

einem  $x_k$  von  $11 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  bei  $2 \cdot 10^{-3}$  und  $24 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  bei  $2 \cdot 10^{-2}$  bestätigt i. w. die oben gemachten Ausführungen. Wir haben diese Messungen unter Benutzung von  $x_a = 18,3 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  und  $\theta_0 = 0,033$  (nach LEISEGANG) in die Abb. 3 mit eingezeichnet.

Will man das  $z$  von Elementen höherer Ordnungszahl mitdiskutieren, so ist zu beachten, daß infolge

des größeren  $\theta_0$  dem gleichen Objektivaperturbereich ein kleinerer Bereich von  $\eta$  entspricht. Auch dies führt dazu, daß sich bei Elementen höherer Ordnungszahl das  $z$  bei einer Änderung der Objektivapertur nicht so stark ändert wie bei solchen mit kleinem  $Z$ .

## Experimentelle Untersuchungen über die ambipolare Effusion aus der positiven Säule\*

Von U. WEIMER

Aus der Forschungsstelle für Spektroskopie in der Max-Planck-Gesellschaft, Hechingen  
(Z. Naturforschg. **13 a**, 278—285 [1958]; eingegangen am 22. Januar 1958)

Es wird über eine Effusionsmethode zur Ionengewinnung aus der positiven Säule von Niederdruck-Gasentladungen berichtet, bei der durch Vermeidung von Metallteilen und Ziehspannungen innerhalb des Plasmas die Ionen-Effusionsströme nur durch das ungestörte Plasma bestimmt sind. Gemessene Effusionsströme (einige  $10^{-9}$  A) aus einer Helium-Entladung bei verschiedenen Entladungsstromstärken (1,5—8 mA) und Entladungsdrücken (0,2—3,9 Torr) werden mitgeteilt und verglichen mit den für den SCHOTTKY-Fall aus der Theorie der ambipolaren Effusion berechneten Werten. Die gemessenen Intensitäten der Effusionsströme und ihre Abhängigkeit von den Entladungsparametern werden durch die Theorie befriedigend beschrieben.

Der Ionenstrom aus einer Neon-Entladung wird mit einem Massenspektrometer analysiert. Die Ionenströme  $i(^{20}\text{Ne}^+)$  und  $i(^{22}\text{Ne}^+)$  verhalten sich innerhalb der erzielten Meßgenauigkeit ( $\pm 2\%$ ) wie das natürliche Isotopenmischungsverhältnis  $^{20}\text{Ne}$  zu  $^{22}\text{Ne}$ , so daß hieraus eine etwaige Massenseparation durch die Effusionsdüse noch nicht nachgewiesen werden kann.

Bei Versuchen, Ionenströme aus stationären Glimmentladungen zu extrahieren<sup>1</sup>, wurden bisher metallische Düsen verwendet, die als Sonden wirken und, besonders wenn noch mit Ziehspannungen gearbeitet wird, gerade vor der Stelle des Ionenaustritts das Plasma beeinflussen. Für Rückschlüsse auf die Konzentrationen und den Bildungsmechanismus der Ionen im Plasma aus der massenspektrometrischen Analyse der Ionen-Effusionsströme ist die Art der Ionenextraktion von Bedeutung, da die gemessenen Ionenströme in Beziehung zu den Plasmavorgängen gebracht werden müssen. Bei dem im folgenden beschriebenen Verfahren effundieren die Ladungsträger ambipolar aus der positiven Säule durch eine kleine Öffnung in der Wand des isolierenden Entladungsrohres in ein anschließendes Vakuum. Da metallische Blenden und Ziehspannungen hierbei vermieden sind, werden die Effusionsströme nur durch Vorgänge im ungestörten Plasma bestimmt.

Die Ionen-Effusionsströme können nach der Theorie der ambipolaren Effusion<sup>2</sup> berechnet werden, aus der man auch durch die Messung der Effusionsströme verschiedener Ionenarten die relativen Ionenkonzentrationen im Plasma gewinnt, sowie Angaben über die Verteilung der Ladungsträger und über Reaktionen im Plasma, an denen Ladungsträger beteiligt sind.

### Theoretische Grundlagen

Bezeichnungen:

- $b$  Beweglichkeit der Träger in  $\text{cm}^2 \text{s}^{-1} \text{V}^{-1}$ ,
- $c_i$  Relativkonzentration der  $i$ -ten Trägersorte,
- $D$  Ambipolarer Diffusionskoeffizient  $D = k b_+ T_- / e$ ,
- $e$  Elementarladung,
- $E_z$  Axiale Feldstärke der positiven Säule in  $\text{V cm}^{-1}$ ,
- $G$  Zahl der erzeugten Ionen pro sec und cm Rohrlänge,
- $i$  Effusionsstrom in Amp.,
- $I$  Entladungsstrom in Amp.,

\* Teil der unveröffentlichten Dissertation „Massenspektrometrische Analyse von Ionen-Effusionsströmen aus der positiven Säule von Gasentladungen“ des Verfassers, Universität Tübingen, 1957.

<sup>1</sup> Siehe D. KAMKE, Handbuch der Physik **33**, 47 [1956], Springer-Verlag, Berlin-Göttingen-Heidelberg.

<sup>2</sup> M. PAHL, Z. Naturforschg. **12 a**, 632 [1957].



- $j$  Wandstromdichte in Amp.  $\text{cm}^{-2}$ ,  
 $J$  Wandstrom pro cm Rohrlänge in Amp.  $\text{cm}^{-1}$ ,  
 $k$  BOLTZMANN-Konstante,  
 $M_i$  Masse der  $i$ -ten Trägersorte,  
 $p$  Entladungsdruck in Torr,  
 $R$  Radius des Entladungsrohres in cm,  
 $T$  Trägertemperatur in  $^{\circ}\text{K}$ ,  
 $u_-$  Axiale Driftgeschwindigkeit der Elektronen in  $\text{cm s}^{-1}$ .

