

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

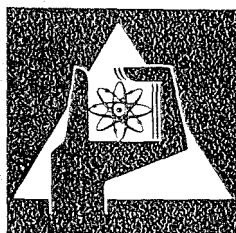
Februar 1977

KFK 2344

Institut für Kernverfahrenstechnik
Abteilung Datenverarbeitung und Instrumentierung

**Verfahren zur automatischen
Isotopenverhältnismessung bei magnetischen
Massenspektrometern**

W. Ehrfeld, D. Fröhlich, O. Fromhein, U. Knapp



**GESELLSCHAFT
FÜR
KERNFORSCHUNG M.B.H.**

KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 2344

Institut für Kernverfahrenstechnik
Abteilung Datenverarbeitung und Instrumentierung

Verfahren zur automatischen Isotopenverhältnismessung
bei magnetischen Massenspektrometern

Ehrfeld, W.
Fröhlich, D.
Fromhein, O.
Knapp, U.

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe

Zusammenfassung

Es werden ein Verfahren und eine Meßeinrichtung beschrieben, die den Einsatz einfach aufgebauter magnetischer Massenspektrometer mit Doppelauffänger für automatische Messungen von Isotopenverhältnissen gestattet. Dies wird im wesentlichen durch eine Diskriminatorschaltung ermöglicht, die bei einer periodischen Variation der Ionenbeschleunigungsspannung (Ziehspannung) den für die Isotopenverhältnismessung geeigneten Bereich des Massenpeaks für eine Integration des Ionenstroms erfaßt. Darüber hinaus wird der Einfluß der Nullpunktsdrift der Ionenstromverstärker auf die Meßgenauigkeit weitgehend eliminiert. Vor jeder Messung eines Isotopenverhältnisses werden die Offset-Spannungen der Verstärker bestimmt und bei der Ermittlung des Isotopenverhältnisses mit einem festprogrammierten arithmetischen Baustein rechnerisch berücksichtigt.

Im Rahmen eines Interlaboratoriumstests wurde eine größere Zahl von Massenspektrometern zur Uranisotopenanalyse im Langzeittest verglichen. Es zeigte sich, daß die hier entwickelte Anordnung auch im Langzeitbetrieb zuverlässig arbeitet und die gleiche Meßgenauigkeit wie die aufwendigeren Meßanordnungen aufweist.

Automatic Isotope ratio measurements with a double collector magnetic mass spectrometer.

Abstract

This paper describes a measuring procedure and the instrumentation of automatic measurements of isotope ratios with double collector magnetic mass spectrometers.

This is essentially achieved by discriminating the desired peak plateau for ion current integration during the high voltage variation. The resolution is nearly unaffected by offset drifts of the electronic system. Prior to every isotope ratio measurement the offset values are determined, digitally stored, and finally compensated when the isotope ratio is calculated with an arithmetic unit.

Several mass spectrometers have been compared on the basis of an uranium isotope analysis in a long time experiment. The developed system proved reliable and showed the same resolution as more sophisticated spectrometer systems.

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung
2. Funktionsbeschreibung
3. Beschreibung der Meßwertverarbeitung
 - 3.1 Ionenstrom-Messung
 - 3.2 Mittelwertbildung
 - 3.3 Analog-Digital-Konvertierung
 - 3.4 Meßwertverarbeitung
4. Diskussion
5. Literaturverzeichnis

1) Einleitung

Zur Bestimmung der relativen Häufigkeit der Isotope eines Elements wird bevorzugt die Methode der Massenspektrometrie angewandt [1]. Hierbei müssen in der Mehrzahl der Anwendungsfälle an Proben verschiedener Herkunft geringe Unterschiede in den Isotopenverhältnissen mit hoher Genauigkeit bestimmt werden, während die exakten Absolutwerte des Isotopenverhältnisses weniger interessieren. Für Messungen dieser Art ist das magnetische Massenspektrometer mit Doppelauffänger besonders gut geeignet.

Der prinzipielle Aufbau eines solchen Gerätes ist aus Abbildung 1.1 ersichtlich. Die in der Ionenquelle erzeugten und mit der Ziehspannung U_Z beschleunigten Ionen werden in einem Magnetfeld entsprechend ihrer Masse abgelenkt und treffen auf die nebeneinander angeordneten Ionenauffänger. Durch die gleichzeitige Messung der Ionenströme kann das Ergebnis nicht durch Schwankungen in der Ionenproduktion verfälscht werden, und ein zum Verhältnis der Ionenströme proportionaler Wert kann mit Hilfe einer einfachen Meßbrücke bzw. mit einem Ratiometer ermittelt werden. Ein stationärer Betrieb einer solchen Meßanordnung erfordert allerdings besonders bei kleinen relativen Massendifferenzen der Isotope eine extrem hohe Stabilität der Ionenquellenpotentiale, des Magnetfeldes und der Umgebungstemperatur, da bereits geringe Änderungen dieser Größen zu störenden Positionsänderungen der Ionenstrahlen im Bereich der Ionenauffänger und damit zu Fehlmessungen führen. Diese Schwierigkeiten lassen sich umgehen, wenn der Bahnradius der Ionenstrahlen durch Ändern der Ziehspannung periodisch variiert und die Sollposition während des Meßvorgangs immer wieder durchlaufen wird [2]. Massenspektrometer dieser Art besitzen im allgemeinen unterschiedlich breite Ionenauffänger; die Variations-

breite der Ziehspannung wird so gewählt, daß der eine Ionenstrahl immer in den breiteren Auffänger gelangt, während der andere Strahl über den schmälere Auffänger hinwegläuft. Da sich das Signal beim Überstreichen des schmälere Auffängers stark ändert, kann der richtige Zeitabschnitt für die Verhältnismessung in einfacher Weise erkannt werden, wenn das Ionenstromverhältnis mit Hilfe einer Meßbrücke mit nachgeschaltetem Schreiber aufgezeichnet wird.

Ein grundsätzlicher Nachteil dieser Meßanordnung besteht allerdings darin, daß sie in dieser Form für einen automatisierten Versuchsbetrieb wenig geeignet ist und eine zeitlich aufwendige Auswertung der Schreiberprotokolle erfordert. Bei neueren, für Routinemessungen konzipierten Massenspektrometern werden deshalb aufwendige Maßnahmen zur Stabilisierung der Strahlposition angewandt. Hierbei wird beispielsweise aus dem zu analysierenden Gemisch ein weiterer Ionenstrahl aufgefangen und dessen Position durch Steuerung der Ziehspannung des Massenspektrometers festgehalten [3]. Damit ergeben sich automatisch stabile Positionen für die Ionenstrahlen der beiden Isotope, deren Verhältnis dann kontinuierlich registriert werden kann.

