totale impulsmoment langs de internucleaire as nog gering is, zijn geen berekeningen verricht. De beschikbare experimentele informatie, voor systemen als  $\text{Ar}^* - \text{Ar}$ , beperkt zich meestal tot metingen van de differentiële botsingsdoorsnede in het thermisch en hyperthermisch energie gebied. Deze metingen zijn echter ongevoelig voor de Van der Waals interacties bij grote internucleaire afstanden.

In dit werk worden meetresultaten gepresenteerd van de totale elastische botsingsdoorsneden van de systemen  $\text{Ar}^* - \text{Ar}$  en  $\text{Ar}^* - \text{Kr}$  in de snelheidsgebieden  $600 < g(\text{ms}^{-1}) < 1200$  resp.  $2000 < g(\text{ms}^{-1}) < 10000$ . Deze botsingsdoorsneden leveren informatie over de Van der Waals interacties van de metastabiele edelgas atomen, welke in dit werk worden gepresenteerd.

## 1. ELASTISCHE BOTSINGEN TUSSEN EDELGAS-ATOMEN.

### 1.1 Het elastische botsingsproces.

Alvorens in te gaan op de in dit werk onderzochte systemen voeren we een aantal begrippen in uit de theorie van de elastische botsingsprocessen. Hierbij gaan we uit van de interactie van twee edelgasatomen in de grondtoestand, welke wordt beschreven door een sferisch symmetrische potentiaal  $V(r)$ , welke alleen afhangt van de onderlinge afstand. In fig. 1. is een voorbeeld van een interactie-potentiaal weergegeven. Hierin zijn  $\epsilon$  en  $r_m$ , de diepte resp. positie van de put, de parameters die de "afmetingen" van de potentiaal bepalen.

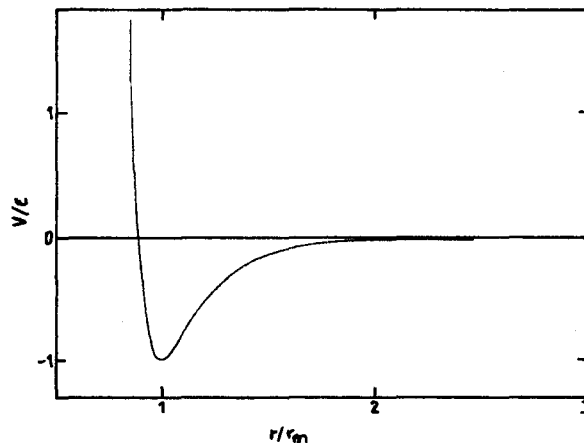


Fig. 1. Voorbeeld van een interactie-potentiaal van edelgas-atomen in de grondtoestand.

Het attractieve deel, voornamelijk bepaald door de Van der Waals interacties, wordt veelal beschreven door functies gelijk

$$V_a(r) = -\frac{C_6}{r^6} - \frac{C_8}{r^8} - \frac{C_{10}}{r^{10}} \approx -\frac{C_s}{r^s} \quad (1)$$

waarbij  $C_s$  de effectieve Van der Waals constante is ( $6 < s < 7$  voor edelgas-atomen in de grondtoestand). De repulsieve tak, het gevolg van het overlappen van de elektronenwolken, wordt veelal beschreven door functies gelijk:

$$V_R(r) \sim \exp(-\alpha r) \quad (2)$$

Realistische intermoleculaire potentialen zijn ingewikkelde functies, welke de vorm van de potentiaal nauwkeurig beschrijven.

De verstrooiing van twee atomen wordt gemeenlijk beschreven in een gereduceerd coördinatensysteem, waarbij een deeltje met massa  $\mu = m_1 m_2 / (m_1 + m_2)$ , snelheid  $\vec{g} = \vec{v}_1 - \vec{v}_2$  en positie  $\vec{r} = \vec{r}_1 - \vec{r}_2$  verstrooid wordt aan een gefixeerd potentiaalveld.

In fig. 2b. zijn de klassieke deeltjesbanen als functie van de gereduceerde botsingsparameter  $b/r_m$  en de drie bijdragen aan de klassieke differentiële botsingsdoorsnede  $\sigma(\theta)$  weergegeven:

$$\sigma(\theta) = \sum_{i=1}^3 \frac{b_i}{\sin\theta \left| \frac{d\theta}{db} \right|_i} \quad (3)$$

De totale botsingsdoorsnede is:

$$Q = \int_0^\pi \sigma(\theta) 2\pi \sin\theta d\theta \quad (4)$$

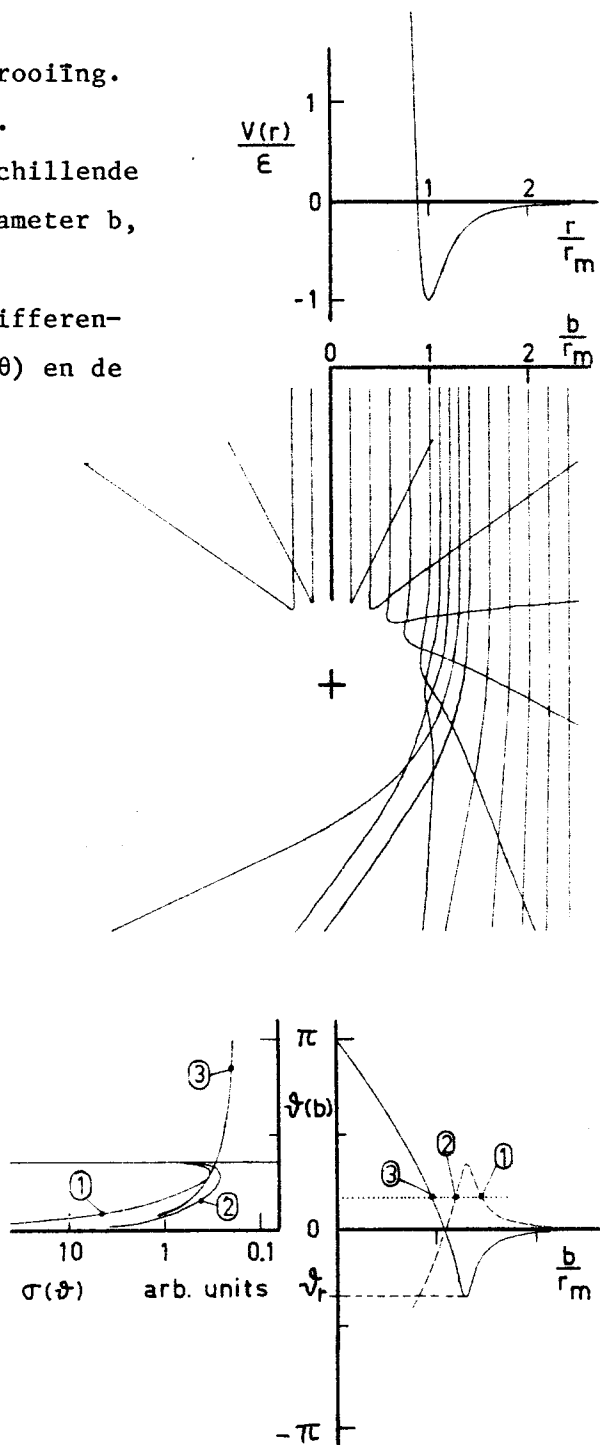
Verstrooiing over kleine hoeken  $\theta = \lambda/r_m$  met  $\lambda$  de Broglie-golflengte vindt plaats voor grote waarden van  $b$  en rond  $b_{glory}$  ( $\theta(b_{glory}) = 0$ ), de deeltjesbanen waarbij de attractieve en repulsieve krachten in evenwicht zijn.



Fig. 2.

De klassieke elastische verstrooiing.

- a) De Lennard-Jonespotentiaal.
- b) De deeltjesbanen voor verschillende waarden van de botsingsparameter  $b$ , bij een energie  $\frac{1}{2}\mu g^2 = 2\epsilon$ .
- c) De drie bijdragen aan de differentieële botsingsdoorsnede  $\sigma(\theta)$  en de strooihoek  $\vartheta(b)$ .



Klassiek kan geen onderscheid gemaakt worden tussen deze bijdragen aan de totale botsingsdoorsnede. In de semi-klassieke beschrijving van de verstrooiing over kleine hoeken bevat de zgn. verstrooiingsamplitude  $f(\theta)$  alle informatie. De totale botsingsdoorsnede  $Q$  en de differentiële botsingsdoorsnede  $\sigma(\theta)$  zijn dan:

$$Q = \frac{4\pi}{k} \operatorname{Im} f(0) \quad , \quad \sigma(\theta) = |f(\theta)|^2 \quad (5)$$

De verstrooiingsamplitude  $f(\theta)$  bevat de bijdragen van de attractieve tak van de potentiaal  $f_a(\theta)$  en van de put van de potentiaal overeenkomend met de glory banen  $f_{gl}(\theta)$  (fig. 2b):

$$f(\theta) = f_a(\theta) + f_{gl}(\theta) \quad (6)$$

Voor een attractieve potentiaal (form. 1.) is de botsingsdoorsnede:

$$Q_a = f(s) \left( \frac{c}{\hbar g} \right)^{\frac{2}{s-1}} \quad (7)$$

Voor  $s = 6$  geldt  $f(s) = 8.083$  en is de exponent gelijk aan 0.4. Hierop gesuperponeerd zijn de zgn. glory-oscillaties van de bijdrage  $f_{gl}$ , bepaald door de put van de potentiaal. Voor de glory-oscillaties in de totale botsingsdoorsnede is de gereduceerde inverse snelheid:

$$\xi^* = \frac{2er_m}{\hbar g} \quad (8)$$

de karakteristieke parameter. Voor een realistische intermoleculaire potentiaal van atomen in de grondtoestand bevindt zich het primaire glory maximum ( $N = 1$ ) zich bij  $\xi^* = 5.3$ . Door het bepalen van de positie van de glory extrema in de totale botsingsdoorsnede krijgen we informatie over de waarde van het product  $er_m$ .

Uit de gemiddelde waarde van de botsingsdoorsnede, bepaald door de attractieve tak van de potentiaal kan de waarde van de effectieve Van der Waals constante bepaald worden. Het verloop van  $Q_a$  als functie van de relatieve snelheid  $g$  bepaald is (form. 7.). In fig. 3. is de totale botsingsdoorsnede weergegeven als functie van de relatieve snelheid  $g$  berekend voor een Lennard-Jonespotentiaal. We onderscheiden drie gebieden nl. de delen bepaald door het attractieve resp. repulsieve deel van de potentiaal en het overgangsg gebied hier tussen.

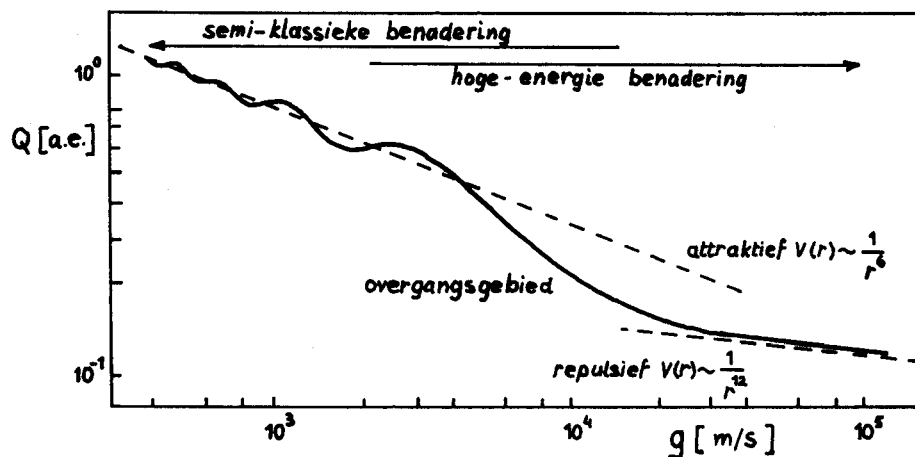


Fig. 3: De totale botsingsdoorsnede als functie van de relatieve snelheid  $g$ , berekend voor de Lennard-Jonespotentiaal.

### 1.2 Botsingen met metastabielen.

We beschouwen de wisselwerking van twee atomen tijdens het botsingsproces. Deze wisselwerking wordt beschreven door de potentiaalcurve, welke de som is van elektronen-energie en electrostatische energie van beide kernen als functie van de intermoleculaire afstand. Tijdens het botsingsproces dienen de twee atomen beschouwd te worden als een molecuul met zijn specifieke moleculaire electronentoestanden. Deze toestanden worden verkregen door de verschillende orbitals volgens

het Pauli-principe met electronen te vullen. Bij elke moleculaire electronentoestand hoort een wisselwerkingspotentiaal. Bij de interactie van twee edelgas atomen in de grondtoestand ( $^1S_0$ ), zijn alle moleculaire orbitals gevuld, resulterend in één toestand en één wisselwerkingspotentiaal. Bij de wisselwerking van een metastabiel edelgas-atoom in een  $^3P_{0,2}$ -toestand met een atoom in de grondtoestand ( $^1S_0$ ) vormen zich meerdere moleculaire toestanden, waarbij in het algemeen even zoveel potentiaalcurven horen, die onderzocht moeten worden.

Voor dit werk zijn strooi-experimenten verricht met metastabiel argon en krypton. Het edelgas argon (krypton) heeft als configuratie van de grondtoestand  $1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^6$  ( $1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^6 3d^{10} 4s^2 4p^6$ ). Bij enkelvoudig geëxciteerde toestanden bevindt zich een 3p (4p) electron in een hoger gelegen baan. We beschouwen de configuratie  $3p^5 4s^1$  ( $4p^5 5s^1$ ). Coulomb en spin-baan wisselwerking splitst deze configuraties in vier niveau's. De grondtoestand en de vier aangeslagen niveau's worden gerepresenteerd door (Russel-Saunders  $^{2S+1}L_J$ ):

$$^1S_0 \quad (L = 0, S = 0)$$

$$^1P_1 \quad ^3P_0 \quad ^3P_1 \quad ^3P_2 \quad (L = 1, S = 0 \text{ of } S = 1)$$

Hiervan zijn  $^3P_0$  en  $^3P_2$  op grond van de selectie regels metastabiel.

