# Messung der Beweglichkeit von Ionenclustern unter Benutzung des 20 ms-Isomers $^{24m}$Na als Tracer

*Diplomarbeit*
*von*

Bernhard Abmayr

Januar 1989

Technische Universität München, Fachbereich Physik
Institut E17, Prof. Dr. H. Morinaga
8046 Garching b. München

# Inhaltsverzeichnis


**Zusammenfassung** 1

**1 Einleitung** 2

**2 Theoretische Grundlagen** 4
- 2.1 Erzeugung der Tracerionen . . . 4
- 2.2 Prinzip der Tracermethode mit $^{24m}Na$ . . . 8
  - 2.2.1 Abhängigkeit der Peakflächen von der Ionengeschwindigkeit . . . 8
  - 2.2.2 Abhängigkeit des Peakflächenverhältnisses von anderen Größen . . . 8
  - 2.2.3 Die Rolle der Rekombination . . . 10
- 2.3 Die Beweglichkeit von Ionen in Gasen . . . 12
  - 2.3.1 Beispiel . . . 12
  - 2.3.2 Grenzen für die Gültigkeit der Theorie . . . 13
    - 2.3.2.1 Abhängigkeit der Ionenbeweglichkeit vom Druck . . . 14
    - 2.3.2.2 Abhängigkeit der Ionenbeweglichkeit von der Temperatur . 14
    - 2.3.2.3 Abhängigkeit der Ionenbeweglichkeit von der Feldstärke . 14
  - 2.3.3 Die Ionenbeweglichkeit in Gasgemischen . . . 14
  - 2.3.4 Der Einfluß von Verunreinigungen auf die Ionenbeweglichkeit . . . 15
    - 2.3.4.1 Wasserdampf in Edelgasen . . . 15
    - 2.3.4.2 Reiner Wasserdampf . . . 18
  - 2.3.5 Tröpfchenbildung . . . 20

**3 Überprüfung der Tracermethode an einfachen Beispielen** 23
- 3.1 Experimenteller Aufbau . . . 23
  - 3.1.1 Die Bestrahlungskammer . . . 23
  - 3.1.2 Die Meßkammer . . . 25
  - 3.1.3 Das Gashandlingsystem . . . 25
- 3.2 Experimente . . . 28
  - 3.2.1 Das Neon nach der Bestrahlung . . . 28
  - 3.2.2 Messungen mit Neon natürlicher Isotopenzusammensetzung . . . 30
  - 3.2.3 PC-Programm zur Berechnung der Beweglichkeiten . . . 32
    - 3.2.3.1 Berechnung der Raumwinkelverhältnisse in Abhängigkeit von der Geschwindigkeit . . . 32
    - 3.2.3.2 Fit der berechneten Kurve an die experimentelle Kurve . . 33
    - 3.2.3.3 Berechnung der Beweglichkeiten . . . 35

3.2.4 Messung der Beweglichkeit in verschiedenen Gasgemischen . . . . . 37
3.2.4.1 Mischungen von Neon mit Wasserdampf und Methanol . . 37
3.2.4.2 Mischungen von Neon mit Ar, He, $N_2$ und $CO_2$ . . . . . 39
3.2.4.3 Verschiedene Mischungen von Neon mit Ethanol . . . . . 42
3.2.5 Messungen bei niederen Drücken . . . . . 43
3.2.6 Messungen mit gereinigtem Neon . . . . . 48

**4 Beweglichkeitsmessungen in einer Diffusionsnebelkammer 51**
4.1 Das Ziel des Experiments . . . . . 51
4.2 Bau und Funktionsweise der Diffusionsnebelkammer . . . . . 51
4.2.1 Der Aufbau der Diffusionskammer . . . . . 51
4.2.2 Die Funktionsweise der Diffusionskammer . . . . . 54
4.2.3 Die Meßvorrichtungen in der Diffusionskammer . . . . . 56
4.3 Test der Diffusionskammer . . . . . 57
4.4 Experimente mit der Diffusionskammer . . . . . 57
4.4.1 Gasverteilungsexperiment . . . . . 57
4.4.2 Eichmessungen mit Neon . . . . . 59
4.4.3 Experimente zum Nachweis von Clustern . . . . . 59
4.4.3.1 Erstes Experiment . . . . . 61
4.4.3.2 Zweites Experiment . . . . . 63
4.4.4 Diskussion der beiden Experimente . . . . . 63
4.4.4.1 Analyse des Beweglichkeitssprungs in der Anfangsphase der Experimente . . . . . 63
4.4.4.2 Der weitere Verlauf der Experimente . . . . . 64

**5 Vorschläge für weitere Experimente und Ausblick 67**

**Anhang**

**A Programm zur Berechnung der Abhängigkeit des Peakflächenverhältnisses von der Geschwindigkeit der $^{24m}Na^{+}$-Ionen für eine einfache Geometrie A-1**

**Literaturverzeichnis Lit-1**

**Abbildungsverzeichnis Abb-1**

# Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine neue Tracer-Methode entwickelt, die mit einer extrem kurzen Tracer-Halbwertszeit von nur $20\,ms$ die Möglichkeit bietet, Bewegungen von $Na^+$-Ionen im Geschwindigkeitsbereich von einigen $m/s$ nachzuweisen. Ein großer Vorteil des hier benutzten Tracers ist, daß die $^{24m}Na$-Kerne als Tracerisotope nicht direkt erzeugt werden müssen, sondern aus $^{24}Ne$ durch einen $\beta^-$-Zerfall mit einer Halbwertszeit von $3.38\,min$ entstehen und ab diesem Zeitpunkt bis zur Rekombination positiv geladen sind. Dadurch bewegen sich die $^{24m}Na^+$-Ionen in einem elektrischen Feld. Die Geschwindigkeit der Ionen kann über die Änderung der Rate der in einem Detektor nachgewiesenen $\gamma$-Quanten vom Zerfall des isomeren Zustands berechnet werden. Auf diese Weise wurden die Beweglichkeiten der Natriumionen in reinem, gasförmigen Neon gemessen. Dabei stellte sich heraus, daß die Ionenbeweglichkeit stark von der Konzentration des Wasserdampfes im Gas bzw. Gasgemisch abhängt, da die Wassermoleküle selbst bei weniger als einem Promill Wasserdampfanteil so schnell mit den Natriumionen Cluster bilden, daß die Geschwindigkeit der Ionen schon während der ersten Millisekunden nach ihrer Entstehung drastisch verringert wird. Bei Beweglichkeitsmessungen in Gasmischungen von Neon mit Argon, Helium, Stickstoff, und Kohlendioxid wurde gezeigt, daß die Anwesenheit von Wasserdampf je nach Gassorte unterschiedliche Einflüße auf die Ionenbeweglichkeit hat: Während bei Argon und Stickstoff die Beweglichkeit in der Mischung mit durch Wasserdampf verunreinigtem Neon dem von der Theorie vorhergesagten Wert für Gasmischungen entsprach, waren die Wassercluster beim Helium größer und somit die Beweglichkeit kleiner als erwartet, da die Cluster durch Stöße mit den leichten Heliumatomen nicht so leicht zerstört werden können wie durch Stöße mit den anderen, schwereren Atomen oder Molekülen. Bei der Mischung von Neon mit Kohlendioxid war die Beweglichkeit der Natriumionen jedoch größer als vermutet, weil durch die Bildung der Cluster mit den Wassermolekülen die Bildung von Clustern mit Kohlendioxidmolekülen wegen der kleineren Bindungsenergie unterbunden war. Ferner konnte exemplarisch an verschiedenen Mischungen von Neon mit Ethanoldampf gezeigt werden, daß die Methode geeignet ist, die Änderung der Ionenbeweglichkeit mit dem Mischungsverhältnis in Übereinstimmung mit der Theorie mit hinreichender Genauigkeit zu messen.

Um die Anwendbarkeit der Tracermethode zur Untersuchung der Bildung von größeren Clustern oder Tröpfchen in Gassystemen in der Nähe des Kondensations- oder des kritischen Punktes zu prüfen, wurde in der sensitiven Zone einer Diffusionsnebelkammer nach solch einer Clusterbildung gesucht. Dazu wurde in einem "Fließgleichgewicht" für längere Zeit eine Zone mit übersättigtem Ethanoldampf erzeugt und die Geschwindigkeit der Ionen in diesem Gebiet gemessen. Es zeigte sich, daß die Beweglichkeit der Ionen so stark sank, daß man diesen Effekt nur auf die Bildung von größeren Clustern zurückführen kann.

# Kapitel 1

# Einleitung

Kleine Partikel im mit sichtbarem Licht nicht mehr auflösbaren Bereich gewinnen zunehmend an Bedeutung, wie das rasche Wachstum im Bereich der Clusterphysik zeigt. Dabei stellt sich natürlich die Frage, wie man solche Cluster von zwei bis einigen tausend Atomen oder Molekülen erzeugen, nachweisen und untersuchen kann. Neben der Standardmethode der 'supersonic free jet expansion'[1], der adiabatischen Expansion eines Gases durch ein sehr kleines Loch, werden zur Zeit einige andere Methoden zur Clustererzeugung untersucht, z.B. die 'laser evaporation'[2], d.h. das Erhitzen einer Oberfläche bis über die Verdampfungstemperatur mit gepulsten Laserstrahlen. Nach ihrer Produktion können die Cluster z.B. mit hochempfindlichen Massenspektrometern[3] nachgewiesen oder separiert und anschließend auf Bindungsenergien, magische Zahlen, Anregungszustände, Elektronenbänder, ... hin untersucht werden. All diese Cluster werden mit einigem Aufwand künstlich erzeugt und entbehren somit in gewisser Weise den Bezug zur Realität. Denn Cluster jeder Größe treten auch in der Natur auf, man denke nur an das Wachstum von Regentropfen, an die Microcluster als Feinstruktur in Gläsern oder an Clusterbildung auf Ionen in allen Schichten der Atmosphäre. Mit dem Gedanken an Kondensations- oder gar kritische Phänomene wurde begonnen, den metastabilen Zustand in $^{24}Na$ mit einer Halbwertszeit von $20\,ms$ als Tracer zu benutzen. Da das $^{24}Na$ selbst $\beta^-$-instabil ist ($T_{1/2} = 15\,h$), kann der isomere Zustand nur über eine Kernreaktion erzeugt werden. Die vielen direkten Reaktionen zum $^{24}Na$ haben den Nachteil, daß sie richtige 'online'-Messungen erfordern würden. Viel angenehmer ist die Erzeugung über das ebenfalls $\beta^-$-instabile $^{24}Ne$ ($T_{1/2} = 3.38 min$), das seinerseits aus $^{22}Ne$ durch Beschuß mit Tritonen am Garchinger Kompaktzyklotron erzeugt werden kann. Nach dem Zerfall des $^{24}Ne$ ist das $^{24}Na$ -Atom positiv geladen und kann durch ein elektrischen Feld beschleunigt werden. Bewegt sich das Ion entweder auf einen Detektor zu oder von einem Detektor weg, so wird durch diese Bewegung der Raumwinkel vom Ion zum Detektor verändert, sodaß die Wahrscheinlichkeit, daß das einige $ms$ nach dem Zerfall ausgesandte $\gamma$-Quant im Zähler registriert wird, erhöht oder erniedrigt wird. Somit kann man aus der Änderung der Zählrate durch Anlegen eines elektrischen Feldes Rückschlüsse auf die Geschwindigkeit der Ionen ziehen. Dazu wurde ein PC-Programm entwickelt, das aus der geometrischen Anordnung die Änderung der Zählrate bei Bewegung der Ionen berechnet. Trotz Schwie-

[1] T. Kondrow, K. Mitsuke: The Journal of Chemical Physics **83**, 2612 (1985)

[2] Private Mitteilung von Dr. A. Kasuya, Institute for Materials Research an der Tohoku-Universität in Sendai, Japan,
und P. Faust, Hahn-Meitner-Institut Berlin, Vortrag bei der International School of Physics "Enrico Fermi", CVII Course, 1988

[3] O. Echt, K. Sattler, E. Recknagel: Physical Review Letters **47**, 1121 (1981)

rigkeiten bei der Berücksichtigung der starken Feldinhomogenitäten gelang es, die Bildung von Clustern aus Verunreinigungsmolekülen auf den Tracer-Ionen und auch die Bildung von Clustern in übersättigtem Ethanoldampf in einer Diffusionsnebelkammer nachzuweisen, nachdem zuvor diese Methode der Beweglichkeitsmessung an einfacheren Systemen untersucht worden war.

# Kapitel 2

# Theoretische Grundlagen

## 2.1 Erzeugung der Tracerionen

Die Idee dieser Diplomarbeit ist, den metastabilen Zustand in $^{24}Na$ mit einer Halbwertszeit von $20\,ms$ als Tracer für Beweglichkeitsmessungen in verschiedenen Gasen zu nutzen, wobei besonders die Bildung von Clustern mit Natriumionen als Kondensationskeim untersucht werden sollte. Der für solche Expeimente interessante niederenergetische Teil des Niveauschemas[1] von $^{24}Na$ ist in Abbildung 2.1 dargestellt.

Prinzipiell kommen für die Bevölkerung des metastabilen Zustands in $^{24}Na$ viele Reaktionen in Frage, wovon man sich anhand Abbildung 2.2, einem Ausschnitt aus der Nuklidkarte[2], leicht selbst überzeugen kann. Hier sollen deshalb nur solche angegeben werden, die tatsächlich schon durchgeführt worden sind:

1. $^{22}Ne\ (^{3}He,p)^{24}Na$ [3]
2. $^{23}Na(n,\gamma)^{24}Na$ [4]
3. $^{23}Na(d,p)^{24}Na$ [5]
4. $^{24}Mg(n,p)^{24}Na$ [6]
5. $^{24}Mg(t,^{3}He)^{24}Na$ [7]
6. $^{25}Mg(d,^{3}He)^{24}Na$ [8]
7. $^{26}Mg(d,\alpha)^{24}Na$ [9]

[1] vgl. S.41 in C.M. Lederer, V.S. Shirley: "Table of Isotops", John Wiley & Sons Inc., New York, 7.Auflage, 1978

[2] W. Seelmann-Eggebert, G. Pfennig, H. Münzel: "Karlsruher Nuklidkarte", Gersbach und Sohn Verlag, München, 4. Auflage, 1974

[3] D.F.H. Start et al.: Nuclear Physics **A206**, 207 (1973)

[4] R.C. Greenwood: Physics Letters **23**, 482 (1966)

[5] A.S. Keverling Buisman, P.J.M. Smulders: Nuclear Physics **A228**, 205 (1974)

[6] G.N. Salaita: Nuclear Physics **A170**, 193 (1971)

[7] F. Ajzenberg-Selove et al.: Physical Review **C15**, 1 (1977)

[8] E. Krämer, G. Mairle, G. Kaschl: Nuclear Physics **A165**, 353 (1971)

[9] A.S. Keverling Buisman et al.: Nuclear Physics **A176**, 161 (1971)

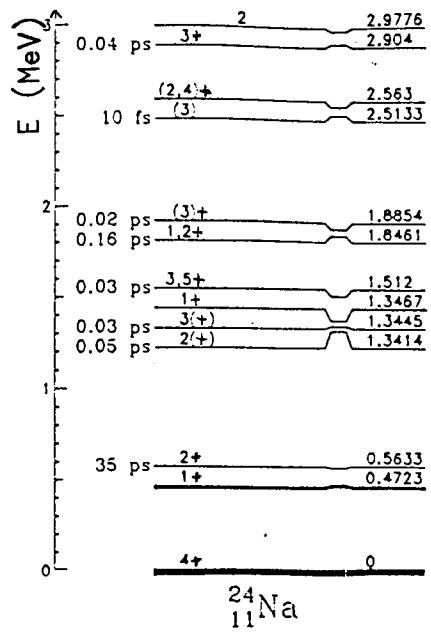



Abbildung 2.1: Niederenergetischer Teil des Niveauschemass von $^{24}Na$

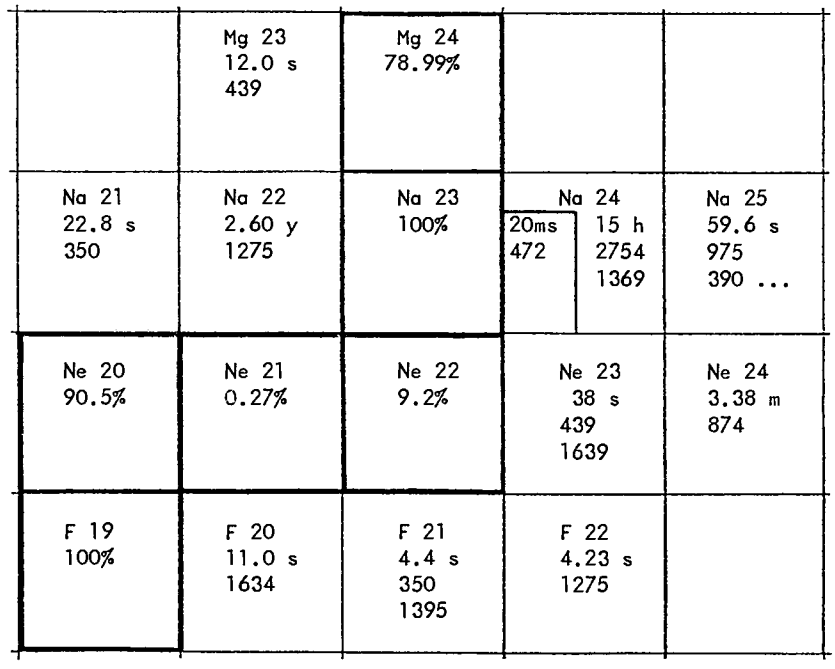



Abbildung 2.2: Ausschnitt aus der Karlsruher Nuklidkarte

Bei den stabilen Isotopen in Kästchen mit fettem Rand ist die Isotopenhäufigkeit in Prozent angegeben. Bei den anderen Isotopen sind in der zweiten Zeile die Halbwertszeit und ab der dritten Zeile die Energien der für den Zerfall charakteristischen $\gamma$-Quanten in $keV$ angeführt.

8. $^{27}Al(n,\alpha)^{24}Na$ [10]

All diese Reaktionen liefern neben vielen anderen Zuständen auch den metastabilen Zustand des $^{24}Na$ , dessen Lebensdauer schon häufig bestimmt wurde. Die meisten Experimente liefern übereinstimmend $20.2\,ms$. Wie aus Abbildung 2.1 ersichtlich ist, handelt es sich bei dessen Zerfall um einen M3-Übergang, für den man mit der Weisskopf-Näherungsformel[11]

$$T_{1/2}[sec] = \frac{\ln 2}{11 * A^{4/3} * E_\gamma^7[MeV]} = 0.18\,sec$$

eine nicht allzu schlechte Abschätzung für die Halbwertszeit erhält.

Möchte man nun den Kern in diesem Zustand als Tracer verwenden, muß man die $472\,keV$-Linie des Zerfalls des isomeren Zustands nachweisen. Benutzt man Reaktionen, bei denen das $^{24m}Na$ direkt erzeugt wird, muß man unmittelbar am Bestrahlungsort messen, was wegen des hohen Untergrunds aufgrund der vielen Nebenreaktionen ungünstig ist. Analoges gilt bei Verwendung von Neutronen als Projektile. Will man den Tracer gar zur Untersuchung von bestimmten Systemen verwenden, wäre eine Bestrahlung des ganzen Systems in der Regel auch nicht sinnvoll.

Deshalb wurde eine unproblematischere Methode angewandt, bei der der isomere Zustand im $^{24}Na$ durch den $\beta^-$-Zerfall von $^{24}Ne$ bevölkert wird. Abbildung 2.3 zeigt das Zerfallsschema[12] dieses Systems.

Die Erzeugung des $^{24}Ne$ gelang schon 1956 in Los Alamos durch Beschuß von $^{22}Ne$ mit $1.5\,MeV$-Tritonen[13], einer Sub-Coulombreaktion. Da die Coulombbarriere

$$E_C = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \cdot \frac{Q_1 Q_2}{R_1 + R_2} = 2.42\,MeV$$

ist, der Q-Wert

$$\left[m(^{24}Ne) + m(p) - m(^{22}Ne) - m(t)\right] c^2 = -5.6\,MeV$$

negativ ist, und am Zyklotron der TUM in Garching auf $7.2\,MeV$ beschleunigte Tritonen zur Verfügung stehen[14], standen dieser Methode keine größeren Schwierigkeiten im Weg.

Wie aus Abbildung 2.3 zu ersehen ist, hat $^{24}Ne$ eine Halbwertszeit von $3.38\,min$. Dies gestattete es, das Neon-Gas am Beschleuniger zu bestrahlen (vgl. die Abschnitte über Gashandlingsystem und Bestrahlungskammer), und anschließend in eine Meßkammer in einer vom Beschleuniger abgeschirmten Experimentierhalle zu pumpen, wo dann die gewünschten Zerfälle des $^{24}Ne$ stattfanden. Da die $^{24}Ne$ -Atome ungeladen sind, und beim $\beta^-$-Zerfall Elektronen emittieren, standen somit positiv geladene $^{24}Na$ -Ionen zur Verfügung. Dabei ist für spätere Rechnungen (z.B. für das Simulationsprogramm, das im

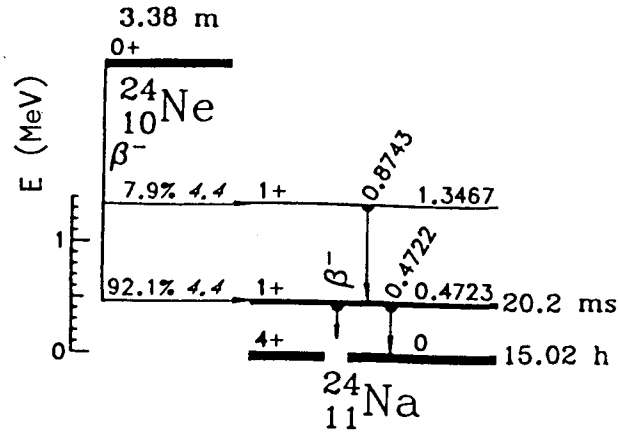
[10] G.N. Salaita: Nuclear Physics **A170**, 193 (1971)

[11] vgl. S. App. 24 in C.M. Lederer, V.S. Shirley: "Table of Isotops", John Wiley & Sons Inc., New York, 7.Auflage, 1978

[12] vgl. S.42 in C.M. Lederer, V.S. Shirley: "Table of Isotops", John Wiley & Sons Inc., New York, 7.Auflage, 1978

[13] B.J. Dropesky, A.W. Schardt: Physical Review **102**, 426 (1956)

[14] Zum Betrieb des Zyklotrons mit Tritonen und den daraus resultierenden Schwierigkeiten vgl. H. Wegmann, E. Huenges, H. Muthig, H. Morinaga: Nuclear Instruments and Methods 179, 217 (1981) und E. Huenges, H. Muthig, H. Morinaga: Proc. IX. Conf. on Cyclotrons and their Applications, Caen Univ., Frankreich, S. 111 (1981)



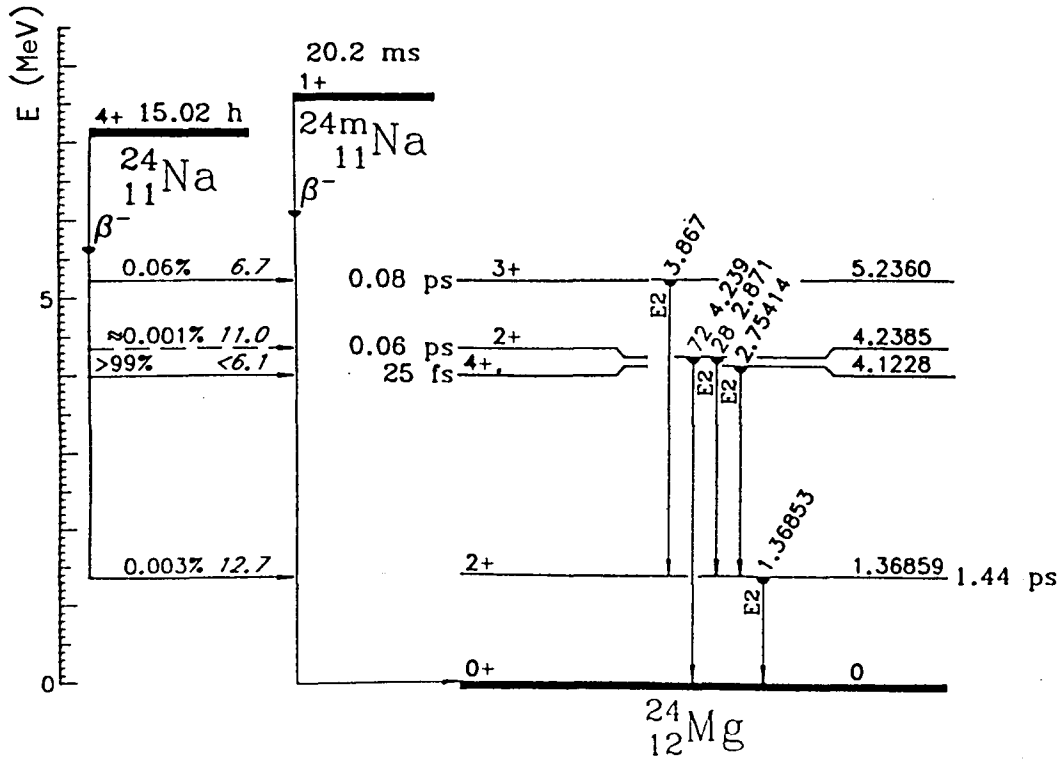




Abbildung 2.3: Zerfallsschemata von $^{24}Ne$ zu $^{24}Na$ und $^{24}Na$ zu $^{24}Mg$

Anhang A beschrieben wird) zu beachten, daß durch den 'shakeoff effect' auch mehrfach positiv geladene Teilchen gebildet werden, nämlich 17.5% doppelt, 2.85% dreifach, 0.49% vierfach, 0.076% fünffach und 0.006% sechsfach geladene[15] .

## 2.2 Prinzip der Tracermethode mit $^{24m}Na$

### 2.2.1 Abhängigkeit der Peakflächen von der Ionengeschwindigkeit

Weil die $Na^+$-Ionen vom Zeitpunkt ihrer Entstehung bis zur Neutralisation durch gegebenenfalls mehrere Rekombinationen positiv geladen sind, können sie durch ein elektrisches Feld beschleunigt werden[16]. Wie kann man nun diese Bewegung nachweisen?

Wegen den Spins und Paritäten des $^{24}Ne$ -Grundzustandes (0+), des $^{24}Na$ -Grundzustandes (4+) und der Anregungsniveaus des $^{24}Na$ (vgl. Abbildung 2.1) zerfällt das $^{24}Ne$ ($Q_\beta = 2.468\,MeV$) nur in zwei angeregte Zustände im $^{24}Na$ mit den Energien 472.3 $keV$ und 1346.7 $keV$. Der erste Zustand sei mit Z1 bezeichnet, der zweite mit Z2. Beide sind (1+)-Zustände, sodaß der obere sofort (in weniger als 0.01 $psec$), d.h. am Ort des Zerfalls, unter Aussendung eines 874.3 $keV$-$\gamma$-Quantes in den metastabilen Zustand zerfällt. Ab diesem Zeitpunkt $t = 0$ ist das $^{24m}Na$ positiv geladen; es bewegt sich also im elektrischen Feld und sendet nach einer mittleren Zeit von $20.2\,ms/\ln 2 = 29.1\,ms$ das 472 $keV$-$\gamma$-Quant aus.

Wählt man nun die Geometrie wie in Abbildung 2.4, so ist die Zählrate bei der 874 $keV$-Linie unabhängig vom elektrischen Feld, da die entsprechenden $\gamma$-Quanten von den jeweiligen Zerfallsorten ausgesendet werden, die im einfachsten Fall homogen über das ganze Volumen verteilt sind. Bewegen sich die Ionen nach dem Zerfall, wie eingezeichnet, auf den Detektor zu (es wurde ein Ge(Li)-Detektor verwendet), so nimmt die Nachweiswahrscheinlichkeit für vom Ion ausgesandte $\gamma$-Quanten zu, da der Raumwinkel des Ions bzgl. des Detektors wächst, sodaß man bei angelegter Spannung eine größere Zählrate in der 472 $keV$-Linie hat, als bei Abwesenheit von elektrischen Feldern. Dies bedeutet, daß das Verhältnis der Intensitäten der 472 $keV$-Linie und der 874 $keV$-Linie von der Geschwindigkeit der Ionen und damit vom elektrischen Feld abhängt. Dieses Verhältnis wird mit R ("ratio") bezeichnet.

### 2.2.2 Abhängigkeit des Peakflächenverhältnisses von anderen Größen

Das Peakflächenverhältnis R hängt aber nicht nur von der Geschwindigkeit der Ionen, sondern auch von folgenden Größen ab:

1. vom Unterschied der Effizienz des Detektors bei 472 $keV$ bzw. 874 $keV$ und der Änderung der Effizienz beim schrägen Durchgang durch den Detektor (vgl. 3.2.3.2).

2. vom Material zwischen dem Ort der $\gamma$-Emission und dem Detektorkristall, da dieses die 472 $keV$- bzw. die 874 $keV$-$\gamma$-Quanten unterschiedlich stark absorbiert bzw. streut.

[15] vgl. S. 1545 in K. Siegbahn: "Alpha-, Beta- and Gamma-Ray Spectroskopy", Bd.II, North-Holland Publishing Company, Amsterdam, 3. Auflage, 1968

[16] vgl. R. Overstreet, L. Jacobson: Paper No.67 in C.D. Coryell, N. Sugarman: "Radiochemical Studies: The Fission Products", McGraw Hill Book Company Inc., New York-Toronto-London1951

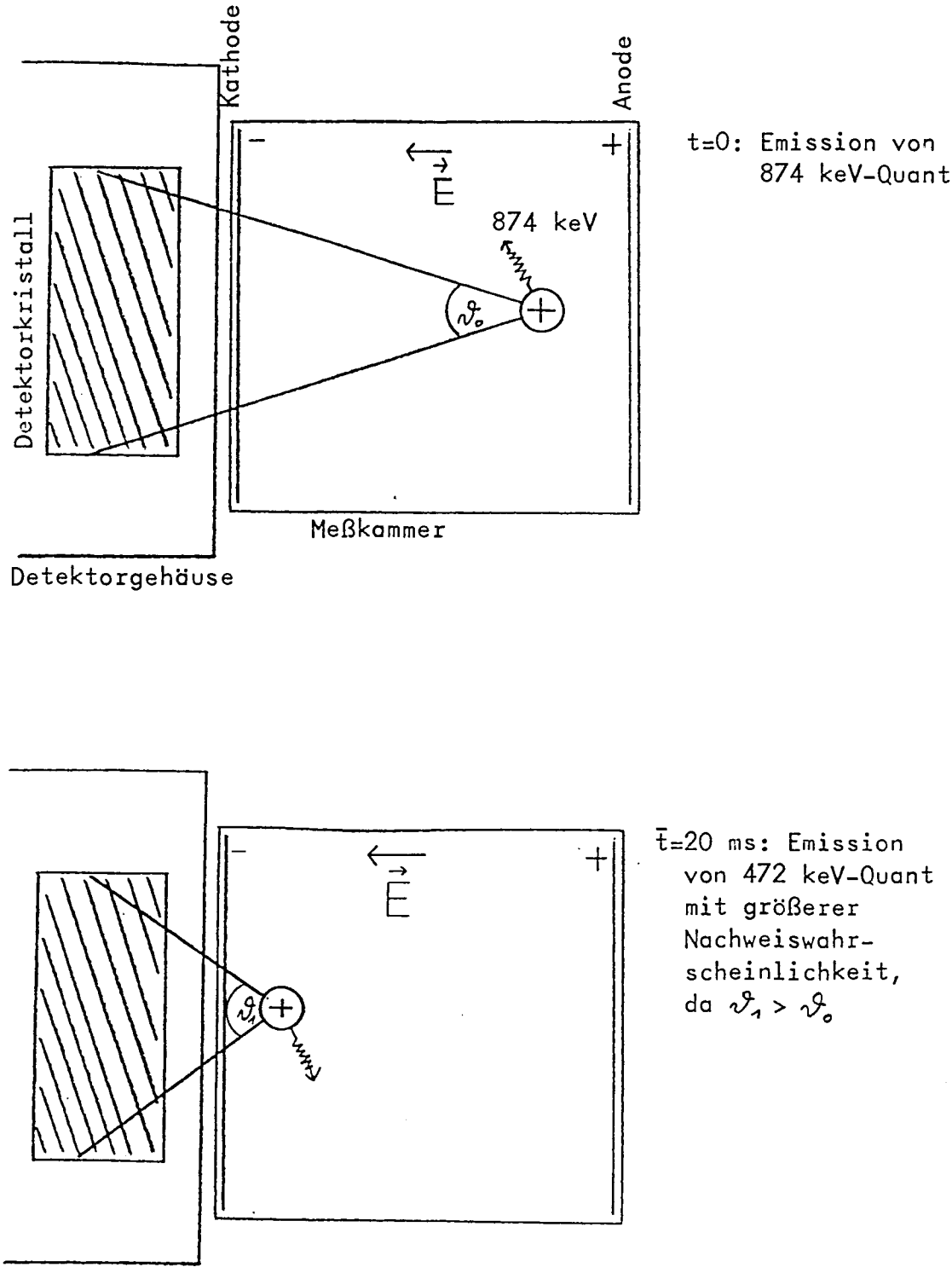



Abbildung 2.4: Schematische Zeichnung zur Veranschaulichung der Raumwinkeländerungen bei der Bewegung der Ionen

3. vom Anteil der $\gamma$-Quanten, die zwar vom gewünschten Zerfall von $^{24}Ne$ kommen, aber von Ionen stammen, die sich nicht im elektrischen Feld bewegen, sondern sich z.B. in Zuleitungen oder in Nischen der Meßkammer befinden (vgl. 3.2.3.2).

