

KFK-121

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

September 1962

KFK 121

Institut für Kernverfahrenstechnik

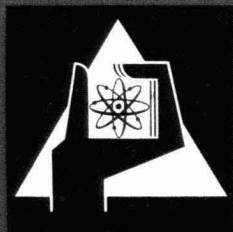
Massenspektrometrische Untersuchung von Strahlen aus kondensiertem

Wasserstoff

W. Henkes

KERNREAKTOR
Bau- und Betriebs-Gesellschaft m. b. H.
Verwaltung der Zentralbücherei

4. Mrz 1963



KERNREAKTOR

BAU- UND BETRIEBS-GESELLSCHAFT M. B. H.

KARLSRUHE

Massenspektrometrische Untersuchung von Strahlen aus kondensiertem Wasserstoff

Von W. HENKES

Lehrstuhl

KERNREAKTOR

Bau- und Betriebs-Gesellschaft m. b. H.
Verwaltung des Zentralbläherol

Massenspektrometrische Untersuchung von Strahlen aus kondensiertem Wasserstoff

Von W. HENKES

Aus dem Kernforschungszentrum Karlsruhe, Institut für Kernverfahrenstechnik der Technischen Hochschule

(Z. Naturforschg. 17 a, 786—789 [1962]; eingegangen am 11. Juli 1962)

Durch massenspektrometrische Untersuchung wird eine Aussage darüber gewonnen, in welchem Maße die in einem kondensierten Wasserstoff-Molekularstrahl vorhandenen Agglomerate eine Ionisation durch Elektronenbeschuß und anschließende elektrische Beschleunigung überstehen. Der größte beobachtete M/Z -Wert betrug 1100, entsprechend einem einfach geladenen Agglomerat aus 550 Molekeln. Dieser Wert war lediglich durch die obere Grenze des Meßbereiches des Spektrometers gegeben. Bei einer Steigerung der Elektronenenergie von 60 eV auf 100 eV nimmt die Intensität bei kleinen Massen auf Kosten derjenigen bei großen Massen zu. Daraus folgt, daß die Agglomerate durch den Elektronenbeschuß teilweise zerschlagen werden.

Bei der Erzeugung von Überschallmolekularstrahlen mit Düsen kühlt sich das Strahlgas durch adiabatische Expansion stark ab, so daß es bei geeigneten Anfangsbedingungen zur Übersättigung und teilweisen Kondensation kommen kann. Von BECKER und Mitarbeitern^{1,2} wurde gezeigt, daß sich die kondensierten Agglomerate als „kondensierte Molekularstrahlen“ ins Hochvakuum überführen lassen. Es wurde vorgeschlagen, kondensierte Molekularstrahlen aus den Isotopen des Wasserstoffs wegen ihrer hohen Intensität und scharfen räumlichen Begrenzung bei Kernfusionsexperimenten einzusetzen^{3,4}.

Bei einigen Kernfusionsexperimenten wird der Kernbrennstoff in Form von Teilchenstrahlen hoher Energie in den Reaktionsraum eingebracht. Für die Herstellung solcher Strahlen interessiert es, ob sich kondensierte Wasserstoffagglomerate auf die gewünschten Energien bringen lassen. In der vorliegenden Arbeit wird daher untersucht, in welchem Maße die kondensierten Agglomerate des Wasserstoffs eine Ionisierung durch Elektronenbeschuß mit anschließender elektrischer Beschleunigung überstehen. Die Agglomerate werden hierzu massenspektrometrisch auf ihre M/Z -Werte untersucht.

Die Apparatur

Für die Erzeugung der kondensierten Molekularstrahlen wurde die von BECKER, KLINGELHÖFER und

LOHSE² beschriebene Apparatur benutzt. Für die Ionisierung, Beschleunigung und M/Z -Bestimmung der kondensierten Agglomerate wurde in die Vakuumkammer dieser Apparatur ein Massenspektrometer eingebaut, dessen prinzipieller Aufbau und wesentlichste Abmessungen aus Abb. 1 hervorgehen.

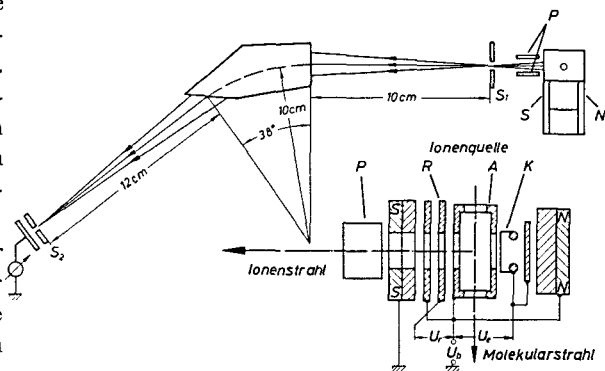


Abb. 1. Massenspektrometer und Ionenquelle, schematisch. Im Grundriß des Spektrometers steht der Molekularstrahl senkrecht auf der Papierebene.