Die mit (–) versehenen Größen beziehen sich auf Elektronen.

Betrachtet wird die homogene positive Säule einer Niederdruck-Gasentladung, in der die negativen Ladungsträger nur Elektronen sind. Ist die Wand des Entladungsgefäßes isolierend, so ist im stationären Zustand die positive Komponente des Wandstromes gleich der negativen Komponente. Können insbesondere Umladungsreaktionen und Trägerverluste durch Volumenrekombination im Plasma vernachlässigt werden, so folgt aus der Stationaritätsbedingung (Trägererzeugung = Trägerverlust), daß die Komponenten des positiven Wandstromes gleich der betreffenden Ionenerzeugung im Plasma sind, und zwar unabhängig von der Trägerverteilung über den Querschnitt der Entladung und unabhängig vom Mechanismus der Trägererzeugung.

$$J_i/J_k = G_i/G_k. \quad (1)$$

Nach PAHL<sup>2</sup> ist bei Anwesenheit einer einzigen positiven Ionenart in der Säule die ambipolare Diffusionsstromdichte auf die Wand eines zylindrischen Entladungsgefäßes gegeben durch

$$j = \frac{I \cdot D}{\pi u_- R^3} \Phi(\gamma, \nu_R), \quad (2)$$

wobei  $\Phi(\gamma, \nu_R)$  ein dimensionsloses Maß für den Dichtegradienten an der Stelle  $R$  darstellt, welches den Einfluß von Stufenprozessen und Volumenrekombination ( $\gamma$ ), sowie endlicher Trägerdichte an der Wand ( $\nu_R$ ) enthält. Ionenbeweglichkeit und Elektronentemperatur werden hierbei als konstant über den Querschnitt der Entladung vorausgesetzt.

Eine experimentelle Prüfung dieser Beziehung läßt sich vorerst nur für den SCHOTTKY-Fall ( $\gamma = 0$ ,  $\nu_R = 0$ ) durchführen, da Wirkungsquerschnitte für mögliche Stufenprozesse und für Volumenrekombination, sowie die Trägerdichte an der Wand des Entladungsrohres nicht genügend genau bekannt sind. Die Versuchsbedingungen werden deshalb so

gewählt, daß die Voraussetzungen der SCHOTTKY-schen Theorie<sup>3</sup> der positiven Säule erfüllt sind.

Für den SCHOTTKY-Fall ( $\gamma = 0$ ,  $\nu_R = 0$ ) ergibt Gl. (2) mit  $D = k b_+ T_-/e$  die Wandstromdichte  $j(I, p)$

$$j = \frac{2,89 k I b_+ T_-}{e u_- \pi R^3}. \quad (3)$$

Da  $T_-$  und  $u_-$  wegen  $\gamma = 0$  nicht von  $I$  abhängen sollten, folgt aus (3) bei konstantem Entladungsdruck  $p$

$$j \sim I. \quad (3a)$$

Die hier auftretenden Größen  $I$ ,  $b_+$ ,  $T_-$ ,  $u_-$  sind berechenbar oder einer Messung zugänglich. Für  $T_-$  gilt die Beziehung<sup>4</sup>

$$R p = 3,58 \cdot 10^{-3} \sqrt{\frac{k b_+}{e a}} \sqrt{\frac{e U_i}{300 k}} U_i^{-3/4} \sqrt{T_-} \cdot \left( \frac{1}{2} + \frac{300 k T_-}{e U_i} \right)^{-1/2} \cdot \exp \left\{ \frac{e U_i}{600 k T} \right\} \quad (4)$$

( $U_i$  = Ionisierungsspannung des Neutralgases in V,  $a$  = Konstante der differentiellen Ionisierung in  $\text{cm}^{-1} \text{Torr}^{-1} \text{V}^{-1}$  und  $b_+$  = Ionenbeweglichkeitswert bei 1 Torr in  $\text{cm}^2 \text{s}^{-1} \text{V}^{-1}$ ).

Damit ist auch  $T_- = F(p)$  bestimmt;  $T_-$  ist unabhängig vom Entladungsstrom.

Die Berücksichtigung von sekundären Ionenbildungsprozessen ( $\gamma > 0$ ) führt bei einer nur unwesentlichen Änderung der Trägerverteilung über den Querschnitt der Entladung zu einer Erniedrigung der Elektronentemperatur<sup>2, 5</sup>. Feldstärke und Elektronentemperatur nehmen dann mit zunehmender Entladungsstromstärke ab. Hierdurch findet auch die fallende Charakteristik der positiven Säule, die aus der SCHOTTKYSchen Theorie ( $\gamma = 0$ ) nicht folgt, ihre Erklärung.

Zu einer Abschätzung der Abhängigkeit der Wandstromdichte von der Elektronentemperatur bzw. vom Entladungsdruck gelangt man mit Hilfe der LANGEVINSchen Gleichung. Danach gilt für die axiale Driftgeschwindigkeit der Elektronen

$$u_- = E_z \frac{3}{4} \frac{e \lambda_1^-}{p m \bar{v}} \sim \frac{E_z}{p \sqrt{T_-}} \quad (5)$$

( $m$  = Masse des Elektrons,  $\lambda_1^-$  = Mittlere freie Weglänge der Elektronen bei 1 Torr und  $\bar{v}$  = mittlere ungeordnete Elektronengeschwindigkeit).