4. von der Rekombination von $Na^+$-Ionen vor dem Zerfall des isomeren Zustands (vgl. 2.2.3).

5. von der Strecke, die sich die Ionen durch den Rückstoßimpuls, den sie bei der $\beta$-Emission erhalten, bewegen. Dieser Effekt ist vernachlässigbar, wie die folgende Rechnung zeigt: Für den Zerfall von $^{24}Ne$ ist die maximale kinetische Energie $E_{kin\,max} = Q_\beta = 2.468\ MeV$[17]. Aus der relativistischen Energie-Impuls-Beziehung folgt
$$p_{\beta\,max} = \frac{1}{c}\sqrt{Q_\beta^2 + 2Q_\beta E_0} = 1.57 \cdot 10^{-21}\,\frac{kg\,m}{s}$$
Bei diesem Zerfall gilt $p_{Na\,max} = p_{\beta\,max}$ und da man für das Natriumion nichtrelativistisch rechnen kann, erhält man
$$v_{Na\,max} = \frac{p_{\beta\,max}}{m_{Na}} = 3.9 \cdot 10^4\,\frac{m}{s}$$
als maximale Rückstoßgeschwindigkeit und $E_{kin\,Na\,max} = 190\,eV$ als maximale Rückstoßenergie. Nimmt man an, daß das Na-Ion bei jedem Stoß die Hälfte seiner Energie verliert, bewegt es sich ungefähr doppelt so weit wie mit der vollen Geschwindigkeit bis zum ersten Stoß nach ungefähr $3 \cdot 10^{-10}s$ (vgl. 2.3.2.1), also ungefähr $2.3 \cdot 10^{-5}m \approx 0.02\,mm$. Somit ist die Bewegung aufgrund des Rückstoßeffektes vernachlässigbar, solange die Drücke nicht kleiner als $10\,mbar$ werden.

### 2.2.3 Die Rolle der Rekombination

In diesem Abschnitt soll abgeschätzt werden, ob unter den gegebenen Bedingungen die Rekombination von $^{24}Na$ -Ionen mit Elektronen während der Lebensdauer des metastabilen Zustands eine Rolle spielen kann.

Nach der einfachsten Rekombinationstheorie[18] gilt:
$$\frac{dn_+}{dt} = -\alpha n_+ n_-$$
Dabei sind $n_+$ bzw. $n_-$ die Zahlen der positiven Ionen bzw. Elektronen pro $cm^3$ (Die Zahl der negativen Ionen kann gegenüber der der Elektronen vernachlässigt werden.) und $\alpha$ der Rekombinationskoeffizient. Für reines Neon ist $\alpha = 2.1 \cdot 10^{-7}\,\frac{cm^3}{s}$ und rührt von der dissoziativen Rekombination her[19]. Da $\alpha$ bei Edelgasen stark vom Reinheitsgrad abhängt, soll hier mit dem viel ungünstigeren Wert von $\alpha = 1 \cdot 10^{-6}\,\frac{cm^3}{s}$ gerechnet werden, was ungefähr dem Maximalwert bei den üblichen Gasen entspricht. Um eine Abschätzung für die Ionendichte zu erhalten, werden folgende Annahmen gemacht:

[17] vgl. S. 40 in C.M. Lederer, V.S. Shirley: "Table of Isotops", John Wiley & Sons Inc., New York, 7.Auflage, 1978

[18] vgl. S. 25 in S. Flügge: "Handbuch der Physik", Bd. VL, Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg--New York, 1958

[19] H.S.W. Massey: Advances in Physics 1, 395 (1939)

1. Bei der einfachen Meßkammer (vgl. 3.1.2) wurden von der Diode maximal ca. 10000 $counts/s$ in der 472 $keV$-Linie gemessen. Durch andere kurzlebige $\beta$-Zerfälle (vgl. 3.2.1) wird diese Zahl maximal verdoppelt. Dazu kommen noch die von den sich im Lauf der Messungen anreichernden $^{24}Na$ -Atomen stammenden $\beta$-Zerfälle. Diese können jedoch aufgrund der Mutter-Tochter-Beziehung auch nicht mehr als die obige Aktivität erreichen. Der Detektor hat für 472 $keV$-$\gamma$-Quanten eine Nachweiswahrscheinlichkeit von ca. 30% und der mittlere Raumwinkel, unter dem der Kristall von den $\gamma$-Quanten aus der Meßkammer gesehen wird, ist ca. $0.8 \approx \frac{4\pi}{15}$, sodaß man maximal $10000 \cdot 3 \cdot \frac{1}{0.3} \cdot 15 = 1.5 \cdot 10^6$ $\beta$-Zerfälle pro Sekunde in der Kammer hat.

2. Aufgrund der Geometrie bewegen sich diese $\beta$-Teilchen im Mittel weniger als 4 $cm$ in der Kammer und erzeugen mit einem Ionisationsvermögen von 100 Ionenpaaren pro cm je ca. 400 Ionenpaare. Das Ionisationsvermögen ist eine Obergrenze für Elektronen der gegebenen Energien in Luft bei Normalbedingungen[20] und sollte beim Edelgas Neon erheblich kleiner sein. Der durchschnittliche Energieverlust des $\beta$-Teilchens pro erzeugtem Ionenpaar ist in Neon 27.4 $eV$ [21]. Somit ist der Energieverlust auf dem Weg durch die Kammer so klein, daß man die Zunahme des Ionisationsvermögens für kleine $\beta$-Energien nicht berücksichtigen muß.

3. Für den $\beta$-Zerfall von $^{24}Ne$ erhält man eine maximale Energie von 190 $eV$ für den Rückstoßkern (vgl. 2.2.2). Würde diese ganze Energie in Ionenpaare umgewandelt, wären dies ca. 8 pro Zerfall, was, verglichen mit den obigen 400, vernachlässigbar ist. Analoges gilt für die anderen $\beta$-Zerfälle.

4. Die Ionisation durch die $\gamma$-Strahlung wird vernachlässigt, da das Ionisationsvermögen viel kleiner als bei $\beta$-Strahlung ist.

5. Da bei den Messungen, bei denen die Rekombination eine Rolle spielt, in der ganzen Kammer ein elektrisches Feld anliegt, das die Ionen und Elektronen absaugt, wird die Ionendichte nicht durch die Rekombination, sondern durch die Ionisationsrate und die Absauggeschwindigkeit bestimmt. Bei den verwendeten elektrischen Feldern lagen die Driftgeschwindigkeiten der Ionen im Bereich von $1\frac{m}{s}$, sodaß die positiven Ionen in weniger als $\frac{1}{10}s$ die Kathode erreichen. Die Elektronen haben natürlich eine viel größere Geschwindigkeit im angelegten Feld[22,23], die bei den gegebenen Versuchsbedingungen maximal $2 \cdot 10^5 \frac{m}{s}$ wurde, sodaß man sich auch bei den Elektronen noch im Bereich konstanter, d.h. druckunabhängiger Beweglichkeit aufhielt. Dieser Maximalgeschwindigkeit entspricht eine Energie von 0.1 $eV$ womit sie weit unter der Ionisationsenergie von Neon (21.7 $eV$) und der anderen Beimischungen liegt, sodaß man dadurch keine Elektronenvervielfachung hatte.

Somit errechnet man $1.5 \cdot 10^6 \cdot 400$ erzeugte Ionenpaare pro Sekunde und mit einer Driftzeit von 0.1 $s$ und einem Kammervolumen von 200 $cm^3$ ein mittleres $n_+ = 3 \cdot 10^5/cm^3$.

[20] R.B. Brode: Review of Modern Physics **11**, 222 (1939)

[21] vgl. S. 190 in W. Riezler: "Einführung in die Kernphysik", Hermann Hübener Verlag, Berlin-Buxtehude, 1950

[22] R.A. Nielsen: Physical Review **50**, 950 (1936)

[23] vgl. S. 10 in V. Kment, A. Kuhn: "Technik des Messens radioaktiver Strahlung", Akademische Verlagsgesellschaft Geest & Portig KG, Leipzig, 1960

Dies ist wohlbemerkt eine Abschätzung der oberen Grenze. Wegen $v_{El} \approx 1000\, v_{Na}$ kann man mit $n_- \approx \frac{1}{1000} n_+$ rechnen und erhält:

$$\frac{dn_+}{dt} = -1 \cdot\ 10^{-6}\, \frac{cm^3}{s} \cdot 3 \cdot\ 10^5 \cdot 3 \cdot\ 10^2\, cm^{-6} = -90\, \frac{1}{cm^3\, s},$$

d.h. bei $3 \cdot\ 10^5$ Ionenpaaren pro $cm^3$ 90 Rekombinationen pro Sekunde, d.h. ca. 0.03% der Ionenpaare rekombinieren in der Halbwertszeit des metastabilen Zustands in $^{24}Na$ . Da alle Größen so abgeschätzt wurden, daß die Rekombinationsrate zu groß wird, muß man man die Rekombination nicht berücksichtigen.

## 2.3 Die Beweglichkeit von Ionen in Gasen

In diesem Abschnitt geht es im wesentlichen darum, mit welcher Geschwindigkeit sich *positive* Ionen in einem homogenen elektrischen Feld in einem Gas oder Gasgemisch bewegen. Insbesondere wird die Abhängigkeit der Driftgeschwindigkeit von Druck, Temperatur, Mischungsverhältnis, Spuren von Verunreinigungen und vom elektrischen Feld erörtert.

### 2.3.1 Beispiel

Zur Einführung in die Problematik soll ein einfaches Beispiel mit der kinetischen Gastheorie gerechnet werden.

Gegeben sei ein ideales einatomiges Gas unter dem Druck p bei der Temperatur T. Die Masse der Atome sei m und der Radius für den Streuquerschnitt r. In diesem Gas seien so wenige Ionen mit der Ladung Q, der Masse M und dem Radius R, daß sie selbst nicht miteinander wechselwirken[24]. Ferner sei das Gas von einem homogenen elektrischen Feld durchsetzt. Da nur die wichtigsten Abhängigkeiten aufgezeigt werden sollen, wird hier nur mit Mittelwerten gerechnet, anstatt über die jeweils exakten Größen zu integrieren. Dann gilt für die mittlere gerichtete Geschwindigkeit der Ionen[25]:

$$\bar{v} = fa\bar{t}$$

mit der Beschleunigung $a = \frac{QE}{M}$ und der mittleren Flugdauer $\bar{t}$ zwischen zwei Stößen des Ions mit Gasatomen. f ist ein Faktor, der die Geschwindigkeitsverteilung vor und nach dem Stoß berücksichtigt. Verlöre das Ion bei jedem Stoß seine ganze durch die Beschleunigung gewonnene Energie, wäre $f = \frac{1}{2}$. Für gleichschwere Stoßpartner ist[26] $f = 1.15$. Der Stoß zwischen Ion und Atom unter Berücksichtigung der verschiedenen Massen ist schon von Lenard[27] und in neuerer Zeit von McDaniel[28,29] eingehend untersucht worden. Es sei

[24]In diesem Abschnitt 2.3.1 ist R nicht wie im übrigen Teil der Arbeit das Peakflächenverhältnis, sondern der Radius der Ionen. Damit sind alle Größen für die Ionen große und die für die Gasatome kleine lateinische Buchstaben.

[25]vgl. S. 179 in C. Gerthsen, H.O. Kneser, H. Vogel: "Physik", Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg--New York, 14. Auflage, 1982

[26]vgl. S.138 in W.H. Westphal (Hrsg.): "Physikalisches Wörterbuch", Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg-New York, 1952

[27]P. Lenard: Annalen der Physik 60, 329 (1919)

[28]vgl. S. 236 ff in E.W. McDaniel: "Collision Phenomena in Ionized Gases", John Wiley & Sons Inc., New York, 1964

[29]vgl. S. 60 ff in E.W. McDaniel, E.A. Mason: "The Mobility and Diffusion of Ions in Gases", John Wiley & Sons Inc., New York, 1973

nun $\bar{v} < \bar{v}_{th}$ ($\bar{v}_{th} = 0.926\sqrt{\overline{v_{th}^2}} = 0.926\sqrt{\frac{3kT}{M}}$), sodaß $\bar{t}$ näherungsweise durch die mittlere freie Weglänge $\bar{l}$ und die mittlere thermische Geschwindigkeit $\bar{v}_{th}$ bestimmt ist:

$$\bar{t} = \frac{\bar{l}}{\bar{v}_{th}}$$

Für $\bar{l}$ gilt nun[30]:

$$\bar{l} = \frac{1}{\sqrt{2}\, n\sigma} \ ,$$

wobei n die Teilchenzahldichte und $\sigma$ der Stoßquerschnitt eines Ions mit einem Gasatom ist, der hier als $\sigma = \pi(r+R)^2$ angenommen werden soll. Der Faktor $\frac{1}{\sqrt{2}}$ in der letzten Formel gilt eigentlich nur für gleiche Massen; der Unterschied kann jedoch über den obigen Faktor $f$ berücksichtigt werden. Mit der Definition $\mu = \frac{\bar{v}}{E}$ für die Beweglichkeit der Ionen und $n = \frac{p}{kT}$ erhält man:

$$\mu = \frac{f\sqrt{3}}{0.926\pi\sqrt{2}} \frac{Q\sqrt{kT}}{\sqrt{M}(r+R)^2 p} \tag{2.1}$$

Als Beispiel sollen $^{24}Na$ -Ionen in $^{20}Ne$ betrachtet werden. Da die Voraussetzungen für die obige Rechnung gut erfüllt sind, kann man folgende Werte einsetzen: $f = 1.15$, $r = 1.5$ Å, $R = 0.99$ Å [31], $Q = e$, $T = 273K$, $p = 1.013 \cdot 10^5 \frac{N}{m^2}$ und erhält $\bar{l} = 1.35 \cdot 10^{-7}\, m$, $\bar{v}_{th} = 492\, \frac{m}{s}$, $\bar{t} = 2.75 \cdot 10^{-10} s$ und damit

$$\mu = 12.6\, \frac{cm^2}{Vs}$$

Beachtet man, daß diese Theorie nur eine Näherung ist, und die Radien r und R auch nicht besonders genau bestimmt sind, ist die Abweichung von den jeweils bei Zimmertemperatur gemessenen Werten von $8.87\, \frac{cm^2}{Vs}$ [32] und $8.27\, \frac{cm^2}{Vs}$ [33] erklärbar. Der größte Fehler steckt wohl im Ionenradius R, da bei Stößen von Ionen mit neutralen Atomen neben den wirklichen Stößen auch die influenzierte Dipol-Ion-Wechselwirkung eine von der Polarisierbarkeit abhängige Rolle spielt[34] und dadurch der effektive Stoßquerschnitt vergrößert bzw. die Beweglichkeit verkleinert wird.

Nun zur Überprüfung der obigen Annahme $\bar{v} < \bar{v}_{th}$: die auf der mittleren freien Weglänge gewonnene Energie ist $\triangle W = \bar{l}EQ$. Bei den durchgeführten Messungen wurde $\triangle W$ maximal bei $p = 6\, mbar$ und $E = \frac{100\, V}{6\, cm}$ in reinem Neon. Mit $Q = e$ erhält man $\triangle W = 38\, meV$, sodaß man tatsächlich im Bereich der thermischen Energie ist und für diesen Extremfall weitere Korrekturen nötig wären. Denn für wachsende $\bar{v}$ nähert sich $\bar{l}$ dem Wert $\frac{1}{n\sigma}$, sodaß die Beweglichkeit zunimmt.

### 2.3.2 Grenzen für die Gültigkeit der Theorie

In diesem Abschnitt soll aufgezeigt, zwischen welchen Grenzen die übliche Theorie der Beweglichkeit, wie sie im obigen Beispiel (Abschnitt 2.3.2) angewandt wurde, gültig ist, um Kriterien für die Anwendung auf die Experimente zu haben. Dabei halte ich mich zum Teil an die Abhandlung von Przibram[35], ohne dies jeweils ausdrücklich anzugeben.

[30] vgl. S. 179 in C. Gerthsen, H.O. Kneser, H. Vogel: "Physik", Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg--New York, 14. Auflage, 1982

[31] "Periodensystem der Elemente", VCH-Verlagsgesellschaft, Weinheim, 1985

[32] A.M. Tyndall, C.F. Powell: Proceedings of the Royal Society of London **A136**, 145 (1932)

[33] G.R. Akridge et al.: The Journal of Chemical Physics **62**, 4578 (1975)

[34] R.J. Munson, K. Hoselitz: Proceedings of the Royal Society of London **A172**, 43 (1939)

[35] vgl. S. 343 ff in K. Przibram: in "Handbuch der Physik" (Hrsg.: H. Geiger, K. Scheel), Bd. XXII, Teil I, Kap. 4, Verlag von Julius Springer, Berlin, 1933

#### 2.3.2.1 Abhängigkeit der Ionenbeweglichkeit vom Druck

Nach Gleichung 2.1 sollte die Beweglichkeit in einem großen Druckbereich umgekehrt proportional zum Druck sein. Bei hohen Drücken bis über 10 *bar* (je nach Gassorte und Reinheit noch bei erheblich höheren Drücken) ist dies in der Tat gut erfüllt. Bei kleinen Drücken (wieder abhängig von der Gassorte) unter ungefähr 10 *mbar* bei einem elektrischen Feld von 100 $\frac{V}{cm}$ wächst bei sinkendem Druck die Beweglichkeit zunächst an (vgl. Abschnitt 2.3.1) und sinkt dann wieder[36].

#### 2.3.2.2 Abhängigkeit der Ionenbeweglichkeit von der Temperatur

Przibram berichtet von einigen seltsamen, sich zum Teil widersprechenden Messungen, ohne eine Erklärung anzugeben. Sicher spielt bei der Temperaturabhängigkeit die Bildung bzw. das Auflösen von Clustern eine Rolle, die von der Theorie nicht berücksichtigt wird. Es zeigte sich nämlich, daß sich, abgesehen von Verunreinigungen, die in Abschnitt 2.3.4 behandelt werden, bei bestimmten Gasen und Temperaturen, z.B. in Xenon bei Zimmertemperatur[37], Cluster aus einem Ion und Gasatomen bilden.

#### 2.3.2.3 Abhängigkeit der Ionenbeweglichkeit von der Feldstärke

Prinzipiell sollte eine Erhöhung der Feldstärke die gleichen Konsequenzen wie eine Druckabsenkung haben, da eine Änderung der Beweglichkeit dann eintritt, wenn das Produkt aus der mittleren freien Weglänge und dem elektrischen Feld groß wird. Dies wurde bisher nicht widerlegt, wobei aber zu beachten ist, daß bei hohen Feldstärken Messungen durch Überschläge erschwert werden können.

### 2.3.3 Die Ionenbeweglichkeit in Gasgemischen

Betrachtet werden Ionen einer Sorte, die sich in einem Gemisch aus zwei Gasen bewegen. Solange keine Clustereffekte auftreten, gilt die Mischungsformel von Blanc[38]:

$$\frac{1}{\mu_{0_{ges}}} = \frac{c_1}{\mu_{0_1}} + \frac{c_2}{\mu_{0_2}} \tag{2.2}$$

Dabei sind die $c_i$ die beiden relativen Gaskonzentrationen ($c_1 + c_2 = 1$) und $\mu = \mu_0/p$, d.h. $\mu_0$ ist die Beweglichkeit, aus der die Druckabhängigkeit eliminiert wurde. Mit Hilfe der Partialdrücke $P_i = c_i P_{ges}$ ergibt sich:

$$\frac{P_{ges}}{\mu_{0_{ges}}} = \frac{P_1}{\mu_{0_1}} + \frac{P_2}{\mu_{0_2}} \tag{2.3}$$

Ausführlichere Theorien ergeben weitere Formeln für die Beweglichkeit in Gasgemischen, die allesamt Korrekturen der Blanc'schen Formel sind[39], und sich vorallem in der Berücksichtigung der Massen der verschiedenen Gasatome und des Ions und in der Mittelwertbildung unterscheiden.

[36] G.R. Akridge et al.: The Journal of Chemical Physics **62**, 4578 (1975)
[37] R.J. Munson, K. Hoselitz: Proceedings of the Royal Society of London **A172**, 43 (1939)
[38] A. Blanc: Bull. Soc. Franc. de phys. 1908, S.156
[39] vgl. S. 396 ff in K. Przibram: in "Handbuch der Physik" (Hrsg.: H. Geiger, K. Scheel), Bd. XXII, Teil I, Kap. 4, Verlag von Julius Springer, Berlin, 1933

### 2.3.4 Der Einfluß von Verunreinigungen auf die Ionenbeweglichkeit

Größere Verunreinigungen, z.B. Staub, vermindern die Beweglichkeit der Ionen verständlicherweise sehr stark. Diese "langsamen Ionen" wurden erstmals von Langevin[40] nachgewiesen und Pollock[41] hat ihre Bedeutung in der Luft bei verschiedenem Feuchtigkeitsgrad untersucht. Hier sollen sie aber nicht weiter betrachtet werden, da sie bei den durchgeführten Experimenten wohl keine Rolle spielten.

Vielmehr soll etwas genauer auf das Problem der Verunreinigung mit Spuren von Wasserdampf eingegangen werden.

#### 2.3.4.1 Wasserdampf in Edelgasen

Schon Tyndall, Grindley und Sheppard[42] stellten ein "Altern der Ionen", d.h. eine Abnahme der Beweglichkeit in den ersten Millisekunden nach ihrer Entstehung fest und führten es auf die Anlagerung anderer Moleküle, insbesondere Wassermoleküle, zurück, da sie eine Abhängigkeit von der Wasserdampfkonzentration beobachteten. Dies wurde später von Munson und Tyndall[43] genauer untersucht, und sie fanden, daß schon kleinste Mengen von Wasserdampf ausreichen, Cluster aus dem Ion und Wassermolekülen zu bilden. Interessant dabei ist, daß sie glaubten, nur zwei Gruppen von Ionen zu finden: solche, die frei sind und solche, die eine feste Anzahl von Molekülen an sich gebunden haben. So konnten sie für verschiedene Bedingungen jeweils den Anteil C der Clusterionen an der Gesamtzahl der Ionen angeben und fanden, daß C mit zunehmender Wasserkonzentration wächst (vgl. Abbildung 2.5).

Überraschender ist, daß C mit wachsender Feldstärke abnimmt. Die Erklärung hierfür liegt aber in der Meßmethode und zeigt deutlich die Zeitabhängigkeit des Effekts. Je größer nämlich die Feldstärke war, desto schneller bewegten sich die Ionen durch die Driftstrecke und desto weniger Zeit hatten sie dann zur Bildung von Clustern. Beachtenswert ist vorallem die ermittelte Abhängigkeit des Clusteranteils vom Gesamtdruck, vgl. Abbildung 2.6.

Man erkennt, daß bei konstantem Wasserpartialdruck die Kurven $C(E/p^2)$ für verschiedene Drücke identisch sind, was die Autoren mit der folgenden Hypothese erklärten: Demnach ist der schwierigste Schritt die Bildung eines Clusters aus einem Ion und einem Molekül, da die Bindungsenergie für dieses System so groß ist, daß sie nicht von internen Freiheitsgraden des Clusters, d.h. Rotations- oder Schwingungsanregungen, aufgenommen werden kann, sondern durch einen dritten Stoßpartner abgeführt werden muß. Die Wahrscheinlichkeit für solche 3-Teilchen-Prozesse wächst in der Tat mit $p^2$. Ist solch ein Dimer erst einmal gebildet, geht die Anlagerung der restlichen Moleküle sehr schnell, da dann die zusätzliche Bindungsenergie in die inneren Freiheitsgrade des Clusters gehen kann ohne daß sich das Cluster auflöst. Anschließend kann diese Energie verhältnismäßig langsam durch Stöße an das Gas abgegeben werden. Das Endstadium des Clusterwachstums ist erreicht, wenn die Bindungsenergie bei Anlagerung eines weiteren Moleküls kleiner als die thermische Energie wird. (De facto ergibt sich durch den Boltzmannfaktor natürlich eine Verteilung um diese Clustergröße.) Dies ist vorallem dann gegeben, wenn aufgrund der

[40] P. Langevin: C.R. **140**, 232 (1905)

[41] J.A. Pollock: Nature **95**, 286 (1915)

[42] A.M. Tyndall, G.C. Grindly, P.A. Sheppard: Proceedings of the Royal Society of London **A110**, 358 (1926) und A121, 185 (1928)

[43] R.J. Munson, A.M. Tyndall: Proceedings of the Royal Society of London **A172**, 28 (1939)

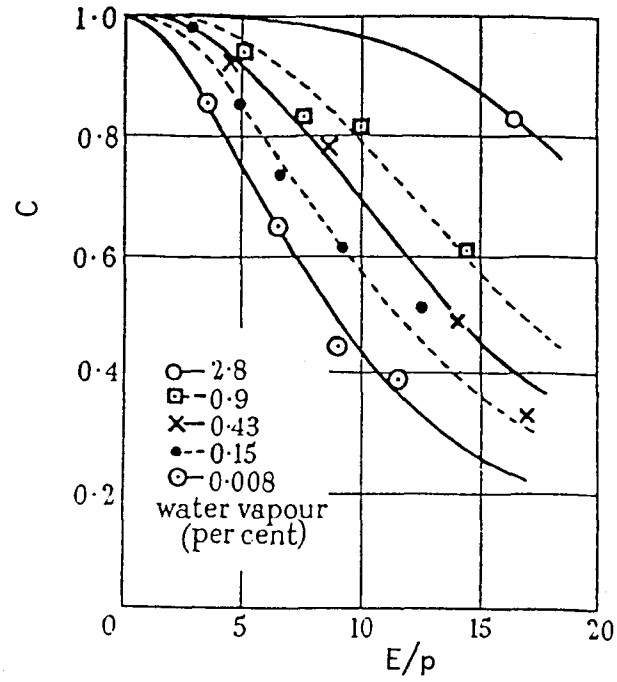



Abbildung 2.5: Anteil C der Clusterionen für verschiedene Wasserpartialdrücke
C in Abhängigkeit vom elektrischen Feld pro Druckeinheit für verschiedene Wasserkonzentrationen für die Bewegung von $Li^+$-Ionen in Argon bei konstantem Druck.

geometrischen Konstellation gerade eine Kugelschale mit Molekülen voll ist und das nächste Molekül in einer neuen Schale angelagert werden müßte, wie es z.B. von Recknagel[44] et al. zuerst in der 'free jet expansion' mit Xenon nachgewiesen wurde.

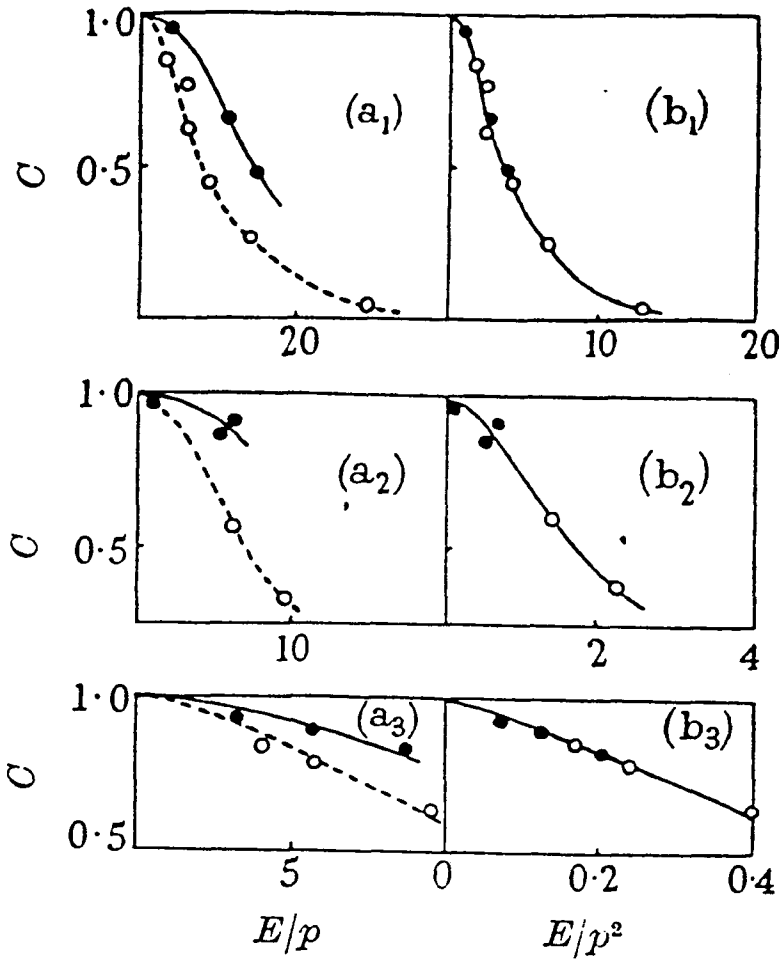
Speziell für die Alkali-Ionen $Li^+$, $Na^+$ und $K^+$ in den Edelgasen Argon, Krypton und Xenon geben Munson und Tyndall an, daß die Cluster jeweils aus einem Ion und 6 Wassermolekülen beständen und interpretieren dies damit, daß die erste Schale des Clusters eben aus sechs Wassermolekülen besteht. Für die Bewegung der Alkali-Ionen in Neon, dem für diese Arbeit wichtigsten Fall, versagt die für die obigen Fälle angewendete Methode, sodaß man aus den angegebenen Daten nur den Schluß ziehen kann, daß auch hier Clusterbildung auftritt, wobei es den Anschein hat, daß eher mehr als sechs Wassermoleküle auf den Ionen clustern.

Prüft man Munsons Methode kritisch, so gibt es zwei Probleme:

1. Einerseits ist die Interpolationsmethode zweifelhaft: Munson fand für reines Argon, Krypton und Xenon, daß für die Beweglichkeit der Alkaliionen gilt: $\mu \sim \frac{1}{\sqrt{M}}$, ($M$=Ionenmasse). Diese Beziehung verwendet er anschließend, um die Masse der Cluster aus deren Beweglichkeit zu bestimmen. Damit behandelt er die Cluster so wie einzelne Ionen, was meineserachtens nicht geeignet ist, um quantitative Aussagen zu machen, weil die vielen Freiheitsgrade im Cluster bei den Stößen nicht berücksichtigt werden. Bei Neon konnte er $\mu \sim \frac{1}{\sqrt{M}}$ nicht mehr einmal für die Alkaliionen nachweisen und verzichtete deswegen auf eine genauere Analyse.