### 1.3 Classifikatie van moleculaire electronentoestanden.

Bij een twee atomig molecuul is alleen de projectie  $M_L$  van het totale baan-impulsmoment  $L$  op de internucleaire as goed gedefinieerd:

$$M_L = L, L-1, \dots, -L$$

De verschillende toestanden van het quantumgetal  $\Lambda$  gedefinieerd als:

$$\Lambda = \left| M_L \right| \quad \Lambda = 0, 1, 2, 3, \dots$$

worden aangeduid met  $\Sigma, \Pi, \Delta, \dots$  etc. De toestand  $\Sigma$  is enkelvoudig, de anderen tweevoudig ontaard. Voor  $\Sigma \neq 0$  quantiseert een intern magnetisch veld gericht langs de internucleaire as het totale spin-impulsmoment  $S$  langs deze as. Deze quantisatie wordt weergegeven met het quantumgetal:

$$\Sigma = S, S-1, S-2, \dots, -S$$

Dit resulteert in  $2S+1$  mogelijkheden ( $\Sigma \neq 0$ ). Het totale impulsmoment  $\Omega$  is gegeven door de som van baan- en spin-impulsmoment langs de internucleaire as:

$$\Omega = ( \Lambda + \Sigma )$$

De moleculaire toestanden worden in dit schema aangegeven met het symbool  $^{2S+1}\Lambda$ . Dit schema wordt wel aangeduid als een  $(\Lambda-\Sigma)$ -koppeling in analogie met de  $(L-S)$ -koppeling (Russel-Saunders) bij atomen, waarbij een zwakke koppeling tussen  $L$  en  $S$  verondersteld wordt.

In het geval van sterke koppeling tussen de spin- en baan-impulsmomenten van de electronen zijn  $\Lambda$  en  $\Sigma$  niet langer bepaald en worden de electronentoestanden geclassificeerd door de waarden van  $\Omega$  : 0,  $\frac{1}{2}$ , 1,  $1\frac{1}{2}$ , 2, ... etc. Naast de quantumgetallen zijn ook de symmetrie-eigenschappen van de golffuncties van de electronen van belang. Elk vlak door de internucleaire as is een symmetrie-vlak. De golffunctie van een niet ontaarde toestand ( $\Sigma$ ) verandert bij spiegeling wel of niet van teken en wordt aangeduid als een  $\Sigma^+(0^+)$  of  $\Sigma^-(0^-)$  toestand. Bij homonucleaire moleculen is het middelpunt van de verbindings-as een symmetrie-punt. Al naar gelang er wel of niet een tekenverandering van de golffunctie optreedt bij spiegeling wordt er een index u (ungerade) of g (gerade) toegevoegd (bijv.  $\Pi_g$  of  $1_g$ ).

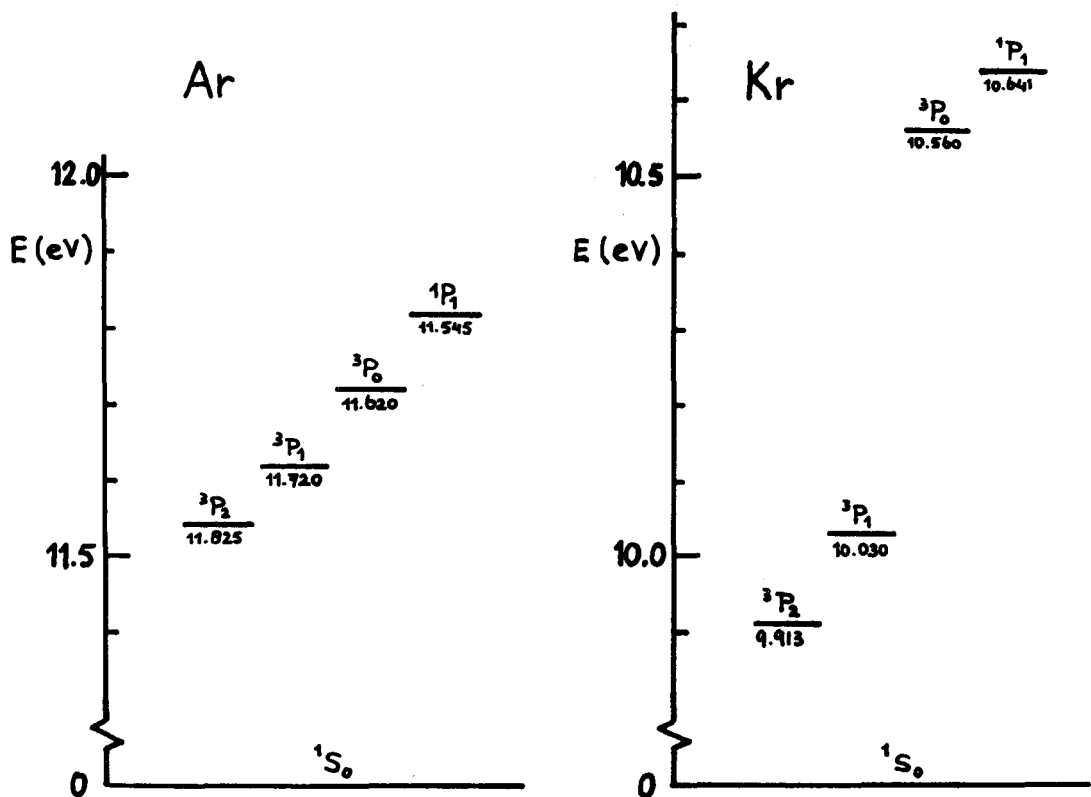


Fig. 4: De grondtoestand en eerste aangeslagen niveau's van Ar (Bas 75) en Kr (Can 64).

#### 1.4 Moleculaire toestanden en potentialen van de edelgas-excimeren.

We beschouwen de moleculaire toestanden en bijbehorende potentiaalcurven, welke ontstaan bij de wisselwerking van enkelvoudig geëxciteerd Ar, Kr met een edelgas in de grondtoestand. In tabel 1. zijn voor de homonucleaire systemen Ar<sup>\*</sup>-Ar en Kr<sup>\*</sup>-Kr de moleculaire toestanden en hun statistische gewichten weergegeven. Voor de systemen Ar<sup>\*</sup>-Kr en Kr<sup>\*</sup>-Ar vervalt de gerade-ungerade symmetrie en daarmee halveert het aantal te beschouwen toestanden. We beperken ons tot de toestanden gevormd door de wisselwerking (<sup>3</sup>P<sub>0,2</sub>) - (<sup>1</sup>S<sub>0</sub>). Voor het systeem Ar<sup>\*</sup>-Ar zijn, zowel experimentele als theoretische gegevens bekend uit de literatuur (fig. 5.).

Tabel 1: Overzicht van de moleculaire electronentoestanden van edelgas-excimeren.

Niveau	Ω-quantisatie	Toestand	Statistisch gewicht
<sup>3</sup> P <sub>2</sub>	Ω = 0	0 <sub>u</sub> <sup>-</sup> 0 <sub>g</sub> <sup>-</sup>	1 1
	Ω = 1	1 <sub>u</sub> 1 <sub>g</sub>	2 2 10
	Ω = 2	2 <sub>u</sub> 2 <sub>g</sub>	2 2
<sup>3</sup> P <sub>1</sub>	Ω = 0	0 <sub>u</sub> <sup>+</sup> 0 <sub>g</sub> <sup>+</sup>	1 1 6
	Ω = 1	1 <sub>u</sub> 1 <sub>g</sub>	2 2
<sup>3</sup> P <sub>0</sub>	Ω = 0	0 <sub>u</sub> <sup>-</sup> 0 <sub>g</sub> <sup>-</sup>	1 1 2
<sup>1</sup> P <sub>1</sub>	Ω = 0	0 <sub>u</sub> <sup>+</sup> 0 <sub>g</sub> <sup>+</sup>	1 1 6
		1 <sub>u</sub> 1 <sub>g</sub>	2 2

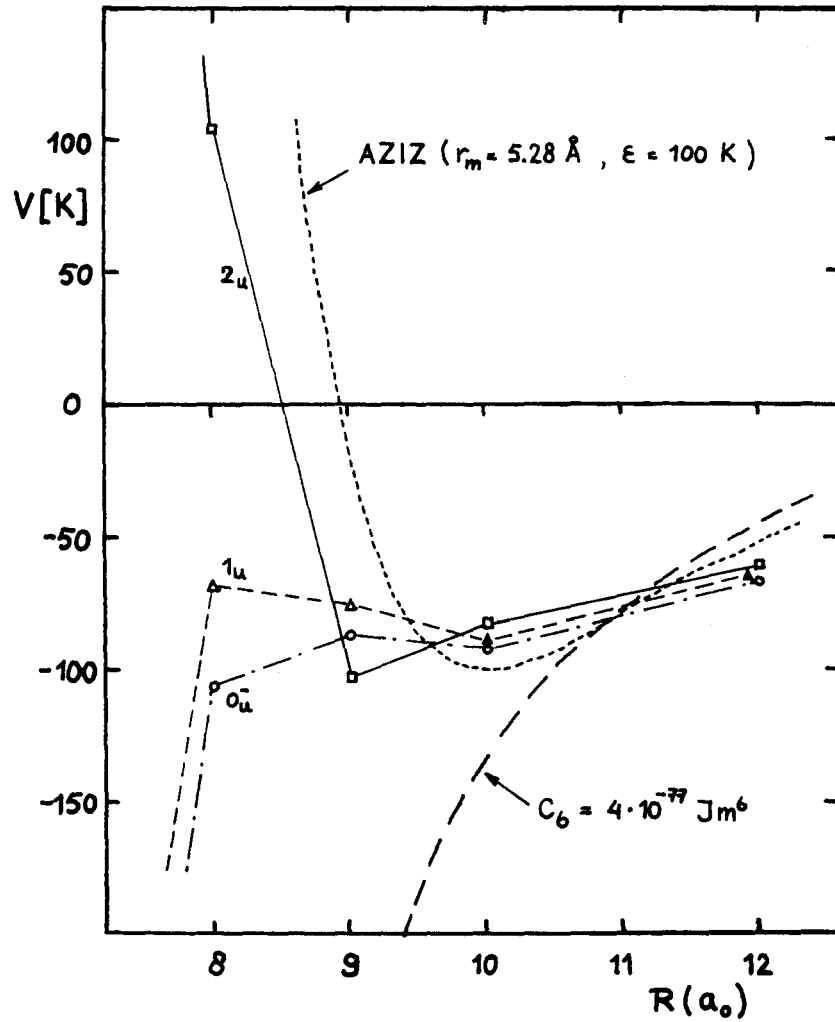


Fig. 6: De  $0_u^-$ ,  $1_u$  en  $2_u$  potentialen berekend door Castex ( Cas 81 ) voor grote internucleaire afstanden.

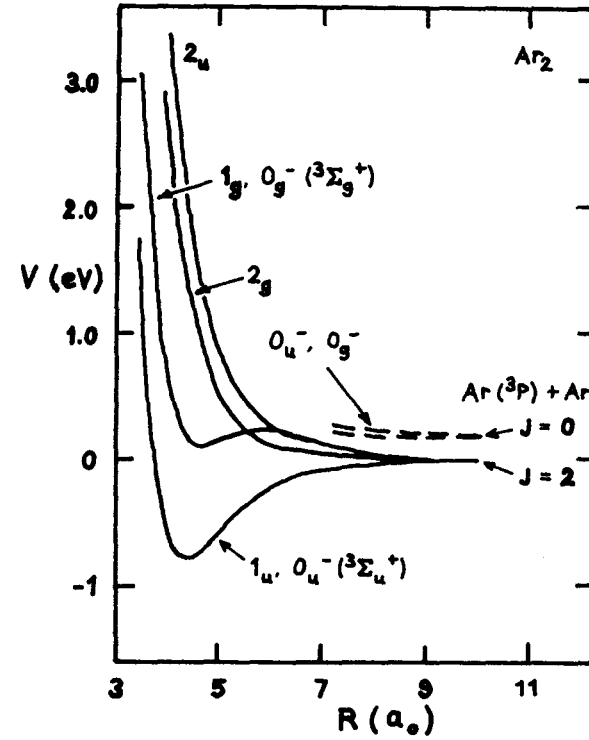


Fig 5: De potentiaal curves van  $Ar^*(^3P_{0,2}) - Ar(^1S_0)$  ( Gil 76a ).



De  $0_u^-$ - en  $1_u^-$ -toestanden, behorend bij het  $^3P_2$ -niveau, zijn sterk gebonden en hun potentiaalcurves zijn vrijwel identiek. De potentialen van de  $0_u^-$ - en  $1_u^-$ -toestanden zijn ook vrijwel identiek aan die van de  $^3\Sigma_u^+$ -toestand in de limiet van zwakke spin-baankoppeling.

Gillen et. al. (Gil 76a) geven aan de hand van metingen van differentieële botsingsdoorsneden (in het energiegebied 5-10 eV) en spectroscopische informatie voor de  $^3\Sigma_u^+$ -toestand de Morsepotentiaal:

$$V(r^*) = \epsilon [\exp(-2B(r^*-1)) - 2 \exp(-B(r^*-1))] \quad (9)$$

met  $B = 5.16$ ,  $r^* = r/r_m$ ,  $r_m = 2.33 \text{ \AA}$  en  $\epsilon = 0.78 \text{ eV} = 9050 \text{ K}$ . De parameters  $\epsilon$  en  $r_m$  van deze potentiaal zijn in belangrijke mate gebaseerd op de ligging van het regenboogmaximum in de differentieële werkzame doorsnede en de eerste boventallige regenboog-oscillaties.

Saxon en Liu (Sax 76) hebben volgens twee methoden waarden berekend voor de  $^3\Sigma_u^+$ - en de  $^3\Sigma_g^+$ -potentialen. De twee methoden, CI en MCSCF, resulteren in kleine onderlinge verschillen waarop we hier niet in zullen gaan. Volgens deze berekeningen heeft de  $^3\Sigma_u^+$ -potentiaal bij ongeveer  $r = 8a_0$  ( $1a_0 = 0.528 \text{ \AA}$ ) een kleine drempel ter grootte van  $0.24 \text{ \AA}$   $0.28 \text{ eV}$ .