Eine Umrüstung von Massenspektrometern mit periodischer Ziehspannungsvariation auf einen Betrieb mit stabilisierter Strahlposition würde allerdings einen sehr hohen mechanischen und schaltungstechnischen Aufwand erfordern. Im Rahmen dieser Arbeit wurde deshalb eine Vorrichtung zur automatischen Messung des Ionenstromverhältnisses entwickelt, die unmittelbar bei Massenspektrometern mit periodischer Ziehspannungsvariation eingesetzt werden kann. Diese Vorrichtung basiert im wesentlichen auf einem Meßbereichs-Diskriminator, mit welchem das für die Ionenstrommessung zulässige Zeitintervall ermittelt wird.

Die Meßeinrichtung für Isotopenverhältnisse, die Verstärker für die Ionenströme, Integratoren, Analog-Digital-Wandler, eine Recheneinheit, eine Datenausgabe und eine Programmablaufsteuerung beinhaltet, wird seit längerer Zeit an einem Massenspek-

trometer bei der Uranisotopenanalyse eingesetzt (Typ UF5 der Firma Varian MAT, Bremen). Hierbei müssen relative Unterschiede in den Isotopenverhältnissen zweier Proben mit einer Genauigkeit von etwa 10^{-4} nachgewiesen werden. Obwohl in diesem Fall wegen der kleinen relativen Massendifferenzen der Isotope und der Korrosivität der aus Uranhexafluorid bestehenden Proben die Probleme der Strahlposition besonders kritisch sind, konnte bereits ein störungsfreier Betrieb über einen Zeitraum von einem Jahr erzielt werden.

2) Funktionsbeschreibung

Die Meßeinrichtung für Isotopenverhältnisse besteht im wesentlichen aus zwei Funktionsblöcken, der Programmablaufsteuerung und der Signalverarbeitung. Die Programmablaufsteuerung, die das Bindeglied zwischen Massenspektrometer und Signalverarbeitung ist, koordiniert die einzelnen Arbeitsgänge an Massenspektrometer und Signalverarbeitung entsprechend einem festverdrahteten Programm. Die prinzipielle Arbeitsweise der gesamten Meßeinrichtung sowie ihr Zusammenwirken mit dem Massenspektrometer ist in Abbildung 2.1 schematisch dargestellt.

Zu Beginn eines jeden Programmdurchlaufs wird das Einlaßsystem des Massenspektrometers abgepumpt, um eine Vermischung unterschiedlicher Gasproben zu vermeiden. Mit dem Verstärker des A-Kanals für U-238, dessen Ausgangsspannung ein Maß für den Druck im Einlaßsystem ist, wird der Abpumpvorgang überwacht. Nachdem der Reststrom im A-Kanal einen unteren Schwellwert unterschritten hat, wird der Ionenstrahl ausgeblendet. Die Ruhespannungen in den beiden Kanälen werden integriert, in Analog-Digital-Konvertern digitalisiert und in einem Zwischenspeicher für die Meßkorrektur aufbewahrt. Sobald beide Nullpunktkonversionen abgeschlossen sind, wird über eines der Einlaßventile eine Gasprobe aus der Probenaufbereitung in das Massenspektrometer eingelassen. Um stets beim gleichen Gasdruck im Probenbehälter zu arbeiten, wird auch der Einlaßvorgang über

den Verstärker des A-Kanals überwacht. Bei Erreichen einer vorgegebenen oberen Schwelle schließt die Programmablaufsteuerung das Einlaßventil, die eigentliche Meßphase beginnt.

Wie bereits in der Einleitung beschrieben wurde, sind die Ionenauffänger im Massenspektrometer so aufgebaut, daß der Ionenstrahl im Kanal für U-238 während der periodischen Ziehspannungsvariation ständig im Bereich der Auffängerelektrode liegt, während im Kanal für U-235 der Auffänger vom Ionenstrahl periodisch überstrichen wird. Abbildung 2.2 zeigt den zeitlichen Verlauf des Signals im Kanal für U-235. Während des allmählichen Hochspannungsabfalls (Vorlauf) verweilt der Ionenstrahl ca. 7 Sekunden lang vollständig im Auffänger. In ca. 4 Sekunden läuft die Hochspannung wieder auf ihren Ausgangswert zurück (Rücklauf). Dieser Vorgang wiederholt sich ständig. Mit einer Diskriminator-Schaltung wird aus dem Verlauf des Signals für U-235 zwischen Vorlauf und Rücklauf unterschieden.

Während des Hochspannungsvorlaufs wird in beiden Kanälen gleichzeitig ca. 3 Sekunden lang integriert. Durch eine Verzögerungsschaltung, die beim Überschreiten einer oberen Schwelle durch das Signal für U-235 angetriggert wird, ist gewährleistet, daß die Integration auf dem Peakplateau erfolgt. Die integrierten Meßspannungen werden ebenfalls in den ADC's digitalisiert.

Die abgespeicherten Ruhespannungswerte F_{235} und F_{238} werden von den Meßspannungswerten M_{235} und M_{238} subtrahiert, und das Isotopenverhältnis

$$Y = \frac{M_{235} - F_{235}}{M_{238} - F_{238}} \quad (2-1)$$

wird berechnet. Das Ergebnis wird in einen Ausgabespeicher eingelesen und optisch in einer fünfstelligen Anzeige dargestellt.

Dieser Vorgang, der vom Beginn der Integration bis zur erfolgten Abspeicherung des Isotopenverhältnisses ca. 3.5 Sekunden dauert, wird zur Überprüfung der Reproduzierbarkeit sechsmal wiederholt. Danach übernimmt ein Datenträger die sechs Meßwerte. Das Grundprogramm geht in seine Ausgangsstellung zurück.

Um das beschriebene Grundprogramm automatisch mehrfach auf die verschiedenen angeschlossenen Proben anwenden zu können, läßt sich die Programmablaufsteuerung zusätzlich extern programmieren. Dabei wird festgelegt, wie oft die angewählten Proben zyklisch mit dem Grundprogramm auf ihr Isotopenverhältnis untersucht werden.

3. Beschreibung der Meßwertverarbeitung

3.1 Ionenstrom-Messung

Um relative Unterschiede in den Isotopenverhältnissen zweier Proben mit der geforderten Genauigkeit von 10^{-4} bestimmen zu können, ist es wegen des niedrigen Ionenstroms des seltenen Uranisotops U-235 erforderlich, daß die Ruhestromänderungen im U-235-Kanal unter einem Femtoampere bleiben. Diese Forderung gilt allerdings für den Fall, daß beide Abweichungen unterschiedliche Polarität besitzen. Da für annähernd konstante Temperaturen und räumliche Nähe der Meßkopfanordnung gesorgt ist, können vorzeichengleiche Abweichungen angenommen werden, so daß die angestrebte Genauigkeit bei der Verhältnisbildung erreicht werden kann.

