A-PDF Image To PDF Demo. Purchase from www.A-PDF.com to remove the watermark

ZEITSCHRIFT FÜR PHYSIK

HERAUSGEGEBEN UNTER MITWIRKUNG
DES VERBANDES
DEUTSCHER PHYSIKALISCHER GESELLSCHAFTEN

VON

O. HAXEL UND J. HANS D. JENSEN

152. BAND

MIT 288 FIGUREN IM TEXT

SPRINGER-VERLAG
BERLIN · GÖTTINGEN · HEIDELBERG
1958

Die zur Gewinnung der Leitfähigkeitsformel (58) durchgeführte Vernachlässigung von Gliedern proportional $\mathfrak{Tan}^6\, y/2$ neben Gliedern proportional $\mathfrak{Tan}^4\, y/2$ entspricht dem Bereich III.

Durch die Interpolationsformel (59) werden die drei Gebiete I, II, III gemeinsam erfaßt.

Noch offen ist bisher das Verhalten der freien Weglänge und der elektrischen Leitfähigkeit im Gebiet IV. Ausgehend von II sind hier

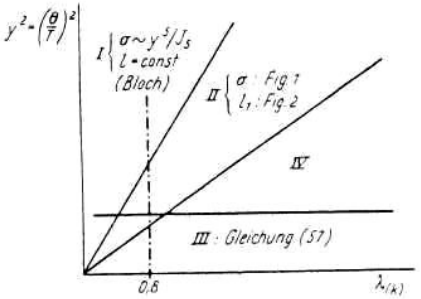

Fig. 3. Gegenseitige Abgrenzung der Gültigkeitsbereiche der durchgeführten Näherungen in verschiedenen Bereichen der Temperatur T und des Anisotropieparameters $\lambda_{(\mathfrak{k})}$

höhere Näherungen l_ν $(\nu > 1)$, ausgehend von III höhere Potenzen von $\mathfrak{Tan}^2\, y/2$ zu betrachten. In Analogie zu unserer Bestimmung des Verhaltens von l_1 bei mittleren Temperaturen können wir über das allgemeine Verhalten der l_ν $(\nu > 1)$ ohne neue Rechnung folgendes sagen:

Im Falle hoher Temperaturen führt (56) zu $l_\nu \sim (-\eta)^\nu$, während die Verallgemeinerung des bei tiefen Temperaturen durchgeführten Iterationsverfahrens $l_\nu \sim (-\eta^2)^\nu$ liefert, d.h., wir erwarten im wesentlichen

$$\left.\begin{array}{lll} l_\nu \sim (-\eta^2)^\nu & \text{für} & |\eta| < y \quad \text{bzw.} \quad |E-\zeta| < k\Theta \\ l_\nu \sim (-\eta)^\nu & \text{für} & |\eta| > y \quad \text{bzw.} \quad |E-\zeta| > k\Theta. \end{array}\right\} \tag{60}$$

Herrn Professor F. HUND möchte ich für wertvolle Anregungen und Diskussionen und Herrn Professor B. MROWKA für die in liebenswürdiger Weise gewährte Unterstützung meinen herzlichsten Dank aussprechen.

Zeitschrift für sik, Bd. 152, S. 143—182 (1958)

Aus dem Physikalischen Institut der Universitä Bonn

Das elektrische Massenfilter als Massenspektrometer und Isotopentrenner

Von

W. PAUL, H. P. REINHARD und U. VON ZAHN

Mit 26 Figuren im Text

(Eingegangen am 21. April 1958)

Auflösungsvermögen und Transmission des elektrischen Massenfilters werden als Funktion der Feldgrößen und der Einschußbedingungen theoretisch diskutiert. Auf Grund dieser Überlegungen wurde ein Massenspektrometer mit einem Auflösungsvermögen 1500 gebaut. Die experimentelle Prüfung zeigt, daß dieser Wert auch erreicht wird. Weiter wird untersucht, unter welchen Bedingungen die Intensitätsverhältnisse in einem Massenspektrum richtig wiedergegeben werden. Die Trennung hoher Ionenströme wird durch eine Abwandlung des bisherigen Verfahrens erreicht, indem dem stabilisierenden Vierpolfeld ein weiteres Hochfrequenzfeld überlagert wird, das Ionen bestimmter Masse in Resonanz bringt und ausscheidet. Mit der benutzten Ionenquelle wurden Ströme bis zu 3 mA erreicht.

In einer früheren Arbeit[1] wurde ein elektrisches Massenfilter vorgeschlagen, das mit einem hochfrequenten elektrischen Vierpolfeld Ionen verschiedener spezifischer Ladungen e/m trennen kann. Die erste experimentelle Erprobung dieses Verfahrens[2] zeigte so gute Resultate daß eine genauere Untersuchung des Massenfilters lohnend schien. Diese Untersuchung erstreckt sich auf zwei verschiedene Anwendungsmöglichkeiten: Den Bau eines einfachen Massenspektrometers mit guter Auflösung und den Bau eines Isotopentrenners für kleine Substanzmengen[3–5]. Beides erweist sich als durchführbar, wenn man das Grundprinzip des Massenfilters den speziellen Anforderungen dieser Aufgaben anpaßt.

I. Theoretische Überlegungen

1. Bewegungsgleichungen im Vierpolfeld

Im Massenfilter sind die Ionen einem elektrischen Feld ausgesetzt, das linear von den Koordinaten abhängt. Solche Felder werden durch

[1] PAUL, W., u. H. STEINWEDEL: Z. Naturforsch. **8a**, 448 (1953).

[2] PAUL, W., u. M. RAETHER: Z. Physik **140**, 262 (1955).

[3] PAUL, W., u. H. P. REINHARD: Forsch.-Ber. d. Wirtsch.- u. Verkehrsmin. Nordrhein-Westf., Nr. 450.

[4] PAUL, W., u. H. P. REINHARD: Symposium über Isotopentrennung, Amsterdam 1957.

[5] SMITH, M. L.: Electromagnetically enriched isotopes and mass spectrometry, Proceedings of the Harwell-Conference, Sept. 1955.

ein Potential der Form

$$\varphi = \varphi_0 \cdot (\alpha \cdot x^2 + \beta \cdot y^2 + \gamma \cdot z^2) \tag{1}$$

gegeben, wobei $\alpha + \beta + \gamma = 0$ wegen $\Delta \varphi = 0$ gelten muß. In unserem speziellen Fall wurde $\alpha = -\beta = \frac{1}{r_0^2}$, $\gamma = 0$ gesetzt. (Für Untersuchungen an drei-dimensionalen Vierpolfeldern sei auf die Arbeiten [6,7] verwiesen.) Das Feld wird von Elektroden mit hyperbelförmigem Querschnitt erzeugt (Fig. 1). An den Elektroden liegt die Spannung $\varphi_0 = (U + V \times \cos \omega t)$. Das Potential ist gegeben durch

$$\varphi = (U + V \cdot \cos \omega t) \cdot (x^2 - y^2)/r_0^2 \tag{2}$$

und die Bewegungsgleichungen für ein einfach geladenes Ion lauten

$$m\ddot{x} + 2e\,(U + V \cdot \cos \omega t) \cdot x/r_0^2 = 0 \tag{3}$$

$$m\ddot{y} - 2e\,(U + V \cdot \cos \omega t) \cdot y/r_0^2 = 0 \tag{4}$$

$$m\ddot{z} = 0. \tag{5}$$

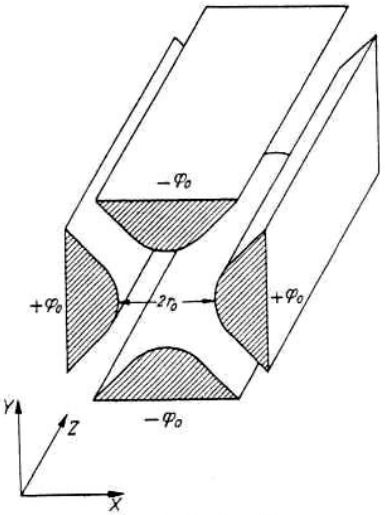

Fig. 1. Elektrodenaufbau

Es soll darauf hingewiesen werden, daß die y-Richtung diejenige ist, in der das Gleichfeld auf die Ionen einen defokussierenden Einfluß hat, während es in x-Richtung fokussierend wirkt.

Gl. (5) ist trivial und besagt lediglich, daß in z-Richtung eingeschossene Ionen sich mit gleichförmiger Geschwindigkeit in z-Richtung durch das Feld bewegen. Die Gln. (3) und (4) beschreiben Schwingungen der Ionen unter dem Einfluß einer periodischen Kraft. Sie sind bekannt als Mathieusche Differentialgleichungen und lassen sich durch die Transformationen

$$\omega t = 2\xi, \quad a = \frac{8eU}{m r_0^2 \omega^2}, \quad q = \frac{4eV}{m r_0^2 \omega^2} \tag{6}$$

vereinfachen zu

$$x'' + (a + 2q \cdot \cos 2\xi) \cdot x = 0 \tag{7}$$

$$y'' - (a + 2q \cdot \cos 2\xi) \cdot y = 0. \tag{8}$$

[6] FISCHER, E., O. OSBERGHAUS, W. PAUL, Forsch.-Ber. d. Wirtsch. Ministeriums Nordrhein-Westfalen Nr. 415.

[7] BERKLING, K.: Der Ionenkäfig als Partialdruckmesser. Diplomarbeit Bonn 1957.

Das Verhalten r Ionen ergibt sich aus den Eigenschafte der Lösungen dieser Schwingungsgleichungen. Beide Bewegungsk nponenten gehorchen der gleichen Differentialgleichung, so daß es genügt, die Mathieusche Differentialgleichung in der Normalform

$$x'' + (a - 2q \cdot \cos 2\xi) \cdot x = 0 \tag{9}$$

zu betrachten [8,9].

2. *Lösungstypen*

Alle Lösungen lassen sich in der Form

$$x = \alpha' \cdot e^{\mu\xi} \sum_{-\infty}^{+\infty} c_{2s}\, e^{2is\xi} + \alpha'' \cdot e^{-\mu\xi} \sum_{-\infty}^{+\infty} c_{2s}\, e^{-2is\xi} \tag{10}$$

darstellen. Es gibt daher 2 Klassen von Lösungen, deren eine stabil genannt wird, da für $\xi \to \infty$ x stets beschränkt bleibt, während bei instabiler Lösung mit $\xi \to \infty$ auch x über alle Grenzen wächst. Welcher Lösungstyp vorliegt, ergibt sich aus der Konstanten μ, die als charakteristischer Exponent bezeichnet wird und eindeutig durch a und q gegeben ist. Man muß folgende Fälle unterscheiden:

a) $\mu = i \cdot \beta$ rein imaginär, β nicht ganz $\to$ Lösung stabil,

b) $\mu = i \cdot n$ rein imaginär, n ganz $\to$ es gibt eine nicht-triviale, beschränkte, periodische Lösung. Jede von dieser linear unabhängige Lösung ist instabil.

c) μ komplex $\to$ Lösung instabil (Ausnahme: Anfangsbedingung $\alpha' = 0$).

3. *Stabilitätsdiagramm*

Der Stabilitätscharakter der Lösungen hängt nur von μ und damit von a und q ab, die die Anfangsbedingungen nicht enthalten. Man kann in der (a, q)-Ebene Gebiete angeben, in denen alle (a, q)-Werte zu stabilen Lösungen führen. Man erhält so das Stabilitätsdiagramm, das in Fig. 2 gleich für den speziellen Fall des Massenfilters gezeichnet ist. Die Bewegung eines Ions ist nämlich nur dann stabil, wenn sich für beide Bewegungskomponenten x und y stabile Bahnen ergeben. Es müssen also sowohl der Arbeitspunkt (a_x, q_x) als auch (a_y, q_y) im stabilen Bereich liegen. Aus den Gln. (7) und (8) erkennt man daß $a_x = -a_y$ und $q_x = -q_y$ ist. Spiegelt man daher die (a, q)-Ebene an der a- und der q-Achse, so fallen die beiden Arbeitspunkte (a_x, q_x) und (a_y, q_y) zusammen und man erhält das Stabilitätsdiagramm in der Form der Fig. 2. Ein Ion wird im Massenfilter also nur stabilisiert, wenn sein

[8] MCLACHLAN, N. W.: Theory and Application of Mathieu-Functions. Oxford 1947.

[9] MEIXNER, J., u. F. W. SCHÄFKE: Mathieusche Funktionen und Sphäroidfunktionen. Berlin 1954.

zugehöriger Punkt (a, q) innerhalb des dreiseitigen Gebietes liegt. Eine theoretisch mögliche Stabilisierung bei sehr viel größeren a- und q-Werten wird hier außer Betracht gelassen.

Verbindet man im Stabilitätsdiagramm die Punkte mit gleichem β, so erhält man die sog. Iso-β-Linien, die ebenfalls in Fig. 2 eingezeichnet sind. Die ausgezogenen Linien gelten für die x-Komponente der Bewegung, die gestrichelten für die y-Komponente. β liegt zwischen 0 und 1.

Alle Ionen gleicher Masse haben bei vorgegebenen Feldgrößen r_0, ω, U, V den gleichen Arbeitspunkt (a, q). Da das Verhältnis $a/q = 2 \cdot U/V$ nicht von der Masse abhängt, liegen alle Ionen verschiedener

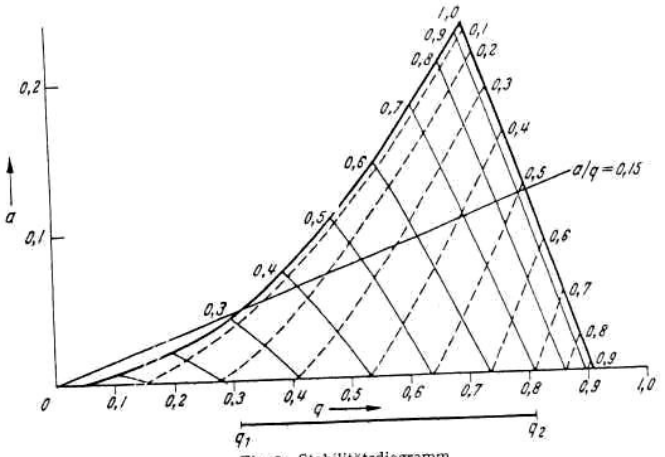

Fig. 2. Stabilitätsdiagramm

Masse im Stabilitätsdiagramm auf einer Geraden durch den Nullpunkt, deren Steigung nur vom Verhältnis der Spannungen U und V abhängt. Stabil sind nur die Ionen, deren Arbeitspunkte im Intervall (q_1, q_2) liegen. Durch Erhöhung des Verhältnisses von U/V läßt sich das stabile q-Intervall, dem eindeutig ein stabiles Massenintervall entspricht, so klein machen, daß nur noch Ionen einer Masse das Feld stabil durchlaufen können. Alle anderen Ionen bewegen sich auf instabilen Bahnen, treffen auf die Elektroden und werden weggefangen. Darauf beruht die Filterwirkung des elektrischen Vierpolfeldes, die sich zum Bau eines Massenspektrometers ausnutzen läßt.

4. *Frequenzspektrum der Lösungen*

Innerhalb des stabilen Bereiches ist $\mu = i \cdot \beta$ mit $0 < \beta < 1$; die Lösung der Bewegungsgleichung (3) hat die Form

$$x = \alpha_{\mathrm{I}} \cdot \sum_{-\infty}^{+\infty} c_{2s} \cdot \cos\left(s + \frac{\beta}{2}\right)\omega t + \alpha_{\mathrm{II}} \cdot \sum_{-\infty}^{+\infty} c_{2s} \cdot \sin\left(s + \frac{\beta}{2}\right)\omega t. \qquad (11)$$

Die Anfangsbedingungen, d.h. die Einschußbedingungen der Ionen, stecken in den Integrationskonstanten α_{I} und α_{II}, während die Koeffizienten c_{2s} und β nur von a und q abhängen. Die Bahnen aller Ionen gleicher Masse unterscheiden sich nur in den Konstanten α_{I} und α_{II} entsprechend den verschiedenen Anfangsbedingungen x_0, $\dot{x}_0$ und $\omega \cdot t_0$. Sie haben alle das gleiche Frequenzspektrum $\omega_0 = \beta/2 \cdot \omega$, $\omega_1 = (1 - \beta/2) \cdot \omega$, $\omega_2 = (1 + \beta/2) \cdot \omega$ usw. Ionen verschiedener Masse haben dagegen verschiedene Arbeitspunkte im Stabilitätsdiagramm und folglich verschiedene Koeffizienten c_{2s} und β. Die Frequenzspektren ihrer Bewegung und insbesondere die Grundfrequenz $\omega_0 = \beta/2 \cdot \omega$ sind daher verschieden.