Castex et. al. (Cas 81) geven uit ab-initio berekeningen o.a. waarden voor de  $^3\Sigma_u^+$ -,  $0_u^-$ - en  $1_u^-$ -potentiaal curves. De  $^3\Sigma_u^+$ -potentiaal en ook de  $0_u^-$ - en  $1_u^-$ -curves vertonen volgens Castex geen drempel. De  $0_u^-$ - en  $1_u^-$ -curves verschillen in de attractieve tak. De  $1_u^-$ -potentiaal ligt maximaal  $65 \text{ K}$  boven de  $0_u^-$ -curve bij  $r = 7a_0$  (fig. 6.).

Resumerend kunnen we stellen dat er een redelijke overeenstemming is tussen de verschillende auteurs met betrekking tot de positie en diepte van de put van de  $0_u^-$ -,  $1_u^-$ - en  $^3\Sigma_u^+$ -curves (tabel 2.).

Tabel 2: De positie ( $r_m$ ) en diepte  $\epsilon$  van de  $0_u^-$ ,  $1_u^-$  en  $3_{\Sigma_u}^+$  potentialen volgens 1). (Gil 76a), 2). (Sax 76), 3). (Cas 81).

Bron	Toestand	$\epsilon(K)$	$r_m (\text{\AA})$
1	$3_{\Sigma_u}^+$	9050	2.33
2	$3_{\Sigma_u}^+$	7856	2.42
3	$3_{\Sigma_u}^+$	8355	2.46
	$0_u^-$	7702	2.43
	$1_u^-$	7704	2.43

De put van de  $0_u^-$ ,  $1_u^-$  en  $3_{\Sigma_u}^+$ -toestanden wordt, gezien de goede overeenkomst van de berekende en gemeten regenbogen (zie Gil 76a), goed beschreven door form. 9. Deze potentiaal is derhalve ook te gebruiken voor een eerste berekening van de glory-bijdrage aan een totale botsingsdoorsnede, aangezien de glory's voornamelijk bepaald worden door de vorm van de put.

Er is een modelberekening uitgevoerd rond  $\xi^* = 100$  ( $g = 5520 \text{ ms}^{-1}$ ), gebruik makend van de JWKB fase relaties voor de glory-bijdragen (hfdst. 2.). Volgens de semi-klassieke analyse verwachten we bij  $\xi^* = 100$  de  $N = 10$  glory. Deze verwachting wordt bevestigd door het aantal boventallige regenbogen (10 à 12) die we zien in de metingen van de differentiële botsingsdoorsneden van Gillen et. al. (Gil 76a). We zien glory's ( $9 \text{ \AA}^2$  top-top) gesuperponeerd op een gemiddelde botsingsdoorsnede ( $150 \text{ \AA}^2$  bij  $\xi^* = 100$ ). De glory periode is  $\Delta\xi^* = 10$  (fig. 7.).

Uit een eerste analyse van de berekende punten volgt dat  $Q_a$  evenredig is met  $\xi^{*0.2}$ . Gebruik makend van form. 7. vinden we dan  $s_{\text{eff}} = 11$ , wat zeer onrealistisch is (i.h.a.  $6 < s_{\text{eff}} < 7$ ).

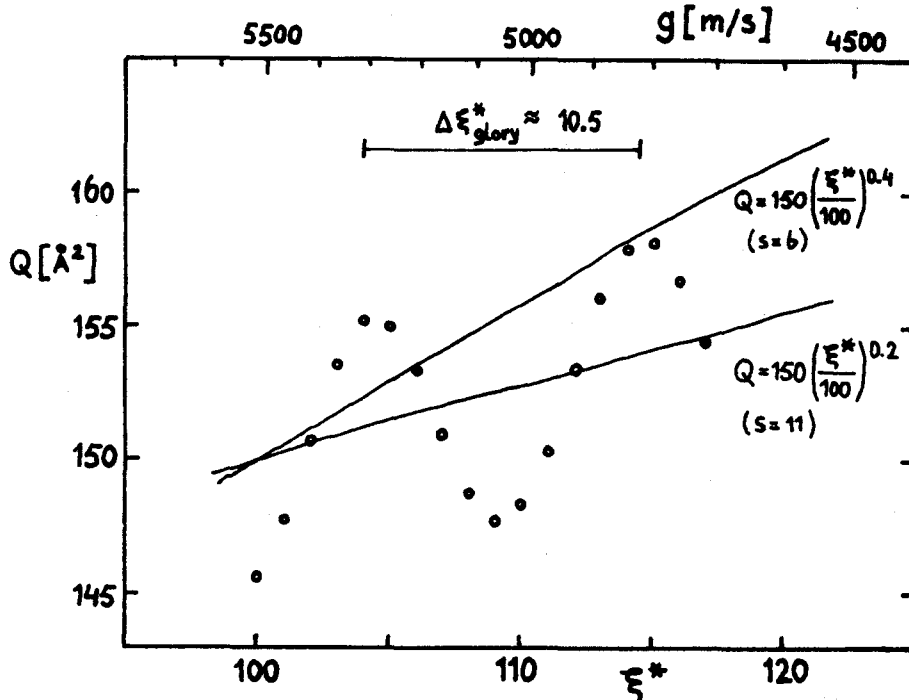


Fig. 7: De botsingsdoorsnede van de  ${}^3\Sigma_u^+$ -toestand berekend met form. 9. als modelpotentiaal.

Op grond van deze analyse en gelet op de verschillen t.o.v. de door Saxon en Castex berekende waarden in de attractieve tak van de  ${}^3\Sigma_u^+$ -potentiaal kunnen we stellen dat form. 9. geen goede beschrijving geeft voor dit gedeelte van de potentiaal. De door Castex (Cas 81) berekende  $0_u^-$ ,  $1_u^-$  en  $2_u^-$ -curves (behorend bij  ${}^3P_2$ ) zijn rond  $r = 12a_0$  vrijwel identiek ( $\Delta V = 2$  K). De invloed van de  $\Omega$ -quantisatie bij deze internucleaire afstanden is gering. De ondiepe put is het gevolg van de Van der Waals attractie. We stellen dat bij deze grote internucleaire afstanden, waar de  $\Omega$ -quantisatie gering is, de Van der Waals interactie primair het verloop van alle potentiaal curves bepaalt.

Uit de waarden van de ungerade curves van Castex rond  $r = 11a_0$  hebben we een Van der Waals constante bepaald. We vinden, uitgaande van  $V(r) = C_6/r^6$ , hiervoor als beste schatting  $C_6 = 40 \cdot 10^{-78} \text{ Jm}^6$ .

De  $0_g^+$ ,  $1_g^-$  en  $3\Sigma_g^+$ -potentiaalcurves, zijn evenals de overeenkomstige ungerade potentialen vrijwel identiek. Uit de ab-initio berekeningen van Saxon en Liu (Sax 76) zijn waarden van de  $3\Sigma_g^+$ -potentiaal bekend. De  $3\Sigma_g^+$ -potentiaal heeft lokaal minimum en maximum. In tabel 3. zijn de posities en waarden van deze extrema gegeven. De  $3\Sigma_g^+$ -curve heeft volgens deze berekeningen geen ondiepe put rond  $r = 9a_0$ . Er is echter geen reden om aan te nemen dat de Van der Waals put bij deze curves niet aanwezig is.

Tabel 3: Extrema van de  $3\Sigma_g^+$ -potentiaalcurves volgens Saxon et. al. (Sax 76)

	$r(\text{\AA})$	$V(\text{K})$
minimum		
MCSCF	2.58	2752
CI	2.51	1228
maximum		
MCSCF	3.00	3298
CI	3.10	2752

De g-u opsplitsing van de  $\Omega = 2$  toestand is gering. Gillen et. al. (Gil 76b) hebben de differentiële botsingsdoorsneden gemeten in het energie-gebied 10-75 eV. Ze nemen oscillaties waar die ze toeschrijven aan de  $2_u^-$  en  $2_g^-$ -potentialen.

Voor de  $2_u$ -potentiaal gebruiken ze de uitdrukking

$$V_{2u}(r) = 2369.2 \exp[-3.078(\text{\AA}^{-1})r] + 3.08 \exp[-0.996(\text{\AA}^{-1})r] \text{ (eV)} \quad (10)$$

als beste beschrijving van ab-initio berekeningen. Op grond van de waargenomen g-u oscillaties geven ze uitgaande van  $V_{2u}$  voor de  $2_g$ -curve de uitdrukking:

$$V_{2g} = V_{2u}(r) - 39.73 \exp[-1.828(\text{\AA}^{-1})r] \text{ (eV)} \quad (11)$$

De auteurs hebben alleen de g-u oscillaties in de differentiële botsingsdoorsende geanalyseerd. De potentiaal curves geven derhalve ook geen informatie over een mogelijke Van der Waals put. De hier gebruikte uitdrukking voor de  $2_g$ -curve verschilt sterk met de berekening van Castex (zie appendix A)

Resumerend kunnen we stellen dat, afgezien van de positie van de diepe put in de  $0_u^-$ ,  $1_u^-$  en  $3\Sigma_u^+$ -curve, er weinig overeenstemming is over het verloop van de potentiaalcurves van het  $\text{Ar}^*(3P_2) - \text{Ar}(1S_0)$  systeem. Met name in het gebied waar de  $\Omega$ -quantisatie gering is en we de Van der Waals put verwachten is uit de gegevens geen eenduidig beeld op te bouwen. Van de repulsieve  $0_u^-$  en  $0_g^-$ -potentialen behorend bij het  $3P_0$ -niveau is geen informatie beschikbaar.

Ook van de systemen  $\text{Kr}^* - \text{Kr}$ ,  $\text{Ar}^* - \text{Ar}$  en  $\text{Ar}^* - \text{Kr}$  zijn geen gegevens in de literatuur voorhanden. We verwachten echter dat, evenals bij  $\text{Ar}^* - \text{Ar}$ , de  $\Omega$ -quantisatie voor grote internucleaire afstanden gering is en de potentiaal curves hier een Van der Waals tak hebben al dan niet reeds verstoord door andere sterke attractieve of repulsieve mechanismen.

Een verdere informatie-bron vormt de analogie met de alkali-edelgassystemen. De alkali's K en Rb hebben naast volledig gevulde schillen, gelijk Ar en Kr in de grondtoestand een  $4s^1$  resp.  $5s^1$  electron gelijk  $Ar^*$  en  $Kr^*$ . We veronderstellen dat de Van der Waals interacties die zijn waargenomen bij de alkali-edelgassystemen in eerste benadering vergelijkbaar zijn met die van de overeenkomstige edelgas excimeren. In een overzichts-artikel geeft Toennies (Toe 75) waarden van  $\epsilon$ ,  $r_m$ , en  $C_6$  van de alkali-edelgassystemen, bepaald uit metingen van de totale botsingsdoorsnede. In tabel 4. worden deze waarden gegeven. In het algemeen verwachten we, gezien het gedrag van de polariseerbaarheden (Hab 81) (10% groter voor de metastabiele edelgassen in vergelijking met de overeenkomstige alkali's) dat de  $C_6$ -waarden van de edelgas-excimeren groter zijn dan de overeenkomstige waarden van de alkali-edelgassystemen. De positie en diepte van de put in de  $2_u$ -curve berekend door Castex zijn ongeveer 4.8 Å resp. 100 K en de door ons geschatte  $C_6 = 40 \cdot 10^{-78} \text{ Jm}^6$ . De gereduceerde waarde van de Van der Waals constante, gedefinieerd als  $C_6^* = C_6 / \epsilon r_m^6$  wordt dan gelijk aan  $C_6^* = 2.37$ . Dit is vrij groot als we het vergelijken met de typische waarden  $C_6^* = 1.2$  resp.  $C_6^* = 1.7$  voor edelgassystemen in de grondtoestand. Als we in fig. 6. kijken zien we een onrealistische potentiaalvorm met deze  $r_m$ -waarde. Als we een waarde  $r'_m = 1.1 r_m$  aannemen vinden we  $C_6^* = 1.34$ .

Gezien de spreiding in de berekende potentiaalcurves in het gebied waar we de Van der Waals put verwachten (fig. 6.) kunnen we van een redelijke overeenstemming spreken tussen de parameters van de potentiaal van  $Ar^* - Ar$  en  $K - Ar$ .

Resumerend kunnen we opmerken dat er toch weinig informatie beschikbaar is over de wisselwerking van de edelgas-excimeren. Meting van de totale elastische werkzame doorsnede kan hier een wezenlijke bijdrage aan leveren.

Tabel 4: De  $\epsilon$ ,  $r_m$  en  $C_6$  waarden van alkali-edelgassystemen bepaald uit metingen van de totale botsingsdoorsnede (Toe 75) en de schatting voor  $\text{Ar}^*-\text{Ar}$ .

Systeem	$r_m$ (Å)	$\epsilon$ (K)	$C_6$ ( $10^{-78}\text{Jm}^6$ )
K - Ar	5.34	60.8	27.6
- Kr	5.24	102.8	39.8
- Xe	5.25	158.9	58.8
Rb - Kr	5.29	105.0	-
$\text{Ar}^* - \text{Ar}$	5.28	100	40

### 1.5 Verwachte bijdragen aan de totale botsingsdoorsnede.

Voor dit werk zijn totale botsingsdoorsneden bepaald van de systemen  $\text{Ar}^*-\text{Ar}$ ,  $\text{Kr}^*-\text{Ar}$ ,  $\text{Kr}^*-\text{Kr}$  in de snelheidsgebieden  $2000 < g(\text{ms}^{-1}) < 10000$  resp.  $600 < g(\text{ms}^{-1}) < 1200$  voor  $\text{Ar}^*$  en  $1000 < g(\text{ms}^{-1}) < 5000$  resp.  $300 < g(\text{ms}^{-1}) < 600$  voor  $\text{Kr}^*$ . De metastabielen worden geproduceerd in een holle kathode boog (§ 3.1) en een corona ontlading door een supersone nozzle (§ 3.2). Bij deze eerste analyse negeren we de bijdragen van de fractie  $^3\text{P}_0$ -metastabielen (<20%) aan de totale botsingsdoorsnede.