Ein Überblick über die verschiedenen Strom-Spannungskonverter-Typen |4, 5, 6, 7| schränkt die Auswahl stark ein, wenn neben geringen Offset-Strömen schmale Bandbreite, minimale Mikrophonie-Effekte und kleine mechanische Abmessungen erwünscht sind. Da außerdem bei der Realisierung der elektronische Schaltungsaufwand minimal bleiben sollte, wurde ein parametrischer

Operationsverstärker (Typ 170201 von Teledyne Philbrick) mit Eingangsruhestromänderungen von 0,1 fA pro Grad Celsius eingesetzt.

Abbildung 3.1 zeigt das Ersatzschaltbild des Strom-Spannungskonverters. Wegen des hochohmigen Eingangswiderstandes fließt der Eingangsstrom über den Rückkopplungswiderstand R_F .

Nach Berücksichtigung der Eingangs-Offset-Spannung (u_{OS}) des Eingangsruhestromes (i_B), des intern erzeugten Strom- und Spannungs-Rauschens (i_n , u_n) und des Stromrauschens (i_s) im Rückkopplungswiderstand läßt sich die Ausgangsspannung u_a wie folgt schreiben:

$$u_a = I_{in} \cdot R_F + i_b \cdot R_F + u_{OS} + u_n + (i_s + i_n) \cdot Z_F \quad (3-1)$$

Wegen der Streukapazitäten muß bei großen Rückkopplungswiderständen der resultierende komplexe Widerstand Z_F genommen werden. Von den Störgrößen ist die Eingangs-Offset-Spannung u_{OS} kompensierbar und das intern erzeugte Rauschen u_n bzw. i_n je nach Wahl von R_F gegenüber dem thermischen Widerstandsrauschen vernachlässigbar. Da das thermische Stromrauschen mit zunehmendem Rückkopplungswiderstand abnimmt, sollte R_F so groß wie möglich gewählt werden.

$$i_s^2 = 4 K \cdot \Delta f \cdot T / R_F \quad (3-2)$$

Allerdings ist dieser Wahl eine obere technische Grenze gesetzt, da eine Spannungsabhängigkeit bei großen Widerstandswerten unerwünschte Nichtlinearitäten erzeugt.

Ein nicht zu großer Rückkopplungswiderstand ergibt außerdem bei einem großen Verstärkungsfaktor einen kleinen Eingangswiderstand, was sich günstig auf das Frequenzverhalten auswirkt und die Anforderung an die Isolationswiderstände reduziert |5|.

Bei den durch das Massenspektrometer vorgegebenen Ionenströmen von 10^{-10} A für das häufige und 10^{-12} A für das seltene Isotop erwiesen sich Widerstände von 6×10^8 Ohm für den A-Kanal bzw. 6×10^{11} Ohm für den B-Kanal als zweckmäßig. Damit ergibt sich ein Signal-zu-Rausch-Verhältnis von 2×10^3 für den A-Kanal bzw. 0.35×10^3 für den B-Kanal. Hieraus folgt, daß zum Erreichen der geforderten Meßgenauigkeit von 10^{-4} das Signal-zu-Rausch-Verhältnis durch Mittelwertbildung verbessert werden muß (s. Abschnitt 3.2).

Da der Strom-Spannungswandler unmittelbar am Massenspektrometer in allernächster Nähe der Auffängerelektroden mit einem Schutzgehäuse angeflanscht wird, wurde eine zusätzliche Treiberstufe innerhalb der Rückkopplungsschleife eingebaut, um die Signalpegel von ca. 0,1 V bzw. 1,2 V ohne Störungen über ein längeres Kabel an die Zwischenverstärker zu führen (Abbildung 3.2). Diese sind mit Instrumentenverstärkern (Typ 3625 von Burr Brown) realisiert und verstärken die Signalpegel auf etwa 3 bis 4 V. Eine Einstellmöglichkeit für die Offset-Spannungen ist im jeweiligen Zwischenverstärker untergebracht.

3.2 Mittelwertbildung

Bei gleichbleibenden äußeren Meßbedingungen können für eine Meßwertabweichung innerhalb einer Meßreihe das Rauschen des Strom-Spannungskonverters und der Verstärkerelektronik sowie statistische Schwankungen in den ionisierten Gasströmen verantwortlich sein.

Das Rauschen der Verstärkerelektronik ist vernachlässigbar klein, wenn der Verstärkungsfaktor des Strom-Spannungskonverters groß genug dimensioniert ist, da dann nur noch das Rauschen der Eingangsstufe für die Störungen verantwortlich ist. Die zweite Ursache liegt zum Teil in den Eigenschaften der Ionenquelle begründet, wird aber durch die Verwendung zweier Auffänger entscheidend gemildert.

Die durch den Eingangsruhestrom und den Offset-Strom hervorgerufenen Ruhestromwerte haben in diesem Meßkonzept keinen Einfluß auf die Genauigkeit der Verhältnisbildung, da diese quasi-konstanten Fehlerkomponenten bei der Nullpunktmessung für sich erfaßt und vom eigentlichen Meßwert abgezogen werden.

Die statistischen Ionenstrom-Schwankungen können zusammen mit dem Rauschen des Strom-Spannungskonverters durch geeignete Maßnahmen, wie z. B. Integration zum Zwecke der Mittelwertbildung, gezielt klein in ihrer Auswirkung auf die Genauigkeit der Messung gehalten werden. Da die Betriebsweise des Massenspektrometers nur begrenzte Integrationszeiten erlaubt, muß ein Kompromiß zwischen Genauigkeit und Integrationszeit gefunden werden.

Folgende Formel ermöglicht eine Abschätzung des nach der Integration verbleibenden Fehlers, wenn der Eingangsprozeß von statistischen Schwankungen gestört ist.

$$\frac{I}{\pi} \cdot \frac{N}{S} \cdot \frac{T_1}{T_0} < F_0 \quad (3-4)$$

mit N: Amplitude der größten als Sinusschwingung angenommenen Störung, T_1 : die zu N gehörige Periodendauer, S: ungestörte Signalkomponente, T_0 : Integrationszeit, F_0 : maximaler Fehler.

Wie aus obiger Abschätzung (3-4) zu entnehmen ist, bleibt der entstehende Fehler im B-Kanal bei einem Signal-zu-Rauschverhältnis von $0,35 \cdot 10^3$ bis herunter zu ca. 4 Hz unter 10^{-4} , wenn die Integrationszeit mindestens 2,5 sec. lang ist. Im A-Kanal verbessert sich durch diese Maßnahme das Signal-zu-Rauschverhältnis auf ca. $0,2 \cdot 10^{-4}$.