Der kondensierte Molekularstrahl durchläuft, senkrecht von oben kommend, eine Elektronenstoßionenkammer. Diese ist in Anlehnung an die Pendelionenkammer von FINKELSTEIN⁵ konstruiert. Ein Wolframband K von 10 mm Länge ist als Glühkathode parallel zum Molekularstrahl ausgespannt. Die emittierten Elektronen (Emissionsstrom I_e) werden durch die zwischen K und dem Anodenkästchen A liegende Spannung U_e beschleunigt. Sie durchlaufen A, geführt von dem zwischen den Polschuhen N und S herrschenden Magnet-

¹ E. W. BECKER, K. BIER u. W. HENKES, Z. Phys. 146, 333 [1956].

² E. W. BECKER, R. KLINGELHÖFER u. P. LOHSE, Z. Naturforschg. 17 a, 432 [1962].

³ E. W. BECKER, Beams of Condensed Matter in High Vacuum,

Vortrag a. d. Brookhaven Conference on Molecular Beams, Heidelberg, 11. 6. 1959.

⁴ E. W. BECKER, R. KLINGELHÖFER u. P. LOHSE, Z. Naturforschg. 15 a, 645 [1960].

⁵ A. T. FINKELSTEIN, Rev. Sci. Instrum. 11, 97 [1940].

feld eines Dauermagneten und werden durch das Gegenfeld der zwischen A und der Blende R liegenden Spannung U_r reflektiert. Der Durchgriff dieses Feldes zieht die gebildeten Ionen aus dem Anodenkästchen. Durch zwei weitere Lochblenden, deren letzte gleichzeitig als Polschuh dient, wird der Ionenstrahl gebündelt. Ein zwischen der Ionenquelle und dem Kollimator-schlitz S_1 angebrachtes Plattenpaar P dient zur elektrischen Nachjustierung. S_1 wird durch ein permanentmagnetisches Sektorfeld auf den Auffängerschlit S_2 abgebildet. Die Induktion des Ablenkfeldes beträgt ca. 6000 Gauss. Der Auffängerstrom wird mit einem Brown-Honeywell-Recorder gemessen, der in Verbindung mit der automatisch ablaufenden Beschleunigungsspannung das Massenspektrum, aufgeteilt in 4 Bereiche, kontinuierlich registriert. Die untere Grenze des überstrichenen Massenbereiches wird durch die maximale Beschleunigungsspannung von $U_b = 2,8$ kV gegeben und liegt bei $M/Z = 60$ Masseneinheiten pro Elementarladung. Die mit der Halbwertsbreite der Massenpeaks definierte Auflösung beträgt $M/\Delta M = 60$ für $M/Z < 100$, nimmt bei steigender Masse ab und ist bei $M/Z \approx 900$ auf die Hälfte gesunken. Die Bestimmung der Auflösung sowie die Eichung der Massenskala wurden mit kondensierten CO₂-Strahlen⁶ durchgeführt⁷. Die relative Unsicherheit der M/Z -Bestimmung wird auf $\pm 2\%$ geschätzt.

Die Versuche

Zur Erzeugung des kondensierten Wasserstoffstrahls waren Düse und Abschäler des Strahlerzeugungssystems mit flüssigem Wasserstoff, der Kollimator mit flüssigem Stickstoff gekühlt.

Als Beispiel einer Messung zeigt Abb. 2 die erste Hälfte eines Registrierstreifens, die den Bereich $60 < M/Z < 200$ wiedergibt. Der Abstand der Peaks im aufgelösten Teil des Spektrums entspricht zwei M/Z -Einheiten. Auf denselben Registrierstreifen wurde anschließend eine Messung geschrieben, bei der der Strahl durch eine oberhalb der Ionenquelle einschwenkende Blende abgedeckt war. Obwohl also die gleiche Menge Wasserstoff in die Vakuumkammer einströmte, ist von dem Spektrum der Wasserstoffagglomerate nichts mehr zu erkennen. Das verbleibende Spektrum dürfte im wesentlichen vom Dampf des Pumpenöls herrühren und ist in der oberen Kurve als Überstruktur wiederzuerkennen.