5. *Einschußbedingungen und maximale Schwingungsamplitude*

Bisher wurde angenommen, daß das Massenfilter zwischen stabilen und instabilen Ionen unterscheidet, wobei die Bahnstabilität eines Ions lediglich vom Arbeitspunkt (a, q) und nicht von seinen Einschußbedingungen abhängt. Soll aber ein stabiles Ion den Auffänger erreichen, so müssen seine Schwingungsamplituden kleiner bleiben als der Abstand r_0 der Elektroden von der Feldachse, d.h. es soll $x_M, y_M < r_0$ sein. Andernfalls entlädt sich auch das stabile Ion auf den Elektroden und geht verloren. Da die maximale Schwingungsamplitude sowohl vom Arbeitspunkt als auch von den Anfangsbedingungen der Ionenbewegung abhängt, ist eine Untersuchung des Einflusses der Einschußbedingungen notwendig.

Aus Gl. (11) entnimmt man, daß die größtmögliche Amplitude

$$|x_M| = \sqrt{\alpha_{\mathrm{I}}^2 + \alpha_{\mathrm{II}}^2} \cdot \sum_{-\infty}^{+\infty} |c_{2s}| \qquad (12)$$

ist. Zwar ist die Lösung $x(\xi)$ im allgemeinen uneigentlich periodisch, doch kann schon nach wenigen Schwingungen die tatsächliche Schwingungsamplitude dieser Maximalamplitude x_M (analog auch y_M) sehr nahe kommen.

Zur Berechnung der $\alpha_{\mathrm{I}}(\xi_0, x_0, x_0')$ und $\alpha_{\mathrm{II}}(\xi_0, x_0, x_0')$ benutzen wir ein Fundamentalsystem von Lösungen $x_{\mathrm{I}}(\xi)$ und $x_{\mathrm{II}}(\xi)$. Aus

$$x(\xi) = \alpha_{\mathrm{I}} \cdot x_{\mathrm{I}}(\xi) + \alpha_{\mathrm{II}} \cdot x_{\mathrm{II}}(\xi) \qquad (13)$$

erhalten wir durch Differenzieren und Einsetzen der Anfangswerte

$$|x_M| = \frac{1}{W} \sum_{-\infty}^{+\infty} |c_{2s}| \cdot \sqrt{[x_0 \cdot x_{\mathrm{II}}'(\xi_0) - x_0' \cdot x_{\mathrm{II}}(\xi_0)]^2 + [x_0' \cdot x_{\mathrm{I}}(\xi_0) - x_0 \cdot x_{\mathrm{I}}'(\xi_0)]^2}, \qquad (14)$$

worin W die Wronskische Determinante ist, die nicht von ξ_0 abhängt. Für ein gegebenes ξ_0 sind $x_{\mathrm{I}}(\xi_0)$, $x_{\mathrm{II}}(\xi_0)$, $x_{\mathrm{I}}'(\xi_0)$ und $x_{\mathrm{II}}'(\xi_0)$ Konstante

und der Ausdruck unter der Wurzel ist eine biquadratische Form in x_0 und x_0'. Setzen wir $x_M = r_0$, so stellt (14) eine Ellipse in einem (x_0, x_0')-Diagramm dar, die bei festem ξ_0 alle Punkte (x_0, x_0') verbindet, für die die maximale Schwingungsamplitude gleich r_0 ist. Liegen die Anfangswerte im Inneren dieser Ellipse, so ist die Maximalamplitude kleiner als r_0. Für verschiedene Phasen erhält man eine Schar von Ellipsen mit ξ_0 als Parameter.

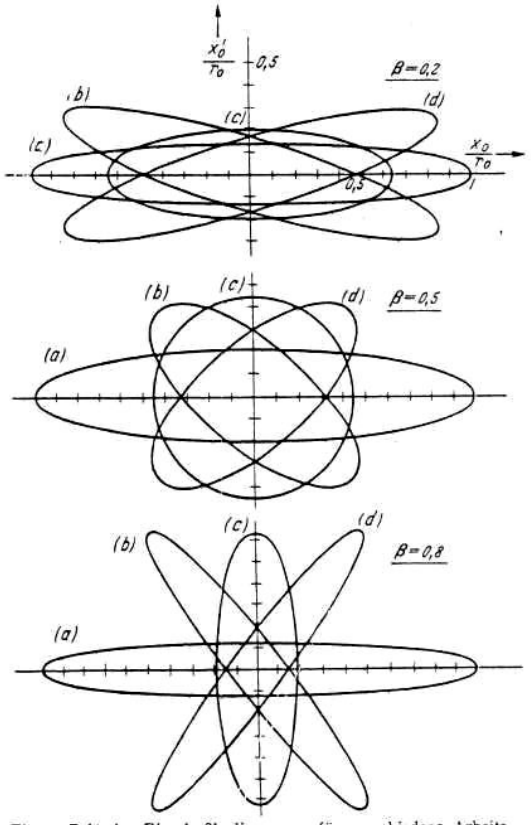

Fig. 3. Zulässige Einschußbedingungen für verschiedene Arbeitspunkte und Einschußphasen. (a) $\xi_0 = \pi/2$. (b) $\xi_0 = 3 \cdot \pi/4$. (c) $\xi_0 = 0$. (d) $\xi_0 = \pi/4$

Diese Berechnungen wurden von FISCHER[6] für $a = 0$ und $\beta = 0{,}2; 0{,}5; 0{,}8$ numerisch durchgeführt. Die Ergebnisse sind in Fig. 3 dargestellt. Man sieht, daß die Maximalamplitude für alle Einschußphasen größer ist als die Anfangskoordinate und nur für $\xi_0 = \frac{\pi}{2}$ gleich dieser sein kann. Daher kann man auch in der Mitte des stabilen Bereiches, d. h. bei bester Fokussierung, nur einen gewissen Teil des gesamten Feldquerschnittes für den Einschuß von Ionen nutzen.

II. Das elektrische Massenfilter als Massenspektrometer

1. Weitere theoretische Betrachtungen

a) Schwingungsamplituden. Die Verwendung des Massenfilters zur Massenspektrometrie setzt voraus, daß mit ihm ausreichend hohe Auflösungsvermögen erzielt und relative Häufigkeiten einzelner Massen in einem Massenspektrum genügend genau gemessen werden können.

Eine Erhöhung des Auflösungsvermögens ist möglich, indem man durch entsprechende Wahl von U/V die Massengerade im Stabilitätsdiagramm steiler macht und damit den Arbeitspunkt immer weiter

hinauf in die Ecke des Stabilitätsdreiecks verlegt. Diese Forderung bedeutet aber eine starke Annäherung des Arbeitspunktes an die Stabilitätsgrenzen, die unvermeidlich die maximalen Schwingungsamplituden stabiler Ionen wachsen läßt.

Um zu quantitativen Aussagen über diesen Effekt zu gelangen, wurden die maximalen Schwingungsamplituden von Ionen mit speziellen Anfangsbedingungen in Abhängigkeit von der Lage des Arbeitspunktes numerisch berechnet. Für Auflösungsvermögen über 70 interessiert nur der Bereich $0{,}69 < q < 0{,}71$ und $0{,}23 < a < 0{,}24$. In diesem Gebiet können die Stabilitätsgrenzen und Iso-β-Linien im Stabilitätsdiagramm als Geraden angenommen werden (s. Fig. 15). Die Spitze des Stabilitätsdreiecks kann man als Schnittpunkt der beiden Grenzkurven berechnen, sie liegt bei

$$q_{\text{grenz}} = 0{,}70600 \quad \text{und} \quad a_{\text{grenz}} = 0{,}23699. \tag{15}$$

Für $q = 0{,}706$ gilt

$$(1 - \beta_x)^2 = (0{,}23699 - a)/1{,}93750 \tag{16}$$

$$\beta_y^2 = (0{,}23699 - a)/0{,}79375. \tag{17}$$

Damit ist innerhalb des stabilen Bereiches eine Beziehung zwischen der Lage des Arbeitspunktes (a, q) und den zugehörigen charakteristischen Exponenten β_x und β_y hergestellt.

Weiterhin wurden aus den Kettenbrüchen[8]

$$\frac{c_{2s}}{c_{2s-2}} = \frac{-q/(2s+\beta)^2|}{1 - a/(2s+\beta)^2} - \frac{q^2/(2s+\beta)^2\,(2s+2+\beta)^2|}{1 - a/(2s+2+\beta)^2} - \frac{q^2/(2s+2+\beta)^2\,(2s+4+\beta)^2|}{1 - a/(2s+4+\beta)^2} - \dots$$

$$\frac{c_{2s}}{c_{2s-2}} = \frac{a - (2s-2+\beta)^2}{q} + \frac{q/(2s-4+\beta)^2|}{1 - a/(2s-4+\beta)^2} - \frac{q^2/(2s-4+\beta)^2\,(2s-6+\beta)^2|}{1 - a/(2s-6+\beta)^2} - \dots$$

die Entwicklungskoeffizienten c_{2s} berechnet. Mit der Normierung $c_0 = 1$ erhält man die Werte:

Tabelle 1

q_y	β_y	c_0	c_{-2}	c_2	c_{-4}	c_4	c_{-6}	c_6
0,705	0,00	1,0	−0,16763	−0,16763	0,00729	0,00729	−0,00014	−0,00014
	0,02		17089	16449	750	708	15	14
	0,04		17427	16145	773	688	15	13
	0,08		18143	15569	821	651	16	12
q_x	β_x							
−0,705	0,92	1,0	0,79504	0,08515	0,06065	0,00254	0,00167	0,00004
	0,96		89098	8288	6990	240	196	4
	0,98		94383	8176	7508	235	212	3
	1,00		1,00000	8065	8065	230	230	3

Unter Benutzung der Gln. (11) bis (14) erhält m. hieraus die maximalen Amplituden stabiler Ionen für verschiedene Lagen des Arbeitspunktes als Funktion der Anfangsbedingungen ωt_0, x_0 und $\dot{x}_0$ (analog y). In Fig. 4 sind die Ergebnisse dargestellt für den Fall achsparallelen Einschusses ($\dot{x}_0, \dot{y}_0 = 0$; $x_0, y_0 \neq 0$) und für Einschuß auf der Feldachse mit Radialgeschwindigkeit der Ionen ($x_0, y_0 = 0$; $\dot{x}_0, \dot{y}_0 \neq 0$). Man erkennt deutlich, daß x_M und y_M umgekehrt proportional $1 - \beta_x$ bzw. β_y wachsen.

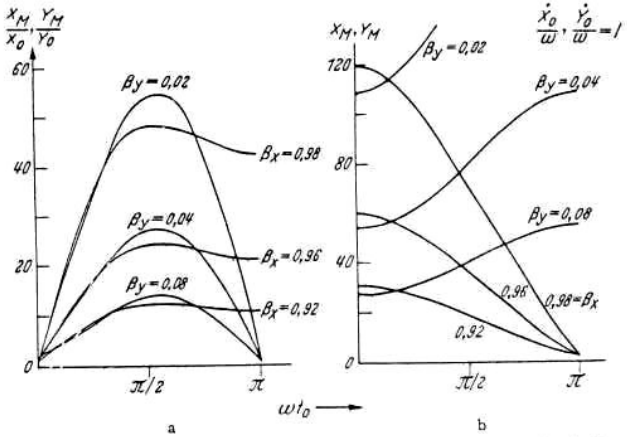

Fig. 4 a u. b. Maximale Schwingungsamplituden bei (a) achsparallelem Einschuß ($\dot{x}_0, \dot{y}_0 = 0$; $x_0, y_0 \neq 0$) und (b) Einschuß auf der Achse mit Radialgeschwindigkeit ($x_0, y_0 = 0$; $\dot{x}_0, \dot{y}_0 \neq 0$)

b) Linienform und Transmission für achsparallelen Einschuß. Die maximale Amplitude x_M, genauer x_M/x_0, ist eine eindeutige Funktion von β. Man kann daher im Stabilitätsdiagramm statt der Iso-β-Linien auch Linien gleichen x_M/x_0 eintragen. Setzen wir $x_M = r_0$, so ist x_0 der größte Abstand des Einschußortes eines stabilen Ions von der Feldachse, den das Ion haben darf, um bei dieser speziellen Lage des Arbeitspunktes im Stabilitätsdiagramm zu jeder Einschußphase das Vierpolfeld passieren zu können (Fig. 5). Bewegen wir uns mit dem Arbeitspunkt also auf der Massengerade in den stabilen Bereich, so wird zunächst von der Stabilitätsgrenze her eine Intensitätszunahme eintreten, da mit zunehmendem Abstand von dieser Grenze auch die weiter außen ins Feld eintretenden Ionen fokussiert werden. Ist die Einschußblende klein (s. unten), werden schließlich alle eintretenden Ionen der stabilen Masse auch den Auffänger erreichen. Bezüglich der eingeschossenen Ionen wäre die Transmission 100% erreicht. Erst bei Annäherung an die zweite Stabilitätsgrenze tritt wieder Intensitätsabnahme ein. Die geschriebene Massenlinie würde in diesem Idealfall eine Trapezkurve sein, worin das Plateau das Gebiet mit Transmission 100% kennzeichnet. Aus Fig. 5 ist auch sofort evident, daß die Flanken der Linie

nicht gleich steil sein werden. — Um die Transmission 100% zu erzielen, hat man entweder das Auflösungsvermögen klein zu machen (Massengerade flach) oder entsprechend kleine Blenden zu verwenden (Einschränkung der Einschußbedingungen). Man findet also folgende zwei Arbeitsbereiche:

a) Bei niedrigem Auflösungsvermögen Trapezkurven mit Transmission 100%. Dabei ist insbesondere die maximale Intensität unabhängig vom Auflösungsvermögen.

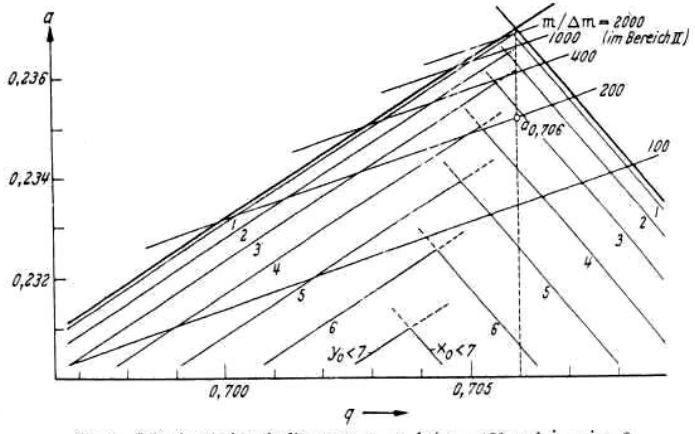

Fig. 5. Zulässige Anfangsbedingungen x_0, y_0 bei $r_0 = 100$ und $\dot{x}_0 = \dot{y}_0 = 0$

b) Bei hohem Auflösungsvermögen geht die Linienform in Dreieckskurven über, die Intensität nimmt ab und wird umgekehrt proportional dem Auflösungsvermögen.

Geringe Radialgeschwindigkeiten der eintretenden Ionen werden an dem Bild nichts Prinzipielles ändern. Man wird aber den zusätzlichen, unter Umständen defokussierenden Einfluß der Radialgeschwindigkeiten dadurch spüren, daß man die Transmission 100% nur bei geringerem Auflösungsvermögen erhält.