Für die Realisierung des Integrators wurde ein Baustein (Typ 4850 von Philbrick) eingesetzt, der mit schnellen FET-Schaltern zur exakten Einhaltung der Integrationszeiten ausgestattet ist. Die für die Steuerung dieses Bausteins erforderlichen Funktionen ("Operate" und "Reset", s. Abbildung 3.2) werden aus dem Verlauf des Ionenstroms im Kanal für U-235 abgeleitet. Dabei muß zwischen dem Vor- und Rücklauf der Ziehspannung unterschieden werden, und es muß gewährleistet sein, daß die Integration auf dem Plateau erfolgt (vgl. Abbildung 3.3).

In der Schaltung wird der im Vergleich zum Hinlauf kürzere Rücklauf mit Hilfe der Ausgangsfunktion des Schwellwertdiskriminators selektiert und die Zeitablaufsteuerung für den folgenden Vorlauf vorbereitet. Überschreitet der Ionenstrom wieder den Schwellwert, wird nach Ablauf einer vorgebbaren Verzögerungszeit der Start der Integration eingeleitet (Operate-Funktion in Abbildung 3.3). Die Zeitverzögerung gewährleistet, daß die Integration auf dem Peakplateau erfolgt.

Am Ende der Integration wird die Verbindung von Verstärker und Integratoreingang wieder aufgehoben, so daß am Ausgang des Integrators folgende Spannung zur Verfügung steht:

$$U_A = \frac{1}{R_i C_F} \int_0^T u_{in} \cdot dt \quad (3-5)$$

mit R_i = Eingangswiderstand (1 MOhm)
 C_F = Rückkopplungskondensator (1 μ F)

Diese Spannung bleibt zunächst während der nachfolgenden Analog-Digital-Konvertierung erhalten. Mit der Fertigmeldung der beiden ADC's wird die Reset-Funktion erzeugt, mit der die Anfangsbedingungen für die nächste Integration wieder eingestellt werden.

3.3 Analog-Digital-Konvertierung

Die Anforderungen an den A/D-Konverter werden von der verlangten Genauigkeit und von der optimalen Anpassung an die nachfolgende Rechereinheit bestimmt. Hinsichtlich Wandlungszeit bestehen keine kritischen Anforderungen, weil nach Abschluß der Integration bis zum nächsten möglichen Meßvorgang nahezu 10 s zur Verfügung stehen. Da die Recheneinheit TMS 0117 im binär-codierten Dezimalcode arbeitet, wurde ein auf fünf Stellen erweiterbarer A/D-Konverter (Typ ADC 100 von Burr-Brown) mit BCD-Ausgang ausgewählt. Dieser Konvertertyp arbeitet nach dem Spannungs-Frequenz-Verfahren und zeichnet sich durch außerordentlich hohe Auflösung und Genauigkeit aus. Für eine Wandlung auf fünf Dezimalstellen werden 300 ms benötigt.

Die Genauigkeit kann nach Abgleich des Linearitätsfehlers auf 2×10^{-5} justiert werden und erfüllt daher bei weitem die gestellten Forderungen. Wie bereits erwähnt, muß in diesem Konzept der Offset für sich gemessen werden und später von dem eigentlichen Meßwert subtrahiert werden. Damit der Offset auf jeden Fall im Bereich positiver Spannungswerte bleibt, wird er im Zwischenverstärker so eingestellt, daß er nach der Integration und Konvertierung gerade in der Mitte des Darstellungsbereiches der Dezimalanzeige an der Frontseite der ADC-Einschübe liegt. Die Justierung ist also ohne Zusatzgerät leicht auszuführen.

Sofern der Offset-Wert nach der Integration im Bereich der Dezimalanzeige bleibt, erfolgt die Fertigmeldung der Nullpunktmessung. Diese bewirkt eine Zwischenspeicherung des Ergebnisses und eine Weichenstellung für die folgenden Meßwerte. Bleibt der Offset-Wert nicht im zulässigen Bereich, wird die Ablaufsteuerung blockiert.

3.4 Meßwertverarbeitung

Mit der Fertigmeldung des Offset-behafteten Meßwertes wird ein festverdrahtetes Rechenprogramm aufgerufen, das die Offset-Korrektur, die Verhältnisbildung und die Abspeicherung in einem Ergebniszwischenspeicher durchführt.

Das Kernstück für die Berechnung der mathematischen Funktionen ist der Rechenbaustein TMS 0117 von TEXAS INSTRUMENTS, der zehnstellige Zahlen mit den vier Grundrechenarten und einigen anderen Funktionen, wie Inkrement-Dekrementbildung, Rechts-Linksschieben, bearbeiten kann. Besonders durch diese vorprogrammierten Funktionen bleibt der Aufwand an aufgaben-spezifischer Programmierung sehr gering.

Da eine in sich abgeschlossene und nicht sehr umfangreiche mathematische Aufgabe nach Gleichung (2-1) gelöst werden soll, wurde das Rechenprogramm festverdrahtet.

Das Programm ist in der Form eines getakteten Schieberegisters realisiert, wobei jedem Ausgangszustand des Schieberegisters eine definierte Befehlsfunktion zugewiesen ist. Im Ruhezustand, also nach einem Rücksetz-Impuls oder am Ende des Rechenprogramms, ist formal eine Halt-Funktion aufgerufen, die erst mit der Fertigmeldung der Analog-Digital-Konvertierung aufgehoben wird.

Der Ablauf des Rechenprogramms ist in Tabelle I zusammengestellt.

Der Befehlsspeicher umfaßt nur vier Grundbefehle, nämlich Rechner-Halt, Eingabe-, Ausgabebefehl und einen arithmetischen Befehl. Als Datenquelle dienen für den Dateneinlesevorgang die ADC-Zwischenspeicher bzw. der Ergebnis-Zwischenspeicher und für den Befehlseinlesevorgang der festverdrahtete Befehlsspeicher. Entsprechend der besonderen Struktur des Rechners wird ein Datenwort im BCD-Code seriell eingelesen, wobei ein fünftes Bit für die Unterscheidung von numerischen Daten und einer Befehlseingabe vorweg eingegeben werden muß. Die Ausgabedaten liegen ebenfalls als BCD-Worte an und werden entweder in den Ergebniszwischenspeicher oder in den Ergebnisspeicher eingeschrieben und vom letzteren aus in das Anzeigefeld übertragen. Nach insgesamt sechs Meßwerten erfolgt eine Übernahme der Ionenstromverhältnisse auf einen geeigneten Datenträger.