Ferner ist  $b_+ \sim 1/p$ . (6)

Kann man weiterhin die axiale Feldstärke ( $E_z$ ) näherungsweise als unabhängig von  $I$  und  $p$  betrachten

<sup>3</sup> W. SCHOTTKY, Phys. Z. **25**, 635 [1924].

<sup>4</sup> J. DOSSE u. G. MIERDEL, Der elektrische Strom im Hochvakuum und in Gasen, Verlag S. Hirzel, Leipzig 1943. —

Handbuch der Physik, Band 22, Springer-Verlag, Berlin-Göttingen-Heidelberg 1956.

<sup>5</sup> E. SPENKE, Z. Phys. **127**, 221 [1950].

(was für den untersuchten Entladungsbereich experimentell geprüft wurde, Tab. 1), so erhält man aus (3) mit (5) und (6) als Abschätzung für  $j(I, p)$

$$j \sim IT_-(p)^{3/2}. \quad (7)$$

Sind mehrere, verschiedene positive Ionensorten in der Säule zugegen, so gewinnt man für das Wandstromverhältnis zweier Ionenarten ( $i$  und  $k$ ) die Beziehung<sup>2</sup>

$$\frac{j_i}{j_k} = \frac{c_i b_i}{c_k b_k}, \quad (8)$$

woraus man, bei Kenntnis der Ionenbeweglichkeitswerte im neutralen Gas der Entladung, durch die Messung des Wandstromverhältnisses  $j_i/j_k$  das Konzentrationsverhältnis  $c_i/c_k$  der beiden Ionensorten im Plasma findet. Sind die Ionen insbesondere Isotope (gleiche Wirkungsquerschnitte), so gilt

$$\frac{j_i}{j_k} = \frac{c_i}{c_k} \sqrt{\frac{M_k}{M_i}}. \quad (9)$$

Befindet sich in der Wand des Entladungsrohres eine ideale Lochblende, durch welche die Ladungsträger in ein anschließendes Vakuum austreten, so wird der Effusionsstrom  $i$  durch die Wandstromdichte  $j$  bestimmt. Es wird

$$i_k = j_k \pi d^2/4, \quad (10)$$

solange die Öffnung (Durchmesser  $d$ ) klein bleibt gegen die Dicke der LANGMUIR-Schicht vor der Wand, d. h. das Fehlen des Wandstückes darf keine Feldverzerrung im Entladungsraum hervorrufen.

## Experimentelle Methode

An einem Entladungsrohr nach SCHÜLER<sup>6</sup>, das in seiner äußeren Form wie aus Abb. 1 ersichtlich abgewandelt ist, wurde im Gebiet der positiven Säule in der an dieser Stelle möglichst dünnen Glaswand eine Kreisöffnung von  $45 \mu$  Durchmesser hergestellt, durch die Ionen, Elektronen und neutrale Teilchen aus dem Plasma in ein anschließendes Vakuum austreten können. Hierzu wurde an dem auswechselbaren, U-förmig gebogenen Teilstück des Entladungsrohres (U) ein  $45 \mu$  starker Molybdändraht eingeschmolzen und die Wand von außen her so dünn wie möglich geschliffen. Durch Ausätzen des in der dünnen Wand verbliebenen Drahtstückes erhält man die gewünschte Düse ( $\delta$ ), die gaskinetisch als „kurze Röhre“ zu betrachten ist (Durchmesser  $45 \mu$ , Länge  $50 \mu$ ). Der Durchmesser des Entladungsrohres im Bereich der positiven Säule beträgt 0,7 cm. Der Düse gegenüberliegend befindet sich eine

Sonde ( $\alpha$ ) (Platinstift, Durchmesser 0,3 mm, Länge 1 mm) zur Bestimmung des statischen Potentials der positiven Säule im Bereich der Düse.

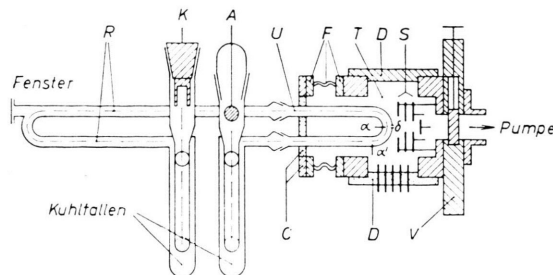


Abb. 1. Schematisches Bild der Versuchsanordnung. Zeichenerklärung im Text.

Abb. 1 gibt ein schematisches Bild der Versuchsanordnung. Eine Hohlkathode aus Eisen (K) und eine Kugel von 8 mm Durchmesser (Anode A) bilden die Elektroden der Entladung, deren Weg gestrichelt eingezeichnet ist. Zwischen den Elektroden und dem Entladungsrohr (R), das von der positiven Säule erfüllt wird, befindet sich je eine mit flüssigem Stickstoff beschickte Kühlfalle, um kondensierbare Verunreinigungen auszufrieren. Das Entladungsrohr ist mit einem 7 Liter fassenden Vorratsbehälter verbunden, so daß die Druckabnahme durch das effundierende Neutralgas während der Meßdauer nicht meßbar ins Gewicht fällt; der Entladungsdruck wird mit einem abgekürzten Kompressionsmanometer bestimmt. Eine laufende visuelle Beobachtung des optischen Spektrums in Achsenrichtung der positiven Säule ermöglicht ein am Entladungsrohr angebrachtes Fenster.