We beschouwen het systeem  $\text{Ar}^*-\text{Ar}$ . We hebben verondersteld dat de  $0_g^-$ ,  $1_g^-$ ,  $2_g^-$  en  $2_u^-$ -potentialen een ondiepe put hebben. Uitgaande van de geschatte positie ( $r_m$ ) en diepte ( $\epsilon$ ) van de put (tabel 4) is de relatieve inverse snelheid (form. 8.) in het hoge snelheidsgebied  $0.7 < \xi^* < 3.5$  en in het lage snelheidsgebied  $5.8 < \xi^* < 11.5$ . Voor een realistische intermoleculaire potentiaal van grondtoestand atomen bevindt zich de  $N = 1$  glory bij  $\xi^* = 5.3$  en is de glory periode  $\Delta\xi^* = 10$  (Beij 81).

We veronderstellen dat dit voor de onderzochte systemen geldig is (d.w.z. we nemen een zelfde vorm van de potentiaal aan). We verwachten derhalve in het lage snelheidsgebied het glory-minimum  $N = 1\frac{1}{2}$  te zien. De gemiddelde botsingsdoorsnede in het glory gebied, bepaald uit de geschatte  $C_6$ -waarde, (tabel 4.) is:  $Q_a = 653 \text{ \AA}^2$  ( $g = 800 \text{ ms}^{-1}$ ). Rekening houdend met de statistische gewichten (totaal 7/12) is de bijdrage van deze potentialen  $381 \text{ \AA}^2$  ( $g = 800 \text{ ms}^{-1}$ ). In fig. 6. is de Aziz potentiaal

$$V(r^*) = \epsilon \left[ \frac{6}{r^{*N}} - \frac{N}{(N-6)r^{*6}} \right] \quad (12)$$

$$N = 13 + 7.5(r^* - 1) \quad \epsilon = 100 \text{ K} \quad r_m = 5.28 \text{ \AA}$$

getekend, welke een goede beschrijving vormt van de potentiaal van edelgas-atomen in de grondtoestand. De glory-amplitude van deze atomen is ongeveer 7% van de gemiddelde botsingsdoorsnede. Hiervan uit gaand is de glory-amplitude per potentiaal  $47 \text{ \AA}^2$  en in het totaal  $27 \text{ \AA}^2$  ( $g = 1000 \text{ ms}^{-1}$ ).

In het gebied  $0.7 < \xi^* < 3.5$  zullen we een deel van het overgangsg gebied zien. In dit gebied is voor een Lennard-Jones potentiaal  $Q \sim g^{-1}$  (fig. 3.). Er is geen beschrijving van het overgangsg gebied. In hfdst.2 wordt een eerste aanzet hiertoe gegeven.

Bij de sterk attractieve  $0_u^-$  en  $1_u^-$ -potentialen is  $\xi^*$  in het hoge snelheidsgebied  $276 < \xi^* < 55$  en in het lage snelheidsgebied  $920 < \xi^* < 460$  (uitgaande van  $\epsilon = 9050 \text{ K}$ ,  $r_m = 2.33 \text{ \AA}$ ). In principe zullen we glory's zien met rangnummers  $5 < N < 27$  resp.  $46 < N < 92$ . Uit de modelberekening welke voor deze curves is uitgevoerd (zie blz. 14.) volgt een glory-amplitude van  $9 \text{ \AA}^2$  top-top. Rekening houdend met de statistische gewichten (totaal 3/12) is de glory-amplitude in de totale botsingsdoorsnede  $2.3 \text{ \AA}^2$ .



In beide snelheidsgebieden draagt de gemiddelde attractieve botsingsdoorsnede van de  $0_u^-$ ,  $1_u^-$ -toestanden bij aan de totale doorsnede. Op grond van de veronderstelling dat de  $\Omega$ -quantisatie in dit gebied gering is, nemen we ook voor deze toestanden de geschatte  $C_6$  waarde aan. Dit resulteert, rekening houdend met de statistische gewichten in een bijdrage van  $163 \text{ \AA}^2$  bij  $g = 800 \text{ ms}^{-1}$  ( $78 \text{ \AA}^2$  bij  $g = 5000 \text{ ms}^{-1}$ ).

De glory-oscillaties van de diepe put zijn te klein ( $< \frac{1}{2}\%$ ) om in het lage snelheidsgebied te worden waargenomen. In het overgangsbied is de amplitude 1-4% van de gemiddelde botsingsdoorsnede en derhalve in nauwkeurige metingen waarneembaar.

Voor de systemen  $\text{Ar}^*-\text{Kr}$  en  $\text{Kr}^*-\text{Ar}, \text{Kr}$  kunnen we slechts, op grond van de analogie met de alkali-edelgassystemen, uitspraken doen over de bijdrage van de Van der Waals put in de  $0_u^-$ ,  $1_u^-$  en  $2_{(u,g)}$ -potentialen. De gemiddelde attractieve botsingsdoorsnede schaaft met  $C_6^{0.4}$  en de positie van de  $N = 1$  glory met het product  $\epsilon r_m$ . In tabel 5. zijn verwachte positie van de  $N = 1$  glory en de gemiddelde botsingsdoorsnede gegeven uitgaande van de alkali-edelgassystemen en we zien dat we in alle gevallen, zowel het glory-gebied, als het overgangsbied van de Van der Waals put kunnen meten.

Tabel 5: Positie van de  $N = 1$  glory en de gemiddelde botsingsdoorsnede bij de alkali-edelgassystemen.

Systeem	$g (N = 1)$ ( $\text{ms}^{-1}$ )	$Q_a (g)$ ( $\text{\AA}^2$ )
K - Ar	1552	397
- Kr	2717	367
- Xe	3829	374
Rb - Kr	2742	-

## 2. ANALYSE VAN DE EXPERIMENTEN.

Multi-parameter modelfuncties worden gebruikt voor de beschrijving van de botsingsdoorsneden van kleine hoekverstrooiing. Een uitgebreide beschrijving van deze functies, voor het glory-regime van edelgassystemen in de grondtoestand wordt gegeven door Beijerinck (Beij 81). De voor dit werk gemeten totale botsingsdoorsneden omvatten naast delen van het glory-regime ook delen van het overgangsgedrag (§ 1.5). In § 2.2 geven we de modelfuncties die we voor een eerste beschrijving gebruiken. Voorafgaande aan deze discussie geven we in § 2.1 de semi-klassieke beschrijving van kleine hoekverstrooiing in het glory-regime beknopt weer. Botsingsdoorsneden gemeten in moleculaire bundel experimenten zijn altijd geconvolveerd met de transmissie-functies van het apparaat. De meetresultaten dienen derhalve gecorrigeerd te worden voor het eindige hoek- en snelheids-oplossend vermogen van het experiment. Deze correcties worden berekend uit theoretisch voorspelde totale en differentiële botsingsdoorsneden. We gebruiken voor deze botsingsdoorsneden de modelfuncties gegeven in § 2.2. Een uitgebreide beschrijving van de berekeningen van de correcties wordt gegeven door Van der Kam (Kam 81).

### 2.1 Semi-klassieke beschrijving van kleine hoekverstrooiing in het glory-regime.

In de quantummechanische behandeling van het strooiproces voor sferisch symmetrische potentialen bevat de verstrooiings-amplitude  $f(\theta)$  alle informatie:

$$f(\theta) = -\frac{i}{k} \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) [\exp(2i\eta_l) - 1] P_l(\cos\theta) \quad (13)$$

met  $l$  het impulsmoment quantumgetal,  $k$  het golfgetal,  $P_l$  de Legendre polynomen en  $\eta_l$  het faseverschil. De totale botsingsdoorsnede  $Q$  en de differentiële botsingsdoorsnede  $\sigma(\theta)$  zijn dan:

$$Q = \frac{4\pi}{k} \operatorname{Im} f(0) \quad \sigma(\theta) = |\sigma(\theta)|^2 \quad (14)$$

In de semi-klassieke benadering wordt de partiele golfsom of Raleigh-som vervangen door een integraal over de continue variabele  $\lambda = l + \frac{1}{2}$ :

$$f(\theta) = -\frac{i}{k} \int_{\lambda=0}^{\infty} \lambda [\exp(2i\eta_l) - 1] P(\lambda, \cos\theta) d\lambda \quad (15)$$

We beperken ons tot het geval van niet identieke botsingspartners in het glory-regime van relatieve snelheden  $g$ , met een bovengrens  $g < (\epsilon r_m / 2\hbar)$  bepaald door de positie van de  $N = 1$  glory en een ondergrens  $g > (2\epsilon/\mu)^{\frac{1}{2}}$  om orbiting uit te sluiten. In dit gebied van relatieve snelheden en voor kleine hoeken ( $\theta \approx \Lambda/r_m$ ) zijn twee gebieden van stationaire fase. Ten eerste, het gebied met grote  $\Lambda$ -waarden waar  $\eta_l \rightarrow 0$ , bepaald door de attractieve krachten met lange dracht en ten tweede, het gebied rond het maximale faseverschil ( $\eta_{l,\max}$ ), wat overeenkomt met de glory-baan (fig. 8.). Alleen deze gebieden van stationaire fase leveren bijdragen aan  $f(\theta)$ .

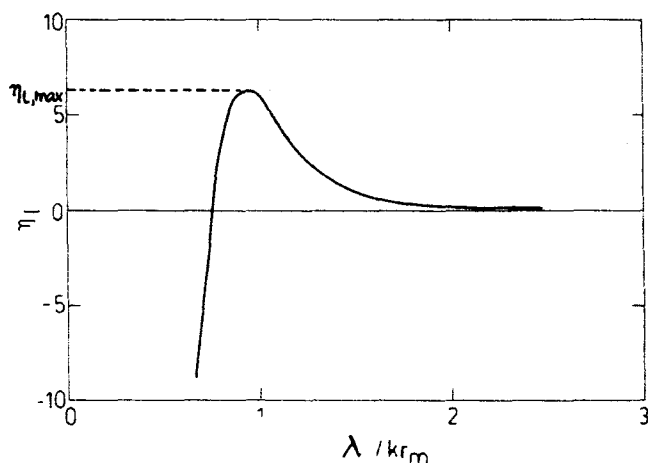


Fig. 8: Het faseverschil  $\eta_l$  als functie van het gereduceerde impulsmoment quantumgetal  $\lambda/kr_m$ .

De verstrooiings-amplitude voor kleine  $\theta$  kan dus geschreven worden als:

$$f(\theta) = f_a(\theta) + f_{g1}(\theta) \quad (16)$$

met  $f_a$  en  $f_{g1}$  de bijdragen van het eerste resp. het tweede gebied. Om het aantal onafhankelijke parameters in de beschrijving van  $f(\theta)$  zo klein mogelijk te maken worden de verschillende grootheden geschaald. In appendix B wordt een overzicht gegeven van de geschaalde grootheden. Verdere uitwerking van de verstrooiings-amplitude (form. 15.) voor beide gebieden van stationaire fase levert uitdrukkingen voor  $f_a(\theta)$  en  $f_{g1}(\theta)$  (Beij 81). Op grond hiervan worden geschikte model-functies gekozen, die in hun meest eenvoudige vorm eruit zien als:

$$f_a(0) = p_1 \xi^{*P_2} \quad f_{g1} = p_{10} \xi^{*-3/2} + p_{11} \xi^{*1/2} \quad (17)$$

$$\phi_a(0) = p_3 \quad \phi_{g1} = p_{15} + p_{16} \xi^*$$

Deze functies zijn verder uit te breiden voor kleine hoeken ( $\theta \approx \Lambda/rm$ ). Voor een attractieve potentiaal  $V_s = C_s/r^s$ , geldt de hoge energie of Schiff-Landau-Lifshitz benadering. Vergelijking met de modelfuncties geeft voor de parameters:

$$p_1 = w_1(s) C_s^{2/s-1}, \quad p_2 = \frac{s-3}{s-1}, \quad p_3 = \frac{\pi}{2} - \frac{\pi}{s-1}. \quad (18)$$

Hieruit volgt ook met form. 14:

$$Q_a = f(s) \left( \frac{C_s}{\hbar g} \right)^{2/s-1}, \quad \sigma(\theta) = \frac{k^2 Q_a^2}{16\pi} [1 + \tan^2 \left( \frac{\pi}{2} - \phi_a \right)] \quad (19,20)$$

Voor realistische potentialen van de grondtoestand zijn al deze parameters (en die van hogere orde in  $\xi^*$ ) bepaald (Beij 81). De parameter  $p_{16}$  in de fase hoek  $\phi_{g1}$  is bepalend voor de glory-periode  $\Delta\xi^*$ . Bij edelgas-atomen in de grondtoestand is  $\Delta\xi^* = 10$ . Het eerste glory-maximum vinden we bij  $\xi^* = 5.3$  ( $\phi_{g1} = \pi/2 + 2N\pi$ ,  $N = 1$ ) (fig. 9.).

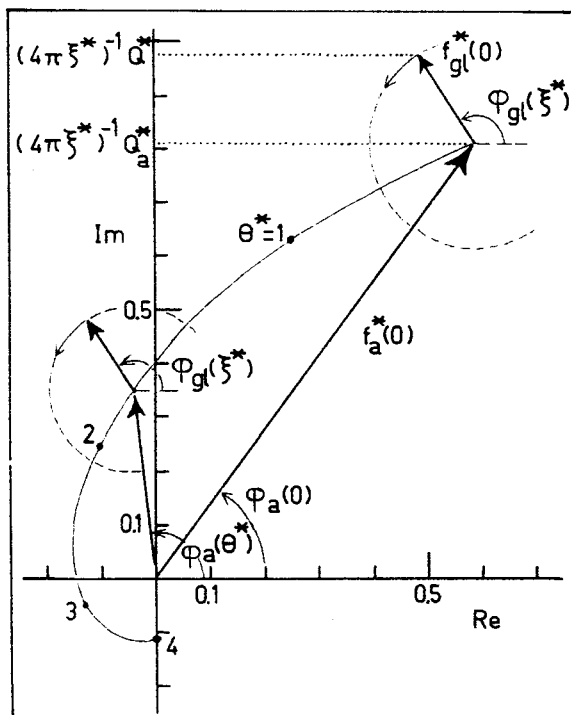


Fig. 9:

Geometrische beschrijving van  $f_a(\theta)$  en  $f_{gl}(\theta)$  in het complexe vlak.