4) Diskussion

Die in dieser Arbeit entwickelte Meßanordnung gestattet den Einsatz einfach aufgebauter magnetischer Massenspektrometer mit Doppelauffänger für automatische Messungen von Isotopenverhältnissen. Dies wird im wesentlichen durch eine Diskriminatorschaltung ermöglicht, die bei einer periodischen Variation der Ionenbeschleunigungsspannung (Ziehspannung) den für die Isotopenverhältnismessung geeigneten Bereich des Massenspektrums für eine Integration des Ionenstroms erfaßt. Darüber hinaus wird der Einfluß der Nullpunktsdrift der Ionenstromverstärker auf die Meßgenauigkeit weitgehend eliminiert. Vor jeder Messung eines Isotopenverhältnisses werden die Offsetspannungen der Verstärker bestimmt und bei der Ermittlung des Isotopenverhältnisses mit einem festprogrammierten arithmetischen Baustein rechnerisch berücksichtigt.

Die vorliegende Meßanordnung ist so konzipiert, daß ein Einsatz ohne wesentliche Eingriffe in das eigentliche Massenspektrometersystem möglich ist. Sie ist deshalb besonders für eine Umrüstung konventioneller Massenspektrometer auf automatischen Meßbetrieb geeignet, sofern diese Geräte mit einem Doppelauffänger ausgerüstet sind und eine periodische Variation der Ziehspannung oder des Magnetfeldes möglich ist.

Gegenüber den anderen bei automatischen Isotopenverhältnismessungen angewandten Meßanordnungen, die von einer aufwendigen Stabilisierung der Betriebsparameter des Massenspektrometers oder von einer Strahlpositionierung durch einen Hilfspeak ausgehen, zeichnet sich die im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Anordnung durch technische Einfachheit aus. Dabei bleiben die inhärenten Vorteile des Verfahrens der Ziehspannungsvariation voll erhalten. Zum einen ist eine vergleichsweise geringe Empfindlichkeit gegenüber Änderungen der Ionenquellenpotentiale gewährleistet, was eine Grundvoraussetzung für eine hohe Standzeit der Ionenquelle darstellt. Dieser Vorteil kommt insbe-

sondere bei Isotopenanalysen an Substanzen zum Tragen, die, wie z. B. Uranhexafluorid, Ablagerungen in der Ionenquelle bilden. Zum anderen ist die Anwendbarkeit des Verfahrens der Ziehspannungsvariation nicht an das Vorhandensein eines Hilfspeaks gebunden, was bekanntlich den Anwendungsbereich der Methode der Strahlstabilisierung einschränkt. Hinsichtlich der erreichbaren Meßgenauigkeit sind die drei hier angeführten Meßmethoden gleichwertig, da diese im wesentlichen durch das eigentliche Massenspektrometersystem und weniger durch die spezielle Anordnung zur Verhältnismessung bestimmt sind.

Im Rahmen eines Interlaboratoriumstests wurde eine größere Zahl von Massenspektrometern zur Uranisotopenanalyse im Langzeittest verglichen. Es zeigte sich, daß die hier entwickelte Anordnung auch im Langzeitbetrieb zuverlässig arbeitet und die gleiche Meßgenauigkeit wie die aufwendigeren Meßanordnungen aufweist.

5) Literaturverzeichnis

- |1| H. Birkenfeld; G. Haase; H. Zahn;
Massenspektrometrische Isotopenanalyse.
VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften, Berlin 1962

- |2| C. Brunnee und H. Voshage,
Massenspektrometrie.
Verlag Karl-Thiemig KG 1964

- |3| R. Boyer, Rapport CEA. R3268 (1967)

- |4| R.D. Russel, T.K. Ahern
Economical mass spectrometer ion current measurement
with a commercial parametric amplifier.
Rev. Sci. Instrum., Vol. 45, No. 11, Nov. 1974
S. 1467 - 69.

- |5| K. Zsdanszky
Precise Measurement of small Currents
Nuclear Instr. and Methods 112 (1973) 299 - 303

- |6| R. Yair
Charge sampling method for low current measurement
Rev. Sci. Instrum., Vol. 45, No. 3, March 74
S. 395 - 399

- |7| W. Patstone
Designing femtoampere circuits requires special considerations
Firmenschrift v. Kontron, Juli 1972.

- |8| J. Praglin, W. A. Nichols
High-Speed Electrometers for Rocket and Satellite Experiments
Proc. IRE, Bd. 48, April 1960, pp 771 - 779

| 9 | A. Langdon, H.A. Kermick
An Automatic Mass Spectrometer for Relative
Measurements of Uranium Isotopes,
AEC Research and Development Report K-1444,
Oak Ridge, Tennessee, 1963

| 10 | W. Beyrich, W. Dürr, W. Großgut
UF₆-Interlaboratoriumstest, Dornier-System,
(1976) unveröffentlicht

Tabelle I Rechenprogramm

Programmschritt	Operationsart	Bemerkung
0	Rechner-Halt	Grundzustand "Stop"
1	Eingabe-Operation	vom Zwischenspeicher für U-235 Meßwert minus Offset
2	Math. Operation	Ausführung der Differenzbildung
3	Ausgabe-Operation	Zwischenspeichern des Nenners
4	Einlese-Operation	vom Zwischenspeicher für U-235 Meßwert minus Offset
5	Math. Operation	Ausführung der Differenzbildung
6 - 10	Math. Operation	Linksschieben für Ausnutzung der Rechengenauigkeit
11	Math. Operation	Einlesen des Divisionsbefehls
12	Einlese-Operation	Einlesen des Nenners aus Zwischenspeicher
13	Math. Operation	Ausführung der Division
14	Auslese-Operation	Übernahme in Ergebnisspeicher und Display
15	Math. Operation	Fertigmeldung Einnahme des Grundzustandes