Das auswechselbare Teilstück (U) des Entladungsrohres mit der Düse ( $\delta$ ) und zwei Platinsonden ( $\alpha$  und  $\alpha'$ ) ist mit Araldit-Gießharz-B in einen Flanschring (C) vakuumdicht eingegossen. Es ragt in eine evakuierbare Kammer (T), in der ein elektrostatisches Blindensystem (S) die effundierenden Ionen sammelt, beschleunigt und einer Auffängerplatte zuführt. Die Verbindung Kammer – Flanschring stellt ein Federungskörper (F) her, so daß die Düse gegen das Blindensystem bewegt und justiert werden kann. An das ausgerichtete U-Stück wird mit zwei Glasschliffen (Silicon-Hochvakuum-Fett) die restliche Entladungsapparatur angesetzt. Die Kammer (T) ist mit auswechselbaren, vakuumdichten Stromdurchführungen (D) versehen und so konstruiert, daß sie über das Schiebe-Ventil (V) an ein vorhandenes Massenspektrometer angebaut werden kann.

Ein maßstabgerechtes Bild des elektrostatischen Systems zeigt die Abb. 2. Die effundierenden Ionen werden durch die Kreisblenden  $\varepsilon$  und  $\beta$  von den Elektroden getrennt, gesammelt und zum Auffänger Af hin beschleunigt, an dem sie ihre Ladung abgeben. Der Ionenstrom wird über einen Elektrometerröhren-Verstärker (GV) gemessen. Die effundierenden Elektronen laufen zur Blende  $\varepsilon$ , deren Potential ca. 50 Volt positiv gegen das Plasmapotential eingestellt ist. Die Blende  $\gamma$  dient

<sup>6</sup> H. SCHÜLER, Spectrochim. Acta 4, 85 [1950].

zur Unterdrückung der Sekundärelektronen-Emission des Auffängers, sowie zu dessen Abschirmung gegen Störfelder.

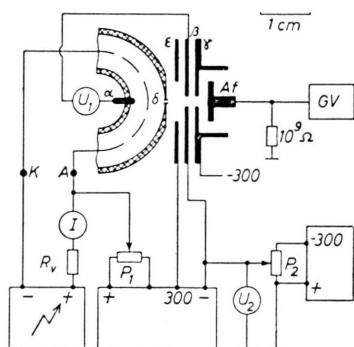


Abb. 2. Effusionsdüse und elektrostatisches Blendensystem mit elektrischem Schaltbild. Zeichenerklärungen im Text.

Die elektrische Schaltung ist in Abb. 2 mit eingezeichnet. Das Plasmapotential vor der Düse wird über das Anodenpotential mittels des Potentiometers  $P_1$  festgelegt und über das statische Potential der Sonde  $\alpha$  mit einem statischen Instrument  $U_1$  ständig kontrolliert. Zur Messung der Energieverteilung der Ionen kann das ganze System, ohne Beeinträchtigung der sammelnden Wirkung, über das Potentiometer  $P_2$  potentialmäßig so gelegt werden, daß die Ionen gegen das Auffängerpotential anlaufen. Die dabei angelegte Gegenspannung zeigt das Instrument  $U_2$  an.

Die Entladung wird mit Gleichstrom betrieben. Ein regelbarer Hochspannungsgleichrichter liefert die Speisespannung, deren Welligkeit bei 10 mA Laststrom weniger als 1% beträgt. Das Instrument I zeigt den Entladungsstrom an, der Vorwiderstand  $R_v$  beträgt je nach den Entladungsbedingungen 300–800 kOhm.

### Messungen an Helium-Entladungen

Die Ioneneffusionsströme aus der positiven Säule in Helium, reinst (Fa. Linde), wurden in einem Druckbereich von 0,2–3,9 Torr und in einem Strombereich von 1,5–8,0 mA gemessen.

Der Entladungsdruck wird nach oben begrenzt durch unruhiges Brennen der Entladung bei Drucken  $> 3$  Torr, nach unten durch die Weite des vorgegebenen Entladungsrohres, da ein Mindestwert von  $R \cdot p$  zur Ausbildung der ambipolaren Diffusion ( $\lambda \gg R$ ) notwendig ist. Eine untere Grenze für den Entladungsstrom ist durch die Bedingung der Quasineutralität gegeben, die eine Stromdichte  $> 10^{-4}$  A/cm<sup>2</sup> erfordert, eine obere Grenze setzt die Aufheizung des Neutralgases, die Änderungen der Gasdichte über den Querschnitt der Entladung zur Folge hat.

Wie eine massenspektrometrische Analyse der Effusionsströme gezeigt hat, sind die positiven Träger vorwiegend  $\text{He}^+$ -Ionen. Nahezu linear mit dem Entladungsdruck ansteigend treten  $\text{He}_2^+$ -Ionen auf, deren Anteil am totalen Effusionsstrom bei 3 Torr 12% beträgt. An weiteren Ionen sind nachgewiesen worden:  $\text{H}^+$ ,  $\text{H}_2^+$ ,  $\text{HeH}^+$ ,  $\text{C}^+$ ,  $\text{N}^+$ ,  $\text{CO}^+$ ,  $\text{N}_2^+$ ,  $\text{CO}_2^+$ , mit einem Gesamtanteil  $< 3\%$ .

In Abb. 3 ist der totale Effusionsstrom ( $i$ ) aus einer Helium-Entladung unter konstanten Entladungsbedingungen gegen das Sonden-Potential  $V_a$  bei verschiedenen Blendenpotentialen  $V_e$  aufgetragen. Entsprechende Kurven wurden ebenso bei anderen Potentialwerten, auch mit Variation von  $V_\beta$ , erhalten.