Geben wir $\beta_{x,y}$ und $x_M = r_0$ fest vor, so gibt es eine obere Grenze $x_0 = f(\omega t_0)$, für welche das Ion das Vierpolfeld gerade noch passieren kann. Durch Mittelung über alle Einschußphasen können wir aus der Fig. 4 die Wahrscheinlichkeit entnehmen, daß ein „stabiles" Ion mit den Anfangsbedingungen x_0 und y_0 ($\dot{x}_0 = \dot{y}_0 = 0$) das Feld durchqueren kann (Fig. 6). Sie fällt oberhalb eines bestimmten Wertes x_0, y_0, der von β und r_0 abhängt, steil ab. Somit ist es naheliegend, die Anfangsbedingungen der Ionen durch eine Einschußblende mit geeignetem Durchmesser Φ einzuschränken. Um eine Abschätzung für den zulässigen Durchmesser Φ zu finden, brauchen wir die Abhängigkeit des

Auflösungsvermögens von der Lage des Arbeitspunktes im Stabilitätsdiagramm.

c) Auflösungsvermögen. Als Maß für das Auflösungsvermögen benutzen wir die Halbwertsbreite Δm der Linie m. Gehen wir weit in den Bereich I, wo an den Trapezkurven die Flanken sehr schmal sind gegenüber der Breite der ganzen Linie, so ist die Halbwertsbreite praktisch gleich der ganzen Linienbreite. Bezeichnen wir die Ordinate der Massengerade im Stabilitätsdiagramm für $q = 0{,}706$ mit $a_{0,706}$ (s. Fig. 5), so gilt im Bereich I:

$$\frac{m}{\Delta m} = \frac{0{,}178}{0{,}23699 - a_{0,706}}\,^{\star}. \tag{18}$$

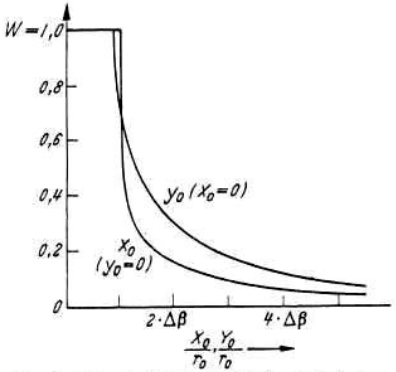

Fig. 6. Wahrscheinlichkeit W dafür, daß ein Ion mit x_0 und y_0 ($\dot{x}_0 = \dot{y}_0 = 0$) das Feld durchqueren kann (mit $\Delta\beta = \beta_y$, bzw. $(1-\beta_x)$

Im Bereich II, der für hohes Auflösungsvermögen interessiert, haben wir Dreieckskurven, bei denen die Halbwertsbreite nahezu gleich der halben Fußbreite ist. Es gilt analog

$$\frac{m}{\Delta m} = \frac{0{,}357}{0{,}23699 - a_{0,706}}. \tag{19}$$

Über die Gln. (16) bis (19) ist nunmehr das Auflösungsvermögen auch mit β und x_M, y_M verknüpft. Für den Bereich II leitet sich hieraus für achsparallelen Einschuß der Ionen ab, daß

$$\frac{x_M}{x_0}, \frac{y_M}{y_0} < 1{,}8\sqrt{\frac{m}{\Delta m}} \tag{20}$$

ist. Die maximale Amplitude wächst also nur mit der Wurzel aus dem Auflösungsvermögen, was für eine Steigerung des Auflösungsvermögens Bedeutung hat. — Mit $x_M = y_M = r_0$ folgt der optimale Durchmesser der Einschußblende zu

$$\Phi \approx \frac{r_0}{\sqrt{m/\Delta m}}. \tag{21}$$

Bei Einschuß auf der Achse mit Radialgeschwindigkeit folgt wiederum aus den Gln. (16) bis (19) und der Fig. 4 die zulässige Radialgeschwindigkeit stabiler Ionen

$$\dot{x}_M, \dot{y}_M < 0{,}16 \cdot r_0 \cdot \omega \sqrt{\frac{\Delta m}{m}}. \tag{22}$$

Voraussetzung für (18) und (19) ist, daß die Ionen eine gewisse Zeit im Feld verweilen. Denn um die Amplituden instabiler Ionen so weit aufzuschaukeln, daß sie schließlich auf den Elektroden ausgeschieden

* Übereinstimmend mit Gl. (9) der Arbeit von PAUL und RAETHER[2].

werden, bedarf es einer bestimmten Anzahl n von Hochfrequenzperioden. Diese Zahl n hängt vom gewünschten Auflösungsvermögen ab und liefert eine obere Grenze für die Einschußgeschwindigkeit der Ionen. In einer vorangegangenen Untersuchung[10] wurde bei Auflösungsvermögen um 100 experimentell

$$n \approx 3{,}5 \cdot \sqrt{m/\Delta m} \tag{23}$$

gefunden.

d) Formeln zur Berechnung des Massenfilters. Notwendige Hochfrequenz- und Gleichspannung in der Ecke des Stabilitätsbereiches ($a = a_g$, $q = q_g$ und A = Atomgewicht des stabilisierten Ions):

$$V = 7{,}219 \cdot A \cdot \nu_{\mathrm{Mhz}}^2 \cdot r_{0\,\mathrm{cm}}^2 \quad \text{Volt}$$

$$U = 1{,}212 \cdot A \cdot \nu_{\mathrm{Mhz}}^2 \cdot r_{0\,\mathrm{cm}}^2 \quad \text{Volt}$$

Verhältnis U/V in der Ecke des Stabilitätsbereiches $= a_g/2q_g$:

$$\frac{U_g}{V_g} = 0{,}16784 = 1/5{,}9581.$$

Aufzuwendende Hochfrequenzleistung (C = Kapazität des Systems, Q = Güte des Leistungskreises):

$$N = 6{,}5 \cdot 10^{-4}\,\frac{C_{pF}\,A^2 \cdot \nu_{\mathrm{Mhz}}^4\, r_{0\,\mathrm{cm}}^4}{Q} \quad \text{Watt}.$$

Optimaler Durchmesser der Einschußblende:

$$\Phi \approx \frac{r_0}{\sqrt{m/\Delta m}}.$$

Bei Einschuß auf der Feldachse werden stabile Ionen mit Radialenergien kleiner als U_r fokussiert:

$$U_r \approx \frac{V}{15 \cdot (m/\Delta m)}.$$

Für ein bestimmtes Auflösungsvermögen müssen die Ionen n Hochfrequenzperioden im Vierpolfeld erleben:

$$n \approx 3{,}5 \cdot \sqrt{m/\Delta m}.$$

Maximale Beschleunigungsspannung U_B der Ionen (L = Länge des Feldes):

$$U_B^{\max} \approx 4{,}2 \cdot 10^2 \cdot \nu_{\mathrm{Mhz}}^2 \cdot L_m^2 \cdot A \cdot \frac{\Delta m}{m} \quad \text{Volt}.$$

e) Notwendige Genauigkeit bzw. Konstanz. Das Verhalten des Massenfilters ist weitgehend durch die Lage des Arbeitspunktes im

[10] ZAHN, U. v.: Diplomarbeit Bonn 1956 (unveröffentlicht).

Stabilitätsdiagramm bestimmt, d.h. wir müssen die Parameter a und q auf etwa $1:(2 \cdot m/\Delta m)$ ihres Betrages stabilisieren.

Aus (6) folgt dann, daß die HF-Amplitude V und die Gleichspannung U besser als $1:(2 \cdot m/\Delta m)$ stabilisiert, die Frequenz ν und der Feldradius r_0 besser als $1:(4 \cdot m/\Delta m)$ konstant sein müssen. Für die Praxis ist wichtig, daß kurze, räumlich begrenzte Fehler im Feldradius das Stabilitätsverhalten der Ionen nicht wesentlich beeinflussen können; denn eine Verschiebung des Arbeitspunktes im Stabilitätsdiagramm kann sicher nur durch Feldfehler hervorgerufen werden, die über *viele* Hochfrequenzperioden wirken.

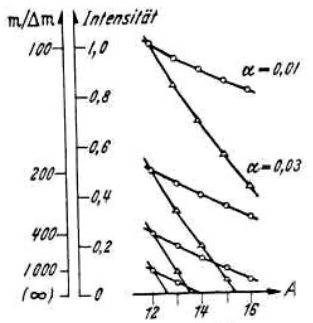

Fig. 7. Veränderung von Auflösungsvermögen und Ionenstrom am Auffänger im Bereich II bei $U \sim V^{1+\alpha}$

Neben der eingangs erwähnten Möglichkeit, U und V konstant zu halten und mittels Variation von ν die Massen nacheinander durch den stabilen Bereich zu führen, besteht natürlich auch die Möglichkeit, ν konstant zu halten und U und V zu ändern. Hierbei soll das Verhältnis U/V konstant bleiben. Würde sich z.B. bei Erhöhen von V langsam U/V vergrößern, so würde sich im Stabilitätsdiagramm die Massengerade dem Grenzwert (a_g, q_g) nähern oder sogar über ihn weglaufen. Im Bereich II würden dadurch die Intensitätsverhältnisse zweier Massen verfälscht, da mit der Annäherung an den Grenzwert das Auflösungsvermögen wächst und zugleich im Bereich II die Intensität

$$I \sim \frac{1}{m/\Delta m} \tag{24}$$

ist, wie sich theoretisch und praktisch (Fig. 10) zeigen läßt. Ist I_2^0/I_1^0 das wahre Häufigkeitsverhältnis der Massen A_2 und A_1 und I_2/I_1 das gemessene, so gilt

$$\frac{I_2^0/I_1^0 - I_2/I_1}{I_2^0/I_1^0} = \frac{(U/V)_{A_2} - (U/V)_{A_1}}{U_g/V_g - (U/V)_{A_1}}. \tag{25}$$

Für eine Näherung nehmen wir $U \sim V^{1+\alpha}$ an, mit $\alpha > 0$. Dann folgt aus (25)

$$\frac{I_2^0/I_1^0 - I_2/I_1}{I_2^0/I_1^0} = \frac{A_2^\alpha - A_1^\alpha}{\dfrac{0{,}1678}{c \cdot k^\alpha} - A_1^\alpha} \quad \text{mit} \begin{cases} U = c \cdot V^{1+\alpha} \\ V = k \cdot A. \end{cases} \tag{26}$$

Denken wir uns z.B. ein „Normal"-Spektrum gegeben, in dem die Massen 12 bis 16 mit gleicher Häufigkeit vorkommen und normieren die bei $m/\Delta m = 100$ gemessene Intensität der Masse 12 zu 1, so zeigt Fig. 7 die Abnahme der gemessenen Intensität zu höheren Massen hin

unter der Annahme verschiedener α, wie sie aus (26) berechnet wurde. Mittels (24) können wir statt der Intensitätsskala auch eine in $m/\Delta m$ geeichte anbringen.

2. *Apparatur*

a) Wahl der Parameter. Als Testobjekt für das erreichte Auflösungsvermögen sollte das Massendublett Methan ($A = 16{,}0364$) — Sauerstoff verwandt werden. Das Massenspektrum des Methans (Masse 12 bis 16) ist gut bekannt und eignet sich für Messungen von Intensitätsverhältnissen.

Um das Dublett aufzulösen, reicht sicher $m/\Delta m = 1500$, auf diesen Wert wurde daher die Apparatur ausgelegt. Die kritischste Größe ist der Feldradius r_0. Er soll auf $\pm 10^{-4}$ seines Betrages stimmen. Nimmt man an, daß man den Durchmesser D der Stäbe des Vierpolsystems auf $\pm {}^1/_{100}$ mm genau drehen kann, so muß r_0 (mit $\Delta r_0 = 0{,}2 \cdot \Delta D$) etwa 1,5 cm sein, um die oben geforderte Genauigkeit einhalten zu können.

Die in der Mathieuschen Differentialgleichung vorausgesetzten Hyperbelflächen als Randbedingung lassen sich in der Praxis nicht mit genügender Genauigkeit realisieren. Man ersetzt sie durch Stäbe mit kreisförmigem Querschnitt und es wurde von DAYTON, SHOEMAKER und MOZLEY[11] gezeigt, daß ein Verhältnis von $r_{\text{Stab}}/r_{\text{Feld}} = 1{,}16$ das Hyperbelfeld am besten annähert, d.h. das größte Gebiet um die Achse liefert, in dem der Feldstärkegradient konstant ist. Dieses Verhältnis wurde daher auch in der vorliegenden Apparatur verwendet.

Die Ionen sollen $3{,}5 \cdot \sqrt{1500} = 140$ Hochfrequenzperioden im Vierpolfeld verweilen, was bei gegebener Beschleunigungsspannung der Ionen $U_D = 75$ V zu einem Kompromiß zwischen der Länge L des Feldes und der Frequenz ν führt. Das Feld soll aus Justiergründen möglichst kurz sein und die Frequenz möglichst niedrig, da die notwendige HF-Leistung $N \sim \nu^5$ (!) ist. Wir wählten $L = 1$ m und $\nu = 4$ Mhz. Dann wird für Masse 16 die HF-Leistung etwa 300 W und die HF-Amplitude V etwa 4 kV. — Die optimale Einschußblende hat den Durchmesser $\Phi = 0{,}4$ mm, die zulässigen Radialenergien liegen unter 0,15 eV.

b) Beschreibung der Apparatur. Die Ionen werden in einer Elektronenstoß-Ionenquelle (Fig. 8) erzeugt. Sie ist mechanisch und in ihrer Stromversorgung so einfach wie möglich gehalten. Lediglich zur langfristigen Stabilisierung des Heizstromes der Kathode wurden Eisen-Wasserstoff-Widerstände eingefügt. Die Beschleunigungsspannung der Ionen braucht ohnehin nicht stabilisiert zu sein, man kann sogar mit Netz-Wechselspannung beschleunigen. Zur bequemeren Justierung der

[11] DAYTON, I. E., F. C. SHOEMAKER u. R. F. MOZLEY: Rev. Sci. Instrum. 25, 485 (1954).

Einschußblende in die Feldachse ist die Blende samt Ionenquelle senkrecht zur Feldachse verschiebbar. — Zwischen der geerdeten Einschußblende und dem eigentlichen Vierpolfeld entsteht notwendigerweise ein nicht näher bekanntes Übergangsfeld. Um seinen Einfluß auf die Ionenbahn möglichst klein zu halten, wurde durch eine „Kanüle" eingeschossen, die in das Stabsystem hineinragt.

Die Stäbe des Vierpolsystems sind aus Messing und wurden nach dem Drehen keiner besonderen Oberflächenbehandlung mehr

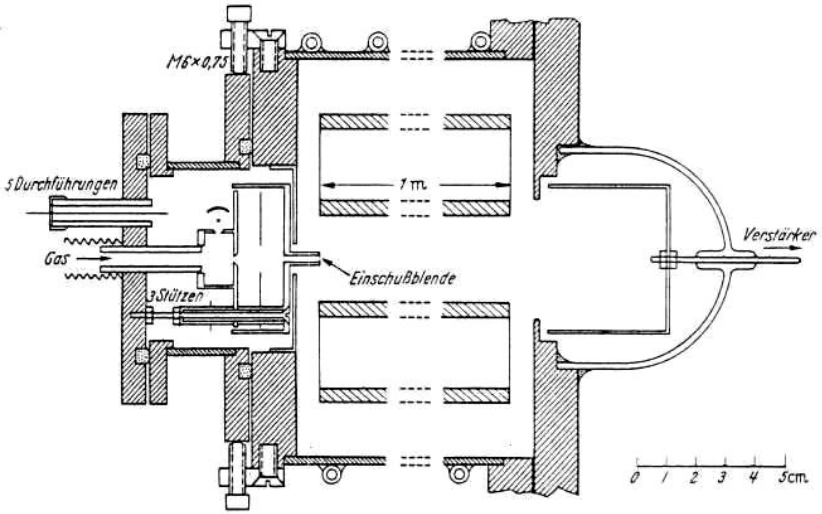

Fig. 8. Ionenquelle und Auffänger

unterzogen. Sie sind an drei Stellen gehaltert, die Halterungen bestehen aus 1 cm starken Erganplatten. An ihnen sind die Stäbe mittels aufgesetzter Messingklötzchen justierbar angeschraubt. Die Justierung der Stababstände erfolgt mit kreuzförmigen Lehren, deren Schenkel eine Stärke von 1,073 cm haben. Zusammen mit dem gemittelten Stabdurchmesser von 3,389 cm erhält man einen (rechnerischen) Feldradius von 1,461 cm.

In einigen cm Abstand vom Systemende befindet sich ein großflächiger Auffänger für den anschließenden Schwingkondensator-Verstärker, welcher mit einem Schreiber verbunden ist. Bei einem Eingangswiderstand von $10^{10}\,\Omega$ stehen Meßbereiche von 10^{-10}, 10^{-11}, 10^{-12} A Vollausschlag zur Verfügung. Ein Einfluß der Hochfrequenzamplitude auf den Nullpunkt des Schwingkondensator-Verstärkers konnte fast ganz unterdrückt werden.

Die Hochfrequenz wird in einer fremderregten Gegentaktstufe erzeugt, deren Schwingkreiskapazität das Vierpolsystem bildet (Fig. 9).