## 2.2 Modelfuncties voor de verstrooiings-amplitude $f(\theta)$ .

Voor het glory-regime van de edelgas-excimeren gaan we uit van de modelfuncties van de edelgassystemen in de grondtoestand. We veronderstellen hiermee dat die gebieden van de potentialen van de excimeren, welke bijdragen aan de attractieve botsingsdoorsnede, qua vorm overeenkomen met een realistische modelpotentiaal van systemen in de grondtoestand.

Voor de beschrijving van het overgangsgedrag verliest  $\xi^*$  als variabele zijn betekenis aangezien er geen direct verband is tussen het  $\epsilon r_m$ -product en de botsingsdoorsnede. Op grond van eerste meetresultaten en gelet op het verloop van het overgangsgedrag bij de Lennard-Jones potentiaal (fig. 3.) kiezen we als beschrijving voor de totale botsingsdoorsnede:

$$\frac{Q}{Q_{tr}} = \left( \frac{g}{g_{tr}} \right)^\alpha, \quad \alpha \approx -1 \quad (21)$$

waarbij de waarden van  $Q_{tr}$  en  $g_{tr}$  worden bepaald door de keuze van het begin van het overgangsgedrag. Een mogelijke keuze vormt het punt voorbij de  $N = 1$  glory waar  $Q_{gl} = 0$  (fig. 10.). Hieruit volgt gebruik makend van de modelfunctie van  $\phi_{gl}$  de waarde van  $\xi^*$  in dit punt en daaruit  $g_{tr}$ . De waarde van  $Q_{tr}$  volgt dan uit form. 19.

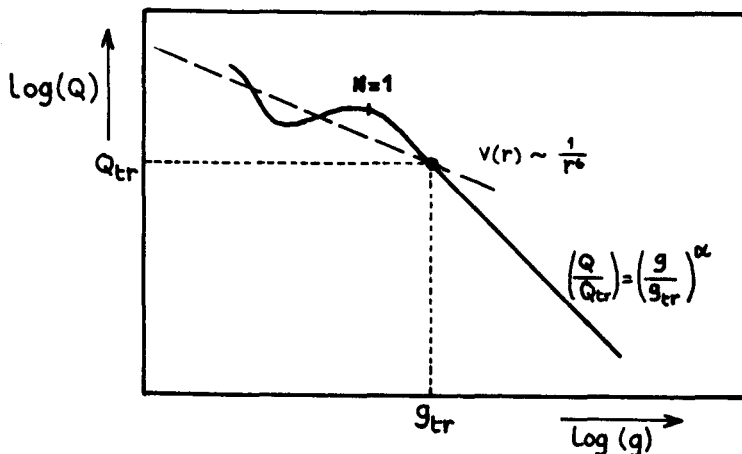


Fig. 10: Het beginpunt van het overgangsgedrag bij  $Q_{gl} = 0$ .

Opgemerkt dient te worden dat de modelfuncties in dit gebied de glory bijdrage niet goed beschrijven. Bij deze eerste analyse negeren we dit echter.

### 3. DE OPSTELLING.

De metingen ter bepaling van de botsingsdoorsneden zijn uitgevoerd met de looptijd 2 opstelling, welke schematisch in fig. 11. is weergegeven. Een uitgebreide beschrijving wordt o.a. door Beijerinck en van der Kam gegeven (Bey 76)(Kam 81). Aan de opstelling zijn twee vacuumkamers toegevoegd; nl. voor de productie resp. detectie van metastabiele edelgas atomen.

In de bronkamer bevinden zich de holle kathode boog (§ 3.1) en de thermische metastabielen bron (§ 3.2). In "vat 1" bevindt zich een cryo-pomp, die de gasbelasting van de plasmabron opvangt, zodat in de resterende vaten een voldoende lage druk heerst ( $< 10^{-8}$  Torr). De in "vat 2" geplaatste chopper laat telkens een klein aantal deeltjes door en levert bij elke doorlaat een triggerpuls. Deze puls start een veelkanaalsteller, waarin de gedetecteerde deeltjes worden geteld. In "vat 3" wordt de hoofdbundel gekruist door de dwarsbundel. De dwarsbundel wordt gevormd door een supersone expansie uit een nozzle (Hfdst 4.). In "vat 5" bevindt zich de detector voor moleculen in de grondtoestand. Deze detector is bij dit onderzoek niet gebruikt. In "vat 6" bevindt zich de metastabielen detector (§ 3.3); bestaande uit een r.v.s. kapje en een electron-multiplier.

#### 3.1 De holle kathode boog.

De holle kathode boog (HKB) bestaat uit een holle kathode, een magneet, een ring- en een eindanode. In fig. 12. is de bronkop weergegeven. Het gas wordt aan de boog toegevoerd door de holle kathode. Dit is een tantaal buis met binnen en buiten diameter van 1 resp. 2 mm. en een externe lengte van 20 à 30 mm. Een typische gasstroom door de kathode voor argon is  $0.4 \text{ Torr} \cdot \text{s}^{-1}$ . Het magneetveld (0.05 T) concentreert ionen rond de as van de ontlading.

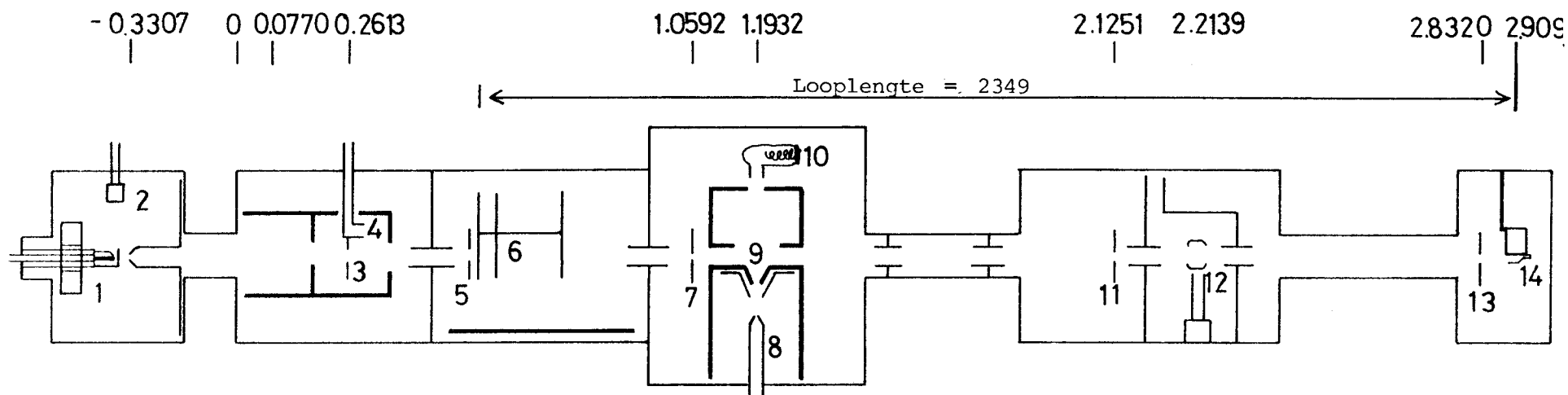


Fig. 11 : Schematische weergave van de looptijd 2 opstelling.

- 1) Holle kathode boog. 2) Thermische metastabielen bron.
- 3) Diafragma. 4) Ideaal gat bron. 5) Diafragma.
- 6) Chopper. 7) Scan diafragma 8) Supersone nozzle.
- 9) Strooicentrum. 10) Schuif-detector.
- 11) Diafragma van neutralen detector. 12) Neutralen detector.
- 13) Detector diafragma. 14) Metastabielen detector.



De boog wordt gestart door een vonk-ontlading (3 kV, 20 mA) tussen kathode en onsteek-electrode. De ontleding wordt overgenomen door de spanning tussen anode en kathode, welke bij het starten 300 V is. Binnen de kathode wordt het gas geëxiteerd en geïoniseerd. Terug vallende atomen verhitten de kathode tot ca. 2500 K. Er treedt dan thermische emissie op van electronen. Eenmaal zelfstandig brandt b.v. een argon boog zeer constant bij  $I_{ak} = 5 \text{ A}$ ,  $V_{ak} = 55 \text{ V}$ .

Door een opening in de eindanode ( $\phi 0.5 \text{ mm.}$ ) krijgt men een bundel met hoge intensiteit en brede snelheidsverdeling. In de bundel bevinden zich zowel atomen in de grondtoestand als in de metastabiele niveau's.

Typische waarden van voorwaartse intensiteit en translatie energie zijn  $I(0) = 2 \cdot 10^{18} \text{ s}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ ,  $T = 2 \cdot 10^4 \text{ K}$  en  $I^*(0) = 2 \cdot 10^{14} \text{ s}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ ,  $T^* = 3 \cdot 10^4 \text{ K}$  voor  $\text{Ar}(^1S_0)$  resp.  $\text{Ar}^*(^3P_0, ^3P_0)$  (The 76,82) (Per 79). In fig. 15. is een looptijdspectrum van argon metastabielen weergegeven.

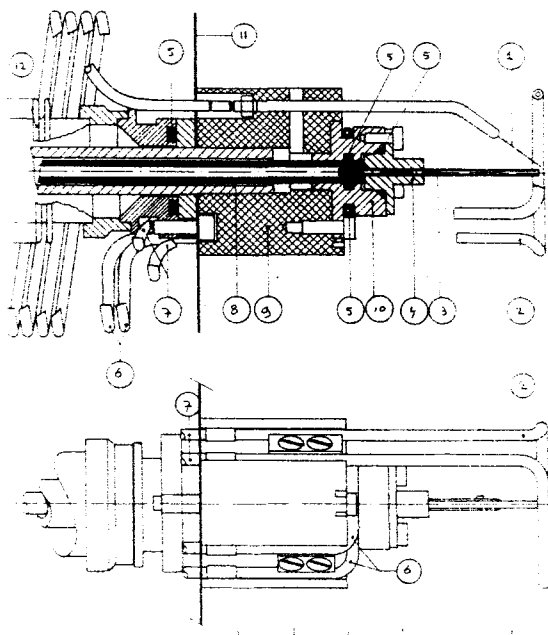


Fig. 12: De bronkop van de holle kathode boog.

- 1) Ontsteek-electrode. 2) Ringanode. 3) Kathode.

### 3.2 De thermische metastabielen bron (TMB).

De thermische metastabielen bron is een corona ontleding door de uitstroom opening van een supersone expansie. De diameter van de nozzle is 100  $\mu\text{m}$ , het gebruikte materiaal is boron-nitride. In fig. 13. is de bronkop weergegeven. De bron gedraagt zich als een supersone expansie met een effectieve brontemperatuur van 400 K. De naald is de kathode en de skimmer de anode. De ontleding wordt gestart bij  $V_{\text{ak}} = 3 \text{ kV}$ . De ontleding brandt vervolgens stabiel met bijv. argon bij  $V_{\text{ak}} = 400 \text{ V}$ ,  $I_{\text{ak}} = 3 \text{ mA}$ .

In fig. 15. is een looptijdspectrum van de TMB van argon metastabielen weergegeven. Typische waarden van voorwaartse intensiteit en translatie energie voor bijv. Ar zijn:  $\dot{I}^*(0) = 2 \cdot 10^{13} \text{ s}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ ,  $T^* = 1000 \text{ K}$ .

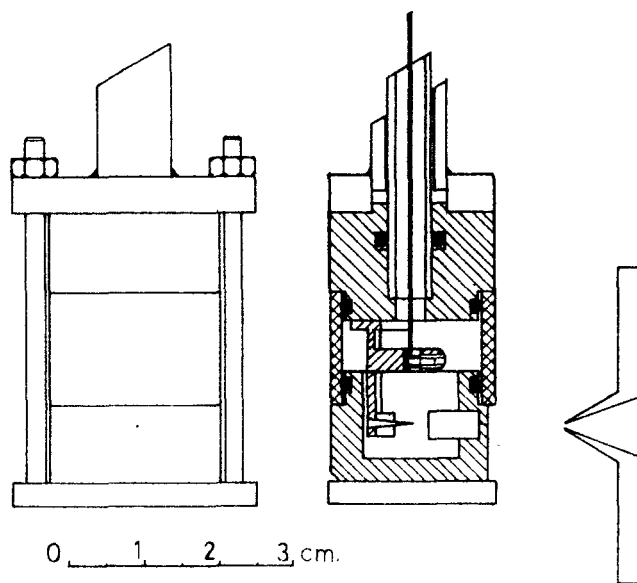


Fig. 13: De thermische metastabielen bron.

### 3.3 De detector voor de metastabielen

De detector voor de metastabielen bestaat uit een roestvrij stalen vangkapje en een electron multiplier (fig. 14.).