2. Andererseits schreibt Munson in einem Artikel[45], den er zum selben Zeitpunkt ein-

[44] O. Echt, K. Sattler, E. Recknagel: Physical Review Letters 47, 1121 (1981)
[45] R.J. Munson, K. Hoselitz: Proceedings of the Royal Society of London A172, 43 (1939)




$a_1 b_1$, $Li^+$ in He; $p'(H_2O) = 1{\cdot}2 \times 10^{-4}$ mm.; $p$, ○ = 2·27, ● = 3·94 mm.
$a_2 b_2$, $K^+$ in A; $p'(H_2O) = 2 \times 10^{-2}$ mm.; $p$, ○ = 4·30, ● = 9·03 mm.
$a_3 b_3$, $Na^+$ in A; $p'(H_2O) = 2{\cdot}6 \times 10^{-2}$ mm.; $p$, ○ = 2·38, ● = 4·26 mm.

Abbildung 2.6: Vergleich von $C(\frac{E}{p})$ mit $C(\frac{E}{p^2})$

Anteil C der Clusterionen in Abhängigkeit von E/p (a) bzw. $E/p^2$ (b) für $Li^+$-Ionen in He (1), $K^+$-Ionen in Ar (2) und $Na^+$-Ionen in Ar (3) bei jeweils zwei verschiedenen Gesamtdrücken p, aber gleichem Wasserpartialdruck $p'$.

gereicht hat, wie den hier diskutierten, daß in einigen Fällen wegen der hohen Polarisierbarkeit schwere Edelgasatome auf kleinen Alkaliionen schon bei Zimmertemperatur clustern können (vgl. Abschnitt 2.3.2.2), berücksichtigt dies aber in keiner Weise bei der Berechnung der Clustergröße.

Unbestritten bleibt aber, daß selbst kleine Beimengungen von Wasserdampf die Beweglichkeit ganz erheblich senken können.

#### 2.3.4.2 Reiner Wasserdampf

Ende der 60er-Jahre wurden dann von Kebarle[46] mit neueren Methoden Untersuchungen in derselben Richtung durchgeführt[47]. Er ermittelte mit einem Massenspektrometer die Verteilung der Ionen-Clustergrößen in reinem Wasserdampf (im Gegensatz zu Munson, der immer Wasserdampf in Edelgasen hatte) bei verschiedenen Drücken und Temperaturen für verschiedene Ionen, insbesondere auch für die Alkaliionen $Li^+$, $Na^+$, $K^+$, $Rb^+$ und $Cs^+$. Aufgrund seiner Methode bestimmte er immer die Gleichgewichtsverteilung und konnte daraus die Gleichgewichtskonstanten $K_{n-1,n}$ für die Anlagerung des $n$-ten Moleküls an ein Cluster mit $n-1$ Molekülen bestimmen:

$$M^+(H_2O)_{n-1} + H_2O \rightleftharpoons M^+(H_2O)_n$$

Er sah, daß diese Gleichgewichtskonstanten unabhängig vom Druck waren und die Temperaturabhängigkeit die übliche für chemische Reaktionen war. Damit konnte er die Enthalpien und freien Energien für diese Reaktionen berechnen (Seine Daten reichen nur bis $n=6$.), vgl. Abbildung 2.7. Man sieht deutlich, daß die frei werdende Energie bei der Bildung der Cluster umso größer ist, je kleiner die Ionen sind. Dies gilt auch noch für die Nicht-Alkaliionen $H^+$ und $Pb^+$. Dies hat zur Folge, daß die Zahl der Wassermoleküle pro Cluster umso größer sein sollte, je kleiner das Ion ist, was im Widerspruch zu Munsons Beobachtungen steht, daß die Cluster bei $Li^+$, $Na^+$ und $K^+$ alle gleich groß sind.

Interessant ist auch die monotone Abnahme des Betrages der freien Energien $|\Delta G_{n-1,n}|$ mit n, die irgendwelchen bevorzugten Clustergrößen, d.h. magischen Zahlen, eindeutig widerspricht. Die niedrigste magische Zahl, für Cluster aus einem Ion und n Wassermolekülen wird heute mit $n=21$ angegeben[48].

Mit den so bestimmten Enthalpien war er nun in der Lage, für jede Temperatur und jeden Druck innerhalb der durch seine Messungen abgesteckten Grenzen die Verteilung der Cluster zu berechnen. Ein Beispiel für $Na^+$-Ionen bei $T=300K$ zeigt Abbildung 2.8. Um diese Daten mit denen von Munson vergleichen zu können, muß man sich noch überlegen, welchen Effekt die bei Munson zusätzlich vorhandenen Edelgasatome spielen können. Zunächst helfen sie, wie in Abschnitt 2.3.4.1 erklärt, das Anfangscluster $M^+(H_2O)_1$ zu bilden. Für die weiteren Anlagerungsreaktionen sind sie jedoch nicht mehr notwendig, sodaß sie die Größe der Cluster nicht beeinflussen sollten, wenn sie sich im thermischen Gleichgewicht befinden. Allerdings ist nicht auszuschließen, daß die Cluster durch Stöße mit Edelgasatomen auch zerstört werden können, da die Bindungsenergie ja im Bereich der thermischen Energie ist. Dies hätte eine Verschiebung der Clusterverteilung hin zu kleineren Clustern zur Folge, wo dann für die verschiedenen Größen von Clustern die

[46] I. Dzidic, P. Kebarle: The Journal of Chemical Physics 74, 1466 (1970)
[47] vgl. S. 315 in J.L. Franklin (Hrsg.): "Ion-Molecule Reactions", Plenum Press, New York, 1972
[48] R.J. Beuhler, L. Friedmann: The Journal of Chemical Physics 77, 2549 (1982)

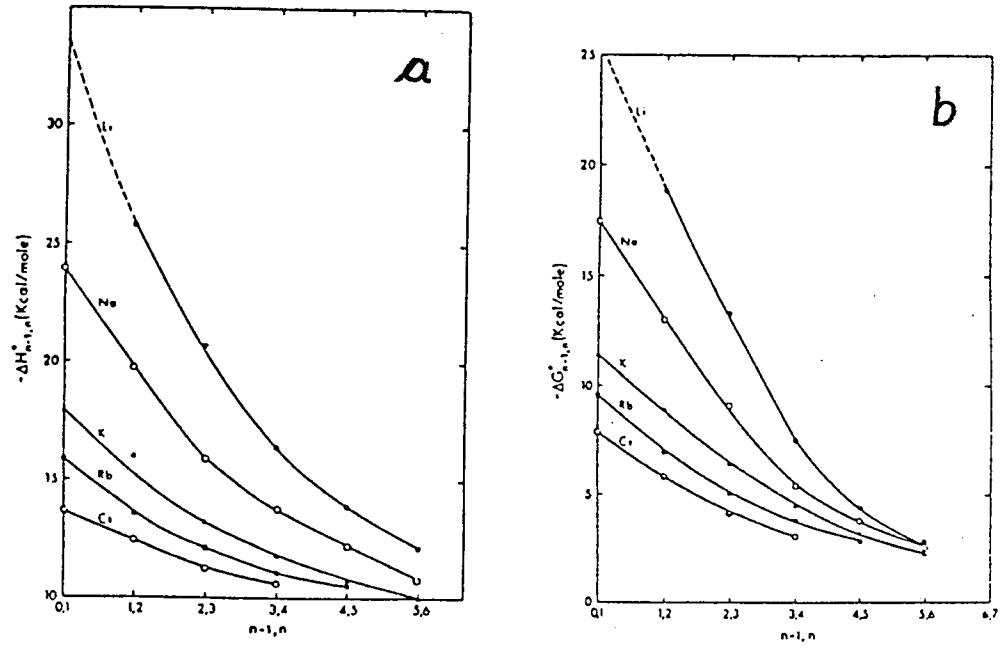



Abbildung 2.7: Enthalpien und freie Energien für Clusterreaktionen mit Wassermolekülen
Enthalpien (a) und freie Energien (b) für die Reaktionen

$$M^+(H_2O)_{n-1} + H_2O \rightleftharpoons M^+(H_2O)_n,$$

wobei $M^+$ die verschiedenen Alkaliionen sind.

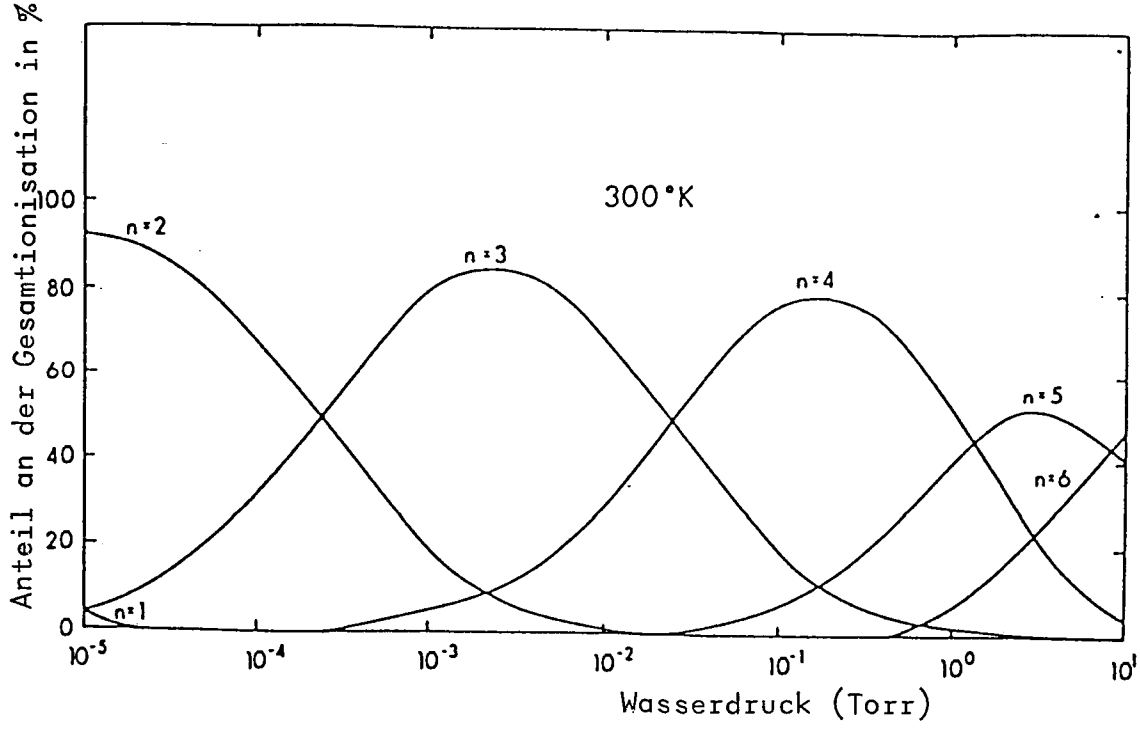



Abbildung 2.8: Relative Anteile der Clustergrößen in Abhängigkeit vom Wasserdampfdruck für $Na^+(H_2O)_n$-Cluster bei $T = 300K$

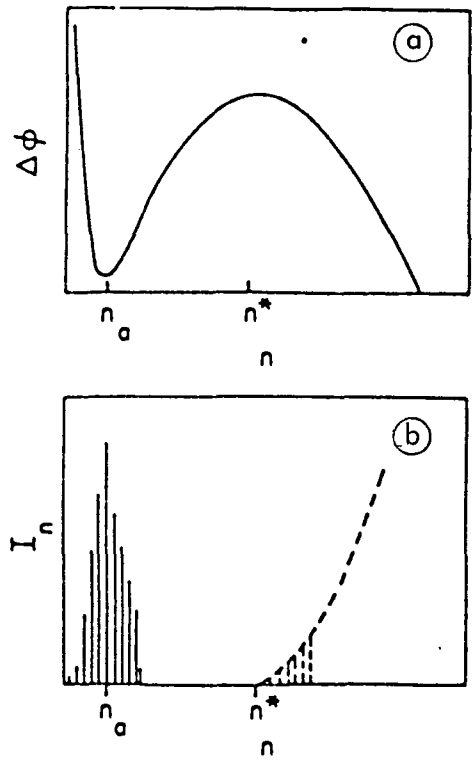



Abbildung 2.9: Freie Energie (a) und relative Häufigkeit (b) in Abhängigkeit von der Clustergröße

Bildungsrate durch Stöße mit Wassermolekülen und die Zerstörungsrate durch Stöße mit Edelgasatomen gleich wären.

Aufgrund Munsons Beobachtung von nur zwei verschiedenen Beweglichkeiten, die des isolierten Ions und die von Clustern mit sechs Wassermolekülen, nahm er an, daß tatsächlich annähernd thermisches Gleichgewicht für die Cluster gegeben war. Damit scheint es mir durchaus erlaubt zu sein, die Daten für gleiche Temperatur und gleichen Wasserpartialdruck zumindest qualitativ zu vergleichen. Leider ist dies aber nicht möglich, da Munson den Wasserpartialdruck und die Temperatur für die entsprechenden Messungen nicht angibt. Allerdings schreibt er zuvor, daß die Größe der Cluster unabhängig vom Wasserpartialdruck ist, was den Daten von Kebarle widerspricht. Betrachtet man Abbildung 2.8, so sieht man, daß für einen gegebenen Wasserdampfdruck typischerweise zwei bis drei benachbarte Clustergrößen auftreten. Dies scheint auch das zu sein, was Munson gemessen hat. Entgegen seiner Annahme konnte er die wenig verschiedenen Beweglichkeiten dieser Cluster nur nicht auflösen.

### 2.3.5 Tröpfchenbildung

Bisher hatten wir es nur mit sehr kleinen Clustern, d.h. Microclustern, zu tun. Es stellt sich die Frage, unter welchen Bedingungen aus diesen größere Cluster bzw. Tröpfchen wachsen können. Qualitativ gibt Castleman[49] mit Abbildung 2.9a die Antwort darauf. Man sieht, daß die freie Energie für kleine Cluster ein Minimum bei $n_a$ hat. Dies ergibt die bisher behandelten Microcluster-Verteilungen, wie sie auch in Abbildung 2.9b dargestellt

[49]A.W. Castleman Jr., I.N. Tang: The Journal of Chemical Physics 57, 3629 (1972)

ist. Man sieht aber auch, daß die freie Energie für ein $n^*$ maximal wird und dann monoton fällt, sodaß alle Cluster, die $n^*$ erreichen, zu Tröpfchen weiterwachsen. Dieses Wachstum hört erst dann auf, wenn die Tröpfchen z.B. wegen einer gerichteten Bewegung den Rand des Systems erreichen, oder wenn durch das Wachstum vieler Tröpfchen der Druck des Wasserdampfes sinkt, da sich dann die Kurve für die freie Energie soweit verschiebt, bis sich ein neues Gleichgewicht einstellt.

Wann aber erreicht eine nennenswerte Anzahl von Microclustern die Größe $n^*$, d.h. wann gibt es Tröpfchenbildung? Van de Waal gibt für die kritische Größe des Clusters einige Moleküldurchmesser an, was aus der Gibbs-Volmer-Theorie für Keimbildung und Wachstum folgt[50]. Schließt man die Möglichkeit der Anlagerung auf verhältnismäßig großen Verunreinigungspartikeln, z.B. Staub, aus, so bleibt nur noch die Möglichkeit, daß sich die mittlere Größe $n_a$ der Microcluster dem $n^*$ soweit nähert, daß zumindest ein kleiner Teil der Microcluster die Größe $n^*$ erreicht.

Die mittlere Clustergröße wächst einerseits mit wachsendem Wasserdampfdruck (vgl. Abschnitt 2.3.4.2), andererseits aber auch sehr stark mit sinkender Temperatur. Dies ist deutlich in Abbildung 2.10 zu sehen, in der für zwei verschiedene Temperaturen die Clusterverteilungen dargestellt sind[51]. Die beiden Möglichkeiten laufen aber genau gegeneinander, d.h. sinkt die Temperatur, sinkt auch der Dampfdruck. Dadurch ist in Gleichgewichtssystemen Tröpfchenbildung auf Ionen nicht möglich. Diese tritt erst auf, wenn man das Gleichgewicht verläßt und ein System mit übersättigtem Gas erzeugt. Praktisch erreicht man Übersättigung meist durch adiabatische Expansion, wie in der Wilson-Nebelkammer. Eine andere Möglichkeit, die Diffusions-Nebelkammer, wird in Abschnitt 3.2.2 besprochen.

[50] B.W. van de Waal: The Journal of Chemical Physics 79, 3948 (1983)

[51] R. Kebarle et al.: Journal of the American Chemical Society 89, 6393 (1967)

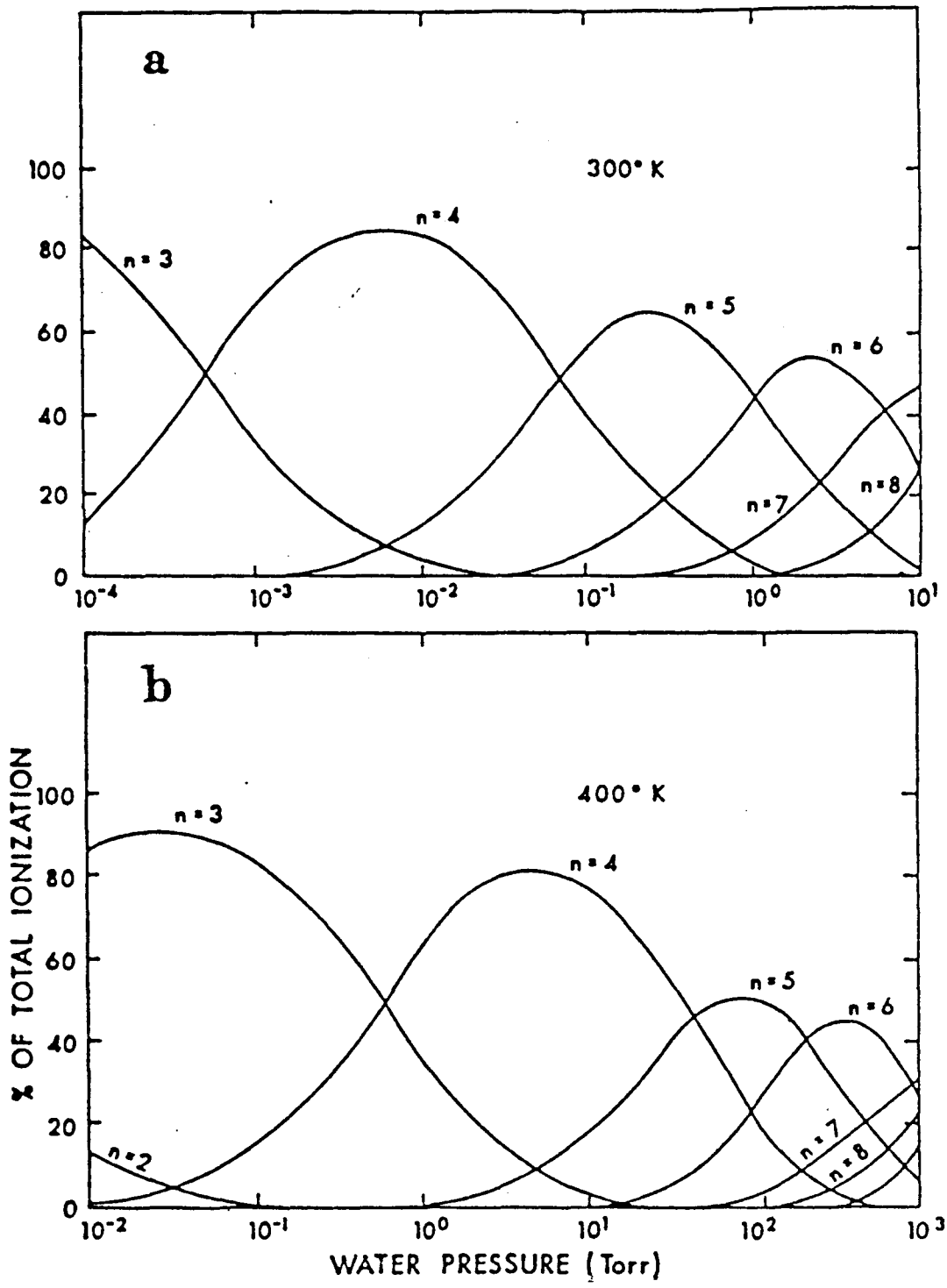



Abbildung 2.10: Gleichgewichtsverteilungen von $H^+(H_2O)_n$-Clustern bei zwei verschiedenen Temperaturen in Abhängigkeit vom Druck.
Beachten Sie die verschiedenen Größenordnungen der Druck-Skala!

# Kapitel 3

# Überprüfung der Tracermethode an einfachen Beispielen

## 3.1 Experimenteller Aufbau

### 3.1.1 Die Bestrahlungskammer

Um die $^{24m}Na$-Ionen aus dem $\beta^-$-Zerfall des $^{24}Ne$ zu erhalten, wurde dieses am Zyklotron über die Reaktion $^{22}Ne(t,p)^{24}Ne$ erzeugt. Dazu wurde ein Hochdruck-Gastarget direkt am Austritt des Strahls aus dem Zyklotron verwendet (vgl. Abbildung 3.1). Vorgegeben war das Strahlprofil am Austrittsflansch (1) durch die Tantalblenden (2). Die Breite des Strahls war $80\,mm$ und die Höhe $7\,mm$. Dieses Strahlprofil ist bedingt durch die elektrostatische Strahlextraktion und durch Randfelder des Hauptmagneten. Für die Bestrahlung eines Gastargets mit dem für die Experimente benötigten Volumen von mindestens $200\,cm^3$ ist ein so großflächiger Strahlfleck sehr gut geeignet, da dadurch die Folie (5) des Austrittsfensters vor lokalen Überhitzungen gut geschützt ist. Es wurde eine Molybdän-Folie der Dicke $5\,\mu m$ verwendet, die zur Abdichtung gegenüber dem Zyklotronvakuum mit einem Kupferrahmen (6) auf eine Indiumschicht (4) im Fensterflansch (3) gepreßt wurde. Diese vollkommen metallische Abdichtung garantiert einen guten Wärmekontakt der Folie zum wassergekühlten Fensterflansch.

Die Strahlaufweitung wurde aus den Spuren an einer für Argon-Bestrahlungen[1] verwendeten Kammer ermittelt. $200\,mm$ hinter dem Fenster hatte der Strahl eine Breite von ca. $100\,mm$ und eine Höhe von ca. $20\,mm$. Die Länge der Kammer war durch den zur Verfügung stehenden Platz am Zyklotron auf $200\,mm$ beschränkt, sodaß die Energie der Tritonen nur teilweise ausgenutzt werden konnte. Denn die Reichweite der Tritonen in einem Neon-Gastarget bei Atmosphärendruck berechnet sich unter Beachtung der Umrechnungsrelation der Reichweiten von Protonen[2] auf Tritonen

$$R_t(E) = 3R_p(\frac{1}{3}E)$$

zu $390\,mm$. Nach $200\,mm$ haben die Tritonen immer noch eine kinetische Energie von $4.1\,MeV$. Dabei wurde berücksichtigt, daß die Tritonenenergie beim Durchgang durch das Fenster von 7.2 auf $6.8\,MeV$ sinkt. Somit treffen die Tritonen aufgrund der geringen Targetdicke den Tantalstopper (13) mit relativ hoher Energie, sodaß wegen der

[1] vgl. S. 8ff in H. Muthig: "Herstellung von Radioisotopen mit dem Tritonenstrahl für neuartige Anwendungen: $^{42}Ar$-Nuklidgenerator und $^{63}Ni$-Mössbaueffekt", Dissertation an der TUM, 1984

[2] L.C. Northcliff, R.F. Schilling: Nucl. Data Tabl. A7, 255 (1970)

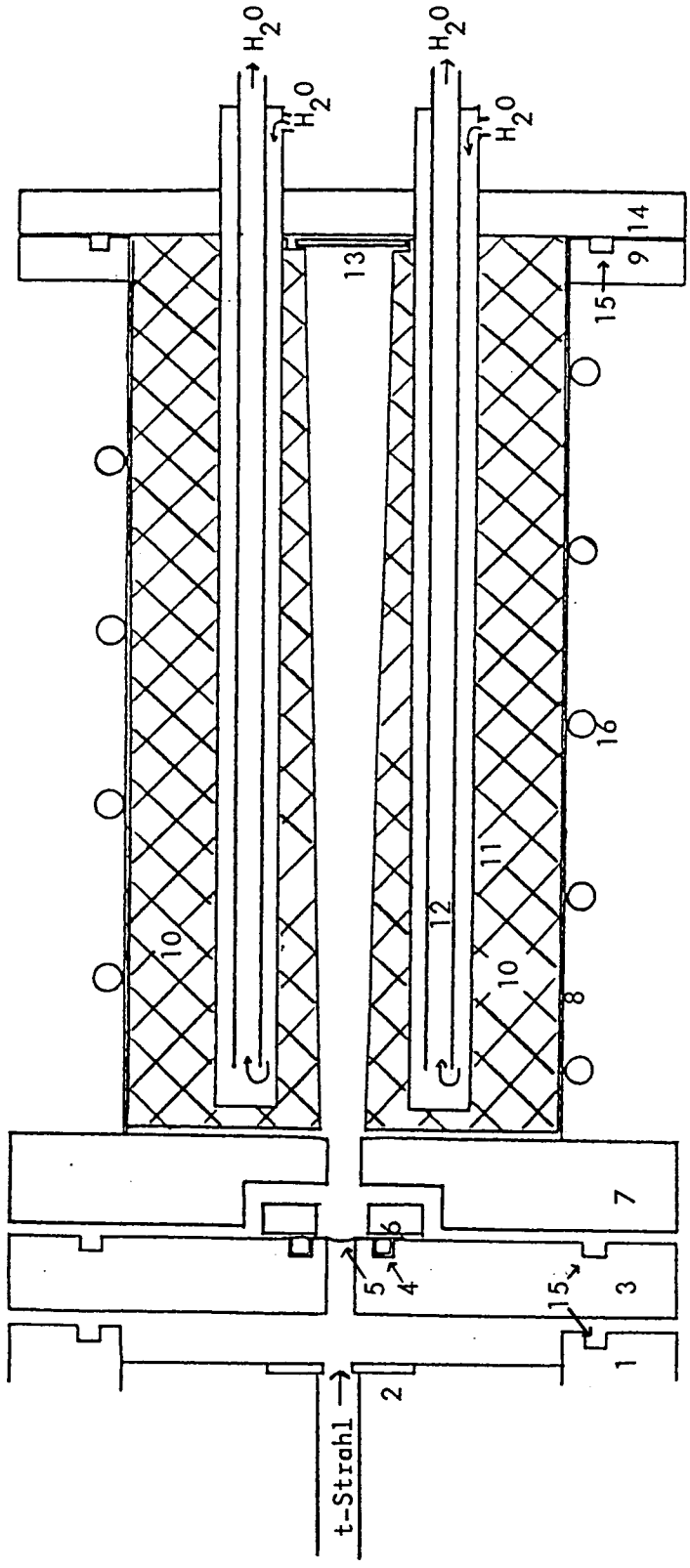



Abbildung 3.1: Schematischer Schnitt durch die vertikale Mittelebene der Bestrahlungskammer

größeren Reichweite im Tantal die Rückdiffusion des Tritiums und damit die Kontamination des Neons mit Tritium verringert wird. Dazu kommt noch, daß der Wirkungsquerschnitt für die gewünschte Reaktion unterhalb der Coulombschwelle von $2.42\,MeV$ (vgl. Abschnitt 2.1) rasch absinkt. Wegen des Strahlprofils wurde als Außenwand (8) ein Messingrohr mit $100\,mm$ Innendurchmesser verwendet. An beide Enden des Rohres wurden Flansche (7,9) gelötet. Um eine möglichst große Aktivität pro Volumeneinheit zu erhalten, wurde das ganze Volumen der Kammer, das nicht vom Strahl getroffen wird, mit zwei Dural-Körpern (10) ausgefüllt. Durch den Endflansch (14) wurden zwei Paare koaxialer Messingrohre (11,12) gesteckt und am Flansch festgelötet. Darauf wurden die Dural-Körper mit entsprechenden Bohrungen fixiert. Zusätzlich dienten die Rohre zur Kühlung mit Wasser.

Die Stelle des Endflansches, auf die der Strahl auftrifft, wurde mit einem $2\,mm$ starken Tantalblech (13) verkleidet, da Tantal durch $4.2MeV$-Tritonen nicht aktiviert wird. Um die Erzeugung langlebiger Aktivitäten zu vermeiden, wurde darauf geachtet, daß der Strahl außer Tantal und Aluminium kein Material trifft. In Aluminium erzeugen die beschleunigten Tritonen nur Minuten-Aktivitäten.

Die Abdichtung der Flansche erfolgte mit Viton-O-Ringen (15) und zur zusätzlichen Kühlung wurde auf die Außenwand eine Kühlschlange (16) gelötet. Der Auslaßstutzen für das Gas befindet sich in der horizontalen Mittelebene und ist deswegen in Abbildung 3.1 nicht zu sehen.

### 3.1.2 Die Meßkammer

Abbildung 3.2 zeigt eine schematische Zeichnung der für die in Kapitel 3 geschilderten Messungen benutzten Kammer. Bis auf den Gaseinlaßstutzen und die elektrische Verdrahtung ist die Kammer axialsymmetrisch. Die beiden Endflansche und das Mittelstück bestehen aus Dural, die beiden Zwischenflansche aus PVC, und die Abdichtung geschieht mit Viton-O-Ringen. Die Spannungsverteilung ist eingezeichnet. Um das elektrische Feld gut zu definieren, wurde das Mittelstück auf mittleres Potential gelegt. Anfangs wurden, wie gezeichnet, zur Messung zwei Ge(Li)-Detektoren verwendet. Da dies aber nicht zu mehr Information führte, konnte später auf den zweiten Detektor verzichtet werden.

### 3.1.3 Das Gashandlingsystem

Zur Messung mußte das bestrahlte Gas von der Bestrahlungskammer in die Meßkammer gebracht werden. Um ein Entweichen des radioaktiven Gases aus dem Gassystem und Verunreinigungen mit anderen Gasen zu vermeiden, mußte das System (vgl. Abbildung 3.3) hermetisch abgedichtet werden. Dazu wurde das ganze System in Swage-lock-Technik mit Weichkupferrohren ($6\times1\,mm$) und die Anschlüsse an die beiden Kammern in Klammerflanschtechnik gebaut. Da die Bestrahlungskammer am Zyklotron montiert und die Meßapparatur in der durch eine $1\,m$ dicke Betonwand abgeschirmten Experimentierhalle aufgebaut war, wurde für dieses $12\,m$ lange Stück ein nur $3\times0.5\,mm$ starkes Weichkupferrohr verwendet, um nicht zuviel Totvolumen im Gashandlingsystem zu haben.