Das überlagerte Gleichfeld U wird über induktive Spannungsteiler direkt aus der Hochfrequenz erzeugt. Die verwendete Schaltung braucht zwar gegenüber der in den Arbeiten[2,10] verwandten zwei Hochspannungskondensatoren mehr, hat aber den Vorteil, daß die abgegriffene Gleichspannung eine lineare Kennlinie bezüglich des Abgriffs an R hat. Die Regelung und Symmetrisierung des Gleichfeldes geschieht mit den eingezeichneten Widerständen (Helipots), je einem für die Komponenten U^+ und U^-. Dabei entspricht der Änderung eines Helipots um einen Skalenteil eine des effektiven Gleichfeldes um $10^{-4} \cdot U$. Die Stabilisierung der Hochfrequenzamplitude erfolgt durch Regelung

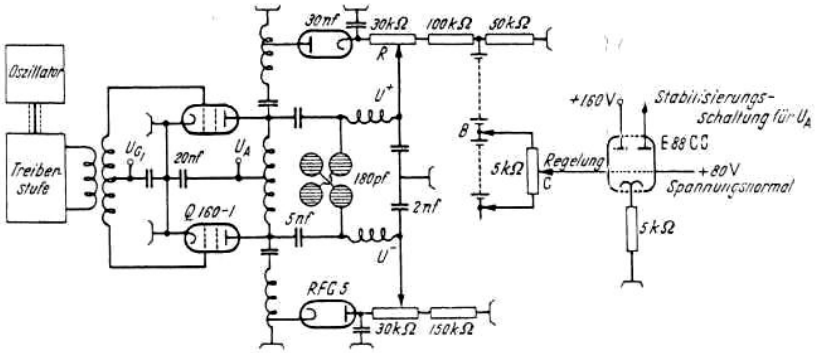

Fig. 9. Elektrische Schaltung

der Anodenspannung. Die HF-Amplitude wird auf $\pm 1{,}5 \cdot 10^{-4}$ ihres Sollbetrages konstant gehalten und kann in weiten Grenzen mit verschiedener Geschwindigkeit automatisch geändert werden.

Ein besonderes Problem bildet die Symmetrisierung des Feldes, d.h. die Forderung, daß die Achse des Vierpolsystems stets auf Erdpotential liegen soll. Denn die Einschußbedingungen werden modifiziert, wenn z.B. die Ionenquelle auf Erdpotential liegt, die Vierpolachse aber auf + 100 V. Man wird also darauf achten, daß sowohl U als auch V symmetrisiert sind. Hierbei ist die HF-Amplitude V für eine direkte Kontrollmessung schon relativ hoch (4 kV) und gleichzeitig die Kapazität des Systems klein. Es wurde daher an einem Ende des Systems ein 30 cm langer Draht mittels kleiner Scheiben in der Feldachse aufgespannt und die Hochfrequenz so eingestellt, daß die Spannung an diesem Draht ein Minimum wurde. Da eine Unsymmetrie des Feldes hauptsächlich die Anfangsbedingungen der Ionenbewegungen beeinflußt, ändert sich nichts an der Trennung der Ionen, lediglich die Transmission wird verschlechtert.

3. *Experimente und Ergebnisse*

a) Messungen bei niedrigem Auflösungsvermögen ($m/\Delta m < 80$). Ein weites Gebiet der Anwendungen von Massenspektrometern beruht auf der Möglichkeit, mit ihnen relative Häufigkeiten von Massen in Massengemischen messen zu können. Im Falle des elektrischen Massenfilters

wäre der am Auffänger gemessene Ionenstrom ein relatives Maß für die Häufigkeit einer Masse, vorausgesetzt, daß zwischen ihm und dem in das Filter eingeschossenen Strom eine eindeutige, reproduzierbare Beziehung besteht. Dies ist aber bei Transmission 100% sicher der Fall.

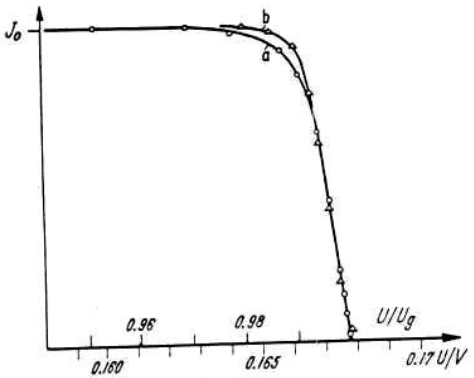

Fig. 10. Ionenstrom in Abhängigkeit vom überlagerten Gleichfeld U, gemessen an (a) CH^+, $\Phi = 0{,}45$ mm, (b) CH_4^+, $\Phi = 0{,}30$ mm

Hierzu wurden am Methanspektrum folgende Versuche gemacht: Es wurde die Intensität der Linien 13 und 15 in Abhängigkeit vom überlagerten Gleichfeld gemessen. Das Ergebnis zeigt Fig. 10 (mit normiertem Ionenstrom I_0). Deutlich voneinander getrennt erscheinen der Bereich II mit seiner linearen Intensitätszunahme vom Bereich I, in dem eine weitere Erniedrigung des Gleichfeldes U, d. h. Verbesserung der Stabilisierungseigenschaften, keinen weiteren Intensitätsanstieg mehr bewirken kann, da die Transmission 100% bereits bei etwa $0{,}98 \cdot U/U_{grenz}$ erreicht ist. — Der Übergang von Bereich I nach II kann aber auch an den Linien selbst gesehen werden, da bei der angewandten Art der Gleichfelderzeugung U/V nicht völlig konstant ist, sondern mit wachsendem V, also zu höheren Massen hin, ein wenig zunimmt. Man erkennt dies deutlich an Fig. 11, einem Methanspektrum. Hier liegt bei Masse 12 und 13 der Arbeitspunkt noch im Bereich I und verschiebt sich mit höheren Massen nach II, erkenntlich an den höheren Auflösungsvermögen der Linie 16, ihrer Dreiecksform und der zunehmenden Verfälschung der wahren Häufigkeitsverhältnisse. Hat die Linie CH ($A = 13$) noch die Transmission 100%, so fehlen an CH_2 4%, an CH_3 30% und an CH_4 schon 70%. Diese Verfälschung ist an sich kein spezifisches Zeichen für den Bereich II,

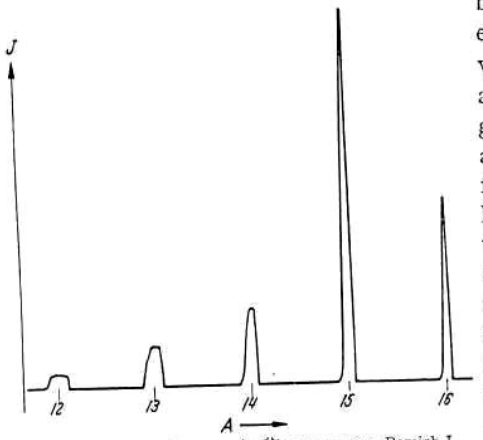

Fig. 11. Methanspektrum mit Übergang von Bereich I nach II

sondern wird erst dadurch bewirkt, daß U/V nicht exakt konstant ist, was allerdings nur im Bereich II die Intensität beeinflußt.

Die Änderung von U/V wird hervorgerufen durch die Krümmung der Kennlinie der Diode, die das Gleichfeld U^+ erzeugt. α wurde zu $0{,}038 \pm 0{,}002$ bestimmt und später verbessert.

Massenverhältnisse und Reproduzierbarkeit. Für die Anwendung des Massenfilters als Massenspektrometer ist es wichtig zu wissen, wie genau Häufigkeitsverhältnisse reproduziert werden. Zur Beantwortung dieser Frage wurde das Methanspektrum mehrere Male hintereinander durchgefahren, wobei gleichzeitig das Auflösungsvermögen geändert wurde. Da aus Untersuchungen an Elektronenstoß-Ionenquellen magnetischer Massenspektrometer bekannt ist, daß die Häufigkeitsverhältnise von der Geometrie der Ionenquelle, ihrer Temperatur und den angelegten Spannungen mehr oder weniger abhängen, wurde während dieses Versuches daran nichts geändert. Dennoch stieg im Verlauf des rund 75 min-Versuches die Intensität um 9%. Dieser langfristige Anstieg ist bei der Berechnung der relativen Häufigkeiten berücksichtigt. Eins der Spektren zeigt Fig. 12, die Ergebnisse der Häufigkeitsmessungen sind in Tabelle 2 zusammengefaßt:

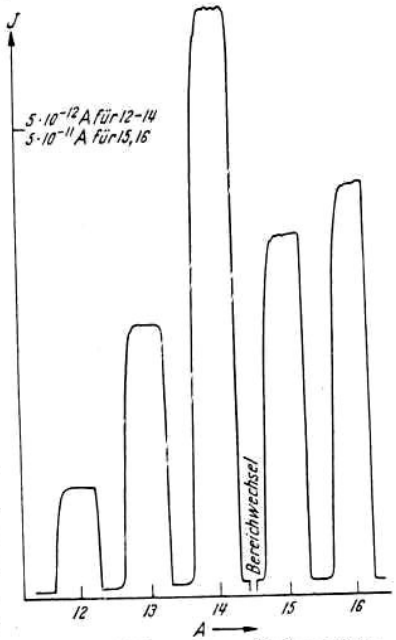

Fig. 12. Methanspektrum (Spektrum D der Tabelle 2)

Tabelle 2

Masse	A	B	C	D	E	Mittel und mittlere Fehler
16	100					
15	86,6	87,3	87,3	87,0	87,2	$87{,}18 \pm 0{,}15$
14	13,8	14,3	14,4	14,5	14,5	$14{,}30 \pm 0{,}13$
13	6,35	6,48	6,53	6,58	6,59	$6{,}51 \pm 0{,}05$
12	2,65	2,63	2,60	2,60	2,60	$2{,}62 \pm 0{,}02$
$m/\Delta m$ bei Masse 16	46	47	45	30	22	

Die Unterschiede in den gemessenen Häufigkeiten sind so klein, daß sie sich zwanglos durch kleine Schwankungen im Betrieb der Ionenquelle

und des Nachweisverstärkers sowie der Ablesegenauigkeit an der Schreiberkurve erklären lassen. Ein Einfluß des Vierpolfeldes ist bei diesen Messungen nicht zu erkennen.

Daß der Einfluß der *Ionenquelle* auf die gemessenen Häufigkeiten recht groß ist, veranschaulicht Tabelle 3. In der ersten Spalte stehen die an einem Consolidatet-21-102-Massenspektrometer[12] gemessenen Häufigkeitsverhältnisse des Methanspektrums, in der zweiten die eines Westinghouse-LV-Massenspektrometers[13] bei verschiedener Elektronen-Beschleunigungsspannung. Es folgen Messungen von OSBERGHAUS und TAUBERT[14] und am Massenfilter erhaltene Ergebnisse.

Tabelle 3

Masse	Consolidatet		WESTINGHOUSE		OSBERGHAUS	v. ZAHN
16	100					
15	84,8	85,9	75,4	76,0	80,5	87,2
14	15,8	16,1	7,52	7,40	10,5	14,3
13	7,84	8,09	2,93	2,93	4,4	6,51
12	2,36	2,80	0,82	0,96	1,2	2,62
Elektronenenergie	50	70	50	75 eV		

Weiterhin wurde am Häufigkeitsverhältnis der Massen 12 und 13 genauer nachgeprüft, ob dieses Verhältnis vom Auflösungsvermögen unabhängig ist. Es wurde das Auflösungsvermögen zwischen 16 und 80, also um den Faktor 5, variiert und das Verhältnis I_{12}/I_{13} bestimmt.

Tabelle 4

$m/\Delta m$ bei Masse 13	17,2	21,5	21,5	29,2	29,4	29,9	30,2	30,2	41,8	53,7	63,4	80,2
$m/\Delta m$ bei Masse 12	15,9	19,6	20,0	26,1	25,7	26,0	26,8	27,1	34,9	41,5	47,5	56,5
I_{12}/I_{13} in %	39,5	39,3	39,6	39,4	39,9	40,5	39,8	41,7	39,6	40,1	40,2	39,6

Der Mittelwert der Messungen ist

$$I_{12}/I_{13} = 0{,}399 \pm 0{,}002 \qquad (m/\Delta m = 16 \ldots 80).$$

Ein systematischer Gang des Häufigkeitsverhältnisses mit dem Auflösungsvermögen ist nicht zu erkennen; der Bereich I ist also durchaus dazu geeignet, in ihm Häufigkeitsmessungen durchzuführen. Ihre Güte hängt von der Konstanz der Ionenquelle und des Nachweisverstärkers ab, nicht aber vom Vierpolfeld.

[12] Mass Spectral Data, Americ. Petrol. Inst. Research Project, Serial No. 1.
[13] Mass Spectral Data, Americ. Petrol. Inst. Research Project, Serial No. 60.
[14] OSBERGHAUS, O., u. R. TAUBERT: Z. phys. Chem. N. F. **4**, 5/6 (1955).

Einfluß des Gasdruckes. Im Unterschied zum magnetischen Massenspektrometer gestattet es das Massenfilter, bei höheren Restgasdrucken zu arbeiten. Denn die Eigenschaft eines Ions, stabil oder instabil zu sein, wird durch einen Stoß mit einem Restgasmolekül in erster Näherung nicht geändert (abgesehen von Umladungen). Wir erwarten daher, daß die charakteristischen Linienverbreiterungen durch Restgas, wie sie von magnetischen Massenspektrometern her bekannt sind[15], beim Massenfilter wesentlich schwächer sind.

Zur Untersuchung der Linienflügel wurden in einem empfindlichen Meßbereich der Fuß einer Linie bei einem Druck von $8{,}5 \cdot 10^{-5}$ Torr und dem Auflösungsvermögen 40 genau gemessen (Fig. 13). Anschließend wurde durch verstärkten Einlaß des Testgases Methan der Gasdruck in der ganzen Apparatur auf $6{,}5 \cdot 10^{-4}$ Torr erhöht, wobei keine Verbreiterung der Linie eintrat.

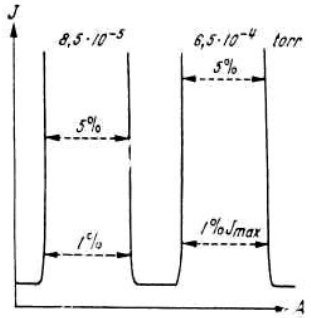

Fig. 13. Linienflügel bei verschiedenem Gasdruck, gemessen an Masse 15 (CH_3) bei $m/\Delta m = 40$

Zur Bestimmung des Gasdruckes, bei dem man den größten Ionenstrom auf den Auffänger bekommt, wurde die Ionenquelle vom Vierpolfeld durch Blenden getrennt. In Fig. 14 sind die Drucke in beiden Räumen bei Einlaß von Ammoniak, sowie die Intensität der Linie 16 am Auffänger aufgetragen gegen den Druck im Vorratsbehälter des Gaseinlaßsystems. Der Laufweg der Ionen im höheren Druck der Ionenquelle war bei diesem Versuch 13 cm, im Feldraum etwa 150 cm. Wir erhielten maximale Intensität bei einem Druck in der Ionenquelle von $3{,}4 \cdot 10^{-4}$ Torr (freie Weglänge der untersuchten Ionen = 14 cm). Hierbei stellte sich im Feldraum ein Druck von $1{,}7 \cdot 10^{-5}$ Torr ein (freie Weglänge = 280 cm).

Einfluß der Einschußbedingungen auf den Bereich I. Eine wichtige Frage ist, bis zu welchem Auflösungsvermögen sich der Bereich I erstreckt. Man entnimmt der Fig. 11 und den Kurven der Fig. 10, daß er hier experimentell bis zum Auflösungsvermögen 80 reicht. Dies ist leider sehr viel weniger, als aus Fig. 5 theoretisch für die verwendete Blende von $\Phi = 0{,}3$ mm abzuleiten ist. Außerdem sehen wir, daß diejenige Flanke jeder Linie, die zu niedrigerer Masse zeigt — es ist die, bei der der zugehörige Arbeitspunkt durch die Y-Stabilitätsgrenze läuft —, sehr viel flacher und runder ist als die andere. Ersichtlich hängen beide Effekte eng zusammen, denn wäre die Flanke steiler, so würde man auch bei schmäleren Linien, d. h. höherem $m/\Delta m$, Trapezkurven erhalten.

[15] EHRENBERG, H.: Z. Physik **134**, 317 (1953).