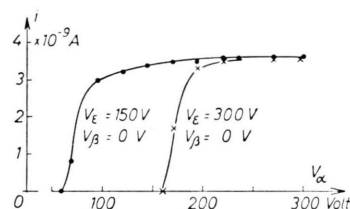


Abb. 3. Effusionsstrom ( $i$ ) bei konstanten Entladungsbedingungen bei verschiedenen Potentialen der Blende  $\epsilon$  als Funktion des statischen Potentials  $V_a$  der Sonde  $\alpha$ .

Die Kurven zeigen, daß es möglich ist, einen „Sättigungsbereich“ zu finden ( $V_a > 250$  V), in dem sich geringe Schwankungen der Potentiale nicht auf die gemessene Ionenstromintensität auswirken. Für die Messungen wurde stets auf diesen Bereich eingestellt.

#### 1. Energieverteilung der effundierenden Ionen und Schwankungen des Plasmapotentials

Die Energieverteilung der Effusionsströme wurde durch die Aufnahme von Gegenspannungskurven ermittelt. Als Maß für die Energiebreite (in Volt) ist die Potentialdifferenz gewählt, die eine Abnahme der Ionenstromintensität von 90% auf 10% zur Folge hat. Die Schwankungen des Plasmapotentials wurden durch galvanische Kopplung der Sonde  $\alpha$  mit der Meßplatte eines Oszilloskops beobachtet. Man mißt damit zwar nur das statische Potential und nicht direkt das Plasmapotential, da aber nur die Potentialdifferenzen interessieren, ist der Unterschied ohne Einfluß. Als Maß der Potentialschwankungen ist deren maximale Amplitude (in Volt) gewertet. Die Schwankungen sind statistisch, ihre Frequenz beträgt abgeschätzt einige kHz.



In Abb. 4 sind gemessene Energiebreiten der aus dem Plasma effundierenden Ionen und Potentialschwankungen des Plasmas gegen den Entladungsdruck aufgetragen. Wie die Meßkurven zeigen, nehmen Energiebreite und Plasmaschwankungen bei Drucken  $> 1$  Torr mit wachsendem Entladungsdruck übereinstimmend zu, und zwar *unabhängig* vom Entladungsstrom (1–8 mA). Die Energiebreite der effundierenden Ionen wird in diesem Bereich offenbar durch die Schwankungen des Plasmapotentials bestimmt. Bei Drucken  $< 1$  Torr bleibt eine Energiebreite von 20 Volt bestehen, während aus dem Glimmlicht einer Hohlkathoden-Entladung Ionenströme mit Energiebreiten  $< 3$  Volt gewonnen werden<sup>7</sup>.

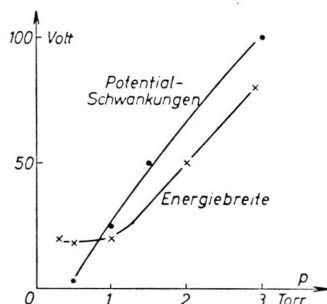


Abb. 4. Energiebreite (x) der effundierenden Ionen und Potentialschwankungen (●) des Plasmas in Abhängigkeit vom Entladungsdruck.

Eine massenspektrometrische Analyse der effundierenden Ionen erfordert demnach eine Energiefilterung der Ionen vor ihrem Eintritt in ein nur richtungsfokussierendes Massenspektrometer, wenn man ein hohes Auflösungsvermögen erreichen will. Verwendet man ein Energiefilter (z. B. Zylinderkondensator), so ist zu beachten, daß verschiedene Ionenarten möglicherweise auch verschiedene Energiespektren besitzen können.

## 2. Axiale Feldstärke

Die axiale Feldstärke wurde mit den zwei Sonden  $\alpha$  und  $\alpha'$  bestimmt, deren Potentialdifferenz im stromlosen Zustand in einer Kompensationsschaltung gemessen wurde. Die Meßwerte sind in Tab. 1 zusammengestellt. Mittels dieser Werte gewinnt man aus Messungen anderer Autoren<sup>8</sup> die Elektronendriftgeschwindigkeit  $u_- (E_z/p)$ , die zur numerischen Berechnung der Effusionsströme nach Gl. (3) erforderlich ist.

<sup>7</sup> M. PAHL u. W. KLEINMANN, *Ann. Phys., Lpz.* **13**, (6) 165 [1953].

<sup>8</sup> R. A. NIELSEN, *Phys. Rev.* **50**, 950 [1936].

Die Messungen zeigen, daß die Feldstärke in dem untersuchten Bereich nahezu konstant ist. Der Einfluß von Sekundärprozessen äußert sich in einer geringen Abnahme der Feldstärke mit zunehmendem Entladungsstrom (fallende Charakteristik der positiven Säule).

$p$	$E_z$		
	$I = 2$ mA	$I = 4$ mA	$I = 6$ mA
0,2	18,8	15,8	15,2
0,3	17,3	15,4	14,6
0,5	16,9	15,4	14,6
0,7	16,9	15,5	14,9
1,5	16,9	15,5	15,0
2,0	16,9	15,6	15,1
2,9	16,9	15,9	15,5
3,8	17,7	16,3	16,0
5,0	18,1	17,3	16,9

Tab. 1. Axiale Feldstärke der positiven Säule in Helium (Durchmesser des Entladungsrohres 0,7 cm).  $p$  = Entladungsdruck in Torr,  $E_z$  = axiale Feldstärke in  $\text{Vcm}^{-1}$ ,  $I$  = Entladungsstrom.