Bei dem in Abb. 2 dargestellten Versuch wurden die Potentiale aller Blenden der Ionenoptik proportional zur Beschleunigungsspannung U_b geändert. Bei der Größe des zu überstreichenden Massenbereiches

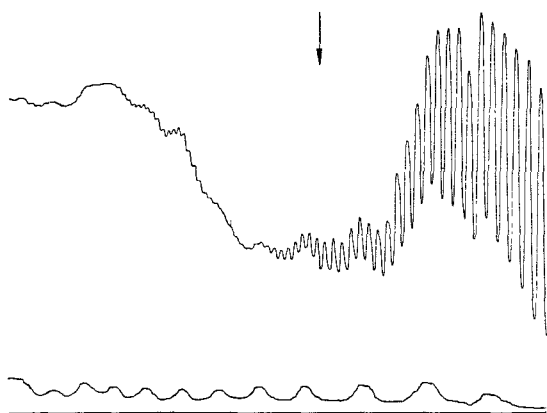


Abb. 2. Registrierstreifen des Massenbereiches $M/Z = 60$ (rechts) bis $M/Z \approx 200$ (links), $p_0 = 146$ Torr. Die untere Kurve wurde mit abgedecktem Strahl aufgenommen. Der Pfeil markiert den Übergang vom ersten zum zweiten Meßbereich.

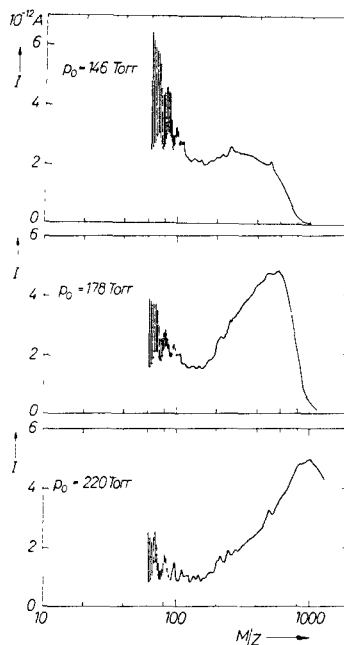


Abb. 3. Spektren in Abhängigkeit vom Einlaßdruck p_0 . $U_b = 60$ V, $I_e = 0,3$ mA.

ches hat dies zur Folge, daß bei kleinem U_r (großes M/Z) die Ionen schlecht aus der Quelle gezogen werden und daß bei großem U_r (kleines M/Z) die

⁶ W. HENKES, Z. Naturforsch. 16 a, 842 [1961]. Kondensierte CO₂-Agglomerate wurden auch von BENTLEY (Nature, Lond. 190, 432 [1961]) massenspektrometrisch untersucht.

⁷ Auf Grund der gegenüber ⁶ größeren Auflösung konnten Peaks bis zu $M/Z = 1012$, entsprechend einem (CO₂)₂₃⁺-Agglomerat, nachgewiesen werden.

KERNREAKTOR
 Bau- und Betriebs-Gesellschaft m. b. H.
 Verwaltung der Zentralbücherei

ionisierenden Elektronen schon innerhalb des Anodenkästchens reflektiert werden. Bei den weiteren Versuchen wurde deshalb U_r auf den konstanten Wert $U_r = 3 U_e$ eingestellt und hierdurch der erfaßbare Massenbereich, der vorher bei $M/Z \approx 600$ endete, bis auf $M/Z \approx 1000$ erweitert.

Unter Benutzung der mit CO_2 gewonnenen Eichung wurde der am Auffänger gemessene Ionenstrom gegen eine logarithmische M/Z -Skala aufgetragen. Abb. 3 zeigt drei Spektren aus einer Versuchsreihe, bei der der Einlaßdruck p_0 vor der Düse bei konstant gehaltenen Ionenquellenparametern U_e und I_e variiert wurde. Aus den Spektren entnimmt man qualitativ, daß mit steigendem Einlaßdruck die Häufigkeit großer Agglomerate auf Kosten der kleinen wächst. Zur quantitativen Bestimmung der Einlaßdruckabhängigkeit wurde die

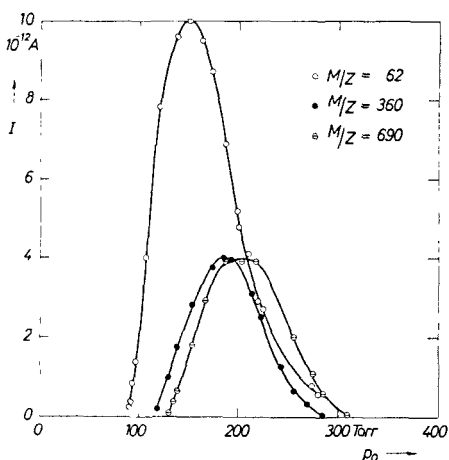


Abb. 4. Auffängerstrom dreier verschiedener Massen als Funktion des Einlaßdruckes. $U_e = 60$ V, $I_e = 0,2$ mA.

Beschleunigungsspannung jeweils auf ein bestimmtes M/Z fest eingestellt. Abb. 4 zeigt das Ergebnis für die Werte $M/Z = 62, 360$ und 690 .