Um diesen Befund zu untersuchen, kann man die maximalen Amplituden berechnen, die Ionen in beiden Komponenten haben, die mit Radialgeschwindigkeiten ins Vierpolfeld eintreten. Die Fig. 15 erhält man unter Verwendung der Parameter $r_0 = 14{,}6$ mm, $\nu = 4$ Mhz, $A = 16$ und den Einschußbedingungen $x_0 = y_0 = 0{,}1$ mm, $\dot{x}_0 = \dot{y}_0 \triangleq 0 \ldots 1{,}6$ eV. Aufgetragen sind die Maximalamplituden in X- und Y-Richtung für

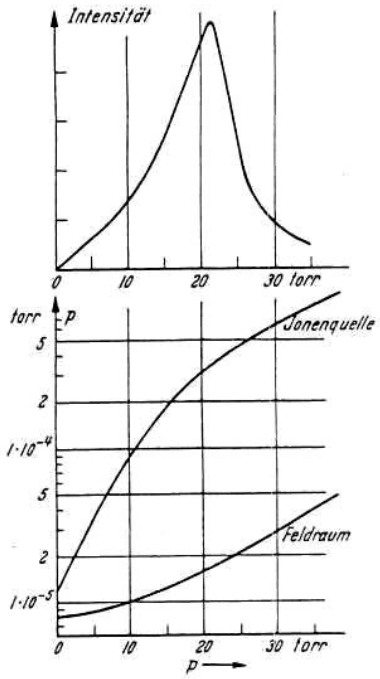

Fig. 14. Ionenstrom am Auffänger in Abhängigkeit vom Gasdruck

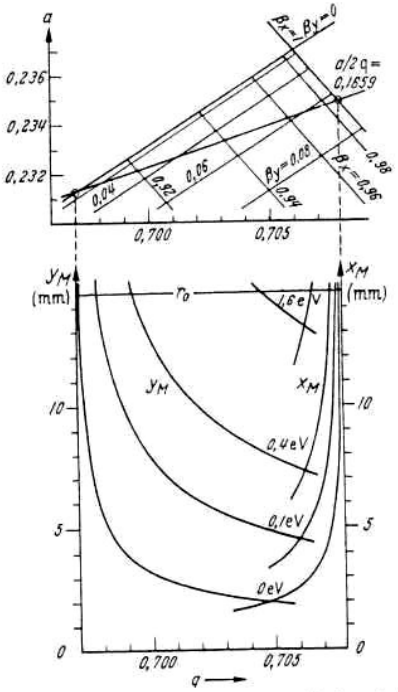

Fig. 15. Maximale Schwingungsamplituden bei $x_0 = y_0 = 0{,}1$ mm und $\dot{x}_0, \dot{y}_0 \triangleq 0$ bis 1,6 eV

den Fall, daß die Arbeitspunkte auf der Massengerade mit $U/V = a/2q = 0{,}1659$ liegen. Sie liefert das höchste Auflösungsvermögen, bei dem noch Transmission 100% gefunden wurde. — Qualitativ sieht man, daß tatsächlich die Amplituden in Y-Richtung durch Radialenergien stärker wachsen als die in X-Richtung, d.h. die zugehörige Linienflanke noch flacher wird. Quantitativ aber muß man eine Radialenergie der Größe 1 eV voraussetzen, um hieraus erklären zu können, daß die Transmission schon bei $m/\Delta m > 80$ unter 100% absinkt.

Es wurden verschiedene Versuche unternommen, die Ursache dieser hohen Radialenergie zu ergründen, doch führten sie zu keinem Ergebnis. Möglicherweise wird der Effekt durch das Übergangsfeld zwischen geerdeter Einschußblende und richtigem Vierpolfeld verursacht.

b) **Messungen bei hohem Auflösungsvermögen.** Das theoretisch abgeleitete Auflösungsvermögen wurde experimentell erreicht. Fig. 16a zeigt das Dublett $O^{16}-C^{12}H_4^1$ mit einem Auflösungsvermögen 1500. Die verwendete Beschleunigungsspannung der Ionen war 68 V, wobei die Ionen $n = 140$ HF-Perioden im Vierpolfeld verweilen. Aus Gl. (23) folgt ein $n_{\min} = 135$, so daß deren Gültigkeit auch bei diesem Auflösungsvermögen gezeigt ist. Der Druck in der Ionenquelle und im Feldraum betrug $4 \cdot 10^{-5}$ Torr. Fig. 16b zeigt dieses Dublett bei geringerer Auflösung in einem zehnfach unempfindlicheren Meßbereich zur Verbesserung des Untergrundes.

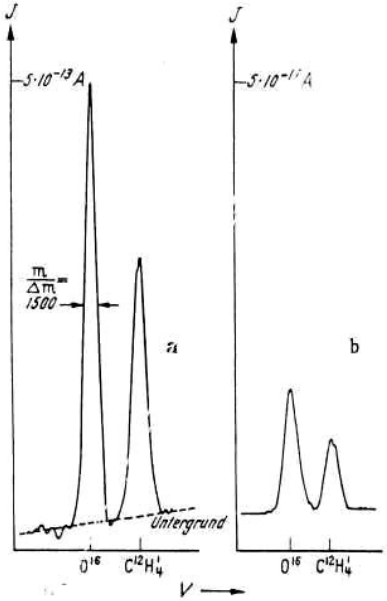

Fig. 16 a u. b. Das Dublett Sauerstoff—Methan bei $p = 4 \cdot 10^{-5}$ Torr

Zur Erprobung der Apparatur wurde die absolute Massendifferenz des Dubletts $O^{16}-C^{12}H_4^1$ bei fester Frequenz mittels Änderung von U/V gemessen, wobei in diesem engen Regelbereich U/V als konstant angenommen werden darf. Dann ist die Gleichspannung U der fokussierten Masse streng proportional, und es gilt für das obige Dublett

$$\Delta A = 16{,}00 \cdot \frac{U_{CH_4} - U_0}{U_0}.$$

Zur genauen Messung der Spannungsdifferenz wird man die Spannung U_0 durch eine konstante Hilfsspannung kompensieren. Da U_0 selbst mit 670 V dafür unbequem groß ist, wurde die ganze Messung mit etwa $U_0/3$ durchgeführt. Aus einer Serie von 9 Dublettmessungen ergab sich auf diese Weise

$$\Delta A = 36{,}7 \pm 0{,}5 \text{ mME}.$$

Die bisher besten mit magnetischen Massenspektrographen gemessenen Werte für diesen Dublettabstand[16–18] liegen zwischen

$$\Delta A = 36{,}419 \quad \text{und} \quad 36{,}370 \text{ mME}.$$

In einer weiteren Messung wurde durch Einlaß eines Sauerstoff-Ammoniak-Gemisches in die Ionenquelle das Dublett $O^{16}-N^{14}H_2^1$ erzeugt.

[16] OGATA, K., u. H. MATSUDA: Phys. Rev. **89**, 27 (1953).
[17] MATTAUCH, J., u. R. BIERI: Z. Naturforsch. **9a**, 303 (1954).
[18] SCHIERSTEDT, G. v., H. EWALD, H. LIEBL u. G. SAUERMANN: Z. Naturforsch. **11a**, 216 (1956).

Wegen der gegenüber dem obigen Dublett verkleinerten Massendifferenz wurde eine größere Anzahl von Einzelmessungen benutzt. Aus 29 hintereinander durchfahrenen Dubletts ergab sich

$$\Delta A = 23{,}4 \pm 0{,}4\ \text{mME}.$$

Aus massenspektrographischen Messungen[19] folgt

$$\Delta A = 23{,}8152\ \text{mME},$$

aus Kernumwandlungsdaten[20]

$$\Delta A = 23{,}808\ \text{mME}.$$

Es liegt nahe, eine Dublettmessung bei konstanten Spannungen mittels Frequenzänderung zu versuchen. Da aber die hierzu notwendige Frequenzänderung in der Größenordnung ein Promille liegt, macht dies sicher eine gleichlaufende Nachstimmung des Leistungskreises erforderlich, da bei der aus Gründen der Leistungsersparnis möglichst hohen Kreisgüte andernfalls die Stabilisierungsschaltung sehr stark belastet würde.

Ferner wurde in einem Versuch die Spannung U_{grenz} genau bestimmt, bei der die Intensität der Masse 15 (CH_3) gerade verschwindet. Sie wurde um 2% größer gefunden als die aus

$$U_{\text{grenz}} = \frac{0{,}23699 \cdot m \cdot \omega^2 \cdot r_0^2}{8e} \qquad \text{(siehe 6)}$$

berechnete. Dabei hat das berechnete U_{grenz} einen Fehler von $\pm 0{,}5\%$, der im wesentlichen von der Unsicherheit des r_0-Wertes herrührt. Das gemessene U_{grenz} ist auf $\pm 0{,}2\%$ genau bekannt.

Da die Ableitung des berechneten U_{grenz} streng nur für ein Feld gilt, dessen Elektroden Hyperbelschalen sind, kann man aus diesem Ergebnis schließen, daß die verwendete Stabanordnung die Feldgradienten des idealen Vierpolfeldes quantitativ gut annähert. Qualitativ gibt jede symmetrische, quadratische Anordnung beliebiger Elektroden in einer gewissen Umgebung der Symmetrieachse ein ideales Vierpolfeld. Aber in diesem Feld sind die Feldgradienten nicht quantitativ berechenbar, da es keinen definierten Feldradius r_0 mehr gibt. Es ist daher nicht selbstverständlich, daß bei der gewählten Stabgeometrie der (willkürlich) als Feldradius r_0 angenommene Abstand von Staboberfläche zur Feldachse so genaue Voraussagen gestattet.

III. Das elektrische Massenfilter als Isotopentrenner

1. Einleitung

Eine Anwendung des Massenfilters zur Isotopentrennung ist möglich, wenn Ionenbündel mit großem Querschnitt und großer Stromdichte

[19] SCOLMAN, T. T., K. S. QUISENBERRY u. A. O. NIER: Phys. Rev. **100**, 1245, E 10 (1955).

[20] MATTAUCH, J., L. WALDMANN, R. BIERI u. F. EVERLING: Z. Naturforsch. **11a**, 525 (1956).

getrennt werden können. Das bisher beschriebene Verfahren eignet sich dazu nicht, da dann die Transmission viel zu klein ist ($10^{-2} \ldots 10^{-3}$). Eine gute Transmission erreicht man nach den Ergebnissen des Abschnittes I, 5 nämlich nur für die Ionen, die in der Nähe der Achse und unter nicht zu großem Winkel gegen die Achse in das Vierpolfeld eintreten. Alle anderen können nur bei günstiger Einschußphase das Feld durchlaufen und tragen nicht mehr wesentlich zum Auffängerstrom bei. Eine Abschätzung für die größte Einschußblende, die noch die Transmission 100% ergibt, lautet bei achsenparallelem Einschuß $\Phi = r_0/\sqrt{m/\Delta m}$ (21). Für ein Auflösungsvermögen 100 bei $r_0 = 1{,}5$ cm erhält man $\Phi = 1{,}5$ mm. Die Verhältnisse sind in Wirklichkeit sogar noch ungünstiger, da die Ionenbündel bei großer Stromdichte eine beträchtliche Divergenz haben, die den ausnutzbaren Teil der eingeschossenen Ionen weiter verkleinert.

Zur Isotopentrennung muß ein anderer Arbeitspunkt des Massenfilters gewählt werden, der eine wesentlich größere Einschußblende auszunutzen gestattet. Am günstigsten ist das Verhältnis von Einschußamplitude und Maximalamplitude in der Nähe des Arbeitspunktes ($a = 0$; $q = 0{,}6$). Dort lassen sich ausgedehnte Ionenbündel auch bei großer Stromdichte fokussieren. Allerdings ist diese Fokussierung nicht massenabhängig. Eine Filterwirkung kommt erst unter dem Einfluß eines zusätzlichen Resonanzfeldes zustande.

2. Die Ionenbewegung im Vierpolfeld unter dem Einfluß eines Zusatzfeldes

In Abschnitt I, 4 wurde das Frequenzspektrum der Ionenbewegung diskutiert (11). Wichtig ist die Tatsache, daß β und damit die Grundfrequenz ω_0 bei gegebenen Feldparametern allein eine Funktion der Masse ist. Man wählt daher die Frequenz des Zusatzfeldes so, daß sie mit der Bewegungsfrequenz eines Isotops übereinstimmt. Alle Ionen dieses Isotops sind in Resonanz und werden — auch durch ein sehr schwaches Zusatzfeld — zu so großen Amplituden aufgeschaukelt, daß sie den Auffänger nicht mehr erreichen können. Die Nachbarmassen machen dagegen Schwebungen und können das Filter passieren, wenn die Schwebungsamplitude nicht zu groß wird.

Das Zusatzfeld kann ein Vierpolfeld oder ein homogenes Feld sein. Die Verhältnisse sind bei letzterem besonders übersichtlich; denn bei einem homogenen Feld in x-Richtung bleiben die Bewegungsgleichungen für y und z ungeändert, während man für x eine inhomogene Mathieusche Differentialgleichung erhält.

$$m\ddot{x} + 2e\,(U + V \cdot \cos\omega t) \cdot x/r_0^2 = e\,E' \cdot e^{i\omega' t}. \qquad (27)$$

Ihre Normalform lautet

$$x'' + (a - 2q \cdot \cos 2\xi)\, x = \alpha \cdot e^{i\frac{\omega'}{\omega}2\xi} \quad \text{mit} \quad \alpha = \frac{4eE'}{m\omega^2}. \tag{28}$$

Die allgemeine Lösung setzt sich aus der Lösung der homogenen Gleichung und einer partikulären Lösung der inhomogenen Gleichung zusammen; d.h. der ursprünglichen Schwingung wird eine weitere überlagert, die vom Zusatzfeld herrührt und hier allein interessiert. Eine partikuläre Lösung lautet[21]

$$x_p = \frac{\alpha}{W}\left\{x_{\mathrm{II}} \sum_{-\infty}^{+\infty} c_{2s} \frac{e^{2i\left(s+\frac{\beta}{2}+\frac{\omega'}{\omega}\right)\xi}}{2i\left(s+\frac{\beta}{2}+\frac{\omega'}{\omega}\right)} + x_{\mathrm{I}} \sum_{-\infty}^{+\infty} c_{2s} \frac{e^{-2i\left(s+\frac{\beta}{2}-\frac{\omega'}{\omega}\right)\xi}}{2i\left(s+\frac{\beta}{2}-\frac{\omega'}{\omega}\right)}\right\}. \tag{29}$$

Dabei bedeutet $x_{\mathrm{I}}, x_{\mathrm{II}}$ ein Fundamentalsystem der homogenen Gleichung (3) und W die Wronskische Determinante. Wenn ω' mit einer der Frequenzen des Bewegungsspektrums übereinstimmt, z.B. $\omega' = (s' + \beta/2) \cdot \omega$, erhält man die Resonanzlösung

$$\left.\begin{aligned} x_p = \frac{\alpha}{W}\Bigg\{ & x_{\mathrm{II}} \sum_{-\infty}^{+\infty} c_{2s} \frac{e^{2i\left(s+\frac{\beta}{2}+\frac{\omega'}{\omega}\right)\xi}}{2i\left(s+\frac{\beta}{2}+\frac{\omega'}{\omega}\right)} + \\ & + x_{\mathrm{I}} \sum_{\substack{-\infty \\ s \neq s'}}^{+\infty} c_{2s} \frac{e^{-2i\left(s+\frac{\beta}{2}-\frac{\omega'}{\omega}\right)\xi}}{2i\left(s+\frac{\beta}{2}-\frac{\omega'}{\omega}\right)} + x_{\mathrm{I}} \cdot c_{2s'} \cdot \xi \Bigg\}. \end{aligned}\right\} \tag{30}$$

Für große ξ überwiegt der letzte Term

$$x_p \approx \frac{\alpha \cdot c_{2s'}}{W} \cdot \xi \cdot x_{\mathrm{I}} = \frac{2eE' c_{2s'}}{m\omega W} \cdot t \cdot x_{\mathrm{I}}(t), \tag{31}$$

der eine Schwingung mit linear ansteigender Amplitude beschreibt. Der Anstieg ist der Amplitude des Zusatzfeldes proportional und am stärksten bei der Resonanz mit der Grundwelle ($s' = 0$), da die c_{2s} mit wachsendem s schnell kleiner werden.