## 3. Elektronentemperatur

Die Elektronentemperatur in der positiven Säule einer Helium-Entladung wurde nach Gl. (4) berechnet und experimentell aus aufgenommenen Sondenkennlinien bestimmt. Die Meßwerte sind in Abb. 5 zusammen mit der berechneten Kurve eingetragen,

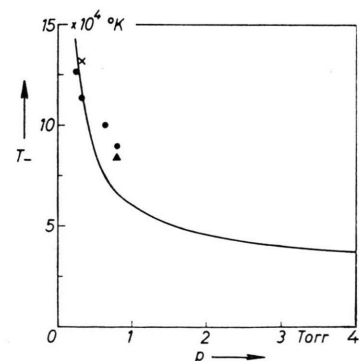


Abb. 5. Elektronentemperatur  $T_e$  in der positiven Säule einer Helium-Entladung als Funktion des Drucks.

×:  $I = 2,5$  mA; ●:  $I = 4$  mA; ▲:  $I = 6$  mA.

wobei der Beweglichkeitswert von  $\text{He}^+$  in Helium ( $b_{760} = 11 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ ) nach BIONDI und CHANIN<sup>9</sup> verwendet wurde.

<sup>9</sup> M. A. BIONDI u. L. M. CHANIN, *Phys. Rev.* **94**, 910 [1954].

Die Meßpunkte stimmen für  $p \leq 0,5$  Torr besser als nur der Größenordnung nach mit den berechneten Werten überein und zeigen die erwartete Abhängigkeit vom Entladungsdruck. Bei höheren Drucken setzen Plasmaschwankungen ein, die Temperaturbestimmungen durch Sondenmessungen bei Drucken  $> 0,8$  Torr unmöglich machen. Aus der befriedigenden Übereinstimmung der gemessenen und der berechneten  $T_-$ -Werte für  $p \leq 0,5$  Torr wird man schließen dürfen, daß auch bei höheren Drucken, wo  $T_-$  nicht mehr experimentell bestimmt werden konnte, zumindest Näherungswerte für  $T_-$  nach Gl. (4) berechnet werden können.

Die Zunahme der  $\text{He}_2^+$ -Ionen mit wachsendem Entladungsdruck führt nicht zu einer wesentlichen Änderung der Elektronentemperatur. Die  $\text{He}_2^+$ -Ionen besitzen zwar einen höheren Beweglichkeitswert ( $b_{760} = 20 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ )<sup>9</sup>, der zu einer Erhöhung des Diffusionsverlustes und damit auch zu einer Steigerung der Elektronentemperatur führen würde, da sie jedoch über angeregte He-Zustände ( $\text{He}' \geq 22 \text{ eV}$ ) nach der Reaktion  $\text{He}' + \text{He} \rightarrow \text{He}_2^+ + \text{e}$ <sup>10</sup> bereits durch Elektronen mit Energien  $< 24,5 \text{ eV}$  gebildet werden, resultiert nach Gl. (4) keine wesentliche Änderung der Elektronentemperatur in dem untersuchten Bereich.

#### 4. Ionen-Effusionsströme in Abhängigkeit von Entladungsstrom und Entladungsdruck

In Abb. 6 sind die gemessenen Ionen-Effusionsströme bei verschiedenen Entladungsdrucken als Funktion des Entladungsstromes aufgetragen, zusammen mit einer nach den Gln. (3) und (10) für 3 Torr Entladungsdruck berechneten Kurve. Zur numerischen Berechnung ist für die Beweglichkeit von  $\text{He}^+$  in Helium der Wert<sup>9</sup>  $b_{760} = 11 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$  verwendet, die axiale Driftgeschwindigkeit der Elektronen,  $u_-(E_z/p) = 5,3 \cdot 10^6 \text{ cm sec}^{-1}$ , nach Messungen von NIELSEN<sup>8</sup> extrapoliert und die Elektronentemperatur,  $T_- = 4 \cdot 10^4 \text{ }^\circ\text{K}$ , der nach Gl. (4) berechneten Kurve entnommen (Abb. 5).

Der Vergleich der gemessenen und berechneten Ionenstromintensitäten zeigt eine befriedigende Übereinstimmung. Die zur Berechnung notwendigen Größen  $T_-$  und  $u_-$  konnten nicht direkt bestimmt werden. Insbesondere haben die  $u_-$ -Werte nach NIELSEN<sup>8</sup> hier nur beschränkte Zuverlässigkeit, da sie

unter Bedingungen gemessen sind, die nicht unmittelbar den vorliegenden Verhältnissen in der positiven Säule entsprechen. Abweichungen innerhalb der Größenordnung können deshalb möglich sein. Auch die Annahme eines konstanten Ionenbeweglichkeitswertes über den Querschnitt der Entladung dürfte wegen des Radialfeldes in der positiven Säule nicht zutreffen. Von FROST<sup>11</sup> wurde dieser Einfluß auf den Diffusionsverlust in einer Helium-Entladung ( $p = 0,5$  Torr,  $I = 20 \text{ mA}$ ,  $R = 0,5 \text{ cm}$ ) untersucht und gefunden, daß für den tatsächlichen Diffusionsverlust, gegenüber dem mit konstanter Beweglichkeit berechneten Wert, der Faktor  $0,44 - 0,40$  eingesetzt werden müßte.

Differenzen zwischen berechneten und gemessenen Werten sind auch durch die Abweichung von der vorausgesetzten Zylindersymmetrie zu erwarten, die im Gebiet des Ionenaustritts durch die U-förmige Biegung des Entladungsrohres gestört ist, so daß die Trägerverteilung über den Querschnitt nicht mehr rotationssymmetrisch durch die BESSEL-Funktion gegeben ist, da sich die Entladung mehr der „Innenseite“ des U-Stückes anschmiegt. Man wird somit einen etwas geringeren Effusionsstrom erwarten, als dem zylindersymmetrischen Fall entspricht. Aus technischen Gründen wurde jedoch für die Herstellung der Düse die beschriebene U-Form des Entladungsrohres gewählt.