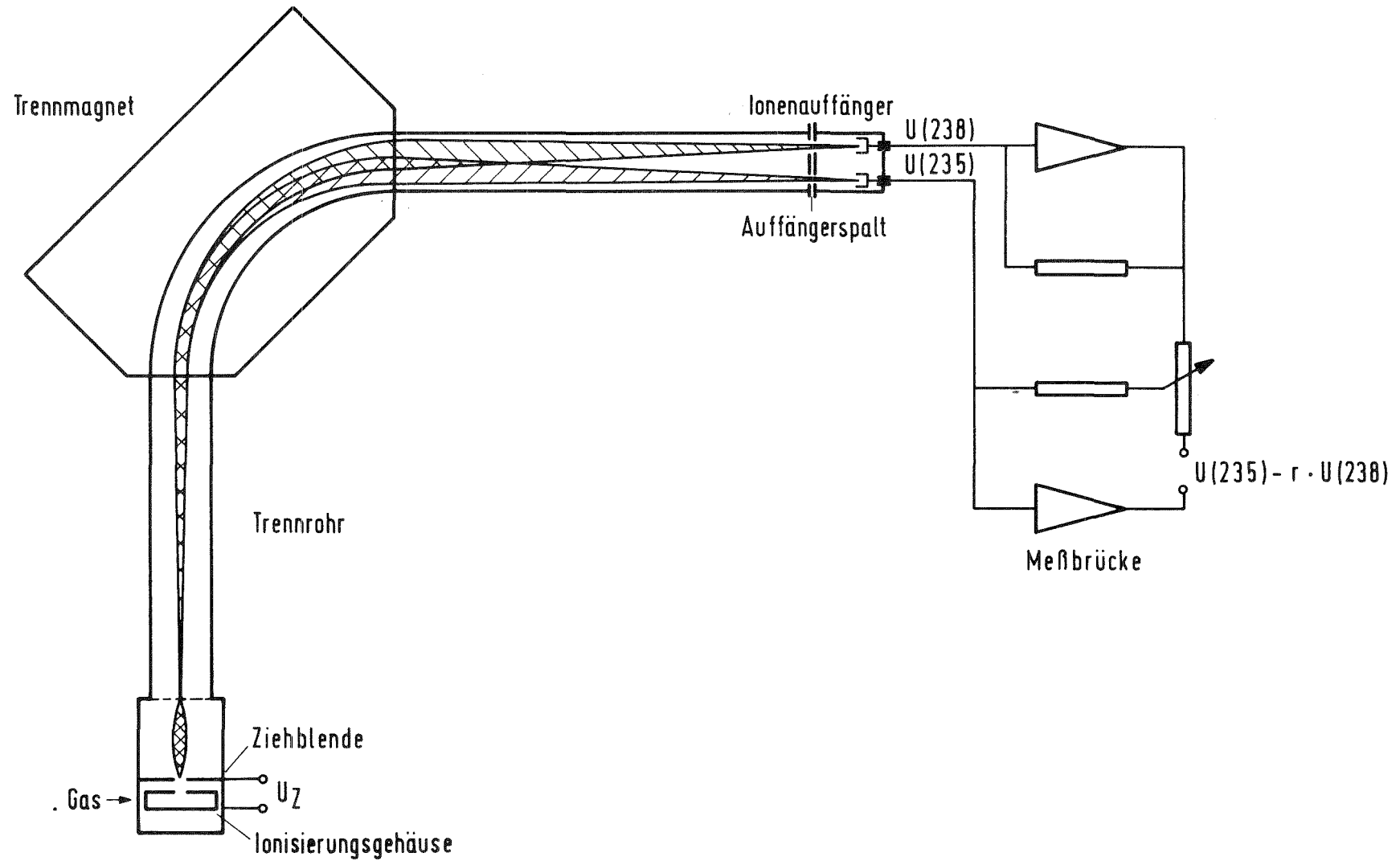


Abb.1.1 Schematische Darstellung eines magnetischen Massenspektrometers mit Doppelauffänger .

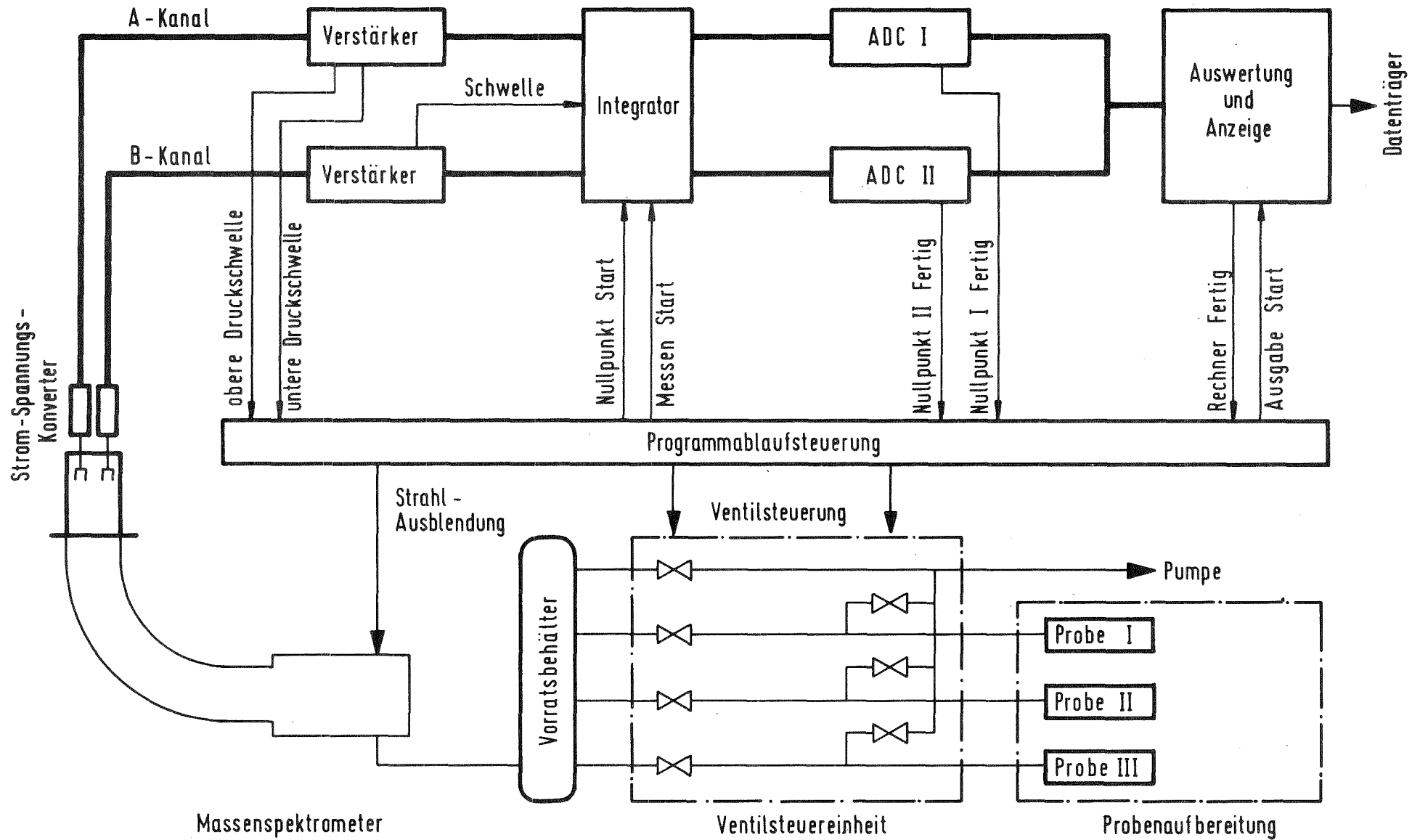


Abb. 2.1 Schema der Meßanordnung zur automatischen Bestimmung von Isotopenverhältnissen.