Die Ventile waren händisch zu bedienende Kugelhahnventile außer V6, das federbalggedichtet und über ein elektrisch bedienbares Preßluftventil ferngesteuert war, V11, das nur bei zu großer Druckdifferenz ($> 1\,bar$) zwischen Eingang und Ausgang öffnete und zum Schutz der Pumpe bei Fehlbedienung diente, und dem Nadelventil V10, das zusammen

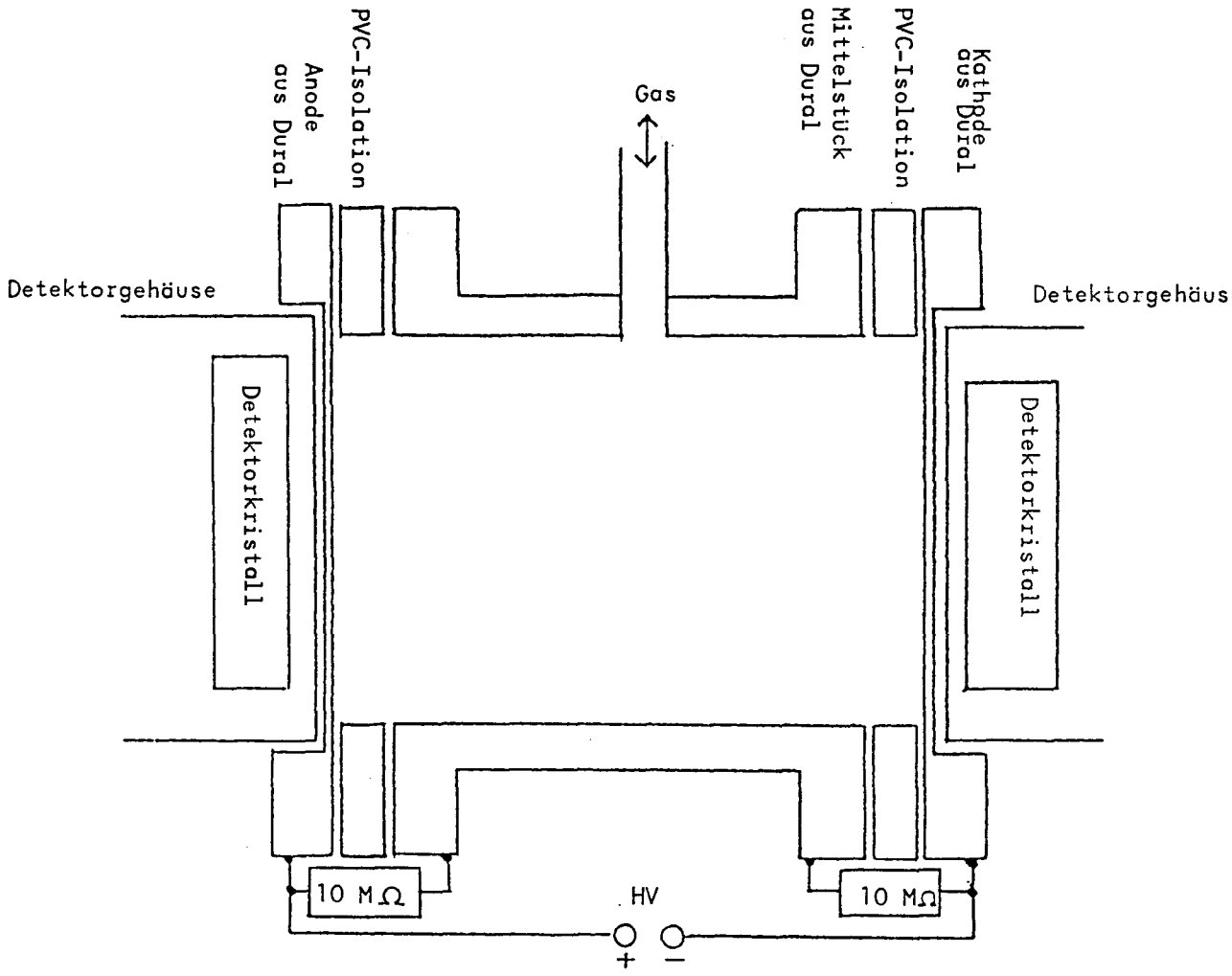



Abbildung 3.2: Schematischer Schnitt durch die vertikale Mittelebene der Meßkammer

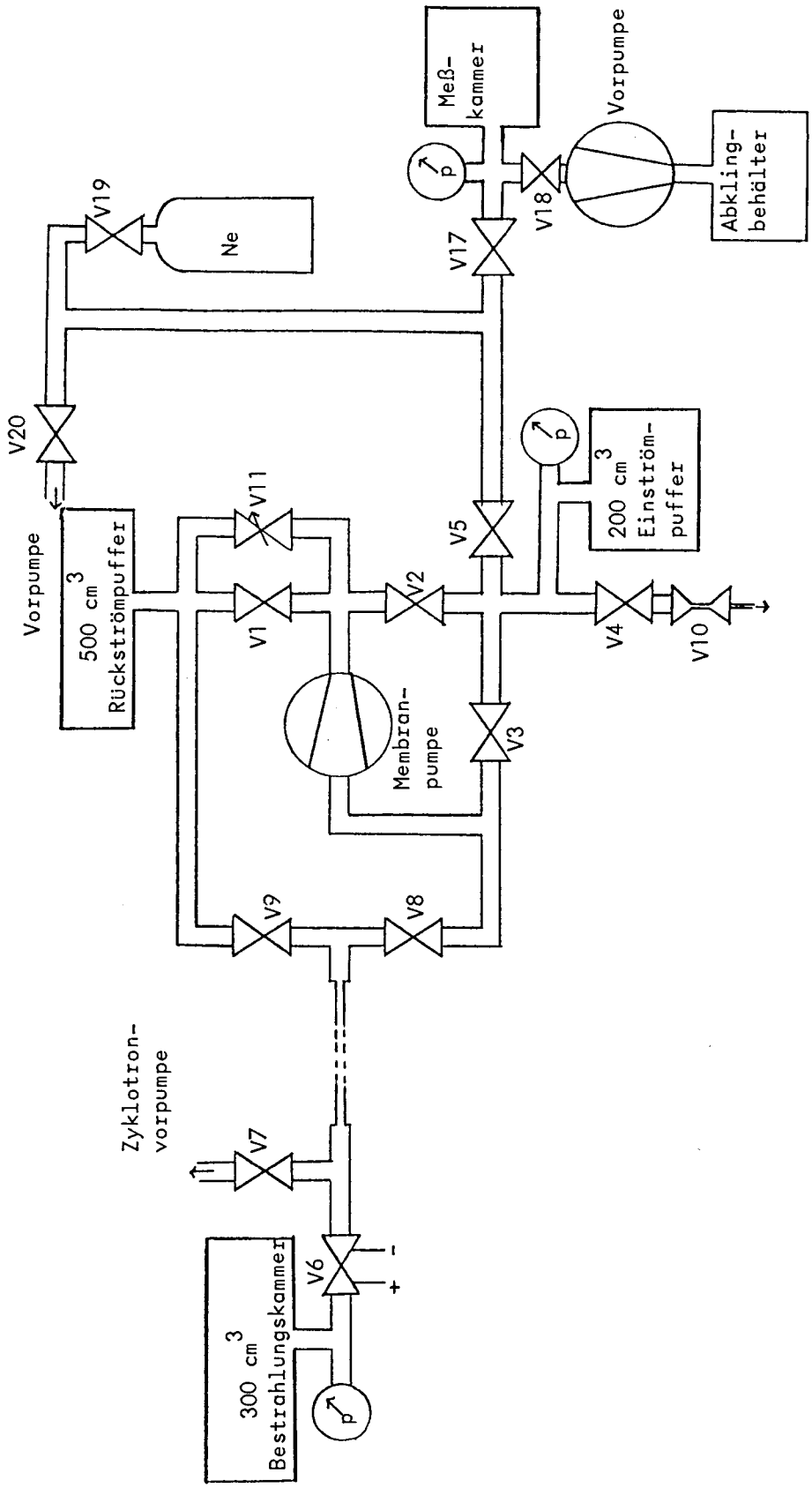



Abbildung 3.3: Schematische Skizze des Gashandlingsystems

mit V4 für die Experimente des Kapitels 4 benutzt wurde, um das bestrahlte Gas fein dosiert in die Diffusionsnebelkammer einzulassen.

Den Rückströmpuffer benötigte man, um während der Bestrahlung bei geschlossenem V6 die Leitungen und den Einströmpuffer vom unbestrahlten Gas zu befreien, damit zur Messung nur das bestrahlte Gas in die Meßkammer gelangte. Nach dem Evakuieren der Leitungen wurde V6 geöffnet und ein Teil des bestrahlten Gases in den Einströmpuffer gepumpt, dieser dann geschlossen und über V5 in die gewünschte Gasmenge die Meßkammer eingelassen. Nach der Messung wurden je nach den bei der Messung verwendeten Gasen diese ins Gassystem zurückgepumpt oder in einen für radioaktive Abfall vorgesehenen Behälter gepumpt. Bei Bedarf konnte über V5 neues Neon nachgefüllt oder das Gassystem über V5 und V7 evakuiert werden.
Als Pumpe wurde eine zweistufige Membranpumpe und zur Druckmessung an den eingezeichneten Stellen Druckmeßumformer mit piezoresistiven Sensoren verwendet.

## 3.2 Experimente

### 3.2.1 Das Neon nach der Bestrahlung

Bevor Neon ins Gassystem eingefüllt wurde, wurde das ganze System längere Zeit evakuiert. Nach dem Einfüllen des Neons ins Gassystem mit der natürlichen Isotopenverteilung (90.5% $^{20}Ne$ , 0.3% $^{21}Ne$ , 9.2% $^{22}Ne$ ) wurde es mit dem Tritonenstrahl beschossen, in die Meßkammer gepumpt und dann das Spektrum von Abbildung 3.4 gemessen. Es folgt nun eine kurze Diskussion der Bestrahlungsprodukte:

1. Wie erwartet trat die Reaktion $^{22}Ne$ (t,p)$^{24}Ne$ auf. Die für den Zerfall des $^{24}Ne$ typischen Linien bei 874 $keV$ und 472 $keV$ sind deutlich zu sehen. Der Unterschied vom gemessenen Verhältnis $R$=23.8 der Peakflächen bei 472 $keV$ und 874 $keV$ zum Verhältnis $R_0 = 12.5$ der tatsächlich emittierten $\gamma$-Quanten kommt allein von der unterschiedlichen Nachweiswahrscheinlichkeit im Detektor.

2. Die 1369 $keV$-Linie vom Zerfall des $^{24}Na$ reichert sich wegen der Halbwertszeit von $15h$ im Laufe der Messungen so stark an, daß der von dieser Linie herrührende Comptonuntergrund den statistischen Fehler beim 874 $keV$-Peak erheblich vergrößerte.

3. Zu Beginn der Messung sehr stark, aber dann abnehmend im Vergleich zu der 472 $keV$- ist die 439 $keV$-Linie vom $\beta^-$-Zerfall des $^{23}Ne$ , das über $^{22}Ne$ (t,d)$^{23}Ne$ erzeugt wird und eine Halbwertszeit von 38 $sec$ hat.

4. Die 511 $keV$-Linie kommt von einigen $\beta^+$-instabilen Isotopen, vorallem $^{21}Na$, das aus $^{20}Ne$ über eine $(t, 2n)$ gebildet wird.

5. Die einzige Linie, die bei der Messung des Spektrums der aus der Meßkammer kommenden $\gamma$-Strahlung nach drei Wochen Bestrahlungspause noch gefunden wurde, war die 1275 $keV$-Linie des $^{22}Na$ aus $^{20}Ne$ (t,n)$^{22}Na(\beta^+,\ 2.62\ y)^{22}Ne$ . Dies ist ein eindeutiger Beleg dafür, daß Natrium in Form entweder neutraler Atome oder positiver Ionen mit dem Neon-Gas von der Bestrahlungskammer in die Meßkammer gelangt ist (ebenso wie das $^{21}Na$), was nicht unbedingt zu erwarten war, da Natrium-Atome sehr stark an Oberflächen adsorbiert werden. Der Transport ging jedoch so

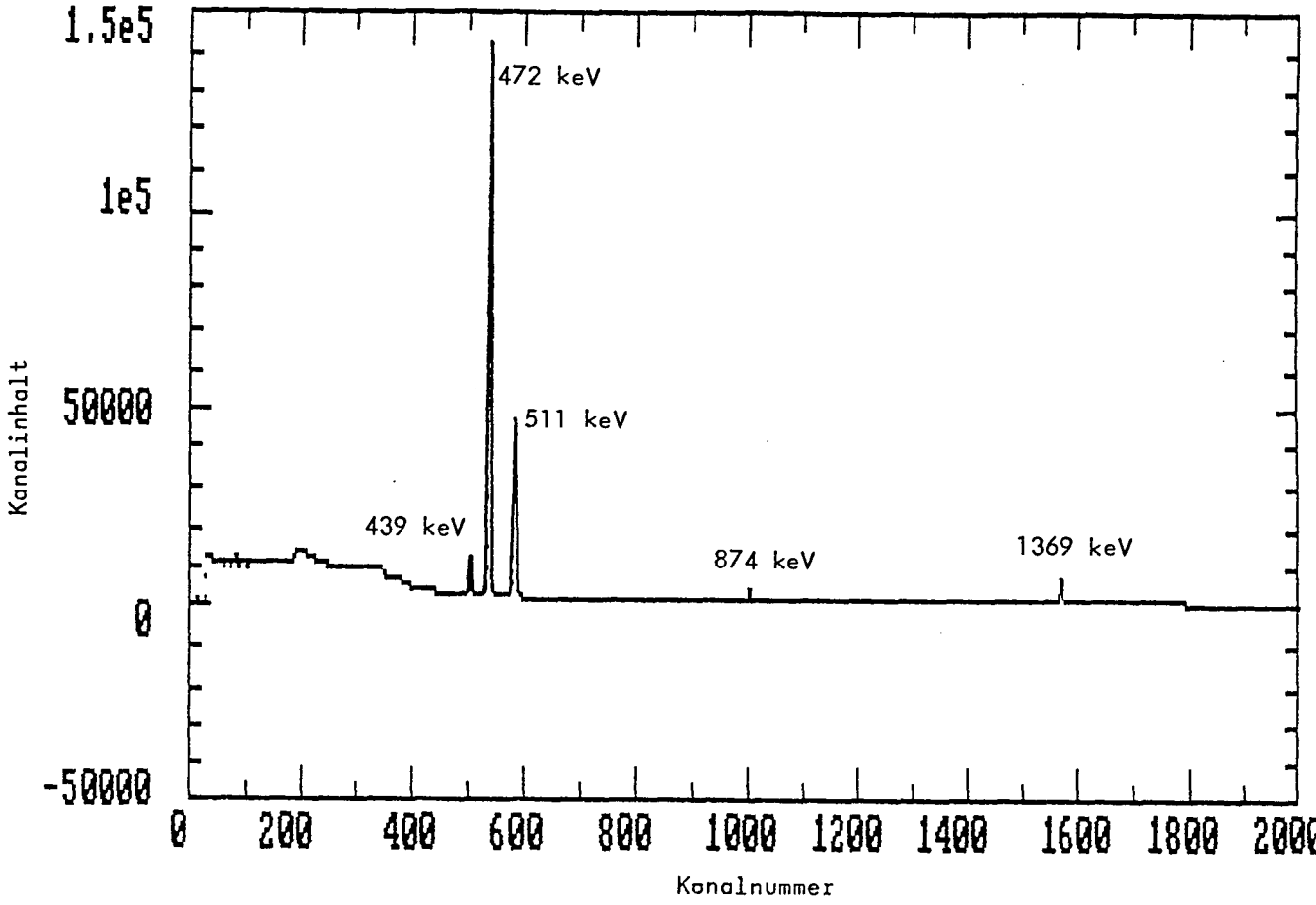



Abbildung 3.4: $\gamma$-Spektrum des bestrahlten und in die Meßkammer gepumpten Gases

rasch vor sich (ca. 3 sec), daß nicht alle Natrium-Atome zu einer Oberfläche kamen, und so teilweise im Gas mittransportiert wurden.

### 3.2.2 Messungen mit Neon natürlicher Isotopenzusammensetzung

Um die Bewegung der Ionen nachzuweisen, wurde bei verschiedenen Spannungen und Drücken das Verhältnis $R = \frac{Peakfläche(472\,keV)}{Peakfläche(874\,keV)}$ gemessen. Die Daten wurden mit einem PC aufgenommen und anschließend die Peakflächen berechnet. Dazu wurden zur Untergrundbestimmung rechts und links vom Peak je zehn Kanäle addiert, und dann der Untergrund von der gesamten Fläche unterm Peak abgezogen. Hierzu wurde dann der statistische Fehler berechnet:
Sei $P_0$ die Fläche unterm Peak, U der Untergrund unterm Peak und P die wirkliche Peakfläche, d.h. :

$$P = P_0 - U$$

Für den Fehler gilt:

$$\triangle P = \sqrt{\triangle P_0^2 + \triangle U^2}$$

Mit den statistischen Fehlern $\triangle P_0 = \sqrt{P_0}$ und $\triangle U = \sqrt{U}$:

$$\triangle P = \sqrt{P_0 + U} = \sqrt{P + 2U}$$

Seien nun $R = \frac{P_1}{P_2}$ und $P_1$ bzw. $P_2$ die wirklichen Peakflächen bei $472\,keV$ bzw. $874\,keV$, so folgt:

$$\triangle R = \sqrt{\left(\frac{\triangle P_1}{P_1}\right)^2 + \left(\frac{\triangle P_2}{P_2}\right)^2} = \sqrt{\frac{P_1 + 2U_1}{P_1^2} + \frac{P_2 + 2U_2}{P_2^2}} \tag{3.1}$$

Dies bedeutet, daß der Fehler, der durch den Untergrund zusätzlich dazukommt, schneller ansteigt als der Untergrund selbst. Der größte Fehler bei den Messungen kam von der $874\,keV$-Linie, da deren Peakfläche ca. zwanzigmal kleiner war als die der $472\,keV$-Linie. Das Ergebnis der Messungen mit natürlichem Neon zeigt Abbildung 3.5. Aufgetragen ist dabei das normierte Peakflächenverhältnis $R_n$ in Abhängigkeit vom Quotienten $\frac{E}{p}$ aus dem elektrischen Feld und dem Gasdruck. $R_n$ ist das tatsächlich gemessene Peakflächenverhältnis bei $\frac{E}{p}$ dividiert durch $R(0\,V)$, dem Peakflächenverhältnis ohne Spannung, sodaß $R_n = \frac{R(E/p)}{R(0V)}$. $U < 0$ bedeutet, daß sich die Ionen auf den Detektor zubewegen, also R wächst.

Die Spannungen wurden zwischen $-1000\,V$ und $+1000\,V$ und die Drücke von $250\,mbar$ bis $2000\,mbar$ variiert. Für diese Bereiche liegen die Punkte gut auf einer Kurve, was die theoretische Abhängigkeit $v_{Ion} \propto \frac{E}{p}$ (vgl. Abschnitt 2.3.1) bestätigt, da $R_n$ nur von der Driftgeschwindigkeit der Ionen abhängen sollte (vgl. nächster Abschnitt). Wie man sieht, werden die Fehler für kleine Drücke, d.h. hohe $\frac{E}{p}$ groß. Der Grund ist die abnehmende Zählrate, sodaß es keinen Sinn hatte, bei noch kleineren Drücken zu messen, da dann zu wenig Aktivität in der Meßkammer gewesen wäre. Klar erkennbar ist der Sättigungscharakter bei großem $|\frac{E}{p}|$. Er ist die Folge davon, daß sich die Ionen so schnell bewegen, daß sie schon vor dem Zerfall des metastabilen Zustands die Kathode erreichen und sich dann nicht mehr weiterbewegen können.

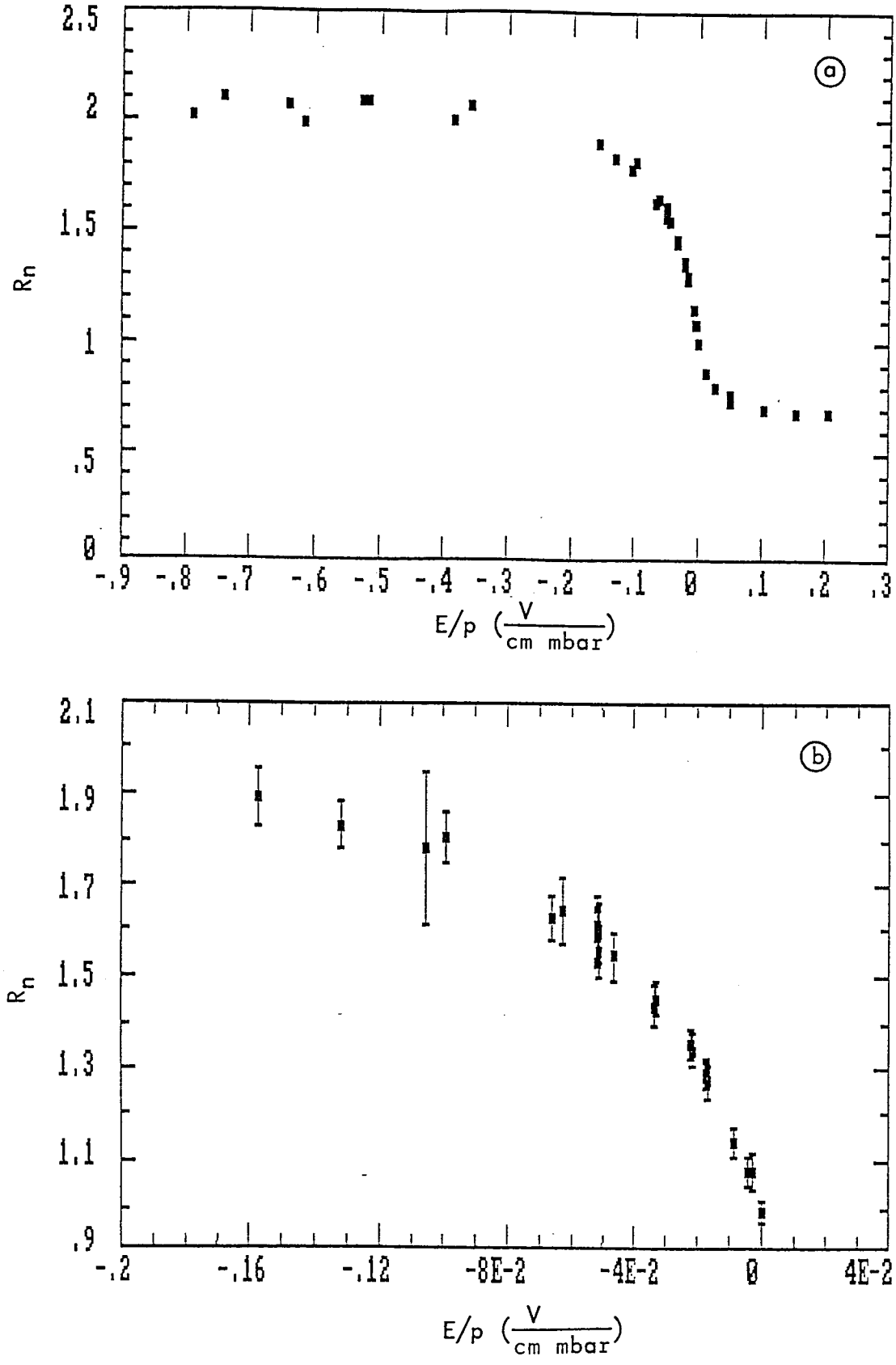



Abbildung 3.5: $R_n(\frac{E}{p})$ für Neon

Normiertes Zählratenverhältnis $R_n$ in Abhängigkeit vom Quotienten aus dem elektrischen Feld E und dem Druck p für zwei verschiedene Achsbereiche. Die Fehler in (b) sind 3-$\sigma$-Fehler.

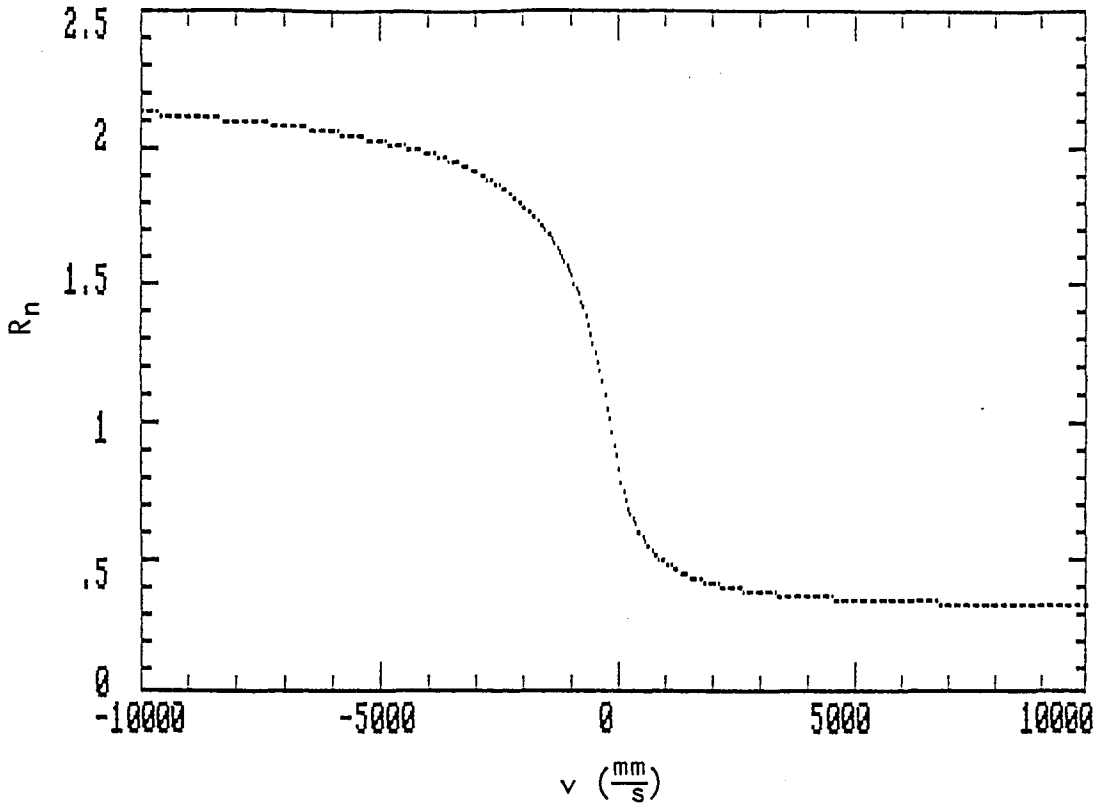



Abbildung 3.6: Simulationskurve für $R_n(\frac{E}{p})$

**Berechnete Kurve für die Änderung des Raumwinkelverhältnisses bei Ionen mit einer Geschwindigkeit $v$.**

### 3.2.3 PC-Programm zur Berechnung der Beweglichkeiten

#### 3.2.3.1 Berechnung der Raumwinkelverhältnisse in Abhängigkeit von der Geschwindigkeit

Kennt man die vollständige Geometrie der Meßkammer, des Detektors und des elektrischen Feldes, so kann man die Änderung des Zählratenverhältnisses berechnen, wenn man für die Ionen eine konstante Geschwindigkeit annimmt. Dabei wird die Diffusionsbewegung der Ionen vernachlässigt, die für größere Cluster von der Brownschen Bewegung[3] beschrieben wird. Obwohl das elektrische Feld der in Abschnitt 3.1.2 beschriebenen Meßkammer nicht homogen war, wurde für den Idealfall vollkommener Zylindersymmetrie unter der Annahme eines homogenen elektrischen Feldes in Achsrichtung und eines koaxialen ebenen Detektorkristalls die Abhängigkeit des Zählratenverhältnisses von der Ionengeschwindigkeit berechnet. Die Methode, nach der das PC-Programm arbeitet, ist im Anhang A beschrieben. Das Ergebnis zeigt Abbildung 3.6. Aufgetragen ist dabei das berechnete normierte Verhältnis $V_n$ des mittleren Gesamtraumwinkels mit Geschwindigkeit v zu dem bei $v = 0\,\frac{mm}{s}$. Negative Geschwindigkeit bedeutet, daß sich die Ionen auf den Detektor zubewegen. Die qualitative Übereinstimmung mit der gemessenen Kurve von Abbildung 3.5a ist offensichtlich.

[3] A. Einstein: Annalen der Physik 19, 371 (1906)

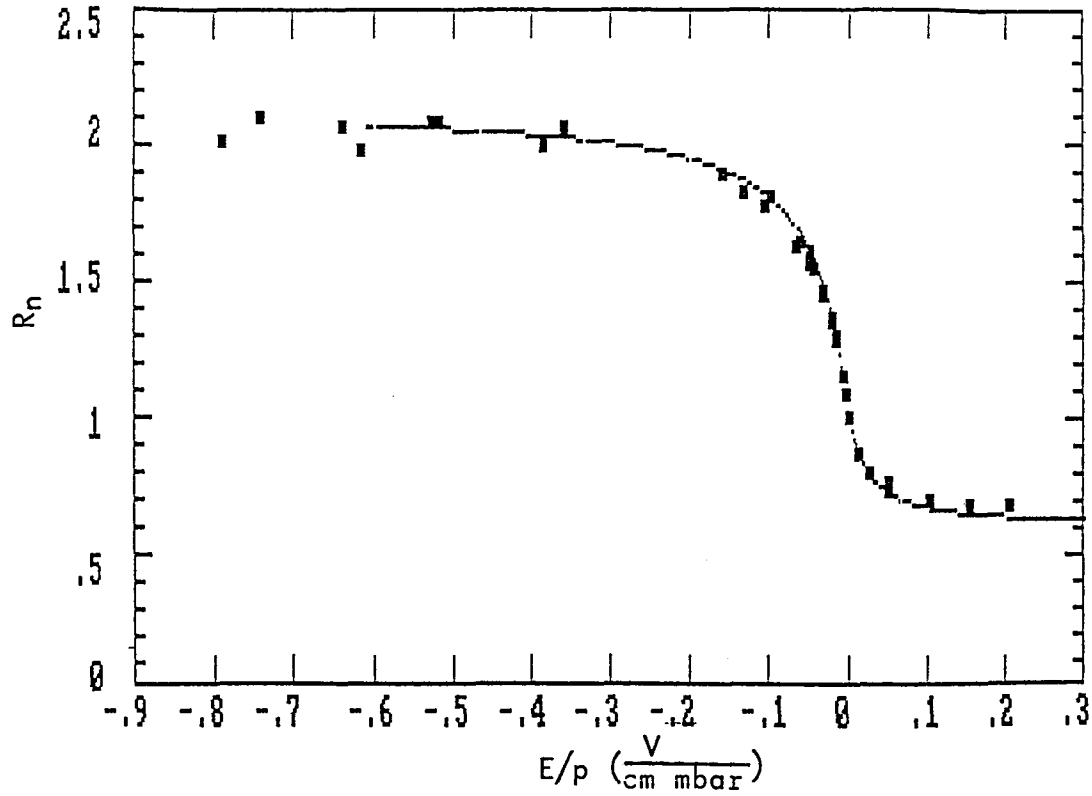



Abbildung 3.7: Vergleich der berechneten Fitkurve mit der experimentellen Kurve.

#### 3.2.3.2 Fit der berechneten Kurve an die experimentelle Kurve

Um die Kurven quantitativ aneinander anzupassen, wurde ein Fit-Programm geschrieben, bei dem zwei Parameter variiert werden können. Zum einen der Anteil U der vom elektrischen Feld nicht bewegten Ionen in Zuleitungen etc. an den Zählraten, und zum andern die von der Druckabhängigkeit befreite Beweglichkeit $\mu_0$ (vgl. 2.3.3) als Proportionalitätsfaktor zwischen den x-Achsen der beiden Darstellungen ($x = \frac{E}{p}$ bei der experimentellen und $x = v$ bei der berechneten). Wenn die Kurven übereinanderliegen erhält man $\mu_0 = v\frac{E}{p}$.

Das Fitprogramm bestimmt $\mu_0$ und $U$ derart, daß die Summe der quadratischen, mit dem inversen statistischen Fehler gewichteten Differenzen zwischen den gemessenen Punkten $R_n(\frac{E}{p})$ und den entsprechenden Punkten $V_n$ auf der berechneten Kurve minimiert wird. Abbildung 3.7 zeigt das Ergebnis des Fitprogramms, wenn zum Fit nur die experimentellen Punkte mit negativen Spannungen verwendet werden. Die Kurven stimmen für die negativen Spannungen ausgezeichnet überein und man erhält $U = 0.5481$ und $\mu = 1.865\ \frac{cm^2}{Vs}$ bei $p = 1013\,mbar$. Bei positiven Spannungen allerdings ist die Übereinstimmung nicht ganz so gut. Damit ergeben sich mehrere Probleme:

1. Der so ermittelte Anteil $U = 0.55$ von unbeweglichen Ionen ist mit Sicherheit viel höher als der tatsächliche Wert, der $U \leq 0.1$ sein dürfte.