In der Nähe der Resonanz gilt Gl. (29). Es überwiegt das Glied, dessen Nenner sehr klein ist, und man erhält für $\Delta\omega' = (s' + \beta/2) \cdot \omega - \omega'$

$$x_p \approx \frac{\alpha \cdot c_{2s'}}{W} \cdot \frac{e^{-2i\frac{\Delta\omega'}{\omega}\xi}}{2i\frac{\Delta\omega'}{\omega}} \cdot x_{\mathrm{I}} = \frac{2eE' \cdot c_{2s'}}{im\omega W} \cdot \frac{1}{\Delta\omega'} \cdot e^{-i\Delta\omega' t} \cdot x_{\mathrm{I}}(t). \tag{32}$$

Das bedeutet eine Schwebung mit der Frequenz $\Delta\omega'$. Die Schwebungsamplitude ist der Stärke des Zusatzfeldes proportional und um so größer, je mehr man sich der Resonanz nähert.

[21] KOROWSKI, G.: Z. angew. Math. Mech. 23, 213 (1943).

Beim Aufschaukeln mit der Grundfrequenz wird das Verhalten der Ionen bereits ausreichend beschrieben, wenn man alle c_{2s} außer c_0 vernachlässigt (31), (32). Die gleiche Näherung ergibt sich, wenn man den periodischen Anteil in der Mathieuschen Differentialgleichung durch eine geeignet gewählte konstante Kraft ersetzt. Man erhält dann die Bewegung eines elastisch an die Ruhelage $x = 0$ gebundenen Ions unter dem Einfluß eines elektrischen Wechselfeldes.

Aus diesen Berechnungen ergeben sich einige wichtige Folgerungen für den Betrieb des Massenfilters.

a) Wenn ein Isotop in Resonanz ist, machen die benachbarten Massen Schwebungen, deren Amplituden kleiner als r_0 bleiben müssen, damit die Ionen das Feld durchlaufen können. Je kleiner der relative Massenunterschied der Ionen ist, um so größer wird die Schwebungsamplitude. Zum Ausgleich kann man die Amplitude des Zusatzfeldes klein wählen.

b) Im Resonanzfall wächst die Schwingungsamplitude linear mit der Zeit an, im Gegensatz zur Ionenbewegung im instabilen Gebiet, wo die Amplituden exponentiell zunehmen. Die Ionen müssen also längere Zeit im Feld verweilen, bis ihre Amplituden soweit aufgeschaukelt sind, daß sie auf die Elektroden treffen. Die Laufzeit im Feld muß ferner um so größer gewählt werden, je schwächer das Resonanzfeld gemacht wird.

c) Die optimale Laufzeit ergibt sich aus einem Vergleich der Ionenbewegung im Resonanzfall und im Schwebungsfall. Bis etwa zur halben Schwebungsdauer nehmen für beide die Amplituden zu, erst dann beginnt die Resonanzamplitude zu überwiegen. Die Versuche bestätigen, daß die Laufzeit nicht wesentlich kürzer als die Dauer einer Schwebung sein darf. Bei vorgegebener Frequenz und Länge des Fokussierungsfeldes begrenzt diese Bedingung die Beschleunigungsspannung.

3. *Aufbau der Apparatur*

Für die Dimensionierung des Vierpolsystems ergeben sich folgende Forderungen:

a) Das System soll großen Querschnitt haben und mit großer Fokussierungsspannung betrieben werden, damit eine möglichst große Einschußblende verwendet werden kann.

b) Die Beschleunigungsspannung der Ionen soll groß sein, damit die Raumladung im Strahl klein bleibt.

c) Die Länge des Systems, die Frequenz der Wechselspannung und die Beschleunigungsspannung müssen so gewählt werden, daß die Ionen eine ausreichende Zeit lang im Feld bleiben.

Alle genannten Forderungen sind miteinander verträglich; jedoch sind ihrer Erfüllung aus Leistungsgründen Grenzen gesetzt. Bei vorgegebener Beschleunigungsspannung ist es günstig, das Massenfilter lang zu machen, da man dann mit kleiner Frequenz auskommt, die mit der 5. Potenz in die Leistung eingeht.

Für die Versuchsapparatur wurden folgende Größen gewählt: Länge des Systems 3 m, Elektrodenabstand $2 \cdot r_0 = 3$ cm (Kapazität $C = 450$ pF), Frequenz $\nu = 2{,}56$ MHz. Man braucht bei Mg ($A = 24$, 25, 26), mit dem ein großer Teil der Versuche durchgeführt wurde, und bei einer Kreisgüte von $Q = 400$ eine HF-Leistung von $N = 0{,}3$ kW.

Die Schaltung zur Erzeugung der verschiedenen elektrischen Felder zeigt Fig. 17. Das Vierpolsystem sitzt als Kapazität in einem Schwingkreis. Die Gleichspannung wird durch Gleichrichten eines Teiles der HF erzeugt und über Drosseln auf das System gegeben. Man erhält

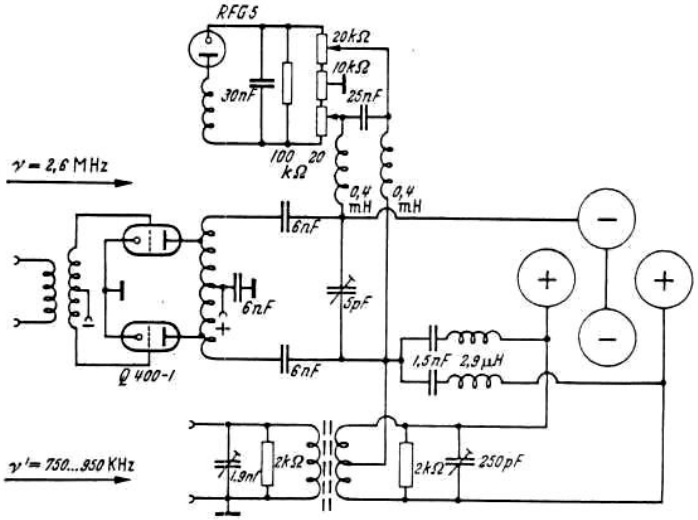

Fig. 17. Elektrische Schaltung

dadurch ein ausreichend konstantes Verhältnis U/V bei einer Änderung von V. In der Mitte des stabilen Bereiches sind für Mg HF-Amplituden von 2 bis 3 kV und Gleichspannungen von 100 bis 300 V erforderlich.

An die beiden x-Elektroden wird über ein Bandfilter symmetrisch zu den anderen Elektroden die Zusatzspannung V' gelegt. Das Bandfilter ist an den Frequenzgang des vorgeschalteten Verstärkers so angepaßt, daß sich die Frequenz des Zusatzfeldes ν' zwischen 750 und 950 kHz bei konstanter Amplitude verändern läßt. Die Größe der Zusatzspannung wurde meist zwischen 40 und 100 V gewählt.

Die Felder, denen die Ionen im Massenfilter ausgesetzt sind, entsprechen nicht genau den in der Theorie angenommenen Feldern. Das Hauptfeld wird durch Elektroden mit kreisförmigem Querschnitt angenähert. Das Zusatzfeld ist nicht homogen. Sein Potential enthält auch höhere Potenzen von x und y und gemischte Glieder. Die Versuchsergebnisse werden aber durch die lineare Näherung schon hinreichend

genau wiedergegeben. Die gemischten Glieder bedeuten eine Kopplung der Schwingungen in x- und y-Richtung. Sie haben keinen meßbaren Einfluß. Weitere Feldfehler können auftreten, wenn das System mechanisch nicht genau genug gearbeitet oder justiert ist. Nach Abschnitt II, 1 muß zur Trennung von Mg die relative Genauigkeit $(\Delta r_0/r_0) < 1\%$ sein.

Als Ionenquelle dient ein magnetisch stabilisierter Niedervoltbogen[22]. Die Energie der Ionen ist nicht homogen; doch spielt das auch bei kleinen Beschleunigungsspannungen keine Rolle, da das Massenfilter unabhängig von der Energie der Ionen arbeitet.

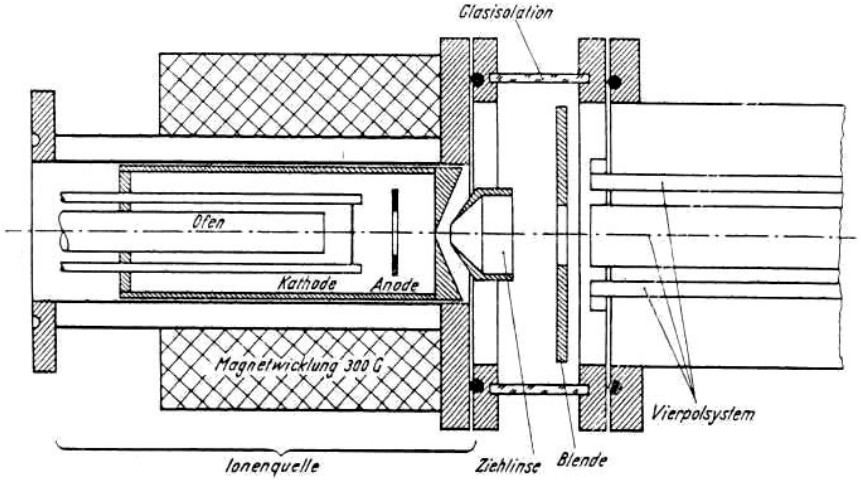

Fig. 18. Aufbau der Ionenquelle

Die Ionen werden mit Hilfe einer Ziehelektrode aus der Ionenquelle herausgezogen und können entweder durch ein Rohrlinsensystem oder unmittelbar in das Vierpolfeld eingeschossen werden. Das Linsensystem erlaubt eine Abbildung der Ionenaustrittsöffnung auf den Anfang des Vierpolfeldes; doch haben die Versuche gezeigt, daß höhere Ströme am Auffänger erzielt werden, wenn man auf das Linsensystem verzichtet und das Vierpolfeld bis nahe an die Ionenquelle vorzieht, von der es nur durch die Beschleunigungselektrode und eine Blende getrennt ist (Fig. 18).

Das Vakuum im Feldraum braucht nicht besonders gut zu sein, wie bereits im Abschnitt II, 3 gezeigt wurde. Die bisherigen Versuche ergeben, daß ein Druck von 10^{-4} Torr ausreicht, da die starke Fokussierung eine Gasstreuung um kleine Winkel zuläßt, ohne daß das Auflösungsvermögen beeinträchtigt wird. Eine Verbesserung des Vakuums erhöht lediglich etwas die Transmission der stabilen Ionen.

[22] PAULY, H.: Diplomarbeit Bonn 1955.

4. Die Fokussierung großer Ionenströme

Zunächst wurde versucht, den Durchsatz des Massenfilters ohne gleichzeitige Trennung der Isotope so groß wie möglich zu machen. Dabei muß man den günstigsten Arbeitspunkt finden und so viel Ionen wie möglich einschießen.

Die Wahl des Arbeitspunktes ergibt sich bereits aus früheren Messungen[3]. Man arbeitet zweckmäßig in der Mitte des stabilen Bereiches in der Nähe der q-Achse (z.B. $a=0{,}08$; $q=0{,}6$). Die anliegenden Spannungen sind dann $U=140$ V, $V=2{,}1$ kV. Das Linsensystem wurde nur bei den ersten Versuchen verwandt, später immer die Anordnung der Fig. 18 benutzt.

Der Auffängerstrom hängt natürlich stark von der Beschleunigungsspannung ab, für die als einzige einschränkende Bedingung die Forderung gilt, daß die Laufzeit der Ionen innerhalb des Feldes so groß wie die Dauer einer Schwebung sein soll. Bei den vorliegenden Felddaten sollte die Energie von Ionen der Masse 25 daher beim Eintritt in das Massenfilter nicht größer als 2,0 keV sein. Die größten Auffängerströme unter Beachtung dieser Forderung wurden bei folgenden Bedingungen erzielt:

Spannung an der Ionenquelle	+2,4 kV,
Spannung an der Beschleunigungselektrode	−3,0 kV,
Spannung an der Blende	+2,4 kV.

Der Abstand zwischen Beschleunigungselektrode und Ionenquelle wurde so klein gehalten (etwa 4 mm), daß bei diesen Spannungen gerade keine Überschläge auftreten. Als Auffänger dient ein Faradayscher Käfig von 4 cm Durchmesser. Durch eine negativ vorgespannte Blende lassen sich Verfälschungen durch Sekundärelektronen ausschalten. Der Auffängerstrom beträgt dabei 3 mA. Eine Verkleinerung der Einschußspannung auf 2,0 kV ergab noch 2,5 mA.

Die Transmission des Massenfilters ließ sich bei diesen Strömen nicht genau messen, da die Ionenströme auf die Elektroden und Linsen in zum Teil unkontrollierbarer Weise durch Elektronen verfälscht werden, die als Sekundärelektronen entstehen oder aus der Bogenentladung stammen. Mit einer groben Abschätzung dieser Fehlerquellen erhält man folgende Bilanz:

Ionenstrom am Ausgang der Ionenquelle	6,0 mA
Ionenstrom auf die Ziehlinse	1,5 mA
Ionenstrom beim Eintritt in das Massenfilter	4,5 mA
Verluste im Massenfilter	1,5 mA
Auffängerstrom	3,0 mA.

Diese Werte sind nur eine ungefähre Näherung. Man kann aber sagen, daß die Transmission bei diesen Strömen sicher besser als 50% ist.

Einem Ionenstrom von 3 mA entspricht bei Mg ein Substanztransport von 2,8 mg/Std. Die Wahl eines ökonomischen Auffängers wurde nicht weiter untersucht, da sie im Rahmen dieser Arbeit ohne Interesse war.

Die Ionenquelle erlaubte nicht, mehr als 6 mA Ionenstrom in das Massenfilter einzuschießen. Wie groß der Gewinn ist, der sich mit einer besseren Ionenquelle erzielen ließe, zeigt eine *Abschätzung des Raumladungseinflusses*, der in erster Linie den Durchsatz begrenzt.

Es sind zwei Wirkungen der Raumladung zu unterscheiden. Zunächst führt sie zu einer Verschlechterung der Einschußverhältnisse, da die Ionenbündel mit wachsender Stromstärke einen größeren Querschnitt und einen größeren Öffnungswinkel bekommen. Die Transmission wird dann schlechter.

Schwerwiegender ist die Verzerrung des Hyperbelfeldes durch das Raumladungsfeld. Eine genaue Untersuchung ist nicht möglich, weil dazu die Raumladung als Funktion des Ortes und der Zeit bekannt sein müßte, die ihrerseits die Kenntnis aller Ionenbahnen voraussetzt. Eine Abschätzung erhält man, wenn man eine konstante Raumladungsdichte innerhalb eines Zylinders mit dem Radius r_0 ansetzt. In diesem Fall wirkt auf die Ionen ein zusätzliches Gleichfeld, das radial nach außen gerichtet und der Raumladungsdichte und dem Abstand von der Achse proportional ist. Das äußert sich in einer Verschiebung des Arbeitspunktes. Außerdem muß man jetzt für beide Komponenten der Bewegung verschiedene Arbeitspunkte im Stabilitätsdiagramm ansetzen.

Der Gleichfeldanteil des ursprünglichen Fokussierungsfeldes erscheint in der normierten Form der Schwingungsgleichung als die Konstante a. Entsprechend läßt sich das Feld einer homogenen Raumladung durch eine dimensionslose Konstante a' ausdrücken. Es ergibt sich

$$a' = \frac{1{,}8 \cdot I}{\nu^2 \sqrt{A \cdot U_B}}. \tag{33}$$

Daraus folgt

$$I_{\max} = 0{,}56 \cdot a'_{\max} \cdot \nu^2 \sqrt{A \cdot U_B}. \tag{34}$$

Die beiden Arbeitspunkte haben jetzt die Koordinaten $a_x = a - a'$, $a_y = a + a'$. q bleibt ungeändert. In unserem Fall sind einzusetzen

Ionenstrom	$I = 3$ mA,
Feldfrequenz	$\nu = 2{,}56$ MHz,
Beschleunigungsspannung	$U_B = 2{,}4$ kV,
Atomgewicht	$A = 25$.

Daraus ergibt sich $a' = 0{,}1$. Bei $q = 0{,}66$ darf a_y nicht größer als 0,2 sein, wenn der Arbeitspunkt noch im stabilen Bereich liegen soll. Im günstigsten Falle, wenn kein Gleichfeld angelegt wird, ist $a = 0$. Die Bedingung lautet dann $a' \leqq 0{,}2$. Dem entspricht bei $U_B = 2{,}4$ kV und $A = 25$ ein größter Ionenstrom von 6 mA. Ein zusätzlich angelegtes Gleichfeld verschärft die Bedingung für a'.