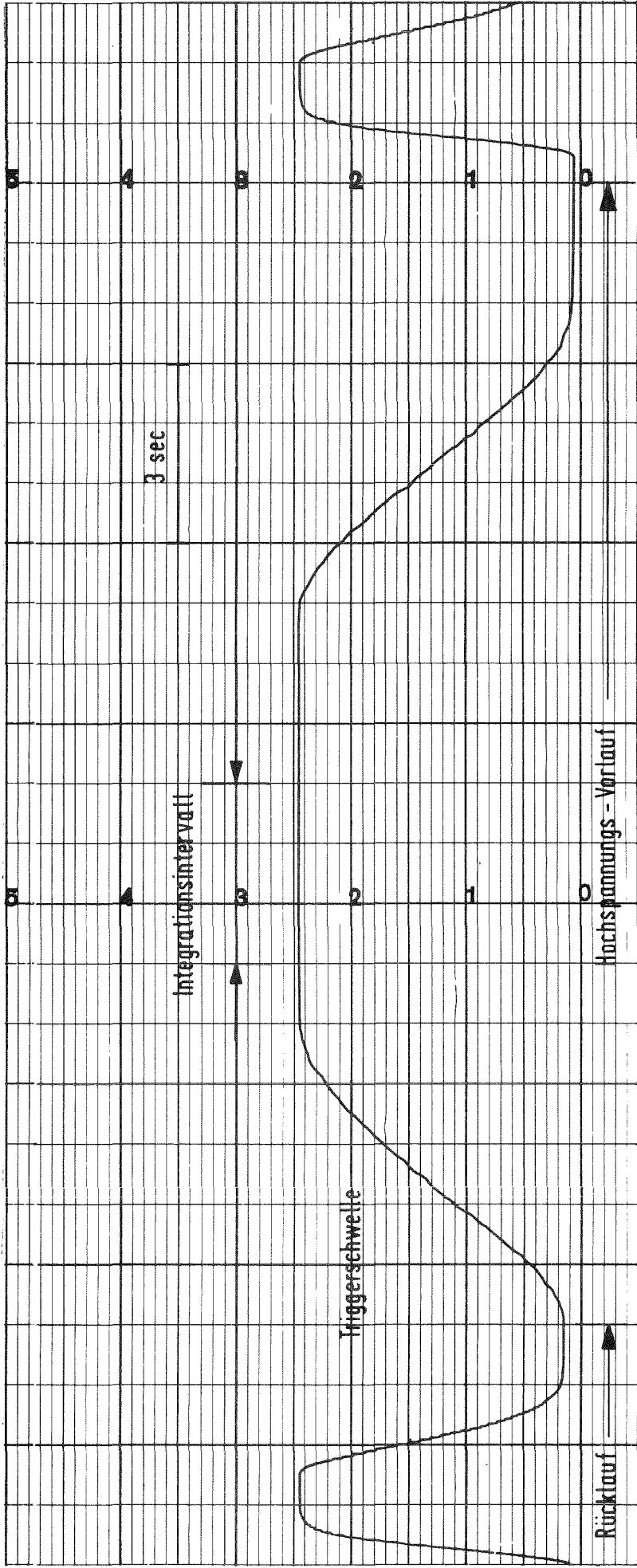


Abb. 2.2 Zeitlicher Verlauf des Signals für U-235 (B-Kanal) bei periodischer Variation der Ziehspannung U_z .

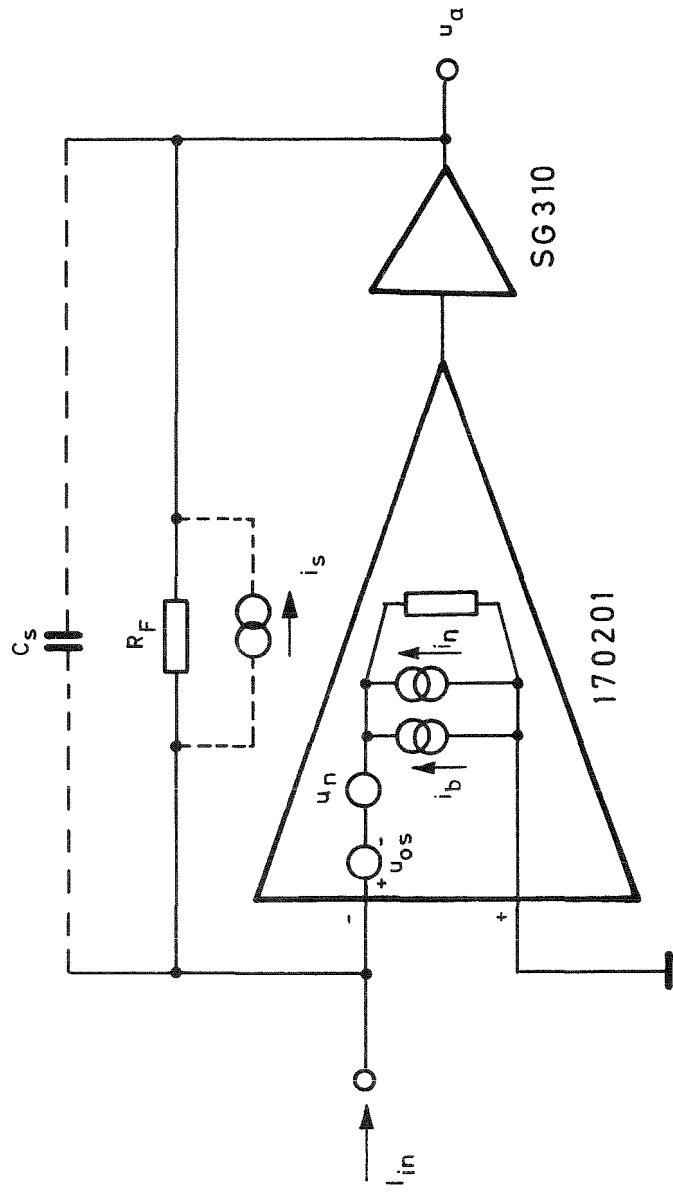
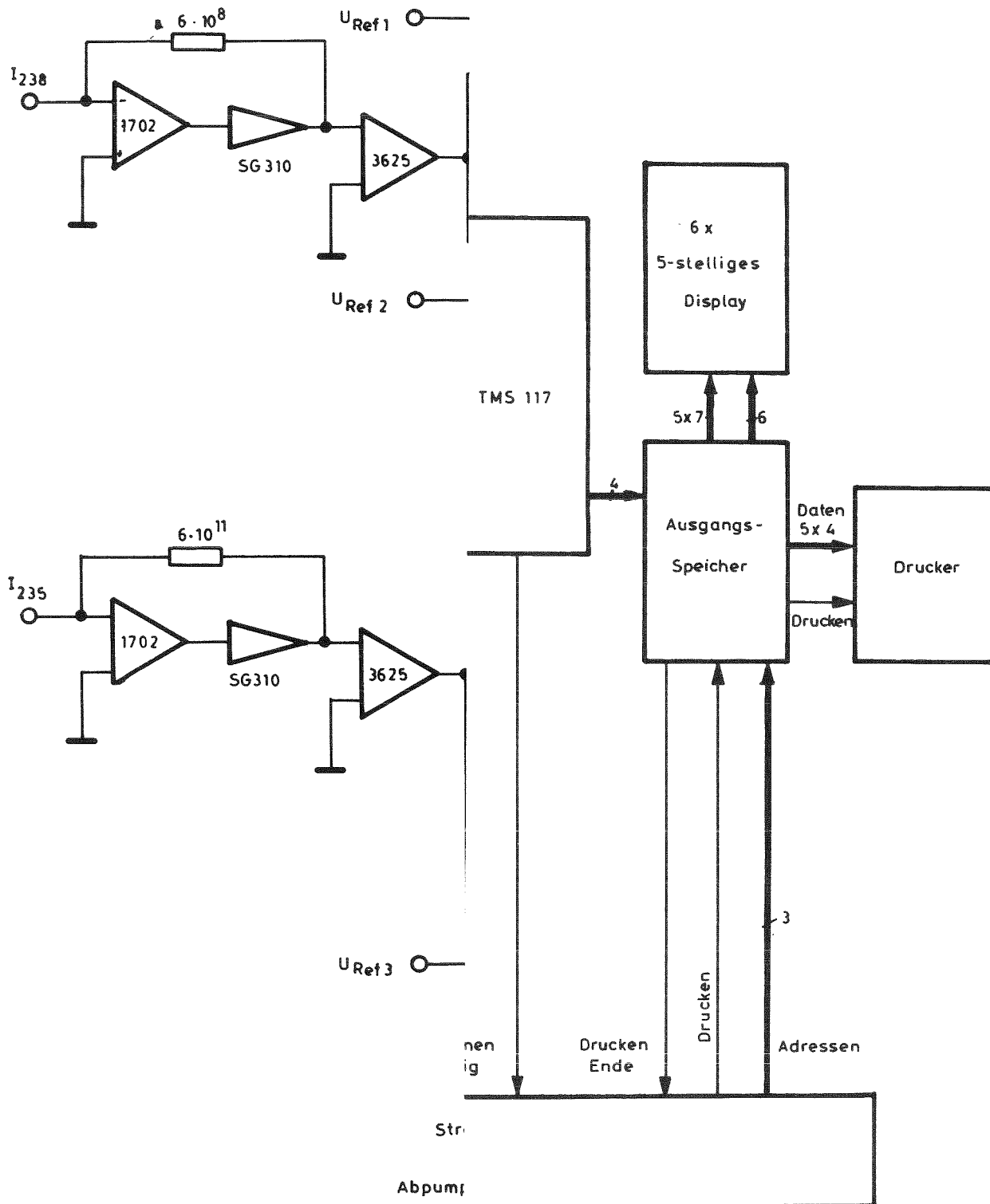