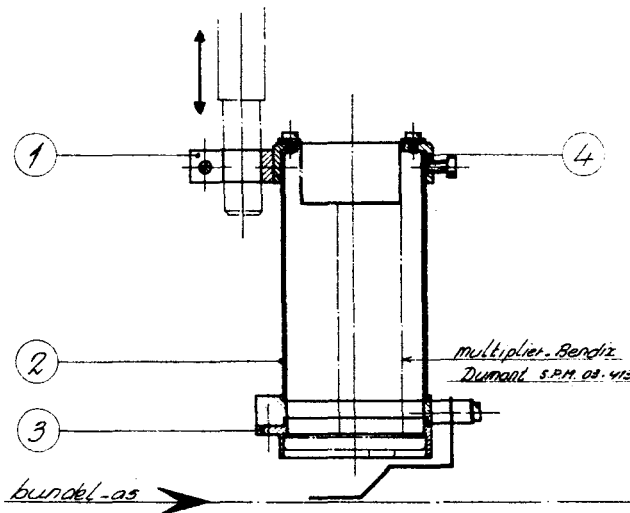
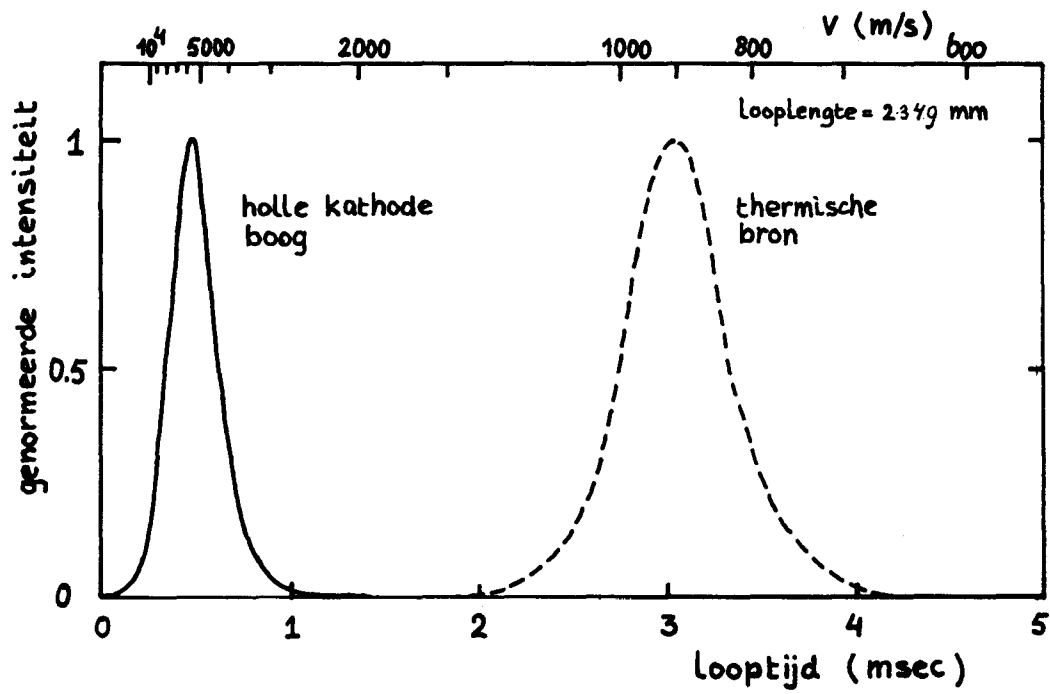


Fig. 14: De detector voor de metastabielen.

Een metastabiel atoom dat een metalen oppervlak treft, kan hieruit een electron vrijmaken. De inwendige energie van bijv. metastabiel Ar is ca. 11 eV. en de uittree-potentiaal van metalen is ca. 4 eV. De secundaire electronen-emissie van roestvrij staal is ongeveer 1 (Dun 71). Deze waarde is afhankelijk van de behandeling van het oppervlak van het materiaal. De vrijgemaakte electronen worden naar de anode van de multiplier versneld door een verschilspanning tussen kapje en multiplier. De secundaire electronen-emissie van de anode van de multiplier (Cu-Be) heeft een maximum bij een energie van 550 eV van de electronen (Ard 62). Derhalve treedt er een maximum op in het aantal gedetecteerde electronen als functie van het spanningsverschil tussen het kapje en de multiplier (Per 79). Experimenteel vinden we een maximum bij een verschilspanning van 700 V. ( $V_{em} = -3$  kV.,  $V_{kapje} = -3.7$  kV.)

Fig. 15: De looptijdspectra van de holle kathode boog en de thermische metastabielen bron.



#### 4. EXPERIMENTELE BEPALING VAN DE TOTALE BOTSINGSDOORSNEDE.

Experimenteel wordt de totale botsingsdoorsnede bepaald door het meten van de verzwakking van de hoofdbundel t.g.v. verstrooiing aan dwarsbundeldeeltjes als functie van de relatieve snelheid  $g$ :

$$nIQ = - \frac{v_1}{g} \ln \left[ \frac{N_2(k)}{N_1(k)} \right] \frac{1}{F_{\Omega}^Q(k) F_V^Q(k)}, \quad g = (v_1^2 + v_2^2)^{\frac{1}{2}} \quad (24)$$

Hierbij zijn  $N_2(k)$  en  $N_1(k)$  het verzwakte resp. onverzwakte signaal in het  $k$ -de kanaal van de veelkanaals-teller. De gemiddelde snelheid van de hoofdbundeldeeltjes in kanaal  $k$  is gelijk aan:

$$v_1(k) = \frac{L}{(k-\frac{1}{2})t_{ch} + t_{del}} \quad (25)$$

met  $L$  de looppengte en  $t_{ch}$  de tijdsduur van een kanaal. Met de delay-tijd  $t_{del}$  wordt in rekening gebracht de verwerkingstijd van het detectorsignaal en het tijdsverschil tussen triggerpuls en werkelijke start van de veelkanaals-teller. De termen  $F_{\Omega}^Q(k)$  en  $F_V^Q(k)$  zijn correcties voor het eindige hoek- resp. snelheids-oplossend vermogen van het experiment (Kam 81)(Bey 82). Bij een nauwkeurig bekend zijn van de dichtheid ( $n$ ) in en de lengte ( $l$ ) van het strooigebied, geeft form. 24. een absolute totale botsingsdoorsnede van het onderzochte systeem als functie van de relatieve snelheid  $g$ .

##### 4.1 De calibratie van het strooicentrum.

Voor het bepalen van de absolute waarde van de botsingsdoorsnede is het noodzakelijk het product van dichtheid en lengte in het strooicentrum nauwkeurig te kunnen berekenen. In de hierna volgende paragrafen zijn deze berekeningen samengevat met verwijzingen naar de volledige berekeningen. Daarnaast worden enkele meetresultaten gegeven van de dwarsbundel van looptijd 2 in de huidige configuratie.

#### 4.2 De bepaling van het nl-product.

De dwarsbundel wordt gevormd door een supersone expansie uit een nozzle met een optische diameter van 85  $\mu\text{m}$ . De voorwaartse intensiteit  $I(0)$  van een supersone nozzle is (Hab 77):

$$I(0) = \frac{\kappa}{\pi} \dot{N} \quad (26)$$

met  $\kappa$ , de piekfactor en  $\dot{N}$  de deeltjesstroom door de nozzle. De hoekafhankelijkheid van de intensiteit is:

$$I(\theta) = I(0) \cos^3 \theta \quad (27)$$

De dichtheid ter plaatse van de hoofdbundel is dan (fig. 16.):

$$n(\theta(x)) = \frac{I(\theta)}{v_2 r^2} \quad , \quad v_2 = \left(\frac{\gamma}{\gamma-1}\right)^{\frac{1}{2}} \alpha_0 \quad , \quad \alpha_0 = \left(\frac{2kT}{m}\right)^{\frac{1}{2}} \quad (28)$$

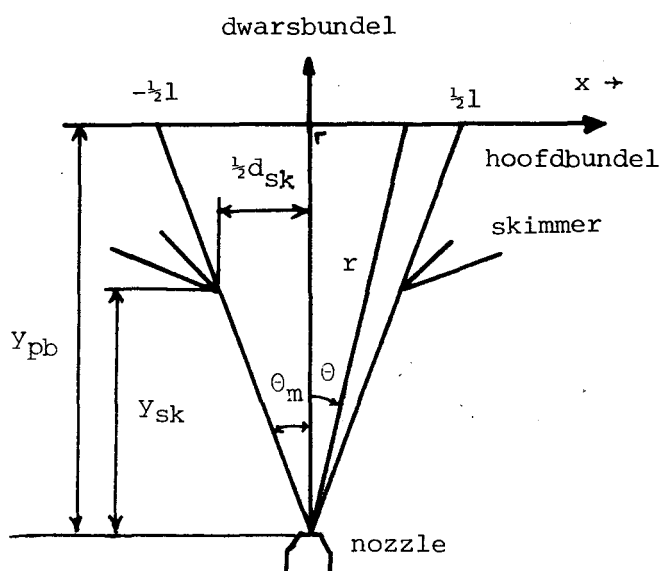


Fig. 16: Schematische weergave van de configuratie van de dwarsbundel.

Het  $nI$ -product bij een ongestoorde expansie volgt dan uit integratie van  $n(\theta)$  langs de hoofdbundelas:

$$nI_{id} = \frac{I(0)}{v_2 y_{pb}} 2 [\sin(\theta_m) - 1/3 \sin^3(\theta_m)] , \quad \theta_m = \arctan\left(\frac{d_{sk}}{y_{sk}}\right) \quad (29)$$

Voor  $\theta_m < 0.1$  is de benadering

$$nI_{id} = \frac{I(0)}{v_2 y_{pb}} \frac{d_{sk}}{y_{sk}} , \quad (30)$$

waarbij geen rekening gehouden wordt met de hoekafhankelijkheid van de supersone expansie, al correct binnen 3<sup>0</sup>/100. Voor het verkrijgen van een hoog snelheidsoplossend vermogen wordt de bundel gecollimeerd door middel van een spleetskimmer, welke de vorm heeft van een kathedraal-dak (fig. 17.).

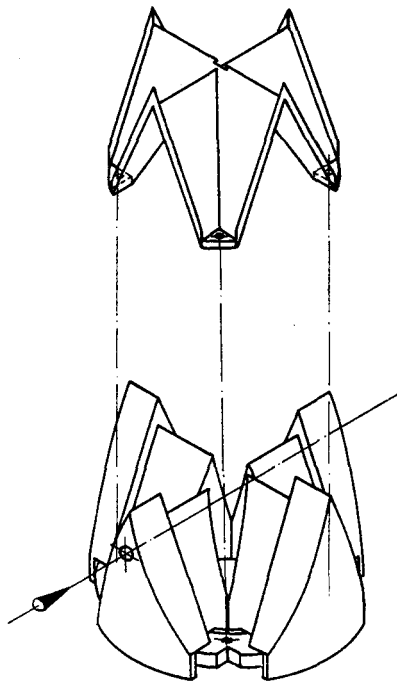


Fig. 17:

De kathedraal-dak skimmer  
en het skimmerlichaam.

In de cryo-gepompte omgeving is verzwakking van de expansie door botsingen met achtergrondgas verwaarloosbaar. Achterwaartse verstrooiing van deeltjes aan het skimmerdak dat op kamertemperatuur is, verzwakt de bundel wel. Deze verzwakking, de zogenaamde skimmerinteractie is evenredig met de deeltjesstroom  $\dot{N}$ . Het nl-product is dan te schrijven als:

$$nl = nl_{id} (1 - F_{sk}(y_{sk})\dot{N}) \quad (31)$$

waarbij  $F_{sk}$  een evenredigheids-constante is die afhangt van de geometrie van de skimmer, de nozzle-skimmer afstand en de gassoort.

Voor het berekenen van het nl-product moet de piekfactor  $\kappa$ , de deeltjesstroom  $\dot{N}$ , de skimmerinteractie  $F_{sk}$  en de geometrie van de dwarsbundel nauwkeurig berekend zijn.

Voor de piekfactor gebruiken we de experimenteel bepaalde waarde van Beijerinck (Bey 81), die ook voor onze nozzle van toepassing is. Gelet op de goede overeenstemming van verschillende controle metingen aan deze piekfactor, is de opgegeven nauwkeurigheid zeker van toepassing. Voor Ar, Kr en Xe is als piekfactor gebruikt  $\kappa = 2.08 \pm 0.03$ .

#### 4.3 De bepaling van de deeltjesstroom $\dot{N}$ .

De deeltjesstroom door een nozzle met straal  $R_n$  wordt gegeven door (Bey 81):

$$\dot{N} = f(\gamma) \alpha_0 n_0 \pi R_n^2, \quad f(\gamma) = \left(\frac{\gamma}{\gamma+1}\right)^{\frac{1}{2}} \left(\frac{2}{\gamma+1}\right)^{1/\gamma-1} \quad (32)$$



Ten gevolge van de viscositeit ontstaat een grenslaag met dikte  $\delta_n = cR_{n,0} Re^{-\frac{1}{2}}$  met  $c$  een evenredigheids-constante welke alleen van  $\gamma$  afhangt,  $R_{n,0}$  de geometrische nozzle straal en  $Re$  het Reynolds getal. De effectieve uitstroomopening wordt dan:

$$R_n^2 = R_{n,0}^2 (1 - \beta(T)p^{-\frac{1}{2}}) \quad (33)$$

met  $\beta(T)$  een temperatuur- en gas-afhankelijke parameter welke de grenslaagdikte bepaald (Ruy 81). Het verband tussen  $\beta(T)$  en  $c$  is:

$$\beta(T) = \frac{c}{R_{n,0}^2} \left( \frac{\eta(T)\alpha(T)}{f(\gamma)} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (34)$$

De deeltjesstroom  $\dot{N}$  wordt bepaald uit drukdalingsmetingen. Het gas aanwezig in een afgesloten volume  $V$  stroomt weg door de nozzle. De druk wordt equidistant in de tijd gemeten. De drukdaling verloopt dan volgens (Kam 81)

$$p(T) = p(0) \exp\left(-\frac{t}{\tau_n}\right) \left[1 + \frac{\beta}{p^{\frac{1}{2}}} (\exp\left(-\frac{t}{\tau_n}\right) - 1)\right]^2 \quad (35)$$

$$\tau_n = \frac{T_n}{T_{cal}} \frac{V_{cal}}{C}, \quad C = f(\gamma) \alpha_0 \pi R_{n,0}^2$$

Het volume  $V$  bestaat uit het leidingensysteem van het gasinlaatsysteem met een onbekend volume  $V_p$  en een nauwkeurig bepaald volume  $V_{cal}$ . Door metingen met en zonder  $V_{cal}$  te doen wordt  $V_p$  bepaald (Vlu 75).

De metingen worden met een kleinste kwadraten fit procedure geanalyseerd met form. 35. als modelfunctie. Hierbij zijn  $P(0)$ ,  $\beta(T)$ ,  $\tau_n$  en  $R_{n,0}$  de vrije parameters. Uit form. 32. volgt dan  $\dot{N}$  als functie van de druk en temperatuur.