In magnetischen Trennern läßt sich die Raumladung verkleinern, indem man sie teilweise durch langsame Elektronen kompensiert. Im Massenfilter ist das ohne weiteres nicht möglich, da Elektronen unter den Bedingungen, die für stabile Ionenbahnen erforderlich sind, extrem instabil sind und sofort auf die Elektroden fliegen. Durch Überlagerung eines weiteren HF-Feldes kann man neben den Ionen auch die Elektronen stabilisieren. Entsprechend der kleinen Masse muß das Feld sehr hohe Frequenz haben. Der niederfrequenten Ionenbewegung wird dann eine kleine hochfrequente Komponente überlagert, die nicht stört. Umgekehrt stört das Fokussierungsfeld für die Ionen die Elektronen erheblich. Es wirkt wie ein langsam veränderliches starkes Gleichfeld. Die Wechselfeldamplitude für die Elektronen muß daher mindestens 6mal so groß sein wie die des Wechselfeldes für die Ionen, damit die Elektronen ständig im stabilen Bereich liegen ($U/V \leqq 0{,}17$). Es wären also Wechselspannungen von einigen 100 MHz und einigen kV Amplitude nötig. Dieser Aufwand ist so groß, daß eine elektrische Stabilisierung der Elektronen zur Raumladungskompensation nicht in Frage kommt.

Eine andere Möglichkeit ist die Stabilisierung durch ein Magnetfeld, das in Achsenrichtung angelegt wird. Es muß so groß sein, daß die Elektronen auf genügend engen Spiralbahnen geführt und so gehindert werden, sofort auf die Elektroden zu fliegen. Unter den gewählten Arbeitsbedingungen erfordert das Bahnen von 0,5 bis 1 cm Krümmungsradius für Elektronen mit Energien bis 4 keV. Man braucht dazu ein Magnetfeld von mindestens 400 G. Es läßt sich durch eine Spule erzeugen, die um den Außenmantel des Massenfilters gewickelt wird. Der Einfluß des Magnetfeldes auf die Ionenbewegung bleibt gering, solange das Verhältnis von Larmor-Frequenz und Eigenfrequenz klein bleibt.

Die Raumladungsabschätzung gibt die Größenordnung des störenden Einflusses sicherlich richtig wieder und damit eine Antwort auf die Frage, wie große Ströme das Vierpolfeld ohne Raumladungskompensation zu fokussieren vermag. Der erreichte Auffängerstrom läßt sich vergrößern, wenn man die Arbeitsdaten des Massenfilters ändert. Dafür kommen folgende Größen in Betracht:

a) Die Beschleunigungsspannung U_B kann erhöht werden. Dadurch wird aber die Flugzeit der Ionen im Feld herabgesetzt. Man kann zum Ausgleich die Frequenz des fokussierenden Feldes und entsprechend die Spannungen U und V an den Elektroden vergrößern. Das hat den Vorteil, daß die Fokussierung verbessert wird. Ferner wird der Raumladungseinfluß bei größerer Frequenz kleiner [Gl. (33)]. Von Nachteil ist der schnell anwachsende Leistungsbedarf, der mit der 5. Potenz der Frequenz ansteigt.

b) Die Flugzeit der Ionen läßt sich trotz höherer Einschußspannung konstant halten, wenn das Massenfilter länger gemacht wird. Die notwendige Leistung steigt nur linear mit der Systemlänge an.

Trotz vergrößerter Systemlänge kann man die Dimensionen der Apparatur relativ klein halten, wenn man den Ionenstrahl am Ende eines ersten Feldabschnittes um 180° umlenkt und durch ein zweites Feld laufen läßt. Zum Umlenken der Ionen läßt sich wieder ein Vierpolfeld verwenden, das halbkreisförmig gebogen ist. Auf die Ionen wirkt dann zusätzlich zum elektrischen Feld die Zentrifugalkraft. Sie stört nicht; denn für brauchbare Anordnungen des Umlenksystems ergeben sich Zentrifugalkräfte, die nur einige Prozent der Fokussierungskräfte ausmachen. Zum Beispiel für Mg: Krümmungsradius 100 cm, Elektrodenabstand 3 cm, Beschleunigungsspannung 5 kV, Fokussierungsspannung $V = 2{,}75$ kV. Die Zentrifugalkraft beträgt dann 5% der Fokussierungskraft im Abstand 1 cm von der Feldachse.

Für den Trennprozeß ist nur das Feld in der Nähe der Systemachse maßgebend, etwa im schraffierten Bereich der Fig. 19a. Berechnet man den Anteil der Energie, der im wirksamen Feld steckt, so ergeben

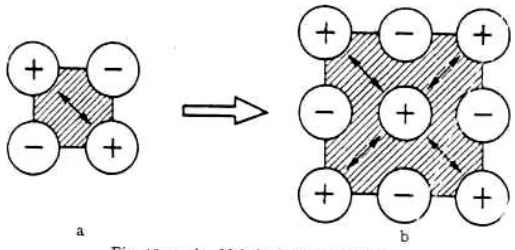

Fig. 19a u. b. Mehrkanal-Massenfilter

sich nur knapp 30% der gesamten Feldenergie. Das ist verständlich, da $E^2 \sim r^2$ und damit die Energiedichte in Achsennähe klein ist. Man kann dieses Verhältnis verbessern, wenn man mehrere Systeme parallel schaltet (Fig. 19b). Nimmt man z. B. eine Anordnung von 9 Elektroden, so erhält man vier parallelgeschaltete Massenfilter. Der Leistungsbedarf ist aber nicht viermal so groß, sondern nur das 2,6fache. Bei 16 Elektroden (9 Massenfiltern) ist das Verhältnis sogar nur 4,5 statt 9. Die Ausnutzung der gesamten Feldenergie ist bei diesen Anordnungen 46% und 60%.

5. Die Trennung großer Ionenströme

Eine typische Filterkurve gibt Fig. 20. Mit Rb als Versuchssubstanz ist aufgetragen der relative Auffängerstrom (bezogen auf den Strom ohne Resonanzfeld in der Mitte des stabilen Bereiches) in Abhängigkeit von der Lage des Arbeitspunktes, der bei festgehaltener Frequenz durch gleichzeitige Änderung von U und V bei konstantem Verhältnis U/V längs der Geraden $a/q = 0{,}285$ verschoben wird. Zwischen 4,8 kV und 5,9 kV liegt er im stabilen Bereich. Bei 5,42 kV wird die Iso-β-Linie $\beta = 0{,}79$ passiert; und alle Ionen von Rb 85 kommen in Resonanz. Bei 5,54 kV geschieht das gleiche mit Rb 87. Man erhält also ein Absorptionsspektrum. Die Zusatzspannung von 77 V reicht nicht aus, um

sämtliche Ionen eines Isotops zu ausreichend großen Amplituden aufzuschaukeln (Kurve I). Dazu sind 130 V, d.h. rund 1% des fokussierenden Feldes notwendig (Kurve 2). Allerdings wird der Absorptionsbereich dann so breit, daß der Auffängerstrom keine aufgelösten Minima mehr zeigt. Man erkennt aber, daß bei 5,42 kV Rb 85 vollständig eliminiert wird und nur Rb 87 zum Auffänger gelangen kann (Isotopenverhältnis 2,67:1). Der umgekehrte Fall bei 5,54 kV ist nicht genau so deutlich ausgeprägt. Zwischen beiden Einstellungen machen die Ionen beider Isotope so große Schwebungen, daß nur ein kleiner Teil das Feld durchlaufen kann.

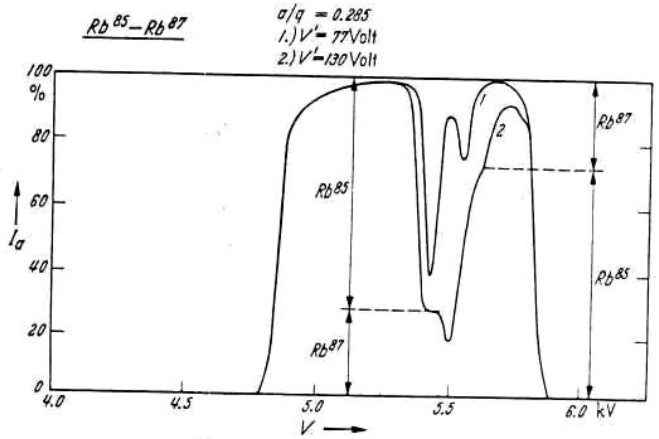

Fig. 20. Absorptionskurve von Rb

Es ist nicht notwendig, die Ionen durch Resonanz mit der Grundfrequenz der Bewegung ($\omega_0 = \beta/2 \cdot \omega$) aufzuschaukeln. Versuche mit der ersten Oberfrequenz $\omega_1 = (1 - \beta/2) \cdot \omega$ ergaben die gleichen Filterkurven, erfordern aber ein stärkeres Zusatzfeld in Übereinstimmung mit den Rechnungen des Abschnittes III, 2.

Die Trennung von Rb wurde mit kleinen Ionenströmen in der Größenordnung μA durchgeführt. Für große Ströme wurden Mg und Na als Versuchssubstanzen gewählt. Na hat nur 1 Isotop und erlaubt daher das Studium des Resonanzverhaltens ohne Störung durch Nachbarisotope; eine Absorptionskurve zeigt Fig. 21. Die gleiche Absorptionskurve erhält man, wenn man den Arbeitspunkt und damit die Bewegungsfrequenz der Ionen festhält und die Frequenz des Zusatzfeldes variiert und mit der Ionenbewegung in Resonanz bringt. Die Halbwertsbreite des Absorptionsbereiches beträgt 1,6 Masseneinheiten. Bei vollständiger Eliminierung der Masse 23 würden auch Ionen der Massen 22 und 24 teilweise ausgeschieden. Die Verluste sind aber gering und nur insofern störend, als sie z.B. bei einer Trennung von Mg die Auflösung der

Filterkurve in drei getrennte Absorptionsmaxima verhindern. Die Absorptionskurve ist leicht unsymmetrisch. Das hat seinen Grund in der unzureichenden Genauigkeit der benutzten Elektroden.

Den Verlauf der Absorption in Abhängigkeit von der Stärke des Resonanzfeldes zeigt Fig. 22. Dabei wurden die Teilströme auf verschiedenen, voneinander isolierten Zonen des Auffängers gemessen. Die Zonen ergaben sich aus der Stärke des Niederschlages auf dem Auffänger nach längerem Betrieb und sind in Fig. 22 angegeben. Bei kleinem Zusatzfeld (bis 15 V Zusatzspannung) ändert sich der Gesamtstrom I nicht, sondern lediglich die Verteilung über dem Austrittsquer-

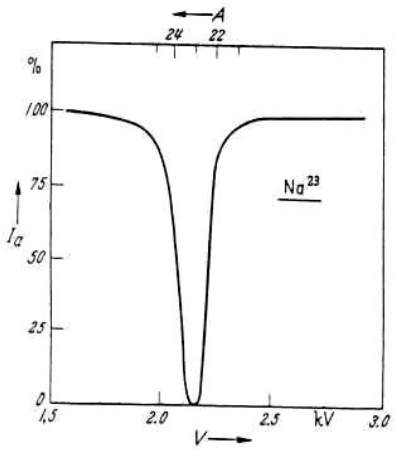

Fig. 21. Absorptionskurve von Na

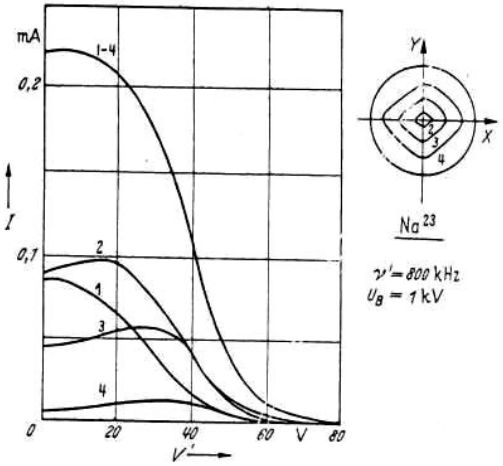

Fig. 22. Ionenstrom in Abhängigkeit von der Zusatzspannung (Durchmesser des Auffängers 4 cm)

schnitt. Die Ionen werden zu größeren Amplituden aufgeschaukelt und gehen dann stärker auf die äußeren Teile des Auffängers. Bei weiterer Zunahme des Resonanzfeldes nehmen die Amplituden so stark zu, daß ein immer größerer Teil der Ionen das Feld überhaupt nicht mehr passieren kann. Die Messungen zeigen ferner, daß zum Gesamtstrom der äußere Teil des Auffängers nicht wesentlich beiträgt.

Der *Einfluß der Raumladung* zeigt sich bei Messungen mit verschieden großen Auffängerströmen unter sonst gleichen Bedingungen. Als Versuchsbedingungen wurden gewählt: Fester Arbeitspunkt $V = 2{,}4$ kV, $U = 170$ V ($q = 0{,}69$; $a = 0{,}1$), variable Frequenz des Zusatzfeldes, konstante Amplitude des Zusatzfeldes (und zwar so groß, daß im Resonanzfall der Ionenstrom auf Null heruntergeht), konstante Einschußspannung von 2 kV.

Im gewählten Arbeitspunkt hat die Bewegung der Ionen die Grundfrequenz $\nu_0 = 875$ kHz. Bei dieser Frequenz des Zusatzfeldes sollte der

mögens zur Folge hat. Die Abschätzung erfolgt unter folgenden Annahmen: Die Breite des Absorptionsbereiches wird so gewählt, daß die Ionen mit den Atomgewichten $(A \pm \Delta A)$ gerade außerhalb liegen, wenn A in Resonanz ist. Man erreicht dies durch die richtige Wahl der Einschußspannung, die so groß gemacht wird, daß die Ionen mit den Massen $(A \pm \Delta A)$ eine Schwebungsperiode lang durch das Feld laufen. Felddimensionen, Feldfrequenz und Arbeitspunkt sind die gleichen wie bei den Versuchen mit Na. Man erhält dann

$$I \leqq 25 \cdot \frac{(\Delta A)^2}{A} \text{ mA}. \tag{35}$$

Das ergibt z.B. für Na und $\Delta A = 1$ $I \leqq 1{,}1$ mA. Alle Maßnahmen, die zur Verkleinerung des Raumladungseinflusses diskutiert wurden, verbessern auch diese Bedingung. Vergrößert man dagegen den Strom ohne Änderung der Arbeitsbedingungen des Massenfilters, so verschlechtert sich die Auflösung und damit die Ausbeute an den gewünschten Massen, da dann die Amplitude des Resonanzfeldes vergrößert werden muß, damit die falschen Ionen vollständig ausgeschieden werden.

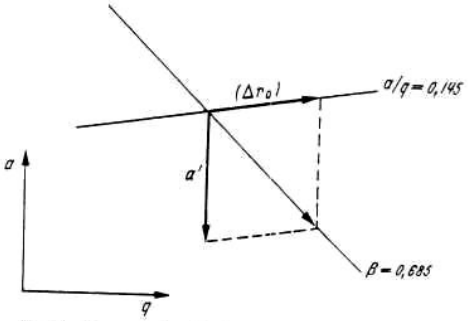

Fig. 24. Kompensation der Raumladungsverschiebung der Bewegungsfrequenz

Eine Raumladungskompensation durch Elektronen ist bereits diskutiert worden. Es bleibt ferner die Möglichkeit, die Wanderung des Arbeitspunktes wenigstens teilweise durch Ändern der Feldgrößen auszugleichen. Das ist z.B. möglich durch eine mit z veränderliche Gleichspannung, die an jeder Stelle das Raumladungsfeld so ergänzt, daß der Arbeitspunkt erhalten bleibt. Das System müßte dann aus einzelnen, voneinander isolierten Teilstücken bestehen.