Um einen Eindruck von dem Einfluß der Elektronenenergie auf die M/Z -Verteilung zu gewinnen, wurden Spektren bei konstantem Einlaßdruck mit $U_e = 60$ V und $U_e = 110$ V aufgenommen⁸. Abb. 5 zeigt, daß bei der höheren Elektronenenergie der Auffängerstrom bei großem M/Z relativ zu dem bei kleinem abnimmt.

⁸ Der Emissionsstrom war bei beiden Versuchen verschieden, so daß die Absolutwerte des Auffängerstroms für beide Spektren nicht vergleichbar sind. Bei den verwendeten Emissionsströmen von $I_e \leq 0,3$ mA ließ sich kein Einfluß von I_e auf die Form der Spektren feststellen.

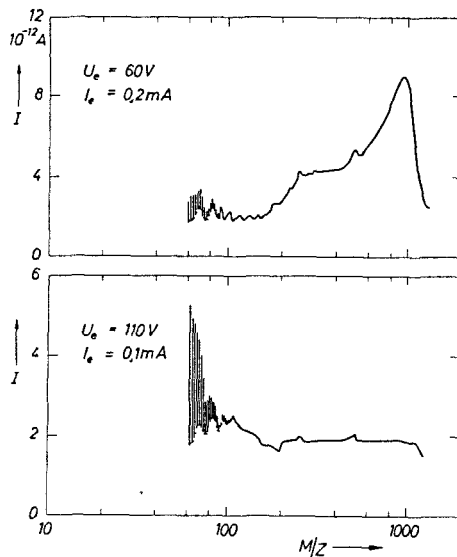


Abb. 5. Spektren in Abhängigkeit von der Elektronenenergie. $p_0 = 200$ Torr.

Diskussion

Im unaufgelösten Teil der Spektren überlappen sich benachbarte Massenpeaks, wodurch die Intensitäten mehrerer Peaks zum Auffängerstrom I beitragen. Außerdem ist die Transmission des Spektrometers eine unbekannte Funktion von M/Z , z. B. weil sich bei konstantem U_r die optischen Eigenschaften des Blendensystems bei Variation von U_b ändern. Aus diesen Gründen läßt sich keine quantitative Angabe über die M/Z -Verteilung der Ionen machen, die die Quelle verlassen. Jedoch kann durch Vergleich der Spektren untereinander qualitativ auf die Veränderung dieser Verteilung bei Variation der Versuchsbedingungen geschlossen werden.

Wie Abb. 2 zeigt, sind zwischen den Peaks mit $\Delta M/Z = 2$ keine weiteren Peaks zu erkennen. Hieraus folgt, daß im aufgelösten Teil des Spektrums kein wesentlicher Anteil mehrfach geladener Ionen vorhanden ist. Für große M/Z ist ein entsprechender Schluß nicht möglich. Man kann jedoch abschätzen, daß auf Grund der elektrostatischen Abstoßung für $M < 1000$ doppelt oder mehrfach geladene Agglomerate nicht stabil sein dürften. Die beobachteten Spektren dürften demnach weitgehend aus einfach geladenen Ionen zustandekommen.

Aus Abb. 5 geht hervor, daß bei Steigerung der Elektronenenergie kleine Massen auf Kosten der

großen entstehen⁹. Es besteht demnach kein einfacher Zusammenhang zwischen der Masse der Ionen und der primär im Strahl vorhandenen Agglomerate. Der Zerfall der größeren Massen bei höherer Elektronenenergie dürfte zumindest teilweise darauf beruhen, daß bei der höheren Elektronenenergie das Primärelektron nach dem ersten Ionisationsakt noch eine hinreichend hohe Energie hat, so daß die Bildung eines zweiten Ions im selben Agglomerat wahr-

scheinlicher wird als bei kleinem U_e . Das doppelt geladene Agglomerat zerfällt dabei aus den oben genannten Gründen. Weiterhin kommt in Betracht, daß bei hohem U_e mehr Energie auf die inneren Freiheitsgrade der Agglomerate übertragen wird, was ebenfalls zu teilweiser Zerstörung führen könnte.

Herrn Professor Dr. E. W. BECKER danke ich für das der Arbeit entgegengebrachte Interesse.

⁹ Entsprechende Messungen an kondensierten Stickstoffstrahlen, bei denen auch kleinere Agglomerate erfaßt werden, bestätigen diese Annahme. Mit $U_e=60$ V hatte die $(N_2)_3^+$ -Intensität ihr Maximum bei $p_0=165$ Torr, bei $p_0=325$ Torr war sie auf 20% des Maximalwertes gefallen. Mit $U_e=200$ V

dagegen lag das Maximum bei $p_0=325$ Torr, d. h. die $(N_2)_3^+$ waren wahrscheinlich zum größten Teil aus Agglomeraten entstanden, deren Maximalintensität bei diesem Druck liegt.