2. Die Beweglichkeit ist sehr klein im Vergleich zum zunächst erwarteten Wert von ca. $8.5\ \frac{cm^2}{Vs}$ (vgl. 2.3.1).

3. Der Fit paßt nicht so gut für positive Spannungen

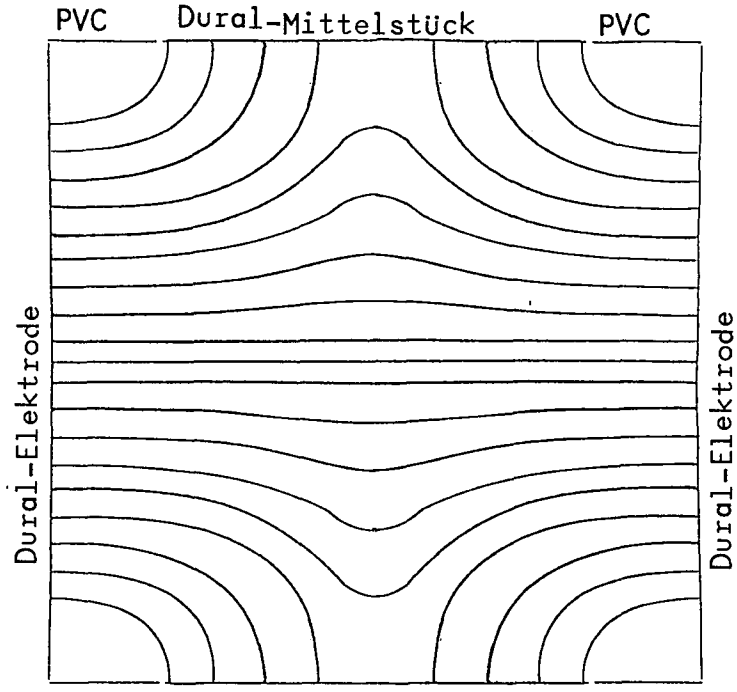



Abbildung 3.8: Schematische Skizze der elektrischen Feldlinien in der Meßkammer

Zur Lösung bieten sich folgende Ansätze an:

- Aufgrund des Baus der Kammer ist das elektrische Feld natürlich keineswegs homogen, wie bei der Berechnung von $V_n$ angenommen wurde. Qualitativ dürfte es eher so aussehen, wie es in Abbildung 3.8 gezeigt ist. Für den Fall negativen Potentials an der Elektrode beim Detektor wird nur die Bewegung der Ionen, die weit vom Detektor entfernt sind, durch Wanderung an die Wand gestoppt, da die gerichtete Bewegung der Ionen gut den Feldlinien folgt, weil sich wegen der zahlreichen Stöße erstens die ungerichtete thermische Bewegung herausmittelt, und zweitens die gerichtete Bewegung so oft gestoppt wird, daß diese wegen der Beschleunigung in Feldrichtung trotz der Trägheit der Ionen immer in Feldrichtung ist. Da die detektorfernen Ionen nur einen kleineren Beitrag zur Zählrate liefern als die Ionen nahe am Detektor ändert sich in diesem Fall durch die Inhomogenität des Feldes nicht so viel, aber die Zunahme der 472 $keV$-Linie ist etwas weniger stark als erwartet. Anders ist dies nach Umpolung der Spannung. Dann bewegen sich die detektornahen Ionen an die Wand und bleiben im vorderen Teil der Kammer hängen, wo der Raumwinkel für die emittierten 472 $keV$-$\gamma$-Quanten noch verhältnismäßig groß ist, sodaß die Abnahme der 472 $keV$-Zählrate erheblich kleiner als erwartet ist. Das letztere könnte die mangelnde Übereinstimmung bei positiven Geschwindigkeiten erklären, da die Abnahme des Zählratenverhältnisses kleiner als erwartet ist (vgl. Abbildung 3.7). Beide Fälle zusammen können den hohen Untergrundsbeitrag erklären, da dieser die Änderung der Raumwinkelverhältnisse verringert, d.h. die Ionen, die an die Wand wandern, wirken so, als wären sie unbeweglich und tragen somit zum Untergrund bei.

- Auch hat der Detektorkristall eine nicht vernachlässigbare Dicke. Wie aus Abbildung 3.9 hervorgeht, durchqueren die $\gamma$-Quanten den Kristall natürlich in verschiedenen Richtungen. Je größer der Winkel zur z-Achse wird, desto länger wird dabei

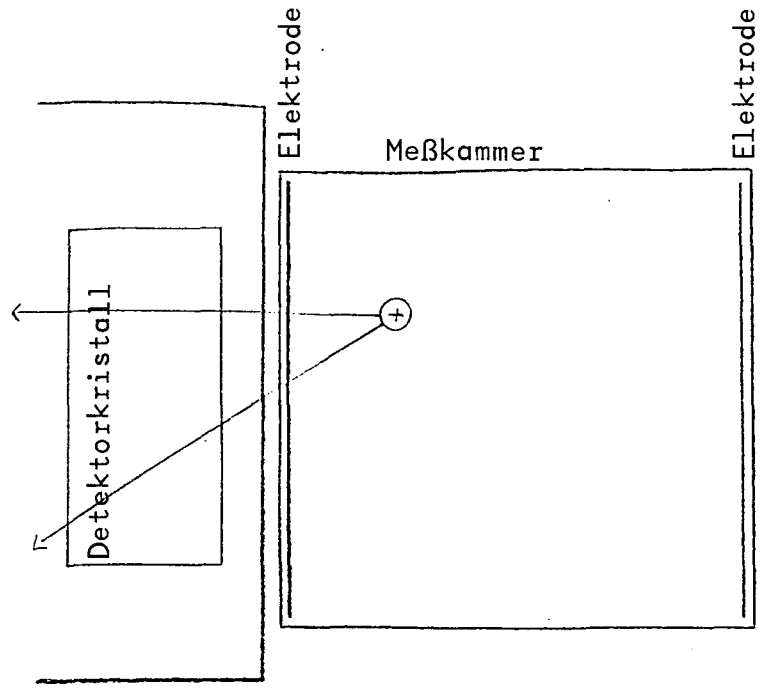



Abbildung 3.9: Skizze von Meßkammer und Detektor

**Zur Erklärung, daß die $\gamma$-Quanten unter verschiedenen Winkeln durch den Detektorkristall gehen.**

(bis auf Randeffekte) der im Kristall zurückgelegte Weg, d.h. desto größer wird die Nachweiswahrscheinlichkeit. Dies betrifft die Ionen, die sich nahe am Detektor befinden, natürlich viel stärker als die anderen. Dies wirkt sich so aus, daß die Zunahme der 472 $keV$-Zählrate bei negativen Spannungen erheblich größer und die Abnahme bei positiven Spannungen nur geringfügig größer als erwartet ist. Demnach ist auch dieser Effekt geeignet, die Abweichung der Fitkurve bei positiven Geschwindigkeiten zu erklären.

- Die in den beiden obigen Unterpunkten dargelegten Probleme vergrößern natürlich auch die Unsicherheit bei der Bestimmung der Beweglichkeit. Dies kann aber nicht soviel ausmachen, daß dadurch der Unterschied zum Wert von 8.5 $\frac{cm^2}{Vs}$ erklärt werden könnte. Vielmehr ist durch fehlendes Ausheizen wegen des Ausgasens der Wände sicher auch eine nicht unerhebliche Menge Wasserdampf ins Gassystem gelangt, was die Beweglichkeit durch Bildung von Wasserclustern mit den $Na^+$-Ionen erheblich senken kann (vgl. 2.3.4). Eine quantitative Analyse vorzunehmen erscheint mir allerdings als zu gewagt. Später wird das Problem der Verunreinigungen in den Abschnitten 3.2.5 und 3.2.6 nochmals aufgegriffen.

#### 3.2.3.3 Berechnung der Beweglichkeiten

Wie oben gezeigt, ist es möglich, für negative Spannungen an der detektornahen Elektrode die berechnete Kurve durch Variation der Beweglichkeit und des Anteils unbeweglicher Ionen an die experimentelle Kurve anzupassen. Aus dieser Anpassung erhält man eine glatte Kurve des normierten Zählratenverhältnisses $R_n$ in

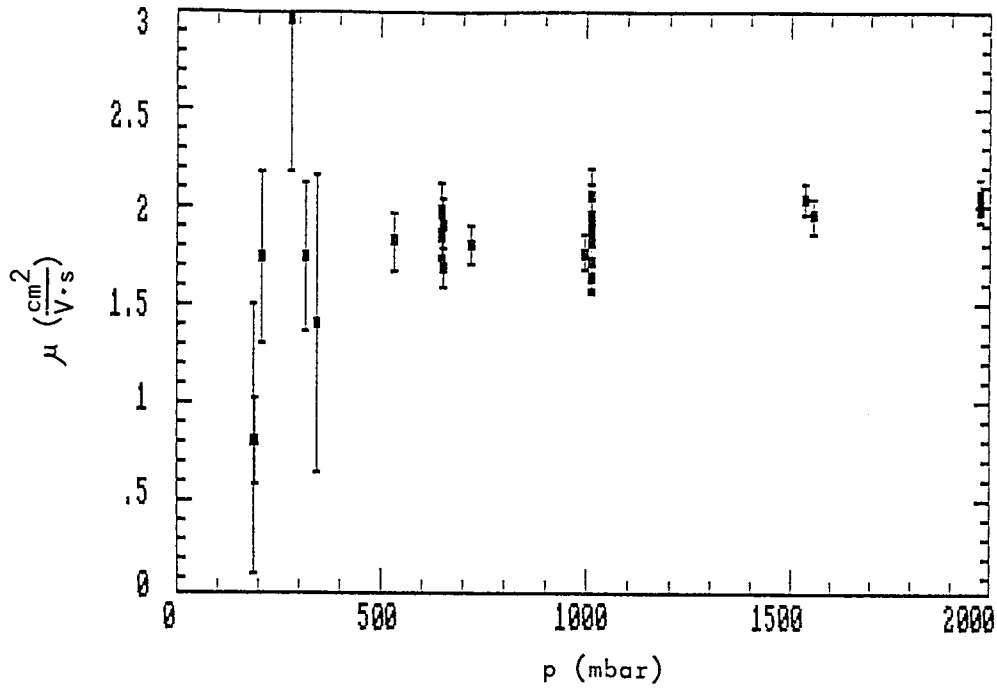



Abbildung 3.10: Beweglichkeit von $Na^+$-Ionen in Neon für verschiedene Drücke

**Mit dem Ergebnis des Fitprogramms berechnete Beweglichkeit für die einzelnen Meßpunkte in Abhängigkeit vom Druck bei der Messung mit 1-$\sigma$-Fehlern.**

Abhängigkeit von der Ionengeschwindigkeit $v$. Damit kann man die Umkehrkurve $v(R_n)$ berechnen. Aus dieser kann man für gemessene $R_n$ die Geschwindigkeit ablesen und somit die Beweglichkeit $\mu = \frac{v}{E}$ berechnen. Die Fehler für die so bestimmte Beweglichkeit wurden folgendermaßen berechnet:

Mit den 1-$\sigma$-Fehlern bei der Messung der Peakflächenverhältnisse (vgl. 3.2.2) wird $R_n + \triangle R_n$ und $R_n - \triangle R_n$ berechnet, dazu die Beweglichkeiten $\mu_o(R_n + \triangle R_n)$ und $\mu_u(R_n - \triangle R_n)$ und daraus der 1-$\sigma$-Fehler für $\mu$: $\triangle\mu = \frac{1}{2}(\mu_o - \mu_u)$. Diese Methode wurde zum Test auf die Messungen, mit denen die Fitkurve berechnet wurde, angewandt. Die so berechnete, auf $p = 1013\,mbar$ umgerechnete Beweglichkeit in Abhängigkeit von dem Druck, bei dem gemessen wurde, zeigt Abbildung 3.10. Man sieht, daß die Beweglichkeit für die verwendeten Drücke praktisch konstant ist. Hingewiesen sei noch auf ein Problem bei dieser Beweglichkeitsberechnung: Aufgrund der Fehler bei den experimentellen Peakflächenverhältnissen ist es möglich, daß die gemessenen $R_n$ größer werden als das Maximum bei der Fitkurve, das sich bei der Simulationsrechnung als Sättigungswert für den Fall sehr großer Geschwindigkeiten ergibt, d.h. wenn alle Natriumionen die Kathode erreichen. Dann kann kein Wert mehr für die Beweglichkeit berechnet werden. Dadurch gingen im Bereich kleiner Drücke, wo erstens $R_n$ groß, d.h. nahe am Maximalwert ist, und zweitens auch der relative Fehler wegen der kleinen Zählraten groß ist, einige Werte mit hohen Beweglichkeiten verloren, sodaß es in Abbildung 3.10 trotz der großen Fehler den Anschein hat, als sänke die auf konstanten Druck umgerechnete Beweglichkeit bei

kleinen Drücken ab.

### 3.2.4 Messung der Beweglichkeit in verschiedenen Gasgemischen

Wie in den Abschnitten 3.2.2 und 3.2.3 gezeigt, konnte die Beziehung $v_{Drift} \propto \frac{E}{p}$ bestätigt werden. Wenn auch die Bestimmung des absoluten Wertes der Beweglichkeit Schwierigkeiten bereitet, so sollten zumindest relative Beweglichkeiten halbwegs quantitativ zu bestimmen sein. Deshalb wurden mit verschiedenen Gasgemischen Versuche durchgeführt, um dies zu prüfen.

#### 3.2.4.1 Mischungen von Neon mit Wasserdampf und Methanol

Im Anschluß an die obigen Messungen wurde mit einer Mischung von 255 $mbar$ Methanol und 200 $mbar$ Neon bei einer konstanten Spannung $U = -200\,V$ gemessen. Dazu wurde etwas flüssiges Methanol in die Meßkammer gegeben, auf ungefähr $35°C$ geheizt und dann das bestrahlte Neon zugefügt. Bei den Messungen mit Wasserdampf wurde analog verfahren, aber nicht geheizt, sondern bei Zimmertemperatur, d.h. 21 $mbar$ Wasserpartialdruck, mit 630 $mbar$ Neon wieder bei $U = -200\,V$ gemessen.
Das Ergebnis zeigt Abbildung 3.11. Für das Verhältnis der Beweglichkeiten im Gasgemisch zu der bei reinem Neon erhält man:

1.

$$\frac{\mu_{0_{mit\ Wasser}}}{\mu_{0\ Neon}} = 1.04$$

Dieses Ergebnis überrascht. Zeigt es doch, daß sich im Rahmen der Fehler die Beweglichkeit durch die Beimischung von Wasserdampf nicht ändert. Dies kann nur so interpretiert werden, daß im "reinen" Neon schon soviel Wasserdampf ist, daß das Mehr an Wasserdampf nichts mehr ändert.

2.

$$\frac{\mu_{0_{mit\ Methanol}}}{\mu_{0\ Neon}} = 0.46$$

Wie erwartet sinkt mit Methanol die Beweglichkeit drastisch ab, aber nur so weit, wie durch die größere Molekülmasse ($M = 46\,amu$) und den größeren Moleküldurchmesser der Methanolmoleküle gegenüber den Neonatomen erklärt werden kann. Ein zusätzlicher Cluster-Effekt, nach dem im gesättigten Methanoldampf gesucht wurde, konnte nicht nachgewiesen werden (vgl. auch die Messungen mit Kohlendioxid). Aus dem Verhältnis 0.46 kann man mit Hilfe der Blanc'schen Formel (vgl. 2.3.3) das Verhältnis der Beweglichkeit von $Na^+$-Ionen in reinem Methanol zu dem in reinem Neon berechnen, da aus Gleichung 2.3 mit Neon statt Index 2 sofort folgt:

$$\frac{\mu_{0_1}}{\mu_{0_{Ne}}} = \frac{1}{\frac{\mu_{0\,Ne}}{\mu_{0\,ges}}\frac{P_{ges}}{P_1} - \frac{P_{Ne}}{P_1}} = 0.24 \tag{3.2}$$

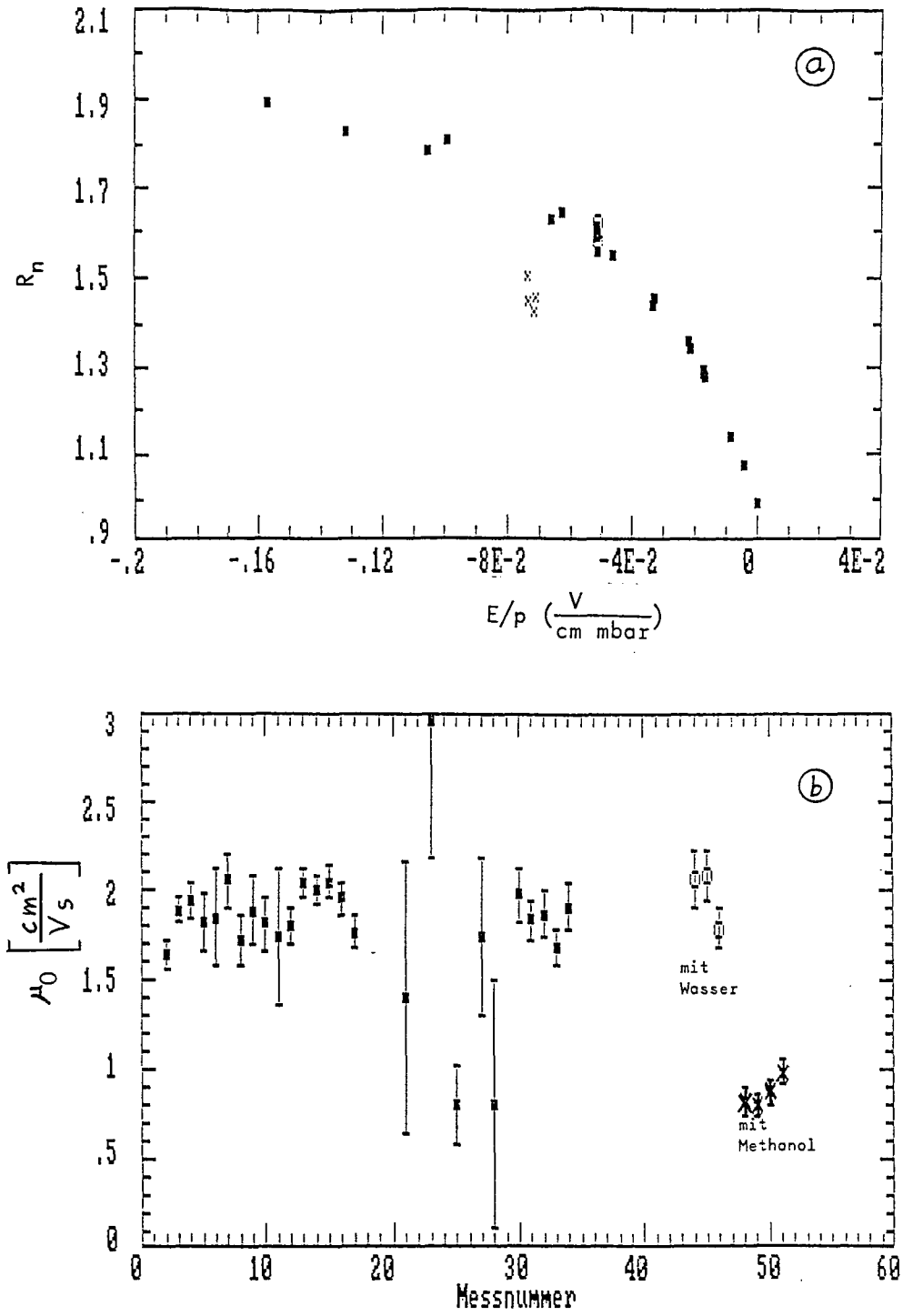



Abbildung 3.11: Peakflächenverhältnisse und Beweglichkeiten bei verschiedenen Gasgemischen

Ausgefüllte Rechtecke: 100% Neon (natürliche Isotopenzusammensetzung)

Nicht gefüllte Kreise: 630 *mbar* Neon mit 21 *mbar* Wasser

Kreuze: 200 mbar Neon mit 255 mbar Methanol

a: normiertes Peakflächenverhältnis in Abhängigkeit von $\frac{E}{p}$

b: mit der Fitkurve berechnete Beweglichkeiten mit 1-$\sigma$-Fehlern, geordnet in der Reihenfolge der Messung, um eine gruppenweise Ordnung zu erhalten. Die Neon-Punkte mit den großen Fehlern sind bei so niedrigem Druck gemessen, daß die kleine Zählrate den Fehler stark vergrößerte.

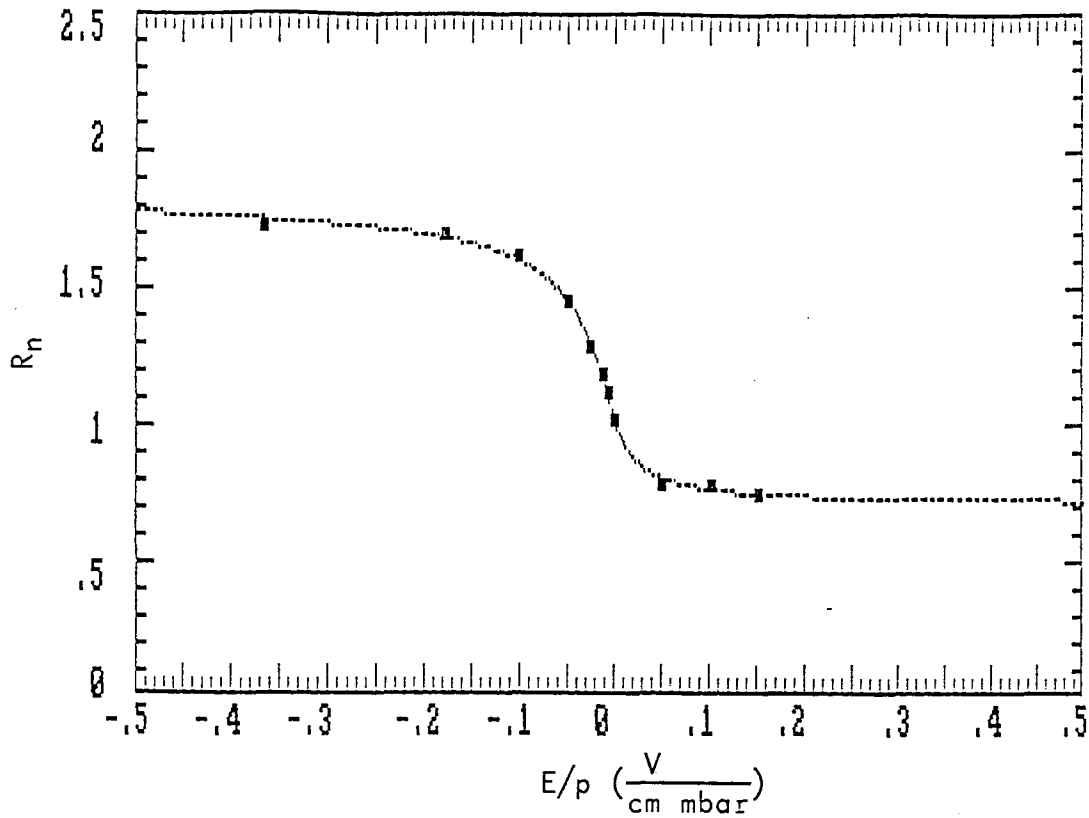



Abbildung 3.12: Eich- und Fitkurve mit Feldhomogenisierung bei reinem Neon
Aufgetragen ist das normierte Peakflächenverhältnis in Abhängigkeit von $\frac{E}{p}$

### 3.2.4.2 Mischungen von Neon mit Ar, He, $N_2$ und $CO_2$

Diese Messungen wurden in einer zweiten Strahlzeit durchgeführt. Am Aufbau änderte sich nur Eines: Um den Effekt der Feldinhomogenitäten zu testen, wurde für die Meßkammer ein Einsatz zur Feldhomogenisierung gebaut. Dieser bestand aus je acht Messing- und PVC-Ringen, die abwechselnd in eine PVC-Hülse hineingesteckt wurden, deren Außendurchmesser gerade in die Meßkammer paßte. Die Messingringe wurden dann durch hochohmige Widerstände sukzessive miteinander verbunden und der erste bzw. letzte mit den jeweiligen Elektroden. Dieser Umbau hatte zwei Auswirkungen: Erstens wurde die Kurve sowohl für positive als auch für negative Spannungen abgeflacht, wie es der Fall ist, wenn der Anteil der unbeweglichen Ionen wächst. Dies kann daher kommen, daß durch den Einsatz zur Feldhomogenisierung mehr "tote" Räume vorhanden sind, d.h. Ecken und Nischen, in denen sich die Ionen nicht weit bewegen können. Und andererseits kann es auch auf einer Vergrößerung der Randeffekte beruhen, da das Feld am Rand des Mittelteils der Kammer durch den Einsatz vergrößert wurde.

Zweitens wurde festgestellt, daß die Fitkurve, die nur für die Meßpunkte mit negativer Spannung berechnet wurde, auch für positive Spannungen hervorragend paßt, wie Abbildung 3.12 zeigt.

Diese Meßreihe wurde als Eichung mit reinem Neon natürlicher Isotopenzusammensetzung durchgeführt. Anschließend wurden unter jeweils gleichen Bedingungen die Beweglichkeit in Gemischen aus jeweils 360 *mbar* Neon und 360 *mbar* Argon, Stickstoff, Helium oder Kohlendioxid bei einer Spannung von $U = -100\,V$ gemessen. Bei all diesen Messungen wurde zunächst das Fremdgas in die evakuierte Meßkammer gegeben und danach

die angegebene Menge des bestrahlten Neons zugefügt. Graphisch dargestellt sind die Ergebnisse in Abbildung 3.13. Die quantitative Analyse ergibt:

1. Argon:

$$\frac{\mu_{0_{ges}}}{\mu_{0_{Ne}}} = 0.54 \qquad \Rightarrow \frac{\mu_{0_{Ar}}}{\mu_{0_{Ne}}} = 0.37$$

   Munsons Werte[4] für die Verhältnisse der Beweglichkeit von $Na^+$-Ionen in Argon und Neon sind 0.37 für extrem reine Gase und 0.43 für mit Wasserdampf verunreinigte Gase. Da bei meinen Messungen der relativen Beweglichkeiten mit einem maximalem Fehler von 20% gerechnet werden muß, ist die Übereinstimmung quantitativ gegeben.

2. Kohlendioxid:

$$\frac{\mu_{0_{ges}}}{\mu_{0_{Ne}}} = 0.55 \qquad \Rightarrow \frac{\mu_{0_{CO_2}}}{\mu_{0_{Ne}}} = 0.38$$

   Verglichen mit Argon erscheint dieser Wert größer als erwartet, da die Atommasse von Argon ($M = 40\,amu$) und die Molekülmasse von Kohlendioxid ($M = 44\,amu$) fast gleich sind, sollte die Beweglichkeit in Kohlendioxid kleiner sein als in Argon, da die Kohlendioxid-Moleküle viel größer als Argon-Atome sind.
   Für sehr große $\frac{E}{p}$, die schon nicht mehr im Gültigskeitsbereich der Theorie $v \propto \frac{E}{p}$ liegen, hat Akridge[5] für $Na^+$-Ionen in Argon ungefähr die doppelte Beweglichkeit gemessen wie für $Na^+$-Ionen in Kohlendioxid. Mehr Daten liegen über die Beweglichkeit von $K^+$-Ionen in verschiedenen Gasen vor. Munson[6] findet für kleine $\frac{E}{p}$ einen Wert von 2.81 $\frac{cm^2}{Vs}$ in Argon und James[7] 1.45 $\frac{cm^2}{Vs}$ in Kohlendioxid. (Bem.: Munsons Werte sind im allgemeinen geringfügig höher als die neueren von Akridge, James und Thomson, die hier angeführt werden. )
   Der Unterschied zu meiner Messung könnte daher kommen, daß die anderen mit sehr reinen Gasen gemessen haben, und Thomson das Clustern von Kohlendioxid, Stickstoff und sogar Argon auf $K^+$-Ionen bei Zimmertemperatur für wahrscheinlich hält. Kohlendioxid-Moleküle haben zwar kein Gesamtdipolmoment, aber beide C-O-Doppelbindungen sind für sich polar, was zumindest ein stärkeres Clustern als bei Argon erklären kann, wodurch die große Differenz der oben angegebenen Literaturwerte für die Beweglichkeiten von $K^+$-Ionen in Argon und Kohlendioxid verständlicher wird.
   Bei meinen Messungen waren die Gase jedoch so verunreinigt, daß die $Na^+$-Ionen schon mit den am stärksten clusternden Wassermolekülen "besetzt" waren und ein zusätzliches Clustern von Kohlendioxid-Molekülen nicht mehr auftrat. Dies könnte die Erklärung sein, warum ich für Argon und Kohlendioxid die gleichen Beweglichkeiten gemessen habe, wobei natürlich der Fehler bei meiner Messung berücksichtigt werden muß.

3. Stickstoff:

$$\frac{\mu_{0_{ges}}}{\mu_{0_{Ne}}} = 0.62 \qquad \Rightarrow \frac{\mu_{0_{N_2}}}{\mu_{0_{Ne}}} = 0.45$$

[4] R.J. Munson, A.M. Tyndall: Proceedings of the Royal Society of London **A172**, 28 (1939)
[5] G.R. Akridge et al.: The Journal of Chemical Physics **62**, 4578 (1975)
[6] R.J. Munson, A.M. Tyndall: Proceedings of the Royal Society of London **A172**, 28 (1939)
[7] R.D. James et al.: The Journal of Chemical Physics **62**, 740 (1975)

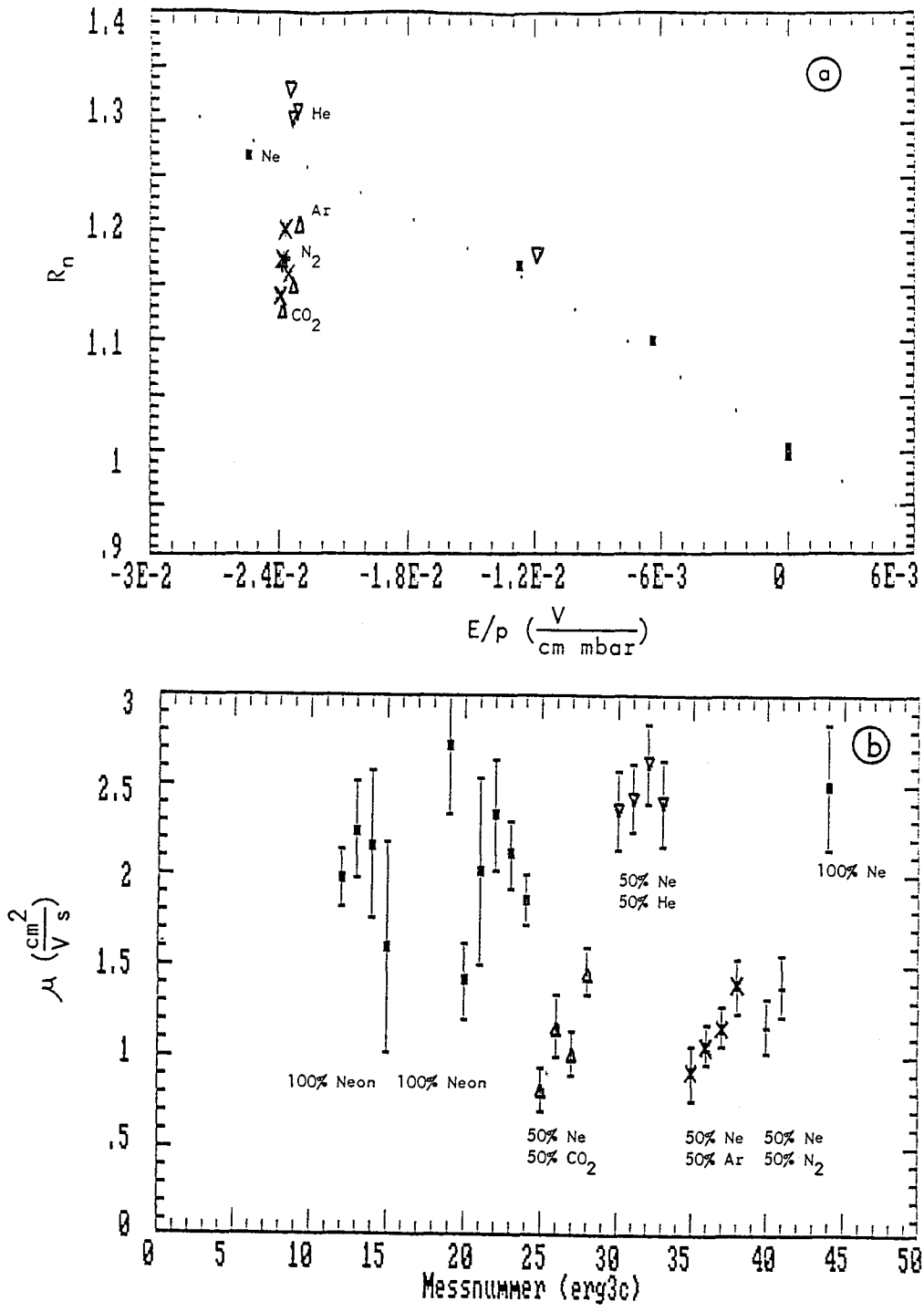



Abbildung 3.13: Peakflächenverhältnisse und relative Beweglichkeiten bei verschiedenen Gasgemischen

Ausgefüllte Rechtecke: 100% Neon (natürliche Isotopenzusammensetzung)

Punkte: Fitkurve für die Rechtecke

inverse Dreiecke (Spitze nach unten): 50% Neon, 50% Helium

Dreiecke (Spitze nach oben): 50% Neon, 50% Kohlendioxid

Kreuze (x-Form): 50% Neon, 50% Argon

Kreuze (t-Form): 50% Neon, 50% Stickstoff

a: normiertes Peakflächenverhältnis in Abhängigkeit von $\frac{E}{p}$

b: mit der Fitkurve berechnete Beweglichkeiten mit 1-$\sigma$-Fehlern, geordnet in der Reihenfolge der Messung, um eine gruppenweise Ordnung zu erhalten.