De in tabel 6. vermelde resultaten voor Ar en Kr zijn in overeenstemming met eerdere metingen (Ruy 81). Na de metingen van Ruyten is een nieuw stoffilter gemonteerd. Een drukval over dit filter kan de oorzaak zijn van de iets kleinere  $R_{n,0}$  die we vinden.

Tabel 6: Resultaten van drukdalingsmetingen.

1). Dit werk. 2). Beste waarden volgens Ruyten (Ruy 81).

De referentie-temperatuur :  $T_{ref} = 320$  K.

bron	gas	$R_{n,0}$ [ $\mu\text{m}$ ]	$\beta$ [Torr $^{\frac{1}{2}}$ ]	c	interval [Torr]
1	Ar	42.54	0.60	0.34	460-100
	Kr	42.46	0.49	0.31	440-100
	N2	42.66	0.47	0.27	470- 50
2	Ar	42.76	0.66	0.38	450- 50
	Kr	-	0.58	-	-
	Xe	-	0.50	-	-

#### 4.4 De bepaling van de skimmerinteractie $F_{sk}$ .

De skimmerinteractie is bepaald met zogenaamde extrapolatie metingen. Bij deze methode (Kam 81) worden strooimetingen gedaan bij verschillende deeltjesstromen door de nozzle. Hieruit bepalen we de verzwakking  $(nIQ)_{exp}$  als functie van  $\dot{N}$  bij een bepaalde nozzle-skimmer afstand. Men definieert de vergelijkingsfactor  $C_q = Q/Q_{ref}$ , waarbij bij  $Q_{ref}$  een theoretische voorspelling is van de botsingsdoorsnede.

Voor elke waarde van  $\dot{N}$  bepalen we het quotient:

$$\frac{n_{id}^{0 \exp}}{n_{id}^{0 \text{ref}}} = C_q (1 - F_{sk}(y_{sk})\dot{N}) \quad (36)$$

Uitgezet als functie van  $\dot{N}$  vinden we uit extrapolatie naar  $\dot{N} = 0$  de waarde van  $C_q$  en uit de helling  $F_{sk}$ . In tabel 7. zijn de resultaten weergegeven van de extrapolatiemetingen.

Tabel 7: De skimerinteractie als functie van de nozzle-skimmer afstand  $y_{sk}$ . 1) Dit werk. 2) Van der Kam (Kam 81).

bron	Systeem	$y_{sk}$ [mm]	$F_{sk}$ [ $10^{-21}s$ ]
1	Ar* -Ar	16.38	4.4
		14.53	3.9
		8.51	3.8
2	Ar -Ar	12.74	2.61
	Kr -Ar	17.74	3.32
	Kr -Ar	21.54	4.26

#### 4.5 De bepaling van de virtuele bron.

In het stromingsveld van de supersone expansie worden de stroomlijnen na een afstand van enkele nozzle diameters bij benadering rechte lijnen welke uit een punt schijnen te komen; het zogenaamde virtuele bronpunt (fig. 18.) (She 63) (Bey 81).

De botsingsfrequentie in de expansie neemt snel af bij toenemende afstand ten gevolge van de afnemende dichtheid. Er is dan sprake van quasi vrije moleculaire stroming. De deeltjesbanen worden beschouwd als rechte lijnen en de dan nog optredende botsingen als kleine verstoringen.

Projectie van de deeltjesbanen in het virtuele bronvlak ( $z=0$ ) levert de zogenaamde virtuele bronverdeling  $f(x,y)$ , welke goed beschreven wordt door de bimodale verdeling:

$$f(x,y) = \sum_{i=1}^2 \frac{c_i}{\pi R_i^2} \exp\left(-\frac{x^2 + y^2}{R_i^2}\right) \quad (37)$$

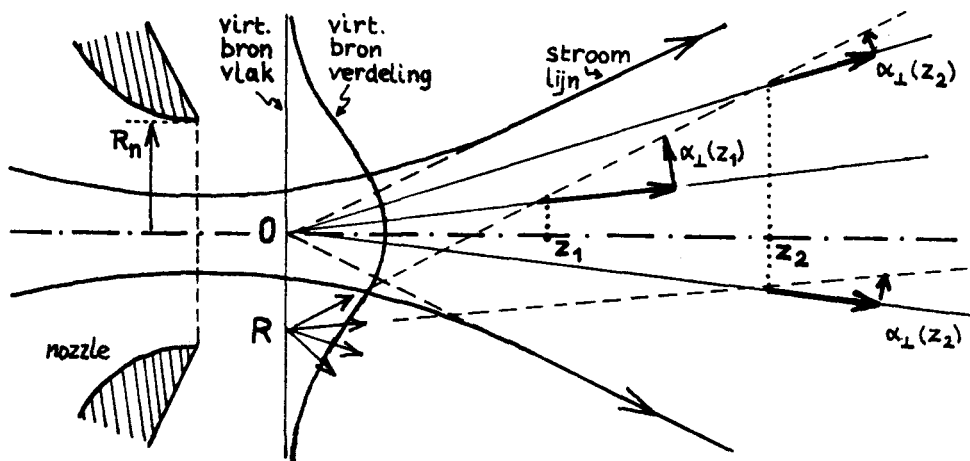


Fig. 18: Het stromingsveld van de supersone nozzle.

De botsingsloze expansie van de meerderheid van de deeltjes wordt beschreven door de zogenaamde smalle bron met straal  $R_1$  en gewicht  $C_1$ . De brede bron met straal  $R_2$  en gewicht  $C_2$  ontstaat door de overdracht van energie van de evenwijdige naar de loodrechte snelheidsverdeling ten gevolge van de nog optredende botsingen in het gebied van de vrije expansie. Door een spleet in de achterwand van de cryo-gepompte expansie-kamer bereiken de dwarsbundeldeeltjes een verplaatsbare dichtheidsdetector. Deze bestaat uit een ionisatie-manometerbuis voorzien van een intreespleet van  $0.5 \cdot 2 \text{ mm}^2$ . In fig. 19. is een gemeten dwarsbundelprofiel voor argon weergegeven.

Deze profielen worden geanalyseerd met behulp van een kleinste kwadraten fit procedure met form. 37. als modelfunctie voor de virtuele bronverdeling. Hierbij zijn  $R_1$ ,  $R_2$ ,  $C_1$  en  $y_{sk}$  de belangrijkste vrije parameters. De nozzle-skimmer afstand is niet nauwkeurig genoeg uit directe meting te verkrijgen. Uit profielmetingen bij meerdere afstanden kan  $y_{sk}$  nauwkeurig worden bepaald.

In tabel 8. zijn de resultaten van profielmetingen voor Ar en  $N_2$  weergegeven. Deze resultaten zijn in overeenstemming met eerdere metingen (Kaa 82) (Bey 81).

De resultaten worden gegeven als functie van de dimensieloze parameter  $E$ , gedefinieerd als:

$$E = 3.189 \left[ \left( \frac{\gamma-1}{\gamma} \right)^{\frac{1}{2}} z_{ref} n_0 \left( \frac{C_6}{kT_n} \right) \right]^{1/3} \quad (38)$$

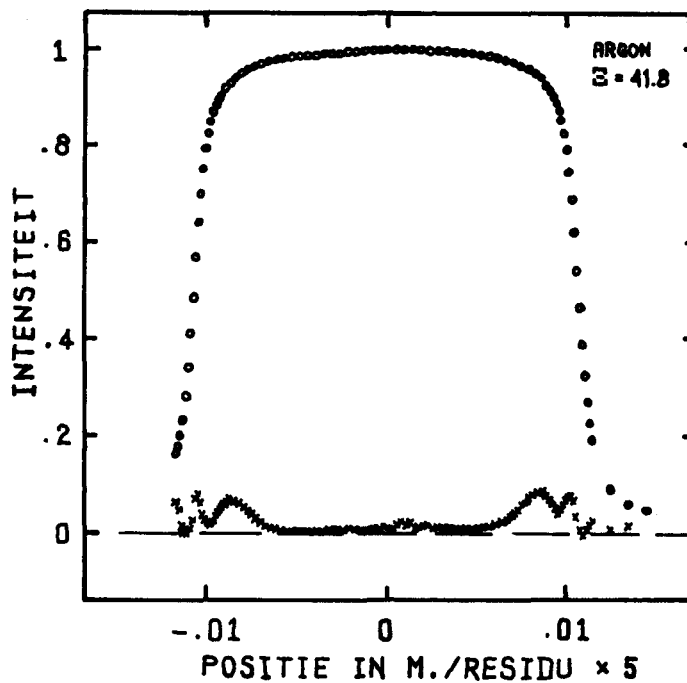
Hierin is  $n_0$  de dichtheid in de nozzle.

Tabel 8: Resultaten van profielmetingen voor Ar en N<sub>2</sub>.

$z_{\text{ref}} = 0.802 R_n$  en  $z_{\text{ref}} = 0.598 R_n$  voor  
 $\gamma = 5/3$  resp.  $\gamma = 7/5$ .

gas	$\Xi$	$R_1/z_{\text{ref}}$	$R_2/z_{\text{ref}}$	$C_1$
Ar	$10 \pm 0.5$	2.07	11.88	0.775
N <sub>2</sub>	$13 \pm 0.5$	4.42	19.37	0.684

Fig. 19: Voorbeeld van een gemeten dwarsbundel profiel.



## 5. RESULTATEN EN DISCUSSIE.

Tot nu toe zijn alleen resultaten behaald voor de systemen  $Ar^*-Ar$  en  $Ar^*-Kr$ . Hierdoor hebben we ons slechts een beperkt beeld kunnen vormen van de Van der Waals interacties van de edelgas excimeren. Verdere metingen zullen meer duidelijkheid moeten brengen in de specifieke eigenschappen van de excimeren met identieke en niet identieke partners. Resultaten gecorrigeerd voor het eindig hoek en snelheidsoplossend vermogen zijn nog niet beschikbaar. De waarden van de  $\epsilon_{m}$ -producten worden niet beïnvloed door deze correcties, omdat ze afgeleid zijn uit de glory periode. De hier gegeven waarden van  $C_6$  zijn hierdoor een ondergrens. De helling zal door de hoekoplossend vermogen correctie nog afnemen in absolute waarde, omdat de correctie toeneemt met toenemende relatieve snelheid  $g$ .

### 5.1 Het systeem $Ar^*-Kr$ .

Van het systeem  $Ar^*-Kr$  is in fig. 20. een gemeten botsingsdoorsnede weergegeven. In tabel 10. zijn de experimentele condities gegeven, waaronder deze metingen zijn verricht. In de totale botsingsdoorsnede zijn de glory oscillaties van de Van der Waals put in de potentiaal van de  $\Omega = 2$  toestand zichtbaar. Voor een realistisch potentiaal van atomen in de grondtoestand bevindt de  $N = 1$  glory zich bij  $\xi^* = 5.3$ . Hiervan uitgaand, geven we in tabel 9. de waarde van het  $N = 1$  glory-maximum. Met die waarde als input zijn de overige glory-extrema berekend uitgaande van een potentiaal voor atomen in de grondtoestand. We zien een redelijke overeenstemming van de gemeten en berekende posities. Uitgaande van een attractieve potentiaal gelijk  $V(r) = C_6/r^6$ , vinden we uit het gemiddelde verloop van de botsingsdoorsnede in het thermische gebied met form. 7. voor de Van der Waals constante van  $Ar^*-Kr$ :  $C_6 = 43.6 \cdot 10^{-78} \text{ Jm}^6$ .

Tabel 9: De gemeten posities versus de berekende posities van de glory-extrema.

N	Gemeten posities $g(\text{ms}^{-1})$	Berekende posities $g(\text{ms}^{-1})$ bij $\epsilon r_m = 600 \text{ K\AA}$
1	2860	2876
2	1120	1202
2,5	870	901
3	710	703

In het hyperthermische gebied zien we een deel van het overgangsgebied. Voor de helling vinden we  $\alpha = -0.91 \pm 0.05$  (form. 21).

### 5.2 Het systeem Ar<sup>\*</sup>-Ar.

Van het systeem Ar<sup>\*</sup>-Ar is in fig. 21. een gemeten botsingsdoorsnede weergegeven. In tabel 10. zijn de experimentele condities gegeven waaronder deze metingen zijn verricht. In deze totale botsingsdoorsnede zien we (op de N = 1 glory na) geen glory extrema, zoals bij Ar<sup>\*</sup>-Kr. Bij Ar<sup>\*</sup>-Ar leveren t.g.v. de g-u symmetrie vier potentialen bijdragen aan de glory structuur nl.  $0_g^-$ ,  $1_g$ ,  $2_u$  en  $2_g$  (fig. 5.).

In § 1.5 zijn we uitgegaan van de Castex gegeven  $2_u$ -potentiaal en hebben, bij gebrek aan informatie over de gerade potentiaalcurves aangenomen dat deze gelijke glory-bijdragen leveren, d.w.z. een zelfde ondiepe put hebben. Blijkbaar zijn t.g.v. de g-u opsplitsing de putten ongelijk. De glory-bijdragen verschillen dan onderling in fase. Ten gevolge van deze fase-verschillen kunnen hogere orde glory's elkaar dempen, zoals we ook experimenteel zien.