Nicht berücksichtigt sind ferner mögliche Trägerverluste in der Düse, die nicht als ideale Lochblende, sondern als kurze Röhre behandelt werden muß. Diese Verluste werden abhängig von der Bewegung der Träger in der Nähe der Wand und in der Düse selbst. Nach Untersuchungen von FETZ<sup>12</sup> und von BOYD<sup>13</sup> ist für die Ionen in Wandnähe infolge des Radialfeldes der positiven Säule eine vorwiegend gerichtete Bewegung anzunehmen, der nur eine kleine Temperaturbewegung überlagert ist. Von PAHL<sup>2</sup> wurde eine mögliche Massenseparation durch Trägerverluste in Effusionsdüsen diskutiert.

Die gemessenen Effusionsströme sind bei konstantem Druck nicht streng proportional dem Entladungsstrom, wie nach Gl. (3 a) zu erwarten wäre, sondern nehmen etwas schwächer als linear zu. Berücksichtigt man sekundäre Ionenbildungsprozesse, welche für die Gültigkeit von (3 a) ausgeschlossen sind, so zeigt sich, daß diese im Sinne der gemessenen Abweichung

<sup>10</sup> J. A. HORNBECK u. J. P. MOLNAR, Phys. Rev. **84**, 621 [1951].

<sup>11</sup> L. S. FROST, Phys. Rev. **105**, 354 [1957].

<sup>12</sup> H. FETZ, Ann. Phys., Lpz. **40**, (5) 579 [1941].

<sup>13</sup> R. L. F. BOYD, Nature, Lond. **165**, 228 [1950].

wirken. Die Elektronentemperatur wird dadurch von der Entladungsstromstärke abhängig und nimmt mit steigendem Entladungsstrom ab, so daß, wie aus Gl. (7) ersichtlich, eine Zunahme schwächer als proportional dem Entladungsstrom resultiert. Daß solche Prozesse schon wirksam werden, zeigen die Messungen der axialen Feldstärke (Tab. 1). Eine quantitative Berechnung unter Berücksichtigung der sekundären Ionenbildung aus den Lösungen von PAHL<sup>2</sup> ist vorerst noch nicht möglich, da die genauere Kenntnis der Wirkungsquerschnitte für die möglichen Prozesse fehlt.

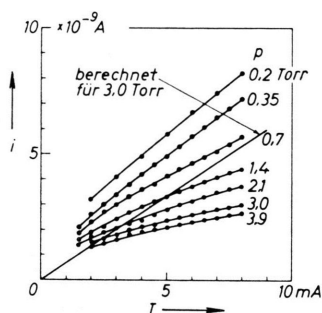


Abb. 6. Totaler Effusionsstrom ( $i$ ) aus der positiven Säule einer Helium-Entladung, aufgetragen gegen den Entladungsstrom ( $I$ ). Parameter: Entladungsdruck ( $p$ ).

Eine quantitative Abschätzung der Abweichungen des Effusionsstromes von den berechneten Werten durch die aufgeführten Fehlerursachen ist nicht durchgeführt, da die hierzu notwendigen Daten nicht ausreichend bekannt sind.

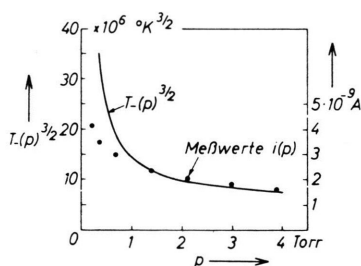


Abb. 7. Verlauf der berechneten Funktion  $T_-(p)^{3/2}$  und der gemessenen Effusionsströme  $i(p)$  bei konstantem Entladungsstrom  $I=3$  mA in Abhängigkeit vom Entladungsdruck  $p$ .

In Abb. 7 sind gegen den Entladungsdruck aufgetragen die berechnete Funktion  $T_-(p)^{3/2}$  und die gemessenen Effusionsströme  $i(p)$  bei konstantem Entladungsstrom (3 mA).

Nach Gl. (7) gilt für die Wandstromdichte bzw. für den Effusionsstrom bei konstantem Entladungsstrom näherungsweise dieselbe Druck-Abhängigkeit wie für  $T_-^{3/2}$ . Die Abb. 7 zeigt, daß die Meßwerte dem erwarteten Verlauf entsprechen. Die Ordinatenmaßstäbe sind dabei so gewählt, daß für 3 Torr, wo bei 3 mA Entladungsstrom der berechnete Effusionsstrom mit dem gemessenen übereinstimmt (Abb. 6), auch der  $i(p)$ -Wert mit dem  $T_-^{3/2}$ -Wert zusammenfällt.

### 5. Elektronen-Effusionsströme

Da im stationären Zustand der gesamte Wandstrom gleich Null ist, sollte der Effusionsstrom der Elektronen gleich dem der Ionen sein. Gemessene Elektronen-Effusionsströme zeigen dieselben Abhängigkeiten von den Entladungsbedingungen wie die Ionenströme; die Stromstärken sind jedoch nicht immer gleich, sie differieren maximal um den Faktor 2, und zwar ist  $i_- > i_+$ . Differenzen können durch das verwendete Auffängersystem bedingt sein, das nicht speziell zur Messung von Elektronenströmen konstruiert ist. Weitere Messungen wurden hierzu nicht durchgeführt, da der erste Zweck dieser Untersuchungen die experimentelle Prüfung der Effusionsmethode im Hinblick auf die massenspektrometrische Analyse der positiven Ionen-Effusionsströme ist.