Für diese Messung liegen nur zwei Meßpunkte vor, sodaß dieser Wert mit einem besonders großen Fehler behaftet ist. Thomson[8] hat für $K^+$-Ionen in Stickstoff $\mu = 2.54 \frac{cm^2}{Vs}$ gemessen, also einen Wert, der ungefähr mit dem ein Argon übereinstimmt. Aufgrund des Fehlers in meiner Messung ist kein signifikanter Unterschied feststellbar.

4. Helium:

$$\frac{\mu_{0_{ges}}}{\mu_{0_{Ne}}} = 1.20 \qquad \Rightarrow \frac{\mu_{0_{He}}}{\mu_{0_{Ne}}} = 1.50$$

Dieser Wert ist ganz erheblich zu niedrig, vergleicht man ihn mit den 2.74 von Akridge, den 2.78 von Munson mit reinem Helium oder den 2.12 in Helium mit wenig Wasserdampf. Da im ersten Moment nicht ausgeschlossen werden konnte, daß vielleicht aufgrund der stark unterschiedlichen Gasdichten von Neon und Helium eine Entmischung stattfand, oder die Gase von Anfang an nicht richtig gemischt waren, wodurch sich die $Na^+$-Ionen überwiegend nur im Neon bewegt hätten, wurden weitere Messungen mit einer anderen Geometrie durchgeführt, aber keine Änderung des Verhaltens gefunden. Da die folgende Erklärung unsicher ist, wäre es zur Aufklärung sinnvoll, mit dem jetzt zur Verfügung stehenden angereicherten $^{22}Ne$ die Beweglichkeit bei verschiedenen Mischungsverhältnissen zu messen, wie es im folgenden Abschnitt für Ethanol beschrieben wird.

Wie schon öfters erläutert, und in Abschnitt 3.2.6 auch durch eigene Messungen bestätigt, waren die verwendeten Gase immer so verunreinigt, daß die Beweglichkeit vermutlich durch das Clustern von Wassermolekülen auf den $Na^+$-Ionen stark verringert war. Wie in Abschnitt 2.3.4.2 dargelegt, haben diese Cluster keine feste Größe, sondern werden durch Stöße mit verschiedenen Molekülen verkleinert und wachsen durch Stöße mit Wassermolekülen. Nun haben die Heliumatome nur eine sehr kleine Masse, ein Fünftel der Masse der meisten Neonatome oder weniger als ein Viertel der Masse der Wassermoleküle. Dadurch ist der Impulsübertrag beim Stoß mit einem Molekül des Clusters bzw. mit dem ganzen Cluster sehr viel geringer als bei Stößen von anderen Molekülen oder Atomen mit dem Cluster. Deshalb ist es wahrscheinlich, daß die Cluster durch Stöße mit Heliumatomen nicht so leicht zerstört werden wie durch andere Stöße, und so erscheint es möglich, daß die Cluster bei Helium im Durchschnitt größer sind als bei anderen Gasen, was die Differenz der Beweglichkeit der $Na^+$-Ionen in Helium und Neon verringern würde. Gegen diese Theorie ist allerdings einzuwenden, daß ja nur 50% Helium bei den Messungen in der Kammer waren, und der Rest Neon war.

#### 3.2.4.3 Verschiedene Mischungen von Neon mit Ethanol

Um das Mischungsverhältnis über einen großen Bereich variieren zu können, wurde bei den folgenden Messungen auf 70% angereichertes $^{22}Ne$ bestrahlt, sodaß man nur noch wenig vom bestrahlten Gas in die Meßkammer lassen mußte. Damit nicht zuviel Gas in der Leitung vom Ventil V5 (vgl. 3.1.3) zur Meßkammer blieb, was den Untergrund durch unbewegliche Ionen vergrößert hätte, wurde ein dünnes Kupferrohr verwendet, das durch den Flansch an der Meßkammer bis direkt in die Meßkammer ging. Den Erfolg dieser Methode zeigte die Auswertung mit dem Fitprogramm, das für den Untergrundparameter

[8] G.M. Thomson et al.: The Journal of Chemical Physics 58, 2402 (1973)

U nur einen Mittelwert von ungefähr 0.42 ermittelte. Wie bei den ersten Messungen wurde hier wieder ohne den Einsatz zur Feldhomogeniesierung gemessen.

Um die Temperatur absenken zu können, wurden auf die Dural-Teile der Meßkammer (vgl. Abbildung 3.2) Kühlkörper aufgesetzt, die ihrerseits durch ein einfaches Pumpsystem mit durch Trockeneis gekühltem Spiritus gekühlt wurden, wodurch Temperaturen herab bis ca. 2.4°C erreicht wurden. Da diese Temperatur gut konstant gehalten werden konnte, wurde hochreines Ethanol in die Kammer gegeben und bei dem entsprechenden Dampfdruck von 20 $mbar$ soviel natürliches Neon eingelassen, daß durch das Hinzufügen der zur Messung erforderlichen Menge an bestrahltem Neon (6 $mbar$) die gewünschte Mischung entstand. Um den Fehler bei der Bestimmung der Gesamtbeweglichkeiten zu reduzieren, wurden für jede Mischung die Peakflächenverhältnisse für je ca. 12 bis 15 verschiedene Spannungen gemessen und mit dem Fitprogramm ausgewertet. Das Verhältnis der von der Druckabhängigkeit befreiten Gesamtbeweglichkeit $\mu_{0_{ges}}$ zu der von $Na^+$-Ionen in Neon, $\mu_{0_{Ne}}$, in Abhängigkeit von der Konzentration des Ethanols an der Gasmischung zeigt Abbildung 3.14b, während Abbildung 3.14a den reziproken Wert dieses Verhältnisses zeigt. Die erste Darstellung ist zum Interpolieren günstiger, da die theoretische Kurve hierfür, wenn man die Blanc'sche Mischungsformel heranzieht, eine Gerade ist.

Aus Gleichung 2.2 folgt mit $c_{Ne} = 1 - c_{Eth.}$ :

$$\frac{\mu_{0_{Ne}}}{\mu_{0_{ges}}} = 1 + c_{Eth.} \left( \frac{\mu_{0_{Ne}}}{\mu_{0_{Eth.}}} - 1 \right)$$

Dies ist eine Geradengleichung und aus der Steigung kann man sofort das gesuchte $\frac{\mu_{0\,Eth.}}{\mu_{0Ne}}$ berechnen. Mit dem eingezeichneten Fit ergibt sich $\frac{\mu_{0\,Eth.}}{\mu_{0Ne}} = \frac{1}{9}$, sodaß die Beweglichkeit der $Na^+$-Ionen in Neon neunmal so groß ist wie in Ethanol. Mit diesem Wert wurde die theoretische Kurve in Abbildung 3.14b berechnet, und man sieht, daß diese Kurve die experimentellen Werte verhältnismäßig gut trifft, bis auf den Ausreißer bei $c_{Eth.} = 0.024$.

Schreibt man die obige Geradengleichung um, so kann für jeden einzelnen Meßpunkt $\frac{\mu_{0Ne}}{\mu_{0ges}}$ das gewünschte $\frac{\mu_{0Ne}}{\mu_{0\,Eth.}}$ berechnet werden:

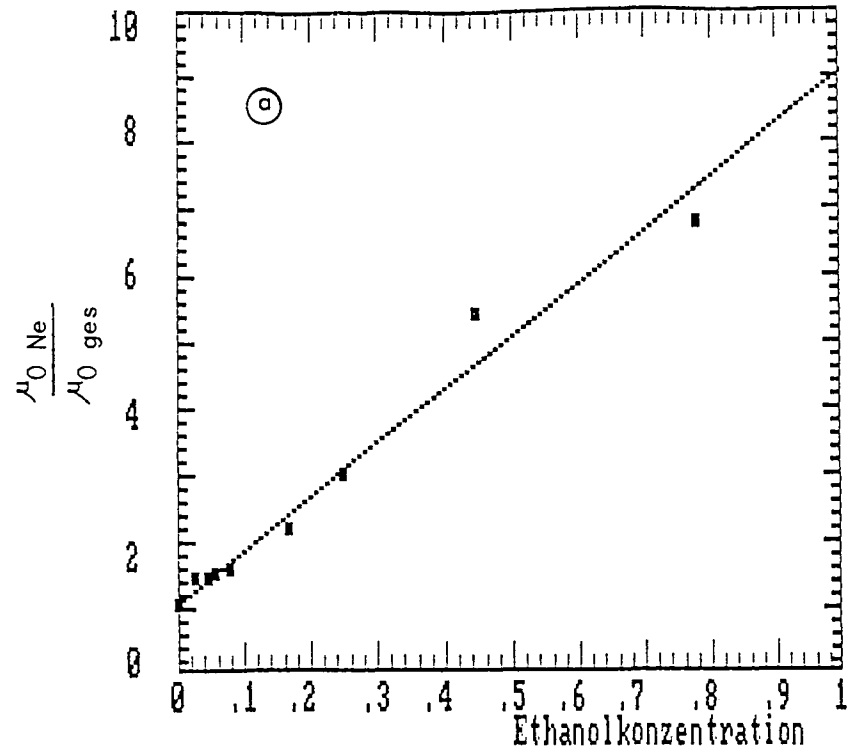
$$\frac{\mu_{0_{Ne}}}{\mu_{0_{Eth.}}} = 1 + \frac{\frac{\mu_{0_{Ne}}}{\mu_{0_{ges}}} - 1}{c_{Eth.}}$$

Tabelle 3.1 gibt die Werte für sämtliche Meßreihen wieder.

Betrachtet man den Wert bei $c_{Eth.} = 0.024$ als Ausreißer, der durch die Verstärkung des Fehlers durch die Division durch das kleine $c_{Eth.}$ bedingt ist, so sieht man, daß alle Werte in einem Bereich von $9 \pm 1.8$ liegen, also der maximale für eine Messung aufgetretene Fehler 20% ist.

### 3.2.5 Messungen bei niederen Drücken

Da mit dem angereicherten $^{22}Ne$ durch die Bestrahlung eine viel größere Aktivität pro Volumen erreicht werden konnte, konnte herunter bis zu Drücken von 6 $mbar$ gemessen werden. Die Ergebnisse der Messungen der Beweglichkeit $\frac{\mu_0(p)}{\mu_0(600\,mbar)}$ mit reinem Neon (incl. der Verunreinigungen) zeigt Abbildung 3.15. Offensichtlich nahm die von der Druckabhängigkeit befreite Beweglichkeit mit sinkendem Druck ab, was nur durch Clustereffekte oder/und Verunreinigungen erklärt werden kann. Um darüber mehr aussagen



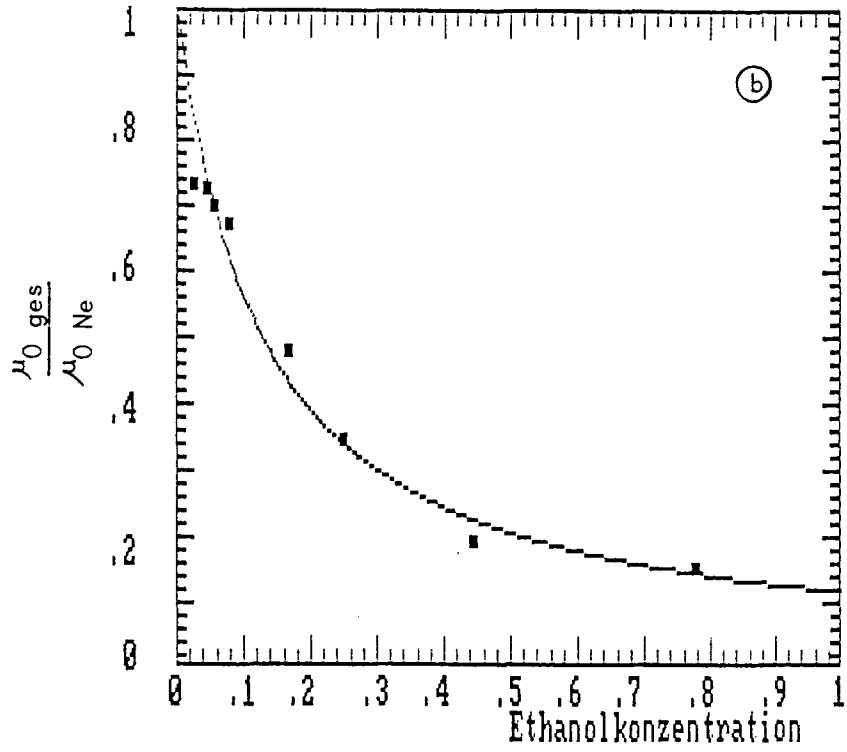
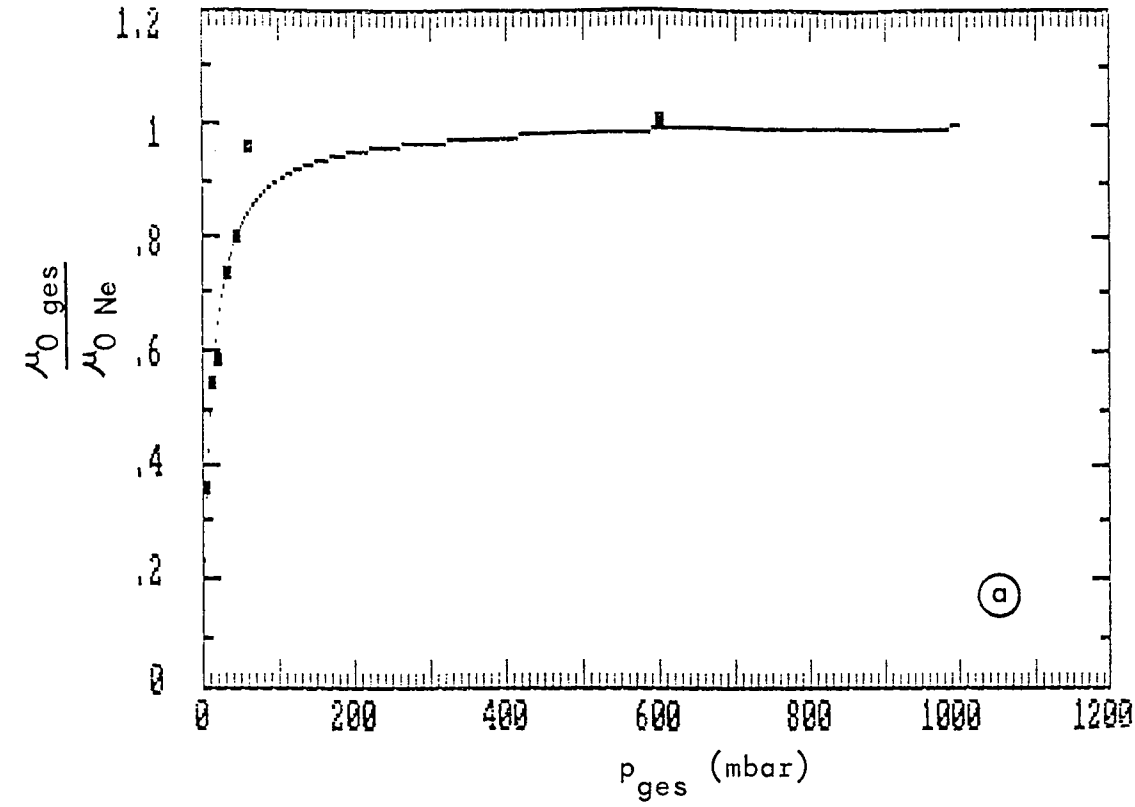




Abbildung 3.14: Relative Beweglichkeiten in Abhängigkeit von der Ethanolkonzentration
a: Verhältnis der Beweglichkeiten von $Na^+$-Ionen in Neon zu der im Neon-Ethanolgemisch in Abhängigkeit von der Ethanolkonzentration.
b: Darstellung der reziproken Werte von a.
Die Rechtecke sind jeweils die gemessenen Werte, die Punkte die Fitkurven.



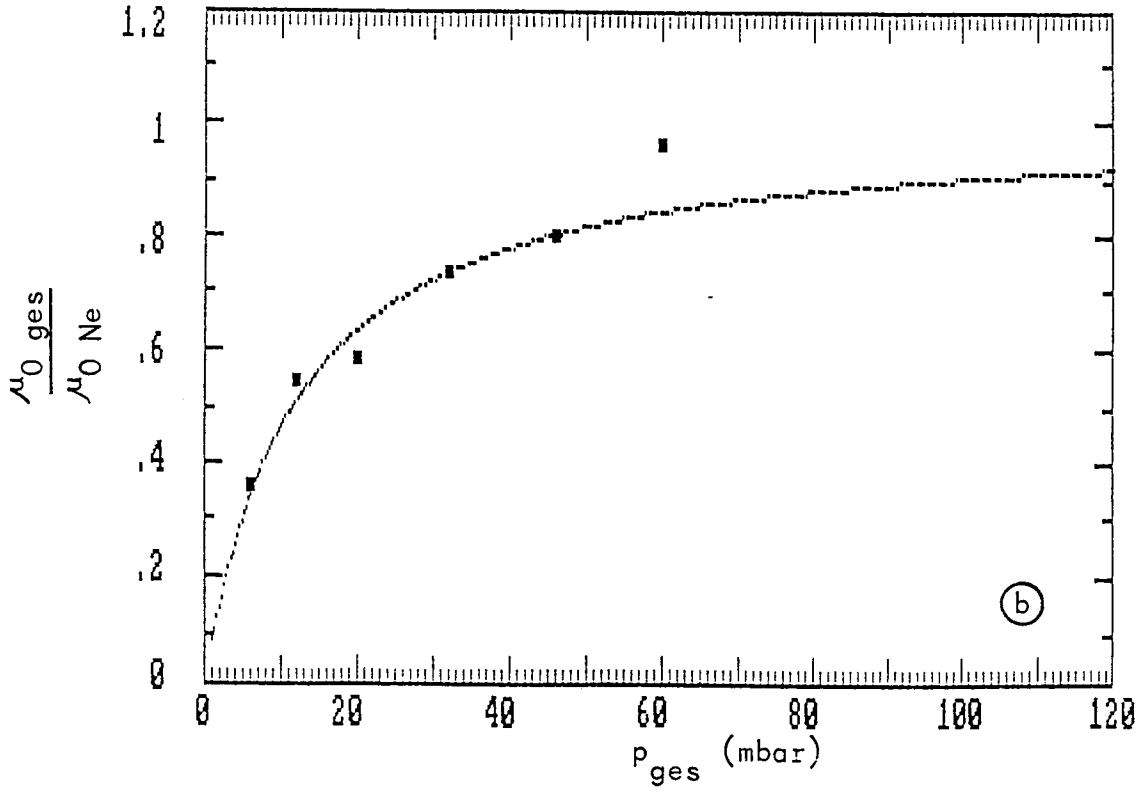




Abbildung 3.15: Abhängigkeit der reduzierten Beweglichkeiten vom Druck

a: Verhältnis der Beweglichkeiten von $Na^+$-Ionen bei verschiedenen Neondrücken zu der bei 600 mbar in Abhängigkeit vom Gesamtdruck.

b: Expandierter Niederdruckbereich von a.

Die Rechtecke sind jeweils die gemessenen Werte, die Punkte die Fitkurven.

Tabelle 3.1: Verhältnis der Beweglichkeiten von $Na^+$-Ionen in Neon zu der in Ethanol in Abhängigkeit von der Ethanolkonzentration $c_{Eth.}$

| $c_{Eth.}$ | $\frac{\mu_{0_{Ne}}}{\mu_{0_{Eth.}}}$ |
|---|---|
| 0.024 | 16.88 |
| 0.045 | 9.64 |
| 0.055 | 9.14 |
| 0.077 | 7.54 |
| 0.167 | 7.63 |
| 0.25 | 8.86 |
| 0.44 | 10.72 |
| 0.78 | 8.35 |

zu können, wurde eine andere Form der graphischen Darstellung gewählt. Da diesmal nur der Gesamtdruck bekannt war, nicht aber der Druck von evt. Verunreinigungen, wurde die Blanc'sche Mischungsformel noch einmal umgeschrieben. Aus Gleichung 2.3 folgt nach kurzer Rechnung:

$$\frac{1}{\frac{\mu_{0_{Ne}}}{\mu_{0_{ges}}} - 1} = \frac{1}{(\frac{\mu_{0_{Ne}}}{\mu_{0_V}} - 1)P_V} P_{ges}$$

Stellt man nun die linke Seite, die eine Funktion der Meßgrößen ist, als Funktion von $P_{ges}$ dar, sollte sich für den Fall, daß die Abnahme von $\mu_0$ durch Verunreinigungen verursacht wird, eine Ursprungsgerade ergeben, aus deren Steigung man das Produkt aus dem Partialdruck der Verunreinigung und dem um 1 verminderten Verhältnis $\frac{\mu_{0_{Ne}}}{\mu_{0_V}}$ ermitteln kann. Abbildung 3.16 zeigt, daß die Punkte gut auf einer Geraden liegen. Für einen Gesamtdruck größer als ca. $50\,mbar$ werden die Fehler wieder sehr groß, da der Nenner der obigen Gleichung nahe an Null kommt. Deswegen wurden solche Meßpunkte nicht berücksichtigt. Die eingezeichnete Fitgerade hat eine Steigung von $\frac{1}{12\,mbar}$, d.h.

$$(\frac{\mu_{0_{Ne}}}{\mu_{0_V}} - 1)P_V = 12\,mbar.$$

Um einen Eindruck vom Fehler zu erhalten, kann man diesen Wert für die einzelnen Punkte getrennt berechnen und erhält die Werte der Tabelle 3.2.

Tabelle 3.2: Auswertung der einzelnen Kurven bei den Niederdruckmessungen

| $P_{ges}$ $[mbar]$ | $P_V(\frac{\mu_{0_{Ne}}}{\mu_{0_V}} - 1)$ |
|---|---|
| 6 | 11.1 |
| 12 | 10.4 |
| 20 | 14.9 |
| 32 | 12.1 |
| 46 | 12.1 |

Diese gute Übereinstimmung mit einer Geraden legt die Vermutung nahe, daß das bei kleinem Druck fallende $\mu_{0_{ges}}$ auf die kleine Beweglichkeit $\mu_{0_V}$ der $Na^+$-Ionen in einem

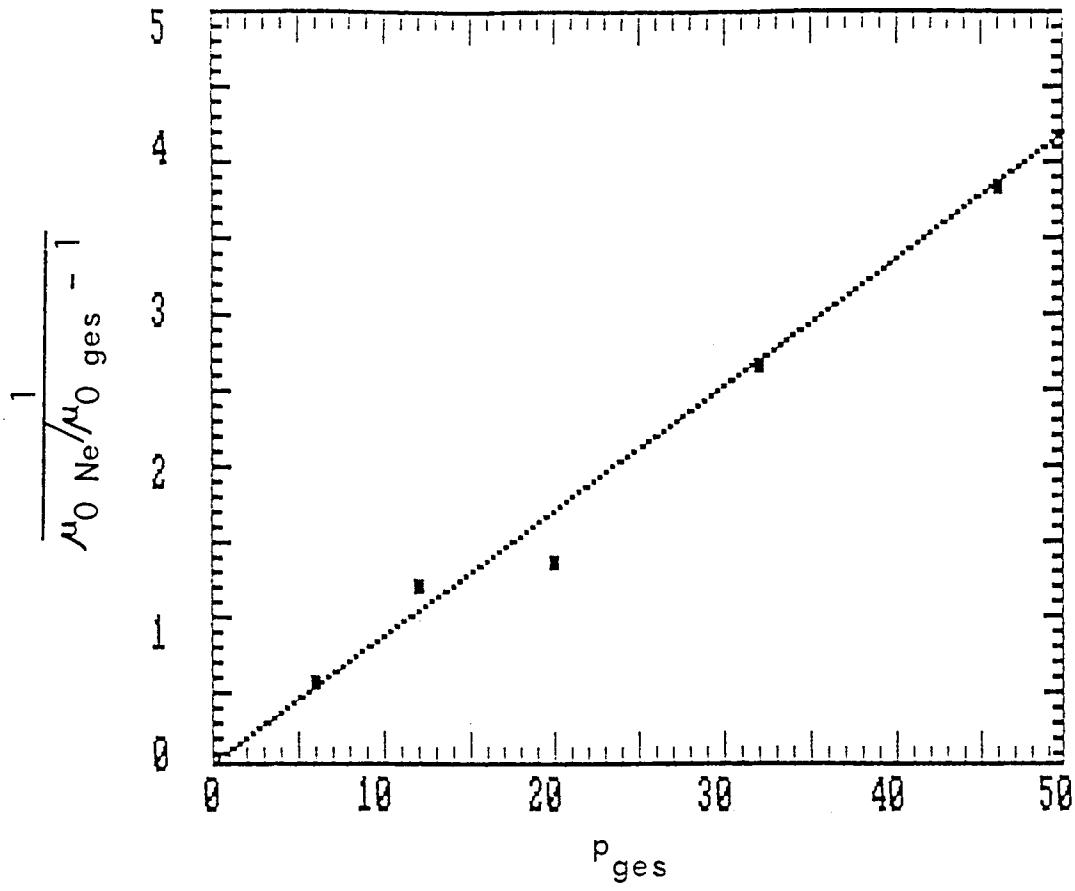



Abbildung 3.16: $\frac{1}{(\frac{\mu_{0Ne}}{\mu_{0ges}})-1}$ in Abhängigkeit vom Gesamtdruck.
Die Rechtecke sind die gemessenen Werte, die Punkte die Fitkurve.

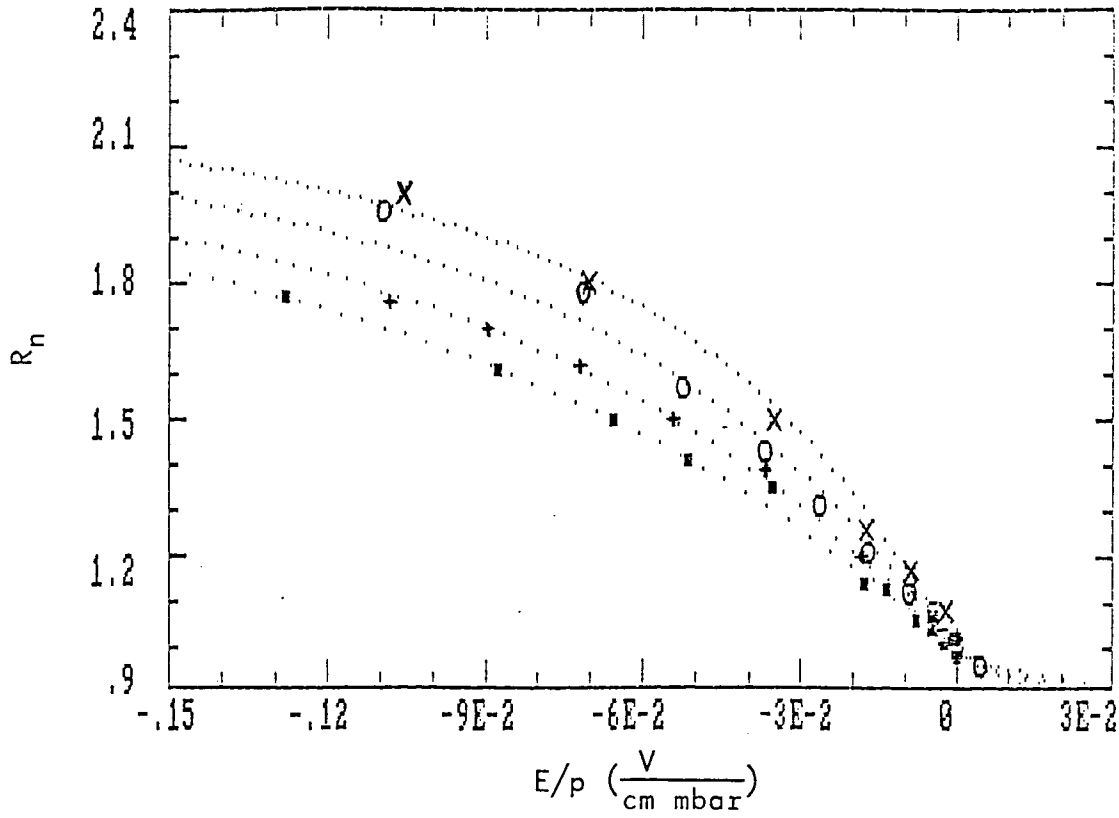



Abbildung 3.17: $R_n(\frac{E}{p})$ für verschieden gut gereinigte Gase

Rechtecke: Erste Messung mit nicht gereinigtem Gas und nicht gereinigter Kammer.

Kreuze (t-Form): Messung nach erstem Ausheizen der Kammer mit Gasreinigung in Stickstoff-Kühlfalle.

Kreuze (X-Form): Messung nach zweitem Ausheizen der Kammer mit Gasreinigung in Stickstoff-Kühlfalle.

Kreise: Messung mit anfangs sauberer Kammer ohne Gasreinigung in Stickstoff-Kühlfalle.

Verunreinigungsgas zurückzuführen ist. Allerdings scheint dieses $\mu_{0\,V}$ sehr klein zu sein. Nimmt man einen (vermutlich zu hohen) Verunreinigungspartialdruck von $2\,mbar$ an, so wäre $\frac{\mu_{0Na}}{\mu_{0\,V}} = \frac{1}{6}$. Um welche Verunreinigung es sich dabei handeln könnte, ist nicht zu sagen. Denn im sicher vorhandenen Wasserdampf sollten die $Na^+$-Ionen eine höhere Beweglichkeit haben. Nicht ganz auszuschließen ist auch eine Verunreinigung durch die Rückdiffusion von Öl aus der benutzten Vorpumpe.