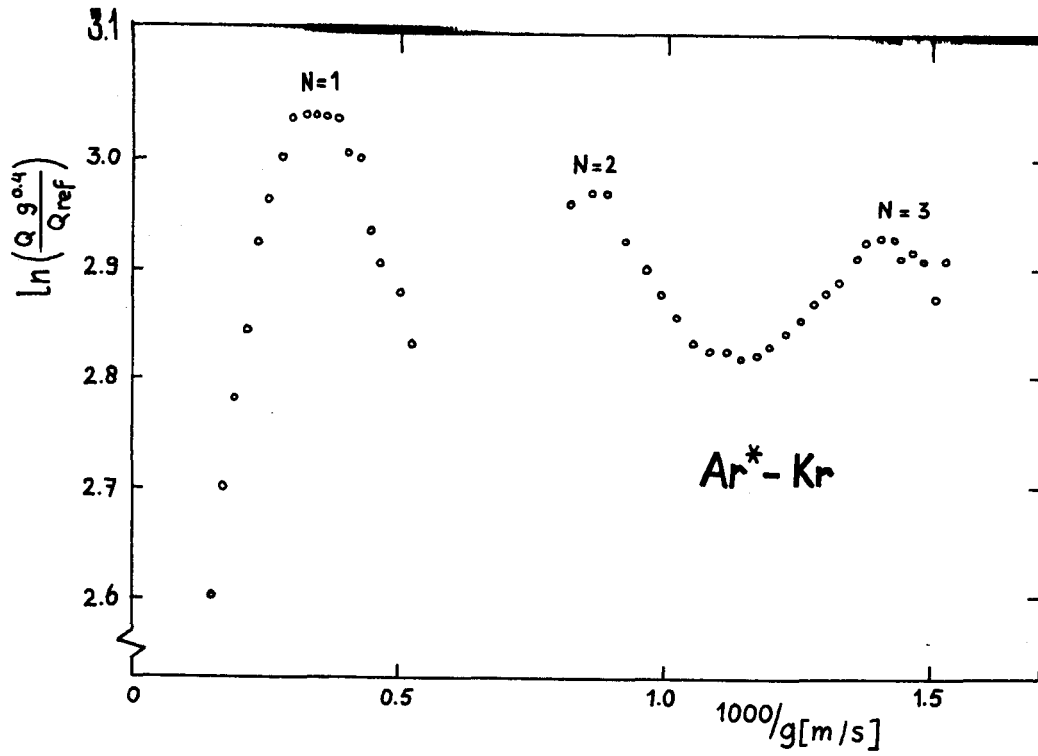


Fig 20: De totale botsingsdoorsnede van  $\text{Ar}^* - \text{Kr}$  voor relatieve snelheden  $800 < g(\text{ms}^{-1}) < 1340$  resp.  $2000 < g(\text{ms}^{-1}) < 6700$ .

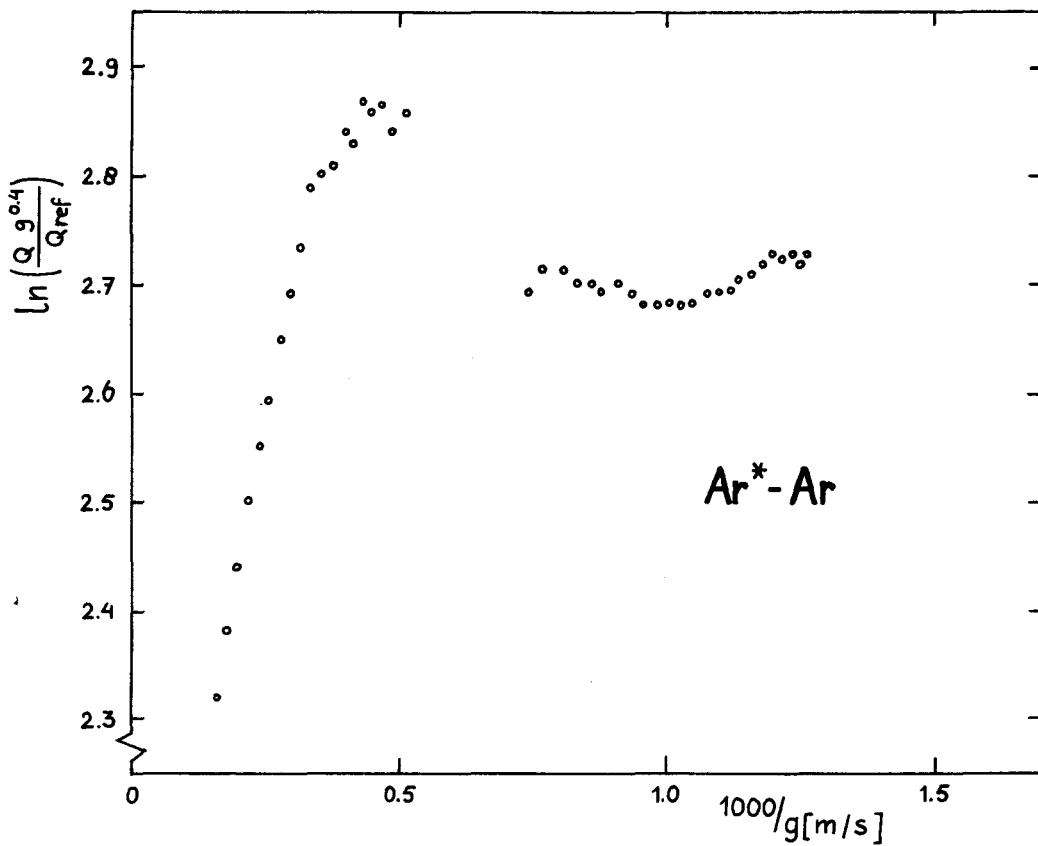


Fig 21: De totale botsingsdoorsnede van  $\text{Ar}^* - \text{Ar}$  voor relatieve snelheden  $670 < g(\text{ms}^{-1}) < 1250$  resp.  $1900 < g(\text{ms}^{-1}) < 6700$ .

Tabel 10:

Experimentele condities voor de meting van de totale botsingsdoorsnede van  $\text{Ar}^*-\text{Ar}$  en  $\text{Ar}^*-\text{Kr}$ .

Systeem	bron	$f_{\text{trig}}$ (Hz)	$P_n$ (Torr)	$T_n$ (K)	$Y_{\text{sk}}$ (mm)
$\text{Ar}^*-\text{Ar}$	HKB	156	310	347	18.4
	TMB	155	224	347	18.4
$\text{Ar}^*-\text{Kr}$	HKB	152	300	347	18.4
	TMB	150	218	343	18.4

Voor Ar<sup>\*</sup>-Ar kunnen we derhalve slechts een gebied aangeven, waarin we de  $N = 1$  glory verwachten, resulterend in een voorspelling van een gemiddeld of effectief  $\epsilon_{r_m}$ -product gelijk  $281 < \epsilon_{r_m} (\text{KÅ}) < 405$  (zie fig. 21.). Op dezelfde manier als bij Ar<sup>\*</sup>-Kr vinden we hier voor een effectieve Van der Waals constante  $C_{6,\text{eff}} = 27 \cdot 10^{-78} \text{Jm}^6$ . Evenals bij Ar<sup>\*</sup>-Kr vinden we bij Ar<sup>\*</sup>-Ar voor de helling  $\alpha = -0.91 \pm 0.05$ .

### 5.3 Discussie.

We vergelijken aan de hand van tabel 11. de onderzochte systemen met de overeenkomstige alkali-edelgassystemen. Op grond van de polariseerbaarheden (Hab 81) verwachten we dat de  $C_6$ -constante van de edelgas-excimeren 10% groter is dan de waarde van de overeenkomstige alkali's. Voor Ar<sup>\*</sup>-Kr wordt aan deze verwachting voldaan. De effectieve  $C_6$ -waarde van Ar<sup>\*</sup>-Ar is echter 2% kleiner. Dit is, gezien het afwijkende gedrag van Ar<sup>\*</sup>-Ar geen reden om deze waarde af te keuren.

Tabel 11: Vergelijking van de experimentele resultaten met de alkali's.

Systeem	$C_6$ ( $10^{-78} \text{Jm}^6$ )	$\epsilon_{r_m}$ (KÅ)
K - Ar	27.6	314
Ar <sup>*</sup> - Ar	27	281 - 405
K - Kr	39.8	550
Ar <sup>*</sup> - Kr	43.6	600

De glory-oscillaties afkomstig van de sterk attractieve potentialen,  $O_u^-$ ,  $l_u$  bij  $Ar^*-Ar$  resp.  $O^-$ ,  $l$  bij  $Ar^*-Kr$  zijn in het hyperthermisch gebied niet waargenomen. Gelet op de kleine amplitude ( $2.3 \text{ \AA}^2$ ) gesuperponeerd op een gemiddelde botsingsdoorsnede van  $150 \text{ \AA}^2$  bij  $g = 5000 \text{ ms}^{-1}$  zal dit ook experimenteel een opgave zijn die niet gering is.

Metingen van botsingsdoorsneden geven op dit moment de beste informatie over de wisselwerking op grote onderlinge afstand van de edelgas-excimeren. Het zou wenselijk zijn als er ook berekeningen in dit gebied beschikbaar komen, zodat een confrontatie mogelijk is.

Appendix A: Overzicht van de in de literatuur gegeven potentialen.(1a<sub>0</sub> = 0.528 Å).De 0<sub>u</sub><sup>-</sup>, 1<sub>u</sub><sup>-</sup> en (<sup>3</sup>Σ<sub>u</sub><sup>+</sup>)-potentialen (K).

R(a <sub>0</sub> )	<sup>3</sup> Σ <sub>u</sub> <sup>+</sup> (Cas 81)	<sup>3</sup> Σ <sub>u</sub> <sup>+</sup> (Gil 76a)	<sup>3</sup> Σ <sub>u</sub> <sup>+</sup> (Sax 76)	0 <sub>u</sub> <sup>-</sup> (Cas 81)	1 <sub>u</sub> <sup>-</sup> (Cas 81)
4	- 2043	- 5524	- 1814	- 1392	- 1392
4.5	- 8175	- 9018.4	- 7815	- 7534	- 7533
4.7	- 8196	- 8316.1	- 7730	- 7563	- 7560
5	- 7241	- 6819.3	- 6681	- 6628	- 6624
5.5	- 4535	- 4372.1	- 4290	- 3952	- 3942
6	- 2799	- 2604.4	- 2136	- 2289	- 2265
7	- 723	- 858.7	- 252	- 457	- 392.5
8	- 200	- 270.7	+ 108	- 107.4	- 69
9	- 109	- 84.8	+ 74	- 104	- 76.5
10	- 96	- 26.3	-	- 83	- 90.4
12	- 68	- 2.6	- 52	- 61	- 64.9

Appendix A (vervolg):De  $2_u$  - en  $2_g$  -potentialen (K).

$R(a_0)$	$2_u$ (Gil 76a)	$2_g$ (Gil 76b)	$2_u$ (Cas 81)
4	45647	35945	22705
4.5	21671	15683	15795
4.7	-	-	13312
5	10705	7006	7932
5.5	-	-	3856
6	3123	1715	1689
7	1215	678.9	470
8	594.0	389.7	104
9	326.6	248.8	- 104
10	188.2	158.6	- 83
11	110.3	99.0	-
12	65.0	60.7	- 61

Appendix B.

Gereduceerde variabelen	Definitie
Inverse snelheid	$\xi^* = (2\epsilon r_m/h)/g$
Van der Waals constante	$C_s^* = C_s/(\epsilon r_m^3)$
Strooihoek	$\theta^* = \theta/(4\pi/k^2 Q_a)^{1/2}$
Impulsmoment quantum getal	$\lambda^* = \lambda/(k^2 Q_a/4\pi)^{1/2}$
Verstrooiingdamplitude	$f^* = f/(Br_m)$
Differentiele cross sectie	$\sigma^2 = \sigma/(Br_m)^2$
Totale cross sectie	$Q^* = Q/r_m^2$

Literatuur.

- (Ard 62) M. von Ardenne, "TAbellen zu Angewandten Physik",  
(VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften, Berlin 1962).
- (Bas 75) S. Bashkin and J. Stoner, "Atomic Energy levels and  
Grotrian Diagrams", Vol 2. (NHPC, Amsterdam, 1975).
- (Bey 75) H.C.W. Beijerinck, Thesis, Eindhoven University of  
Technology, 1975.
- (Bey 81) H.C.W. Beijerinck, P.M.A. van der Kam, J.W.G. Thijssen  
and N.F. Verster, Chem. Phys. 45 (1981) 225.
- (Bey 82) H.C.W. Beijerinck and N.F. Verster, Physica IIIC (1982) 327
- (Can 64) Candler, "Atomic Spectra", (Ailger and Watts, Londen, 1964)
- (Cas 81) M.C. Castex, M. Morlais, F. Spiegelmann and J.P. Malrien,  
J. Chem. Phys. 75 (1981) 5006.
- (Dun 71) F.B. Dunning and A.C.H. Smith, J. Phys. B. At. Mol. Phys.  
4 (1971) 1683.  
F.B. Dunning, A.C.H. Smith and R.F. Stabbings 4 (1971) 1696.
- (Gil 76a) K.T. Gillen, R.P. Saxon, D.C. Lorentz, G.E. Ice and  
R.E. Olson, J. Chem. Phys. 64 (1976) 1925.
- (Gil 76b) K.T. Gillen, R.P. Saxon and D.C. Lorentz, Phys. Rev. A.  
13 (1976) 2033.
- (Hab 77) A.H.M. Habets, Thesis, Eindhoven University of  
Technology, 1977.
- (Hab 81) H. Haberland, Y.T. Lee and P.E. Siska, in "The excited  
State in Chemical Physics", part 2, Ed. J. W. McGowan  
(Wiley, New York, 1981) 487.
- (Kaa 82) G.H. Kaashoek, Afstudeerverslag, T.H.Eindhoven,  
VDF/NO 83-08, 1983.
- (Kam 81) P.M.A. van der Kam, Thesis, Eindhoven University  
of Thechnology, 1981.
- (Per 79) C.E.E. Pernot, Afstudeerverslag, T.H. Eindhoven,  
VDF/NO 79-01, 1979.



Literatuur (vervolg).

- (Ruy 81) W.M.J. Ruyten, Stageverslag, T.H. Eindhoven,  
VDF/NO 81-04, 1981.
- (Sax 76) R.P. Saxon And B. Liu, J. Chem. Phys. 64 (1976) 3291.
- (She 63) F.S. Sherman, Lockheed Missiles and Space Co.,  
Report 6-90-63-61 (1963).
- (The 77) P.G.A. Theuws, H.C.W. Beijerinck, D.C. Schram and  
N.F. Verster, J. Appl. Phys. 48 (1977) 2261.
- (The 81) P.G.A. Theuws, Thesis, Eindhoven University  
of Technology, 1981.
- (Toe 75) J.P. Toennies, in "Physical Chemistry" Vol. 6A,  
Ed. W Jost (Academic Press, New York, 1975) 227.
- (Vlu 75) J.C. Vlugter, stageverslag, T.H. Eindhoven,  
VDF/NO 75-5