Die Wanderung des Arbeitspunktes wäre nicht störend, wenn er immer auf der gleichen Iso-β-Linie wanderte und damit die Ionen ständig die gleiche Eigenfrequenz behielten und in Resonanz blieben. Das läßt sich erreichen, wenn man den Elektrodenabstand längs des Massenfilters ändert. Durch die Raumladung wandert der Arbeitspunkt parallel zur a-Achse zu kleineren a-Werten, während eine Verkleinerung von r_0 ihn längs der a/q-Geraden zu größeren a- und q-Werten laufen läßt. Beide Bewegungen lassen sich so aufeinander abstimmen, daß der Arbeitspunkt auf der gewählten Iso-β-Linie bleibt (Fig. 24). Die Bedingung dafür lautet im benutzten Arbeitspunkt

$$\Delta r_0 / r_0 = -\,0{,}65 \cdot a'. \tag{36}$$

Bei 1,5 mA Ionenstrom (Na) und 2 kV Einschußspannung hat a' den Wert 0,06. Am Anfang des Myssenfilters muß r_0 demnach um 4% (0,6 mm) kleiner als am Ende sein. Es genügt, nur den Abstand der Elektroden zu verkleinern und den Elektrodendurchmesser konstant zu lassen. Durch diese Anordnung wird für den

gewählten Arbeitspunkt die Wirkung einer linear mit z abnehmenden Raumladung ausgeglichen, die dem Wert $a' = 0{,}06$ entspricht. Bei allen anderen Werten behält man eine Änderung der Eigenfrequenz der Ionen. Ob sich diese Einschränkung der Vielseitigkeit des Massenfilters lohnt, hängt davon ab, ob man es ständig zur Trennung bestimmter Isotope verwenden will, oder ob wahlweise die verschiedensten Elemente verarbeitet werden sollen. Die Änderung des Elektrodenabstandes liegt mit 4% in der gleichen Größenordnung wie die ursprünglich geforderte Mindestgenauigkeit von 1%. Man muß also die Anforderungen an die Genauigkeit des Systemaufbaues und der Justierung entsprechend erhöhen.

6. *Das gleichzeitige Aufschaukeln mehrerer Massen*

Mit einem Massenfilter in der bisher beschriebenen Anordnung läßt sich aus einem Isotopengemisch immer nur 1 Isotop herausfiltern. Das kann manchmal ausreichend sein; im allgemeinen ist aber das Ziel einer Isotopentrennung, ein einziges Isotop rein darzustellen. Das Massenfilter muß also aus einem Gemisch gleichzeitig mehrere Isotope herausfiltern können.

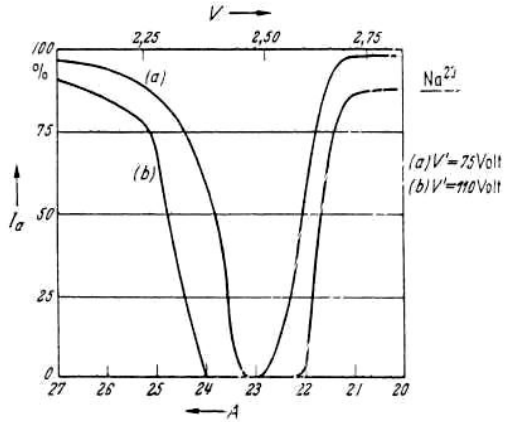

Fig. 25. Gleichzeitige Absorption mehrerer Massen

Man kann die Bewegung für mehrere Isotope gleichzeitig instabil machen, wenn das Zusatzfeld Anteile verschiedener Frequenzen enthält und jede Frequenz mit der Eigenfrequenz einer bestimmten Masse übereinstimmt. Die Schwebungen des gewünschten Isotops werden dann natürlich komplizierter, ihre Amplituden lassen sich aber durch genügend schwache Zusatzfelder klein genug halten.

Es ist einfacher, durch ein Zusatzfeld mit nur einer Frequenz mehrere Isotope gleichzeitig aufzuschaukeln. Wenn es nämlich stark genug ist, werden nicht nur die Ionen, die in Resonanz sind (oder bei starker Raumladung besonders günstig durch die Resonanz laufen) zu großen Amplituden aufgeschaukelt, sondern die Schwebungen der Nachbarmassen werden so groß, daß auch sie völlig weggefangen werden. Fig. 25 zeigt das Ergebnis der Messungen. Bei $V' = 75$ V ist z.B. Masse 23 vollständig ausgeschieden. Von den Nachbarmassen können noch 50 bis 70% das Massenfilter passieren. Wird die Zusatzspannung auf $V' = 110$ V vergrößert, so werden auch sie vollständig ausgeschieden, ohne daß von den Massen 21 und 25 mehr als 25% verlorengehen. Eine weitere Vergrößerung des Zusatzfeldes verbreitert den Absorptionsbereich noch mehr, doch werden dann auch die gewünschten Massen

stärker dezimiert. Im allgemeinen wird es ausreichen, wenn man zwei Zusatzfelder verschiedener Frequenz wählt und durch jedes bis zu 3 oder 4 Massen ausscheiden kann.

Man könnte auch bei Gemischen mit mehreren Isotopen für einen Teil der Massen den Arbeitspunkt in das instabile Gebiet verlegen. Das ist aber nur dann sinnvoll, wenn der Arbeitspunkt für das gewünschte Isotop in der Mitte des stabilen Bereiches bleibt. Das läßt sich nur bei leichten Elementen erfüllen.

7. *Analyse des Auffängerstromes zur Kontrolle der Trennung*

Wenn das Massenfilter mit Na betrieben wird, ist es leicht, alle experimentelle Daten richtig zu wählen. Das wird schwieriger, wenn ein Isotopengemisch vorliegt, da die Messung des Auffängerstromes

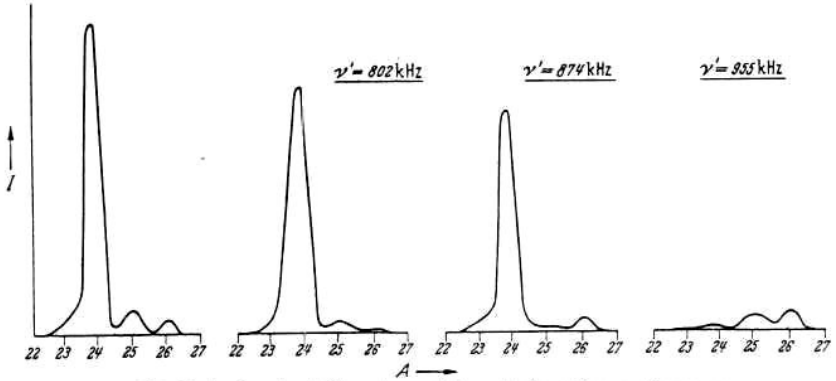

Fig. 26. Analyse des Auffängerstromes bei verschiedenen Resonanzfrequenzen

dann im allgemeinen keine deutlich ausgeprägten Minima ergibt, auf die man das Massenfilter einstellen muß, um die entsprechende Masse vollständig zu eliminieren und von den Nachbarmassen so wenig wie möglich zu verlieren. Diese Schwierigkeiten lassen sich umgehen, wenn man den Auffängerstrom sofort massenspektrometrisch analysiert. Das wurde mit Hilfe eines zweiten Massenfilters versuchsweise vorgenommen[23]. Seine Betriebsdaten sind: Feldlänge 50 cm, Elektrodenabstand 1 cm, Frequenz 4,6 MHz, Wechselspannungsamplitude für Masse 25 1,8 kV, Gleichspannung 300 V. Dieses Massenfilter arbeitet nach dem in Abschnitt II beschriebenen Prinzip. Es wurde hinter den Auffänger des großen Massenfilters gesetzt und erlaubt eine Analyse des Auffängerstromes, der durch ein Loch von 1 bis 3 mm Durchmesser tritt. Das Ergebnis einer solchen Analyse zeigt Fig. 26. Der Arbeitspunkt im Trennersystem ist festgehalten. Die Frequenz des Zusatzfeldes wird

[23] YOUSSEF, A.: Diplomarbeit Bonn 1957.

so verändert, daß nacheinander die Massen 26, 25 und 24 in Resonanz sind und ausgeschieden werden. Die Messung mit dem Analysator zeigt das Verschwinden der betreffenden Massen an. Zum Vergleich ist auch das Massenspektrum ohne Zusatzfeld aufgenommen. Das Isotopenverhältnis wird nicht ganz richtig wiedergegeben, da das Verhältnis U/V im Analysator nicht konstant bleibt.

Ein Nachteil ist, daß eine solche Analyse immer nur einen Teil des Auffängerstromes erfaßt und nicht ohne weiteres Rückschlüsse auf den Gesamtstrom zuläßt. So geht z. B. der Auffängerstrom nur auf 30% seines ursprünglichen Wertes herunter, wenn der Analysator bereits vollständige Eliminierung anzeigt. Erst eine Vergrößerung des Zusatzfeldes um 25 bis 30% ergibt vollständiges Ausscheiden der aufgeschaukelten Ionensorte.

8. *Trennung von Isotopen mit höherem Atomgewicht*

Das Massenfilter wurde für hohe Ströme bisher nur mit Elementen von kleinem Atomgewicht untersucht (Na, Mg), die den Vorteil haben, daß man mit kleinen HF-Leistungen auskommt. Da allen Berechnungen und Überlegungen die normierten Feldgrößen a, q, und a' zugrunde gelegt wurden, lassen sich die Ergebnisse auf die Verhältnisse bei größeren Massen übertragen. Allgemein gelten folgende Bedingungen, die noch einmal kurz zusammengefaßt werden sollen:

a) Der Arbeitspunkt sollte bei $q = 0{,}7$ liegen, wo man günstige Fokussierungs- und Trenneigenschaften hat. Für die Fokussierung allein ist schon ein HF-Feld ausreichend. Zur Trennung ist es aber nützlich, noch ein Gleichfeld zu überlagern, das den Vorteil hat, daß alle Ionen instabil sind, deren Masse von der des zu trennenden Elementes sehr verschieden ist (z. B. Ionen des Restgases). Ferner unterscheiden sich die Eigenfrequenzen der Ionen verschiedener Masse um so mehr, je weiter der Arbeitspunkt von der q-Achse entfernt liegt. Das hat schmalere Resonanzbereiche und damit bessere Auflösung zur Folge.

b) Die Laufzeit der Ionen muß so groß sein, daß im Resonanzfall für Ionen mit dem Atomgewicht A die Nachbarmassen $(A \pm \Delta A)$ ungefähr für die Dauer einer Schwebung im Feld sind. Das beschränkt die Einschußspannung. Man erhält

$$U_B \sim L^2 \cdot \nu^2 \cdot A \cdot (A/\Delta A)^2. \tag{37}$$

Bei kürzeren Laufzeiten muß die Stärke des Zusatzfeldes vergrößert werden und die Resonanzkurven werden breiter. Die Transmission für die gewünschten Massen verschlechtert sich dadurch; andererseits wird der Gesamtstrom durch die höhere Einschußspannung größer. Es hängt vom Einzelfall ab, welche der beiden Wirkungen überwiegt. Allgemein kann man fordern, daß die Laufzeit $T = (0{,}75 \ldots 1) \cdot \tau$ sein muß, wobei τ die Schwebungsperiode ist.

c) Der Strom, der sich ohne Raumladungskompensation fokussieren und trennen läßt, ergibt sich aus der Abschätzung (34):

$$a'/I \sim (L \cdot \nu \cdot \Delta A)^{-1}. \tag{38}$$

Daraus folgt

$$I_{\max} \sim L \cdot \nu \cdot \Delta A. \tag{39}$$

d) Die notwendigen HF-Spannungen und HF-Leistungen ergeben sich aus a und q (6).

$$V \sim \nu^2 \cdot A; \quad N \sim A^2 \cdot \nu^5 \cdot L. \tag{40}$$

Die Tabelle 5 gibt eine Übersicht über die Arbeitsbedingungen für größere Massen. Sie sind für zwei Massenfilter verschiedener Länge

Tabelle 5

Atomgewicht A	—	25	100	100	200	200	200
Notwendiges Auflösungsvermögen $A/\Delta A$	—	25	100	100	200	200	100
Elektrodenabstand $2r_0$	cm	3	3	3	3	3	3
Feldlänge L	m	3	3	6	18	6	6
HF-Frequenz ν	MHz	2,56	2,56	2,56	1,5	2,22	2,0
HF-Spannung am System $2 \cdot V$	kV	4,8	19,2	19,2	12,7	28,8	23,5
HF-Leistung ($Q = 400$) N	kW	0,3	5	10	7,3	19	11,0
Zulässige Einschußenergie eU_B	keV	2,0	0,5	2,0	3	0,75	2,5
Auffängerstrom I	mA	3					
Raumladungseinfluß a'/I	1/mA	0,04	0,04	0,02	0,01	0,023	0,013
Maximaler Strom ($a' = 0{,}2$) $I_{\max}$	mA	5	5	10	17,3	8,7	15,7
Substanzmenge pro mA und pro Std	$\frac{\text{mg}}{\text{mA} \cdot \text{h}}$	0,93	3,7	3,7	7,5	7,5	7,5

angegeben. Man sieht, daß erheblich weniger Leistung notwendig ist, wenn die Frequenz geringfügig verkleinert und das System entsprechend verlängert wird.

Der Deutschen Forschungsgemeinschaft sei für ein Stipendium gedankt, der Arbeitsgemeinschaft für Forschung des Landes Nordrhein-Westfalen für die finanzielle Unterstützung dieser Arbeit.

Zeitschrift für Phys Bd. 152, S. 183—193 (1958)

Aus dem II. Physikalischen Institut der Universität Göttingen

Die Reichweite von Elektronen und Positronen kleiner Energie in Aluminium*

Von

KLAUS GUBERNATOR

Mit 4 Figuren im Text

(Eingegangen am 2. Mai 1958)

Im Energiebereich von 10 bis 160 keV werden die Reichweiten monoenergetischer Elektronen und Positronen in Aluminium bestimmt und die entsprechenden Energie-Reichweite-Beziehungen aufgestellt. Es ergeben sich folgende Zusammenhänge zwischen der Energie E (in MeV) und der Maximalen Reichweite R (in mg/cm²): für Elektronen $R^- = 773 \cdot E^{1,0}$, für Positronen $R^+ = 759 \cdot E^{1,2}$. Die Maximalen Elektronenreichweiten sind bei denselben Energien um durchschnittlich 12% größer als die bisher bestimmten Praktischen und um etwa den gleichen Betrag niedriger als von NELMS berechnete Wahre Reichweiten. Das hier gemessene Verhältnis von Positronen- zur Elektronenreichweite ist $R^+/R^- = 0{,}982 \cdot E^{0,22}$ (E in MeV) und stimmt innerhalb der Fehlergrenzen mit den Werten von NELMS überein. Die Reichweiten der Positronen sind also geringer als die von Elektronen gleicher Energie, was mit dem unterschiedlichen Energieverlust erklärt werden kann.

1. Einleitung

Für viele experimentelle Fragen kommt auch heute noch der Kenntnis der Reichweite von Elektronen in Aluminium eine große Bedeutung zu, wobei das Interesse sich in steigendem Maße auf das Gebiet kleiner Energien richtet. Eine einheitliche Beziehung zwischen der Energie der Elektronen und ihrer Reichweite in Aluminium, die im Bereich von 0,05 bis 3 MeV alle bis dahin gewonnenen Ergebnisse gleich gut wiedergab, stellte erstmals FLAMMERSFELD[1] auf. Seine bekannte Formel lehnte sich für kleine Energien an das Whiddingtonsche Gesetz an, das von 0 bis 0,1 MeV eine quadratische Abhängigkeit $R = a \cdot E^2$ annahm. Bald wurden Gründe dafür bekannt, daß der Exponent von E kleiner als 2 ist[2,3]. Für kleinere begrenzte Energieintervalle fand man jeweils in sehr guter Näherung eine Beziehung von der Form $R = a \cdot E^n$, $1 \leqq n < 2$. Dieser Gegebenheit trugen KATZ und PENFOLD[4] dadurch Rechnung,

* Göttinger Dissertation 1958. Vorgetragen auf der Tagung des Fachausschusses für Kernphysik in Bad Neuenahr am 15. 4. 1958.

[1] FLAMMERSFELD, A.: Z. Naturforsch. **2a**, 370 (1947).

[2] LIBBY, W.E.: Anal. Chem. **19**, 2 (1947).

[3] GLOCKER, R.: Z. Naturforsch. **3a**, 147 (1948).

[4] KATZ, L., u. A.S. PENFOLD: Rev. Mod. Phys. **24**, 28 (1952).

ZEITSCHRIFT FÜR PHYSIK

HERAUSGEGEBEN UNTER MITWIRKUNG
DES VERBANDES
DEUTSCHER PHYSIKALISCHER GESELLSCHAFTEN

VON

O. HAXEL UND J. HANS D. JENSEN

152. BAND
MIT 288 FIGUREN IM TEXT

SPRINGER-VERLAG
BERLIN · GÖTTINGEN · HEIDELBERG
1958