### 3.2.6 Messungen mit gereinigtem Neon

Während der Niederschrift dieser Arbeit wurden in Zusammenarbeit mit Herrn Dr. A. Kasuya[9] Messungen mit einer neuen Meßkammer durchgeführt. Diese Kammer konnte bis $200°C$ erhitzt werden, da nur metallische und keramische Materialien verwendet wurden. Im Inneren hatte die Kammer 14 'guard rings' zur Feldhomogenisierung, was wegen ihrer Länge erforderlich erschien. Somit war der Raum, in dem sich die Ionen bewegen konnten, ein Zylinder mit dem Radius $17\,mm$ und der Länge $165\,mm$. In dieser Kammer wurden nun Messungen mit dem angereicherten $^{22}Ne$ durchgeführt, die zeigen sollten, welche Rolle die Verunreinigungen bei den anderen Messungen gespielt hatten. Dazu wurden vier Meßreihen bei jeweils $350\,mbar$ Neon aufgenommen. Das Ergebnis zeigt Abbildung 3.17.

[9]Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai, Japan

1. Zuerst wurde mit dem "alten", verunreinigten Gas in der nicht gereinigten Kammer gemessen. Dazu wurde mit dem Fitprogramm eine Beweglichkeit von 2.60 $\frac{cm^2}{Vs}$ bestimmt, was gar nicht allzuweit von den 1.87 $\frac{cm^2}{Vs}$ bei der ersten Messung in Abschnitt 3.2.3.3 entfernt ist. Dabei ist zu beachten, daß die hier angegebenen Beweglichkeiten immer auf den Druck 1013 $mbar$ umgerechnet sind.

2. Anschließend wurde die Meßkammer zwei Tage lang bei 150°$C$ ausgeheizt und mit einer Turbomolekularpumpe evakuiert. Da das Gassystem nicht ausgeheizt werden konnte, wurde in die Gasleitung zur Meßkammer (zwischen V17 und Meßkammer, vgl. Abbildung 3.3) eine Kühlfalle mit flüssigem Stickstoff gebaut, durch die das zur Messung verwendete Gas gereinigt werden sollte. So wurde die zweite Kurve aufgenommen, und in der Tat stieg die Beweglichkeit auf 2.99 $\frac{cm^2}{Vs}$, d.h. um 15%, was außerhalb des Fehlers liegt.

3. Danach wurde die Kammer einen Tag lang bei 220°$C$ nochmal ausgeheizt, und dann wurde wieder gemessen, wobei sich diesmal ein starker Anstieg der Beweglichkeit auf 4.63 $\frac{cm^2}{Vs}$ ergab.

4. Vor der vierten Meßreihe wurde lediglich die Kühlfalle auf Zimmertemperatur erwärmt und während der Messungen *nicht* gekühlt, um wieder den Effekt von Verunreinigungen zu sehen. Und in der Tat sank die Beweglichkeit auf 3.76 $\frac{cm^2}{Vs}$ ab, was aber immer noch deutlich über der ersten Messung liegt.

## Interpretation

Ganz klar bestätigt durch diese Messungen wurde die schon an anderer Stelle dargelegte Vermutung, daß bei den früheren Messungen die Beweglichkeit immer durch Verunreinigungen stark reduziert war. Dies kann aber nur auf der Bildung von Clustern von Verunreinigungsmolekülen mit den Tracer-Ionen beruhen, da die Verminderung der Beweglichkeit durch die Verunreinigung nach dem Blanc'schen Gesetz für Gasmischungen bei einem Neondruck von 350 $mbar$ nicht so groß wäre. Eine andere Frage, die noch untersucht werden sollte, ist, wieweit die Beweglichkeit wächst, wenn man die Gasreinigung weiter verbessert. Dies wäre interessant vorallem im Hinblick auf die Beurteilung der Frage, wieweit man mit der berechneten absoluten Beweglichkeit von dem mit anderen Methoden (vgl. 3.2.3.3) gemessenen Wert von 8.5 $\frac{cm^2}{Vs}$ wegliegt. Außerdem ist die Kenntnis der Beweglichkeit in hochreinem Neon eine Voraussetzung, wenn man irgendeine Aussage über die Größe der gebildeten Cluster machen möchte, da man hierzu unbedingt die Beweglichkeit der *freien* Ionen braucht.

Zuletzt soll noch kurz erklärt werden, warum die Beweglichkeit bei der vierten Meßreihe, die mit demselben verunreinigten Gas wie in der ersten Meßreihe durchgeführt wurde, nicht auf den Anfangswert zurückging. Vermutlich liegt dies daran, daß zwar das Gas im Gassystem dasselbe war, aber die Meßkammer bei der vierten Meßreihe zumindest zu Beginn sehr sauber war. Saubere Oberflächen können aber wieder Verunreinigungen adsorbieren und senken so die Verunreinigungskonzentration im Gas. Dies konnte ziemlich effektiv sein, da zu jeder Messung bei 350 $mbar$ nur ca. 35 $mbar$ bestrahltes Gas nötig waren, und somit nur immer ungefähr 10% des Gases gewechselt wurden. Dadurch kam erstens nicht allzuviel verunreinigtes Gas in die Kammer und zweitens war ein großer Teil des Gases so lang in der Kammer, daß der Reinigungsprozeß an der Oberfläche durch

die langsame Diffusion der Verunreinigungsmoleküle durch das Gas nicht allzusehr beeinträchtigt wurde.

Diese Erklärung der letzten Kurve wird auch durch die Beobachtung gestützt, daß die zu Beginn der Meßreihe gemessenen Punkte (in Abbildung 3.17 sind dies die beiden Kreise mit ca. 0.07 und ca. 0.11 $\frac{V}{cm\ mbar}$) eine größere Beweglichkeit zeigten, als die später gemessenen. Wenn auch aufgrund der Fehler eine sichere Aussage nicht möglich ist, so scheint es doch so zu sein, daß bei den Messungen anfangs weniger Verunreinigungen in der Kammer waren als bei den darauffolgenden Messungen.

# Kapitel 4

# Beweglichkeitsmessungen in einer Diffusionsnebelkammer

## 4.1 Das Ziel des Experiments

Um etwas über den Anwendungsbereich der Tracer-Methode zu erfahren, sollte versucht werden, die Beweglichkeit der $Na^+$-Ionen durch die Bildung von großen Clustern mit den $Na^+$-Ionen als Zentren drastisch abzusenken. Dazu wurde überlegt, in welchen Systemen solche Effekte stattfinden. Messungen im in Garching reichlich vorhandenen Nebel erschienen praktisch undurchführbar, gaben aber das Stichwort für die Nebelkammer. Die übliche Wilson-Nebelkammer[1] bei der durch eine schnelle (adiabatische) Expansion über die Temperaturabsenkung eine Übersättigung und dadurch Tröpfchenbildung auf Ionen erzielt wird, hat den Nachteil, daß sie nach einer Expansion nur kurze Zeit funktionstüchtig ist, typischerweise 0.1 sec, worauf dann eine lange Phase der Kompression und des Wartens bis das Gasgemisch im Gleichgewicht ist, folgt. Maier-Leibniz konnte die Zeit zwar durch eine "langsame Nachexpansion" erheblich verlängern[2], aber nach Slätis[3] standen selbst die besten Wilson-Kammern nur 10% der Zeit zum Nachweis von Ionenspuren zur Verfügung. Um dies zu vermeiden, wurden schon früh kontinuierlich arbeitende Diffusionskammern gebaut, die auch für meine Zwecke am geeignetsten erschien.

## 4.2 Bau und Funktionsweise der Diffusionsnebelkammer

### 4.2.1 Der Aufbau der Diffusionskammer

Abbildung 4.1 zeigt schematisch den Bau der Diffusionskammer zusammen mit den für die Messungen nötigen Einsätzen. Die Wand (1) besteht aus einem 145 $mm$ langen, 1 $mm$ dicken V2A-Stahlrohr vom Innendurchmesser 85 $mm$. Als Boden (2) wurde eine Messingplatte angelötet, die innen konisch ausgedreht wurde, sodaß Flüssigkeiten in den Abfluß (3) in der Bodenmitte laufen, durch den über ein Ventil (4) die Flüssigkeit abge-

[1] vgl. S., in W. Gentner, H. Maier-Leibnitz, W. Bothe: "An Atlas of Typical Expansion Chamber Photographs", Pergamon, London, 1954

[2] vgl. S. 1135 in H. Franke (Hrsg.): "Lexikon der Physik", Franckh'sche Verlagshandlung Stuttgart, 3. Auflage, 1969

[3] H. Slätis: Nuclear Instruments and Methods 1, 213 (1957)

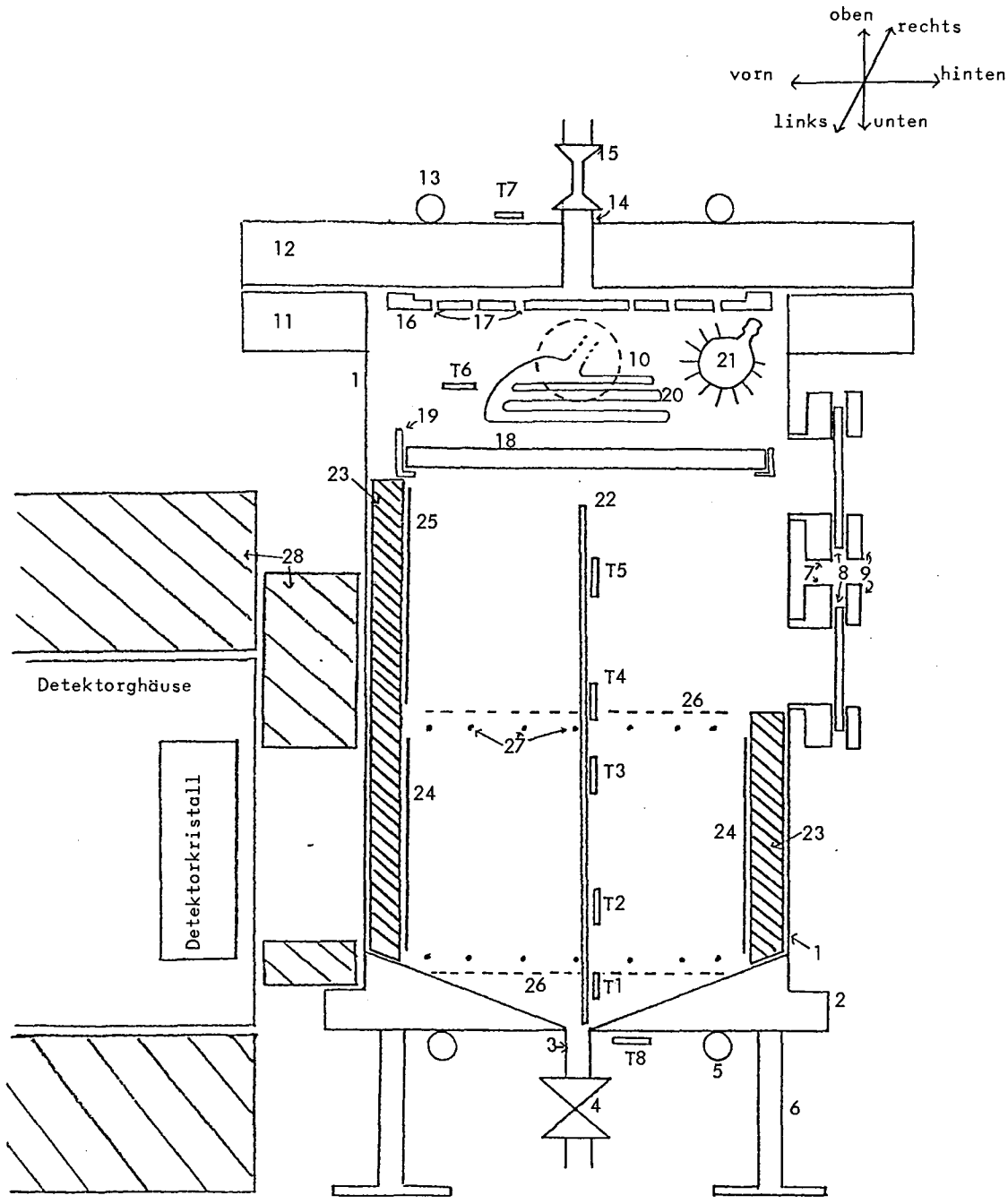



Abbildung 4.1: Skizze der Diffusionskammer mit Detektor und Abschirmung

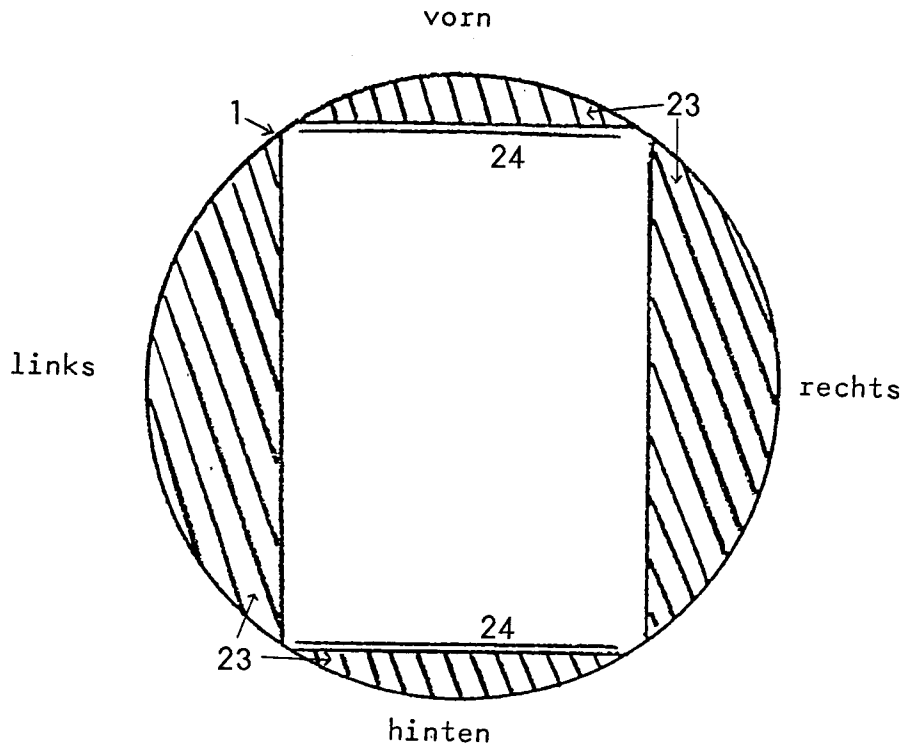



Abbildung 4.2: Horizontaler Querschnitt durch die Diffusionskammer unterhalb des unteren Fensters.

saugt werden kann. Unten an den Boden ist eine Kupferrohrwindung (5) angelötet, die zum Heizen oder Kühlen verwendet werden kann. Hinten an der Kammer (Bezüglich hinten, vorn, rechts und links vgl. die Angabe über der Zeichnung.) wurden zwei Fenster (7) angebracht, die zur Beobachtung des Alkoholflußes und der Abläufe in der Kammer dienten. Auf der rechten Seite oben wurde ein 60 *mm* langer Messingstutzen (10) mit 15 *mm* Innendurchmesser angebracht, an dessen Ende ein Messingkörper mit 60 *mm* Innendurchmesser und 40 *mm* Länge angelötet wurde. Dieser hatte einen Ausgang zur Vorpumpe, zur Neon-Flasche und zum Druckmeßgerät und war am Ende mit einem Klammerflansch abgeschlossen, in den 36 elektrische Durchführungen eingebaut waren, und der mit einem Viton-O-Ring abgedichtet war. Oben an das Stahlrohr war ein Messingflansch (11) angelötet, auf den der Messingdeckel (12) geschraubt werden konnte (Dichtung: Viton-O-Ring), der wieder über ein angelötetes Kupferrohr geheizt oder gekühlt werden konnte. In der Mitte des Deckels war ein Kupferrohr (14) angelötet, durch das über ein Nadelventil (15) fein dosiert Flüssigkeiten eingelassen werden konnten, die dann in einer an den Deckel festgeschraubten Auffangwanne (16) der Tiefe 2 *mm* landete. Von dort tropfte sie durch viele kleine Löcher (17) mit 1 *mm* Durchmesser auf die Filterplatte (18), die aus keramischem Material mit sehr feinen Poren (maximaler Durchmesser: einige $\mu m$) bestand, um ein Durchtropfen der Flüssigkeit zu verhindern, und eine große Oberfläche zur Verdunstung zu haben. Zwischen der Auffangwanne und der Filterplatte befand sich freischwebend ein "Grill" (20), d.h. einige Windungen Heizdraht mit bis zu 40 Watt Heizleistung. Um die Temperaturen in und an der Kammer messen zu können, wurden acht Pt100-Meßwiderstände (T1 bis T8) in verschiedenen Höhen in der Kammer befestigt. Um das bestrahlte Gas fein dosiert in die Kammer bringen zu können, wurde die Kammer

rechts hinten in Höhe des unteren Fensters angebohrt und ein Weichkupferrohr angelötet, das am anderen Ende mit dem Nadelventil V10 (vgl. Abbildung 3.3) verbunden war. In diesem 6 *mm*-Kupferrohr war ein 1 *mm*-V2A-Röhrchen mit Weichlot so eingelötet, daß das Gas nur durch dieses Röhrchen strömen konnte. So wurde erreicht, daß nicht zuviel bestrahltes Gas in der Zuleitung blieb, und außerdem das Gas mit so großer Geschwindigkeit einströmt, daß es sich schneller in der Kammer verteilt.

Denn eine homogene Verteilung des bestrahlten Gases ist eine Grundvoraussetzung für die Beweglichkeitsmessungen, da sonst der Driftgeschwindigkeit eine gerichtete Diffusionsbewegung überlagert würde, was die Messungen sehr erschweren würde. Dies wurde schon beim Bau der Kammer berücksichtigt und war ein Grund dafür, trotz größerer erwarteter Randeffekte den Durchmesser der Kammer nicht zu groß zu wählen. Dazu wurde ein PC-Programm geschrieben, das die Diffusion des Neons durch ein anderes Gas simulierte und man sah sehr deutlich, daß die Zeit, bis die gewünschte Verteilung erreicht ist, proportional mit dem Quadrat des Kammerradius' anstieg. Für die Diffusion im Hauptteil der Kammer, d.h. zwischen Boden und Filterplatte, ergab sich bei Zugrundelegen einer Neon-Ethanol-Mischung, daß die Zeit, die das Gas benötigte, sich so zu verteilen, daß der maximale Konzentrationsunterschied 2% ist, ungefähr eine Minute ist. Diese Zeit verringert sich aber gewaltig, falls das Gas mit größerer Geschwindigkeit einströmt. Später wurden Versuche durchgeführt, um dies zu untersuchen (vgl. 4.4.1).

### 4.2.2 Die Funktionsweise der Diffusionskammer

Vor der Kammereinrichtung für die Messungen soll zunächst die Funktionsweise der Kammer erklärt werden, wenn man eine Zone der Übersättigung erreichen möchte. Dazu wird die Kammer evakuiert und dann mit dem Trägergas gefüllt. Als Trägergas wurden schon viele Gase verwendet, z.B. Wasserstoff, Kohlendioxid[4], Luft[5], etc. . Hier ist es Neon, da mit diesem schon Erfahrung bei der Beweglichkeitsmessung gesammelt worden ist. Wird unten gekühlt und der Deckel geheizt bildet sich durch das Trägergas in der Kammer ein Temperaturgradient aus. Als Diffusionsgas wurden üblicherweise Methanol, Ethanol, Wasser oder Mischungen von diesen verwendet[6]. Hier wird Ethanol benutzt, das von oben auf die erwärmte Filterplatte tropft. Durch das Heizen oben hat das Ethanol dort einen erheblich höheren Dampfdruck als unten, wo es kälter ist. Wegen dieses Konzentrationsgefälles diffundiert Alkoholdampf von oben nach unten, wo das Gas kondensiert. Somit stellt sich ein fließendes Gleichgewicht, d.h. ein 'steady state' ein, wobei immer Alkoholdampf von oben nach unten durch das Trägergas diffundiert. Diese Diffusion beeinflußt natürlich auch die Temperatur- und Partialdruckverhältnisse in der Kammer ganz erheblich. Wäre nur das Trägergas in der Kammer, würde sich bei konstanter oberer und unterer Temperatur unter Vernachlässigung der Randeffekte eine lineare Temperaturverteilung ergeben. Da aber durch die Diffusion mit den Alkoholmolekülen auch Wärme transportiert wird, steigt die Temperatur in der ganzen Kammer an und zwar umso mehr, je größer der Alkoholfluß ist, vgl. Abbildung 4.3a.

Auch der Partialdruck des Trägergases ist nicht in der ganzen Kammer gleich, sondern abhängig von der gesamten Alkoholdampfmenge und vom Unterschied zwischen den Alkoholpartialdrücken oben und unten, vgl. Abbildung 4.3b.

[4]H. Slätis: Nuclear Instruments and Methods 1, 213 (1957)

[5]vgl. S. 147 in V. Kment, A. Kuhn: "Technik des Messens radioaktiver Strahlung", Akademische Verlagsgesellschaft Geest & Portig KG, Leipzig, 1960

[6]T.S. Needels, C.E. Nielsen: Review of Scientific Instruments 21, 976 (1950)

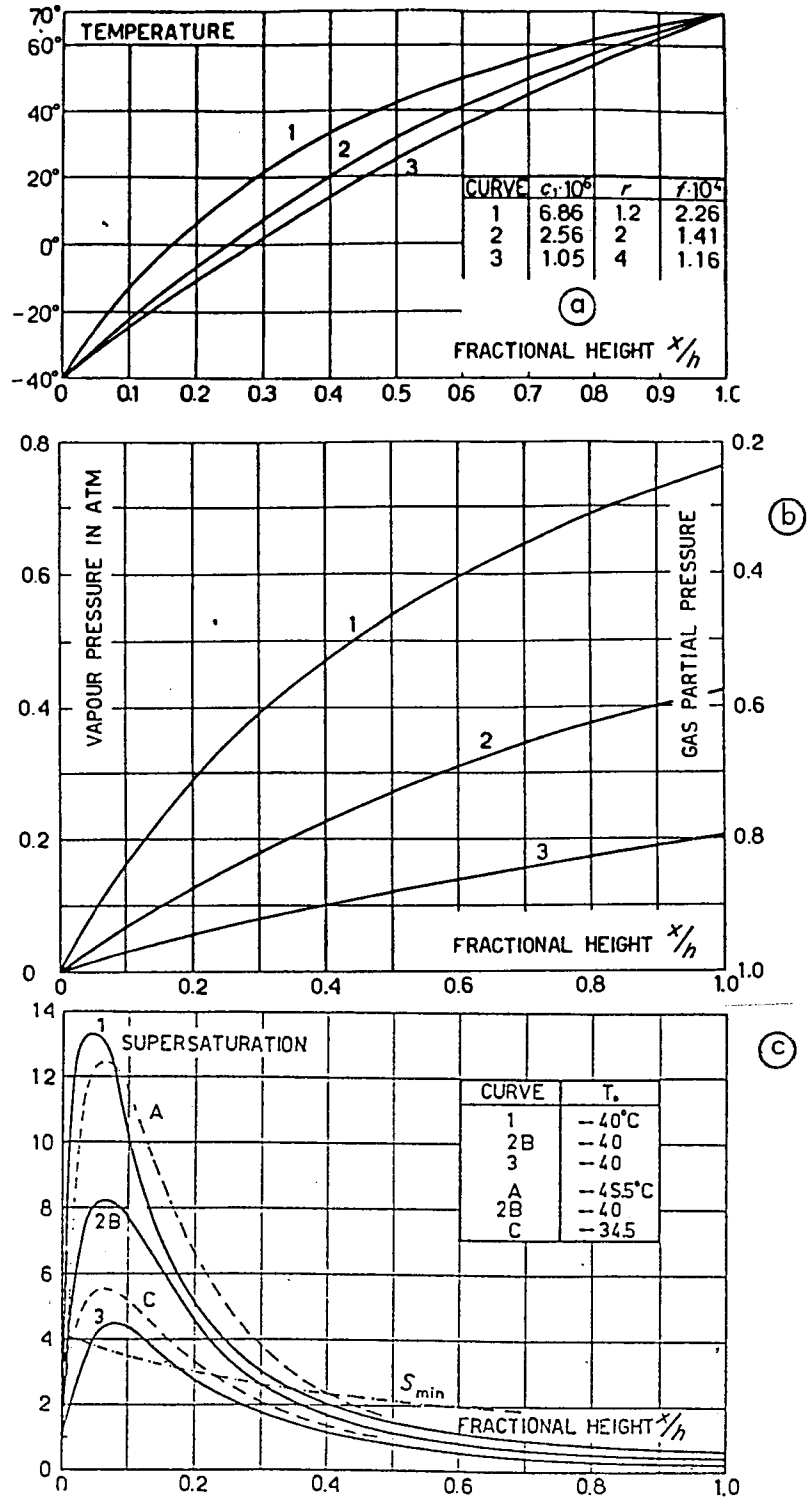



Abbildung 4.3: Temperaturen, Partialdrücke und Übersättigungen in einer Diffusionskammer

a: Temperaturverteilung

b: Partialdruckverteilung

c: Übersättigung

nach H. Slätis, Nuclear Instruments and Methods 1, 213 (1957)

für drei verschiedene Alkoholfüsse von 2.26 (1), 1.41 (2) und 1.16 (3) (willkürliche Einheiten) in Abhängigkeit von der relativen Höhe über dem Boden. Bei der Übersättigungskurve sind zusätzlich Kurven für drei verschiedene Bodentemperaturen von -45.5°C (A), -40.0°C (B) und -34.5°C (C) eingezeichnet.

Diffundiert der Alkohol nach unten, kühlt er sich ab. Dadurch sinkt sein Dampfdruck und es entsteht eine Übersättigung S, die definiert ist als Verhältnis vom tatsächlichen Partialdruck zum Sättigungsdampfdruck bei der herrschenden Temperatur. Erreicht diese einen bestimmten Wert $S_{min}$, so tritt Tröpfchenbildung auf Ionen auf, was bei Vorhandensein ionisierender Strahlung zu den typischen Spuren führt. Nach Rutherford[7] tritt in Wilson-Nebelkammern Tröpfchenbildung auf negativen Ionen ab $S = 1,25$ und auf positiven Ionen ab $S = 1.31$ auf, während diese Werte in Diffusionsnebelkammern aufgrund der ungünstigeren Konstruktion erheblich größer sind. In Abbildung 4.3c ist die Übersättigung in Abhängigkeit von der Höhe in der Kammer dargestellt. Man erkennt, daß die Übersättigung knapp überm Boden am größten ist, und die sensitive Zone, in der auf Ionen Tröpfchen wachsen, typischerweise bis zu ca. 30% der Kammerhöhe reicht. Auch für die Mobilitätsmessungen beachtenswert ist der Hinweis von Schluter[8], daß er Ionenspuren nur in einem Abstand von größer als 1 cm von der Wand sehen konnte.

### 4.2.3 Die Meßvorrichtungen in der Diffusionskammer

Diese Erfahrungen benutzend wurde die Innenarchitektur der Diffusionskammer für die Beweglichkeitsmessungen folgendermaßen ausgeführt:

Um überhaupt ein annährend homogenes elektrisches Feld erzeugen zu können, wurden vier Teflonkörper (23) (vgl. Abbildungen 4.1 und 4.2) hergestellt, die so in die Kammer gebaut werden konnten, daß der verbleibende Raum einen rechteckigen Querschnitt hatte.

Die Idee war nun, die Bewegung der $Na^+$-Ionen im unteren Teil der Kammer zu messen, da dort das stärkste Clusterwachstum stattfinden sollte. Dazu wurden an den vorderen und hinteren Teflonkörper unten $0.1\,mm$ dünne V2A-Bleche als Elektroden (24) angeschraubt, und ebenso oben (25) auf den drei hohen Körpern. Diese fünf Bleche und das Potential der Kammerwände waren über die oben erwähnten elektrischen Durchführungen alle für sich getrennt auf unterschiedliche Potentiale zu setzen. Bei den durchgeführten Messungen standen immer nur die unteren beiden unter positiver bzw. negativer Spannung, und alle andere auf mittlerem Potential.

Um das Durchgreifen des Feldes nach oben bzw. unten zu verhindern, wurde ein Drahtnetz (26) gespannt, das auch auf mittlerem Potential lag. Und zur Homogenisierung des elektischen Feldes wurden rechteckige Drahtschleifen (27) gespannt, die untereinander und mit den Elektroden über hochohmige Widerstände verbunden waren. All diese Drähte waren an einem PVC-Gerüst befestigt, das der Übersichtlichkeit halber nicht eingezeichnet wurde.

Ein ungelöstes Problem war die Beseitigung der vielen Ionen, die bei der Messung mit dem radioaktiven Gas vorallem durch Sekundäreffekte entstehen (vgl. 2.2.3). Um zu verhindern, daß diese schon in der oberen Zone der Kammer soviel Alkoholmoleküle an sich binden, daß dadurch die Übersättigung zu stark sinkt, benutzten praktisch alle Experten elektrische Felder, um diese zu beseitigen. Diese wurden so groß gewählt, daß sie die Beweglichkeitsmessungen unmöglich gemacht hätten. Slätis[9] z.B. gibt einen Wert von $100\,\frac{V}{cm}$ an, was beinahe dem maximalen Meßfeld bei den durchgeführten Versuchen entspricht. Um keine zusätzliche Bewegung der Ionen durch andere Felder zu haben, wurde hier ganz darauf verzichtet.

[7] vgl. S. 57ff in E. Rutherford, J. Chadwick, C.D. Ellis: "Radiations from Radioactive Substances", University Press, Cambridge, 1951

[8] R.A. Schluter, S.C. Wright: Review of Scientific Instruments **26**, 1053 (1955)

[9] H. Slätis: Nuclear Instruments and Methods **1**, 213 (1957)

Die Positionierung des Detektors ist aus Abbildung 4.1 entnehmbar. Um ihn von den $\gamma$-Quanten aus der oberen Kammerregion abzuschirmen, wurden verschiedene Bleiabschirmungen gegossen. Vor den eigentlichen Versuchen wurden diese getestet, wobei zwei Effekte gegenläufig waren: Das gewünschte Zählratenverhältnis bei angelegter Spannung (Kathode beim Detektor) war umso größer, je dicker die Abschirmung (28) war, gleichzeitig aber ging die Gesamtzählrate wegen des größeren Abstands von der Kammer zurück. Als Kompromiß wurde dann vor dem Detektor eine $20\,mm$ dicke Abschirmung verwendet. Dieser Wert ist zu vergleichen mit den Halbwertsdicken in Blei[10] von $3.5\,mm$ für $472\,keV$-$\gamma$-Quanten und $7.5\,mm$ bei $874\,keV$. Die große Bleiabschirmung um den Detektor diente vorallem zur Abschirmung der Strahlung aus dem Gassystem.

## 4.3 Test der Diffusionskammer

Vor Beginn der Beweglichkeitsmessungen wurde die Kammer bezüglich ihrer Trägheit bei Temperaturänderungen untersucht. Dabei stellte sich heraus, daß die Kammer ausgehend von Zimmertemperatur in ca. einer Stunde die maximal mögliche Temperaturdifferenz erreichte, die dann bei konstanter Heiz- und Kühlleistung konstant blieb. Wesentlich schneller stellte sich ein neues Gleichgewicht, bzw. ein neuer 'steady state' ein, wenn man das System durch die Änderung des Alkoholflusses störte. Typische Temperaturverteilungen in der Kammer mit und ohne Alkoholfluß zeigt Abbildung 4.4, die die Ergebnisse von Langsdorf (vgl. Abbildung 4.3a) bestätigt.

In sämtlichen fünf Testläufen mit Wasser, Ethanol und einer Mischung von beiden und den späteren Experimenten wurde nach durch radioaktive Strahlung verursachte Kondensationsspuren gesucht, aber nie etwas gefunden, was aber niemanden von denen wunderte, die mit diesen Kammern Erfahrung hatten, da der Betrieb einer Diffusionskammer im allgemeinen schwierig ist.