Abb. 3.1. Ersatzbild des Strom - Spannungskonverters



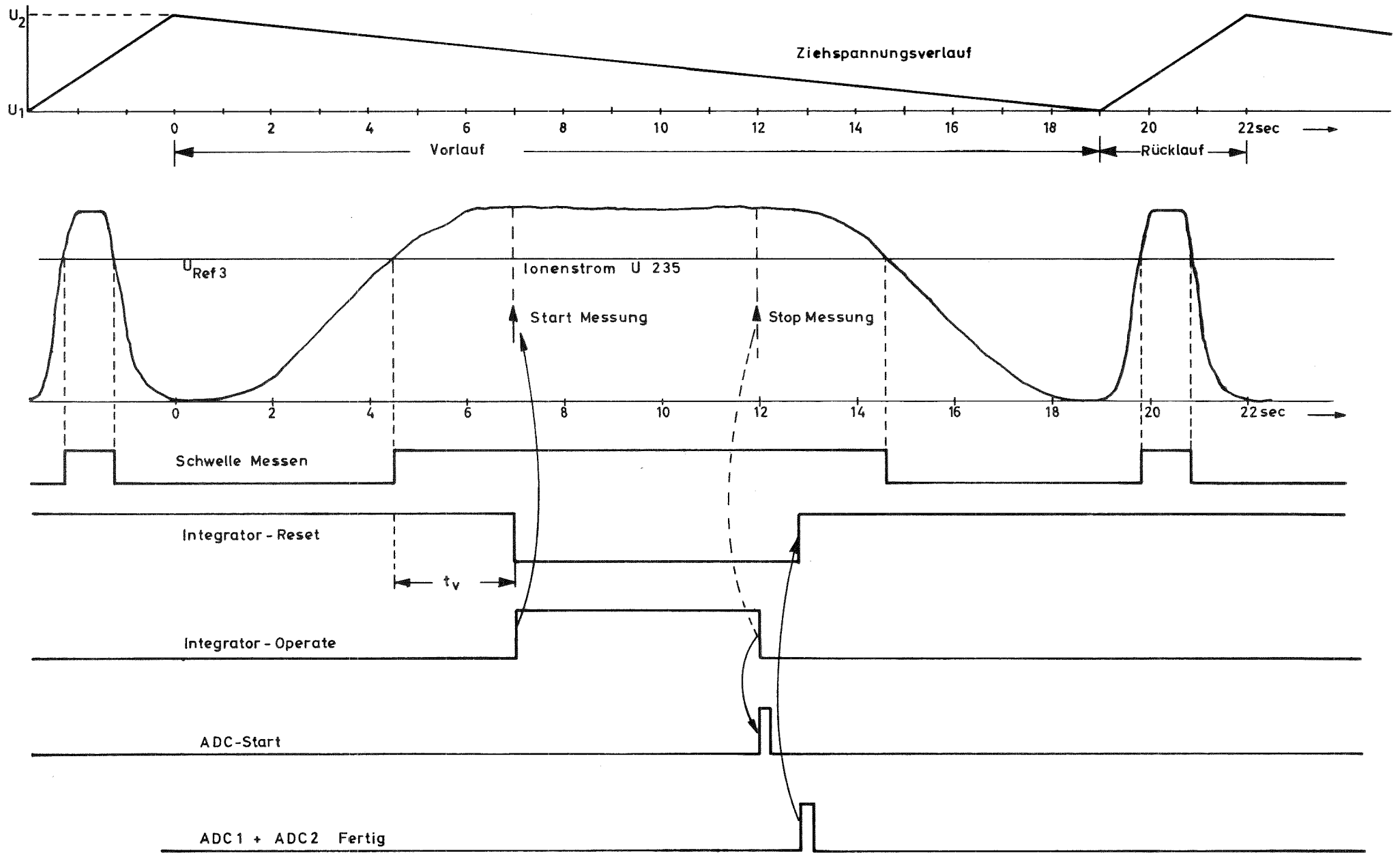


Abb. 3.3 Signallaufplan für Mittelwertbildung