### Massenspektrometrische Messungen an Neon-Entladungen

Der Ionen-Effusionsstrom aus der positiven Säule einer Neon-Entladung wurde mit einem richtungsfokussierenden Massenspektrometer (magnetisches  $60^\circ$ -Sektorfeld, 20 cm Ablenkradius) analysiert. Die Apparatur-Beschreibung wird gesondert publiziert werden.

Bei einem Entladungsdruck von 0,5 Torr und einer Entladungsstromstärke von 4 mA bilden die Neon-Atom-Ionen ( $^{20}\text{Ne}^+$  und  $^{22}\text{Ne}^+$ ) den Hauptbestandteil (93,4%) des Effusionsstromes. Nachgewiesen wurden weitere Ionenströme mit  $M/e$ -Werten: 1, 2, 12, 14, 17, 18, 21 ( $^{20}\text{NeH}^+$ ), 23 ( $^{22}\text{NeH}^+$ ), 28, 40 ( $^{20}\text{Ne}_2^+$  und  $\text{A}^+$ ), 42 ( $^{20}\text{Ne}^{22}\text{Ne}^+$ ), 44 ( $^{22}\text{Ne}_2^+$  und  $\text{CO}_2^+$ ).

Die Neon-Entladung ist zur Untersuchung einer möglichen Massenseparation durch die Düse geeignet. Da die Bildung der Atom-Ionen vorwiegend

durch Primärprozesse erfolgt, und die Ionisierungswahrscheinlichkeiten für beide Isotope gleich sind, ist nach Gl. (1) das Verhältnis der Effusionsströme  $i_{20}/i_{22}$  gleich dem natürlichen Isotopenmischungsverhältnis. Nach den Tabellen von MATTAUCH und FLAMMERSFELD<sup>14</sup> beträgt das Verhältnis

$$^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne} = 90,51\%/9,21\% = 9,83.$$

Das Ionenstromverhältnis  $i_{20}/i_{22}$  wurde aus 16 Messungen bestimmt zu  $9,76 \pm 0,15$  und aus 24 weiteren Messungen zu  $9,73 \pm 0,15$  ( $I = 3 \text{ mA}$ ,  $p = 0,5$  bis  $2,5 \text{ Torr}$ ). Eine systematische Abhängigkeit vom Entladungsdruck war nicht festzustellen. Die Meßergebnisse stimmen mit den Tabellenwerten innerhalb der erreichten Meßgenauigkeit von 2% überein. Eine Meßgenauigkeit, wie bei Verwendung einer Elektronenstoß-Ionenquelle konnte vorerst noch nicht erzielt werden, da die gegebene Entladung als Ionenquelle die hierzu notwendige Betriebskonstanz nicht erreicht. Die gemessene Ionenstromintensität  $i_{22}$  enthält außer  $^{22}\text{Ne}^+$  noch einen Anteil  $^{21}\text{NeH}^+$ , der durch Hydrid-Bildung entsprechend dem  $^{21}\text{Ne}$ -Anteil ( $0,28\%$ <sup>14</sup>) entsteht und der bei der Bestimmung des Verhältnisses  $^{20}\text{Ne}^+/^{22}\text{Ne}^+$  zu berücksichtigen ist. Bei den vorliegenden Messungen liegt eine Korrektur innerhalb der Meßgenauigkeit.

Die Ionenkonzentrationen in der positiven Säule sollten sich, wegen der massenabhängigen Beweglichkeit der Ionen, nach Gl. (9) verhalten wie

$$\frac{c(^{20}\text{Ne}^+)}{c(^{22}\text{Ne}^+)} = \frac{c(^{20}\text{Ne}) \sqrt{20}}{c(^{22}\text{Ne}) \sqrt{22}} = 9,37.$$

<sup>14</sup> J. MATTAUCH u. A. FLAMMERSFELD, Isotopenbericht, Verlag Z. Naturforsch., Tübingen 1949.

Zusammenfassend kann auf Grund der Meßergebnisse gesagt werden, daß die beschriebene Effusionsmethode zur Ionengewinnung aus Niederdruck-Gasentladungen Ionen-Effusionsströme liefert, die für den SCHOTTKY-Fall berechnet werden können und in erwarteter Weise von Entladungsdruck und Entladungsstrom abhängen. Zur numerischen Berechnung erforderliche Größen wie Entladungsstrom, Elektronentemperatur und Feldstärke können direkt bestimmt werden, für die schwer zugänglichen Werte der Beweglichkeit und Driftgeschwindigkeiten in der positiven Säule lassen sich bekannte Daten aus anderen Untersuchungen verwenden.

Eine meßbare Massenseparation durch Düseneffekte konnte bei den Neon-Isotopen nicht festgestellt werden. Man wird somit auch berechtigt sein, aus der massenspektrometrischen Analyse der Effusionsströme unter Beachtung von möglichen Umladungsreaktionen und Sekundärprozessen auf die Vorgänge im Innern der positiven Säule zu schließen.

Sofern eine quantitative Angabe der Trägerverluste in der Düse möglich ist, etwa durch Kombination von Wand- und Effusionsstrommessungen, oder die Düse selbst der idealen Lochblende genügend nahe kommt, gibt die Methode auch eine experimentelle Möglichkeit zur genauen Untersuchung der Trägerverluste durch Diffusion und den damit zusammenhängenden Problemen der positiven Säule.

Herrn Prof. Dr. H. SCHÜLER danke ich sehr für die Bereitstellung eines Arbeitsplatzes und der Mittel. Besonders bin ich Herrn Prof. Dr. M. PAHL für sein förderndes Interesse an dieser Arbeit zu größtem Dank verpflichtet. Dem Battelle-Memorial-Institut und der Deutschen Forschungsgemeinschaft danke ich sehr für die Gewährung von Stipendien.