Umso deutlicher war aber die Kondensation an allen nicht zu warmen Oberflächen in der Kammer; denn schlagartig nach dem Öffnen des Alkoholventils bildeten sich überall, vorallem an den vielen Drähten, Tröpfchen. Dies ist natürlich sehr ungünstig, da dadurch die Übersättigung im Gas sinkt, was die Ursache dafür sein könnte, daß keine Spuren sichtbar wurden.

## 4.4 Experimente mit der Diffusionskammer

### 4.4.1 Gasverteilungsexperiment

Da, wie in Abschnitt 4.2.1 geschildert, eine homogene Verteilung des bestrahlten Gases in der Meßkammer unerläßlich für ein Gelingen der Experimente ist, wurde geprüft, ob eine zeitliche Abhängigkeit der Zählraten vorliegt. Dazu wurde fünfmal folgende Meßreihe durchgeführt:

Gleich nach dem Einströmen in die mit Neon gefüllte Meßkammer wurde die erste Messung gestartet und nach 60 Sekunden gestoppt. Danach waren ca. 17 Sekunden nötig, um das $\gamma$-Spektrum abzuspeichern, den Inahlt des Vielkanalanalysators zu löschen und die nächste Messung zu starten. So wurden bei jeweils $-400\,V$ Spannung hintereinander vier Spektren jeweils über 60 Sekunden gemessen.

[10] vgl. S. App-13f in C.M. Lederer, V.S. Shirley: "Table of Isotops", John Wiley & Sons Inc., New York, 7.Auflage, 1978

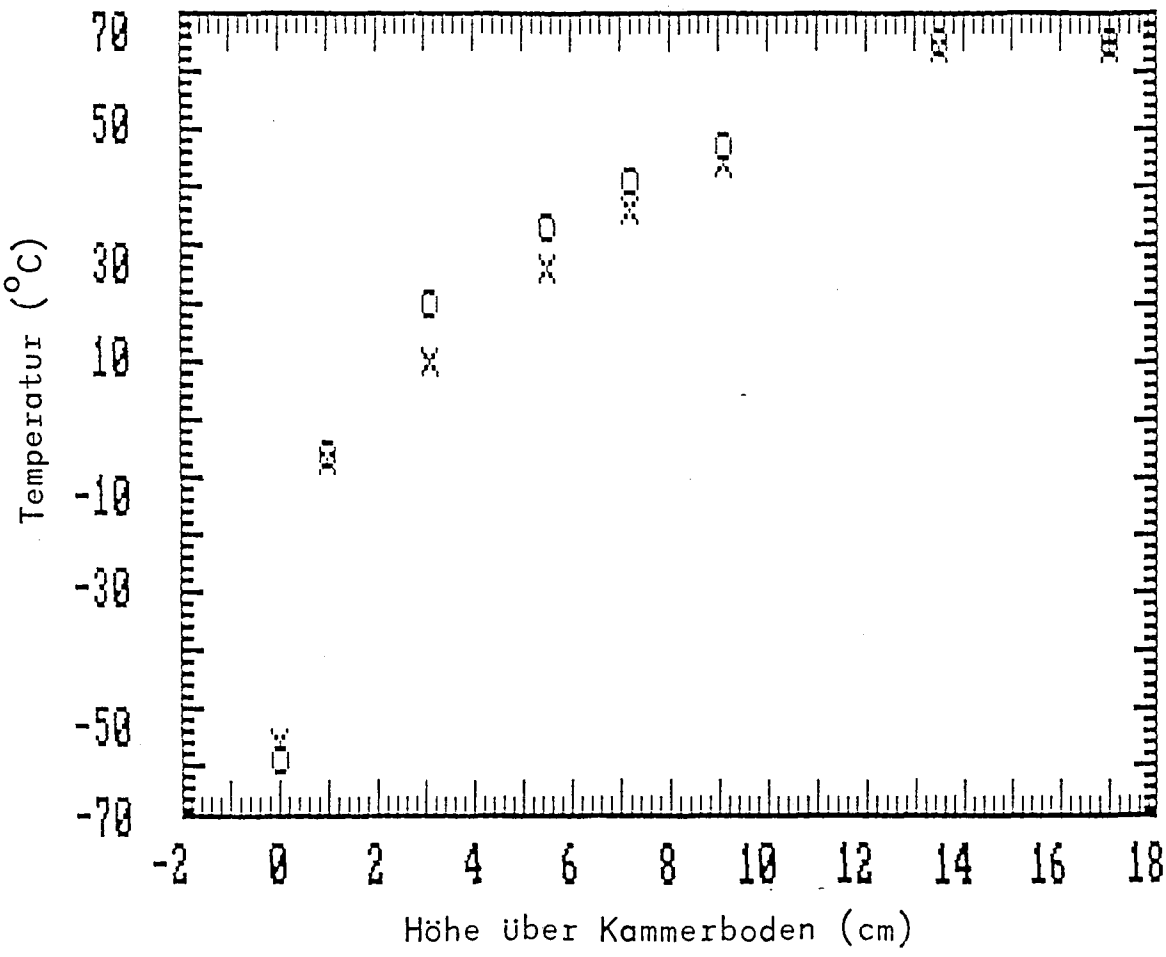



Abbildung 4.4: Temperaturverteilung in der Diffusionskammer
Die Kreuze sind die Werte ohne Alkohol, die Kreise für einen nicht zu großen Alkoholfluß.

Nach Aufnahme der fünf Meßreihen wurden die Peakflächen für die beiden interessanten Peaks bei 472 $keV$ und 874 $keV$ berechnet und, um die Statistik zu verbessern, die jeweils ersten, zweiten, dritten und vierten Messungen der einzelnen Meßreihen getrennt zu $P_1$, $Q_1$, $P_2$, $Q_2$, usw. aufaddiert, wobei P bzw. Q die Peakflächen bei 472 bzw. 874 $keV$ sind. Es ergaben sich die Werte der Tabelle 4.1.

Tabelle 4.1: Peakflächen und -Verhältnisse beim Gasverteilungsexperiment

| i | $P_i$ | $Q_i$ | $\frac{P_i}{Q_i}$ | $\frac{P_i}{P_{i-1}}$ | $\frac{Q_i}{Q_{i-1}}$ |
|---|---|---|---|---|---|
| 1 | 287176 | 12204 | 23,53 | - | - |
| 2 | 215315 | 9221 | 23,35 | 0.750 | 0.756 |
| 3 | 164471 | 6978 | 23,57 | 0.764 | 0.767 |
| 4 | 126110 | 5279 | 23,89 | 0.767 | 0.757 |

Da das Gas von hinten einströmt (vgl. 4.2.1), müßte, wenn die Einströmgeschwindigkeit trotz des dünnen Einlaßröhrchens nicht groß genug wäre, das Gas anfangs hinten in der Kammer sein, und sich dann durch die Diffusion langsam in der Kammer verteilen. Weil das Peakflächenverhältnis $\frac{P_i}{Q_i}$ zeitunabhängig ist, und die Abnahme der Peakflächen $P_i$ und $Q_i$ der Abnahme der Aktivität auf 76.9% in 77 Sekunden entspricht, kann man davon ausgehen, daß das eingelassene bestrahlte Neon von anfang an homogen in der Kammer verteilt ist.

### 4.4.2 Eichmessungen mit Neon

Erstens zum Test, ob die Form der Kurve der normierten Peakflächenverhältnisse in Abhängigkeit vom Quotienten aus dem elektrischen Feld und dem Druck auch für die geänderte Geometrie richtig ist, und zweitens als Eichmessung für die Beweglichkeit des Neons wurde eine Kurve $R_n(\frac{E}{p})$ für reines Neon bei $p = 600\,mbar$ gemessen. Für eine dem neuen Aufbau angenäherte Geometrie wurden wieder die Raumwinkeländerungen in Abhängigkeit von der Ionengeschwindigkeit berechnet, während das Fitprogramm wieder bei negativen Spannungen für die Anpassung an die Eichkurve sorgte, wie es in Abbildung 4.5 zu sehen ist.

Doch ist deutlich, daß die Fitkurve für positive Spannungen überhaupt nicht mehr paßt, da der Abfall dort viel zu klein ist. Da die Geometrie nur grob angenähert war, könnte man daran denken, daß dies die Ursache sein könnte. Da aber die gemessene Abnahme des Peakflächenverhältnisses um ca. 20% in Sättigung im Vergleich zur Zunahme bei negativen Spannungen um ca. 30% sehr groß ist gegenüber den entsprechenden Werten von 30% bzw. 105% bei den Messungen mit der anderen Meßkammer, liegt eher eine Änderung des Verhaltens der experimentellen Kurve vor, die durch die veränderte Geometrie verursacht sein kann.

### 4.4.3 Experimente zum Nachweis von Clustern

Für diese Experimente wurde die Diffusionskammer, wie in Abschnitt 4.2.2 beschrieben, betrieben. Da die Experimente nicht so günstig verliefen, daß die Beweglichkeit der $Na^+$-Ionen vernünftig als Funktion eines Parameters, z.B. des Temperaturgradienten oder des Alkoholpartialdrucks, aufgetragen werden könnte, sollen die Daten in der zwar

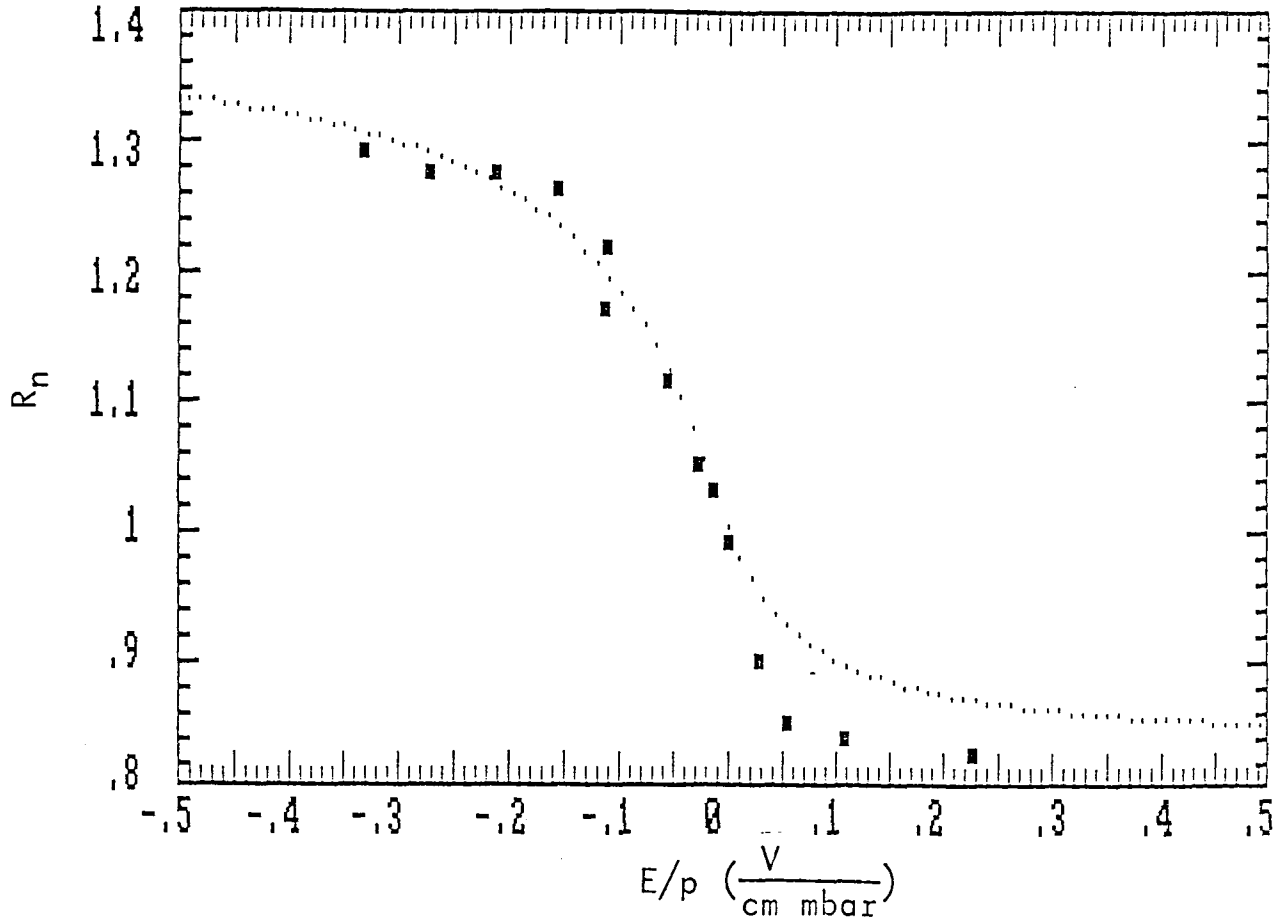



Abbildung 4.5: Eichkurve für reines Neon: normierte Peakflächenverhältnisse in Abhängigkeit von $\frac{E}{p}$

nicht befriedigenden, aber wenigstens keine falschen Eindrücke vermittelnden zeitlichen Reihenfolge ihrer Messung dargestellt werden. In einer "vernünftigen" Darstellung dagegen sollte ein reproduzierbarer funktionaler Zusammenhang bestehen, der aber bis auf den Sprung der Beweglichkeit kurz nach dem Start der Messung nicht gefunden werden konnte, was weiter unten ausführlich erläutert wird.

Aufgrund der kontinuierlichen Änderungen der Temperatur war es nicht möglich, für jede Temperaturdifferenz eine ganze Kurve $R_n(\frac{E}{p})$ aufzunehmen. Deshalb wurde bis auf einzelne Kontrollmessungen immer bei einer konstanten Spannung von $-400\,V$ gemessen. Die Kontrollmessungen wurden meist zur Überprüfung des Peakflächenverhältnisses bei $0\,V$ oder zum Test bei positiven Spannungen gemacht. Diese sind dann in der Graphik nicht eingetragen.

Vor Beginn der Experimente wurde die Kammer jeweils evakuiert, mit $300\,mbar$ Neon gefüllt und dann der Alkoholzufluß geöffnet. Während der Experimente kamen dann zu jeder Messung $6\,mbar$ bestrahltes Neon in die Kammer, das nach drei Messungen wieder vorsichtig abgepumpt wurde. Wie das eingelassene Neon mußte auch der zugeflossene Alkohol ab und zu abgelassen werden (vgl. 4.2.1), was bisweilen eine deutliche Temperaturänderung in der Kammer zur Folge hatte, vorallem in Bodennähe, wenn ziemlich viel Alkohol drin war.

Für jede Messung wurden folgende Daten festgehalten:

Zeit nach Beginn des Experiments, Temperaturen T1 bis T8, der Druck in der Diffusionskammer, der Alkoholstand in der Pipette, die als Vorratsgefäß diente, um den Alkoholfluß zu überwachen, und die angelegte Spannung. Ferner wurden über eine schnelle, aber ungenaue Peakauswertungsmethode die beiden interessanten Peakflächen und deren Verhältnis ermittelt, sodaß man auch während des Experiments schon ungefähr sah, was passierte.

#### 4.4.3.1 Erstes Experiment

Als Maß für den Temperaturgradienten in der Kammer wurde die Differenz T5-T2 (vgl. 4.2.1) verwendet, wobei T5 unterhalb der Filterplatte und T2 ungefähr in der Mitte des Bereichs mit dem elektrischen Feld gemessen wurde. Zum Vergleich mit der Mobilitätskurve sind diese Temperaturdifferenz und der Alkoholpartialdruck in Abbildung 4.6b auch in Abhängigkeit von der Meßnummer aufgetragen.

Zum Vergleich mit den aus dem gemessenen Peakflächenverhältnis berechneten Beweglichkeiten der $Na^+$-Ionen wurde aus den Ethanol- und Neonpartialdrücken nach der Blanc'schen Mischungsformel (vgl. 2.3.3) die für den Fall, daß keine großen Cluster wachsen, erwartete Beweglichkeit bestimmt. In Unkenntnis der wirklichen Partialdruckverteilungen in der Kammer (vgl. 4.2.2) wurde so gerechnet, als wären beide Gase homogen verteilt, was im unteren Bereich der Kammer, da dort mehr Neon ist, zu einer zu kleinen berechneten Beweglichkeit führt. Diese Kurve ist in Abbildung 4.6a mit den Kreuzen dargestellt, während die Rechtecke die Verhältnisse $\frac{\mu_{0ges}}{\mu_{0Neon}}$ sind, wobei die Werte ohne Fehlerbalken aus dem mitgeführten Protokoll genommen wurden, da die Daten falsch abgespeichert waren.

Die Temperatur T8 des Bodens wurde während des ganzen Experiments auf konstanten $-10^oC$ gehalten. 15 Minuten nach Beginn des Heizens des Kammerdeckels und des Öffnens des Alkoholventils begannen die Messungen mit Nr. 21. Bald schon wurde ein plötzlicher Abfall der Beweglichkeit gesehen dann aber ein langsamer Anstieg. Als die Anfangsbeweglichkeit wieder erreicht war, wurde mit dem Heizen aufgehört und die Be-

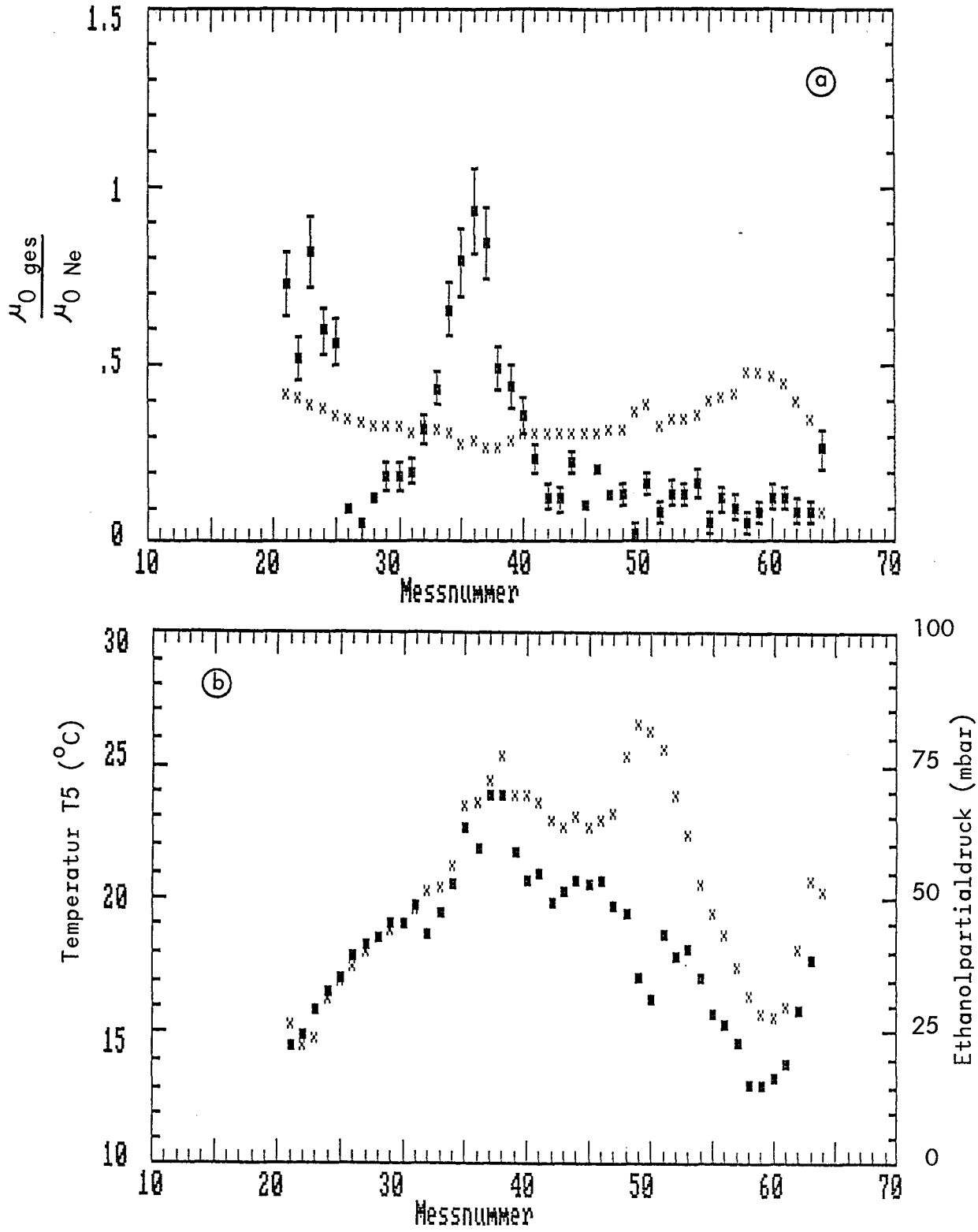



Abbildung 4.6: Relative Beweglichkeit, Temperatur und Ethanolpartialdruck bei der ersten Diffusionskammermessung

a: Rechtecke: Beweglichkeit, normiert auf die in reinem Neon mit 1-$\sigma$-Fehlern.

Kreuze: Beweglichkeit berechnet mit der Gasmischungformel aus den Partialdrücken von Neon und Ethanol.

b: Temperatur T5 (Kreuze, linke Skala) und Ethanolpartialdruck (Rechtecke, rechte Skala)

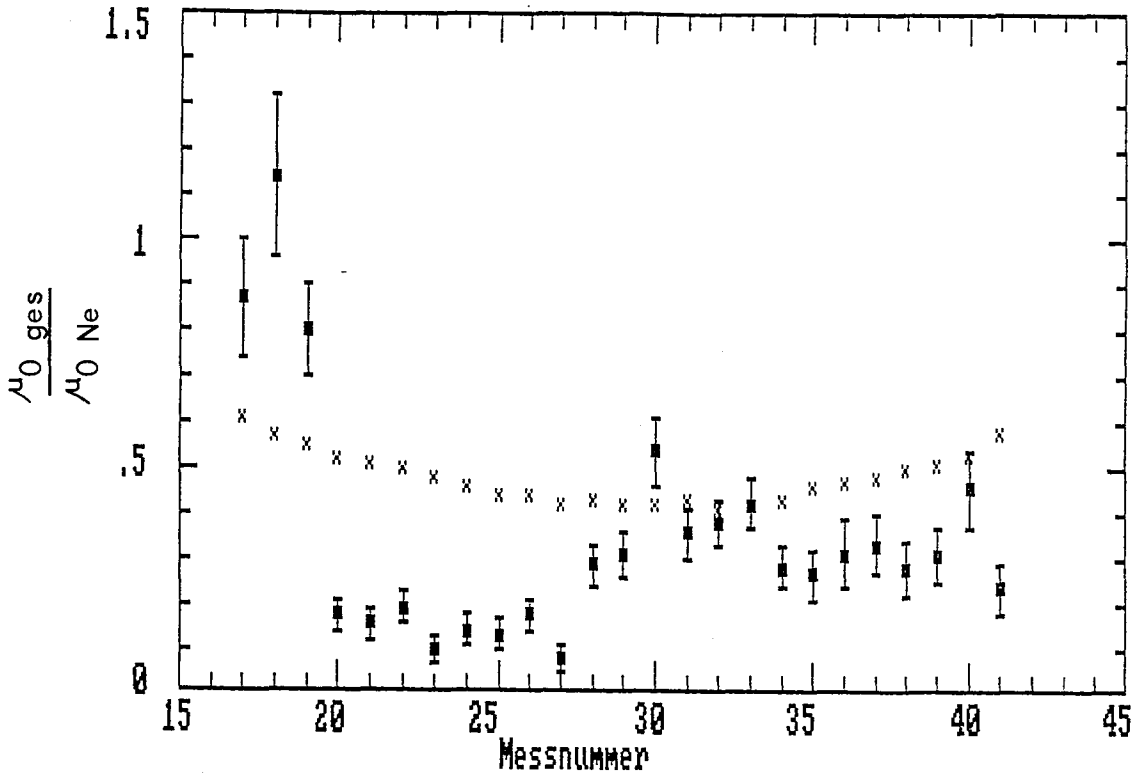



Abbildung 4.7: Relative Beweglichkeit bei der zweiten Diffusionskammermessung
Rechtecke: Beweglichkeit, normiert auf die in Neon mit 1-$\sigma$-Fehlern.
Kreuze: Beweglichkeit berechnet mit der Gasmischungformel aus den Partialdrücken von Neon und Ethanol.

weglichkeit sank wieder verhältnismäßig langsam ab, worauf von Messung 43 bis 48 wieder etwas geheizt wurde, um nochmal den Anstieg zu sehen. Doch dies trat nicht ein; die Beweglichkeit blieb unten, auch noch, als dann oben wieder abgekühlt wurde, und sogar noch, als am Ende ab Messung 60 der Boden wieder aufgeheizt wurde, sodaß bei Messung 63 praktisch die ganze Kammer auf Zimmertemperatur, die Beweglichkeit aber sehr klein war.

#### 4.4.3.2 Zweites Experiment

Mit dem zweiten Experiment sollte das erste wiederholt werden. So wurde wieder mit konstanter Bodentemperatur $T8 = -10°C$ gemessen und oben geheizt bis Messung 32, von der ab dann oben gekühlt wurde. Abbildung 4.7 zeigt wie Abbildung 4.6a die berechnete und gemessene Mobilität. Deutlich zu sehen ist wieder das plötzliche Absacken der Beweglichkeit am Anfang. Danach erfolgt noch während der Heizphase ein nur kleiner Anstieg, nach dem sich nichts mehr signifikant ändert.

### 4.4.4 Diskussion der beiden Experimente

#### 4.4.4.1 Analyse des Beweglichkeitssprungs in der Anfangsphase der Experimente

Beiden Experimenten gemeinsam ist das plötzliche Absinken der Beweglichkeit der $Na^+$-Ionen in der unteren Kammerregion relativ kurz nach Beginn der Experimente.

Dieser Punkt verdient eine genauere Analyse. Vergleicht man die Temperaturen T7 des Deckels miteinander, so sieht man, daß sie mit $31.7°C$ bzw. $31.7°C$ für die Experimente 1 bzw. 2 gleich waren. Wenn man berücksichtigt, daß sie jeweils zu Beginn der Messung gemessen wurden, und die Sprünge pro Messung bei ca. $1.6\,K$ lagen, wäre sogar noch ein Unterschied von $2\,K$ noch als ungefähr gleich anzusehen, sodaß die exakte Übereinstimmung Zufall sein dürfte. Wie sind nun die Beweglichkeitssprünge zu erklären?

Betrachtet man die Beweglichkeiten jeweils bei den ersten Messungen vor dem Sprung, so erkennt man, daß diese nur geringfügig kleiner sind (ca. 30%) als in reinem Neon, und dann plötzlich auf 20% der Anfangsbeweglichkeit absinken. Dieser Wert ist erstaunlich gleich bei beiden Experimenten. $\frac{\mu_{0ges}}{\mu_{0Ne}} = 0.7$ bedeutet bei Anwendung der Blanc'schen Mischungsformel einen Anteil von nur 5% Ethanol, d.h. bei $p_{Ne} = 300\,mbar$ $16\,mbar$ Ethanol in der Bewegungszone , was bei $50\,mbar$ Durchschnittsethanolpartialdruck unter Beachtung von Abbildung 4.3b vernünftig zu sein scheint. $\frac{\mu_{0ges}}{\mu_{0Ne}} = 0.14$ ergibt jedoch einen Anteil von 77% Ethanol, was bei $300\,mbar$ Neon $1004\,mbar$ Ethanol wären, was weit über dem mittleren Alkoholdruck von $50\,mbar$ liegt. Aus diesem Grund und der *sprung*haften Änderung wird angenommen, daß die niedrigen beobachteten Beweglichkeiten auf die Bildung von Clustern in einer Zone übersättigten Ethanoldampfes zurückzuführen sind. Daß die Beweglichkeit nicht ganz auf Null zurückgeht, kann mehrere Ursachen haben:

1. Die Zone mit der für die Bildung von größeren Clustern ausreichenden Übersättigung reicht eventuell nicht über die ganze Höhe des Gebiets mit dem elektrischen Feld.

2. Randeffekte: Wegen des Einflußes der Wandtemperatur auf das Gas in der Nähe der Wand (vgl. 4.2.2) und der beobachteten Kondensation an den Wänden ist es wahrscheinlich, daß die Übersättigung in der Randzone kleiner als im übrigen Volumen ist.

3. Je nach Größe der Cluster haben diese auch eine nicht vernachlässigbare Beweglichkeit. Zu beachten ist dabei, daß die Beweglichkeit bei weitem nicht indirekt proportional zur Masse ist, da schwere Cluster natürlich durch Stöße mit den leichten Gasmolekülen nur schwach gebremst werden. Lenard[11] zeigt in einer Tabelle (vgl. Abbildung 4.8) die Beweglichkeit von Clusterionen in Luft, wobei er diese gaskinetisch und hydrodynamisch berechnet hat:

   Aus dieser Tabelle wird auch deutlich, daß der Übergang von der kinetischen Gastheorie zur hydrodynamischen Stokes-Formel bei einem Partikelradius von ungefähr 50 $\mathring{A}$ stattfindet, wobei der Unterschied in der Beweglichkeit bei 10 $\mathring{A}$ aber auch noch nicht sehr groß ist.

4. Je nach der Zeit, die für eine Clusterbildung nötig ist, kann sich im Anfangsstadium das Ion noch ziemlich schnell bewegen.

#### 4.4.4.2 Der weitere Verlauf der Experimente

Nach dem oben diskutierten Sprung in der Beweglichkeit erfolgte bei beiden Experimenten wieder ein Ansteigen der Beweglichkeit noch während der Phase, wo man durch Heizen des Kammerdeckels den Temperaturgradienten vergrößerte. Bei der ersten Messung stieg die Beweglichkeit wieder bis auf den Anfangswert, bei der zweiten nur auf einen

[11] vgl. S. 389 in K. Przibram: in "Handbuch der Physik" (Hrsg.: H. Geiger, K. Scheel), Bd. XXII, Teil I, Kap. 4, Verlag von Julius Springer, Berlin, 1933

| Partikelradius in $10^{-8}$ cm | Art der Teilchen | Gaskinetisch | Hydrodynamisch |
|---|---|---|---|
| | | $u$ | $u$ |
| 0 | freies Elektron | $10{,}6 \cdot 10^{3}$ | $\infty$ |
| 1,5 | Luftmolekel | 13,4 | 28,6 |
| 10 | | 0,49 | 0,62 |
| 20 | | 0,14 | 0,16 |
| 50 | | 0,025 | 0,025 |
| 100 | ultramikroskopisch | 0,0064 | 0,0067 |
| 500 | | $2{,}7 \cdot 10^{-4}$ | $3{,}3 \cdot 10^{-4}$ |
| 1000 | | $6{,}7 \cdot 10^{-5}$ | $10{,}6 \cdot 10^{-5}$ |
| 10000 | | $6{,}7 \cdot 10^{-7}$ | $5{,}1 \cdot 10^{-6}$ |

Abbildung 4.8: Abhängigkeit der Beweglichkeit von der Teilchengröße nach Lenard

Mittelwert. Die Erfahrungen mit den Diffusionskammern zeigen, daß die sensitive Zone umso höher wird, je größer der Temperaturgradient wird. Dabei bleibt ihre untere Grenze aber immer in Bodennähe und nur die obere Grenze wandert nach oben[12]. Nimmt man an, daß dies auch für die hier verwendete Diffusionskammer der Fall ist, könnte man den Anstieg der Beweglichkeit so erklären: In den üblichen Diffusionskammern mußten zur Funktionstüchtigkeit immer die Ionen in der nicht sensitiven Zone durch elektrische Felder beseitigt werden (vgl. 4.2.3). Da dies hier wegen der Störung der Messung durch andere Felder nicht gemacht werden konnte, herrschte in der Kammer eine vergleichsweise hohe Ionendichte (vgl. auch 2.2.3), sodaß es möglich erscheint, daß die Übersättigung durch das Clustern auf sehr vielen Ionen schon in der oberen Schicht soweit abgebaut wird, daß sie weiter unten zur Clusterbildung nicht mehr ausreicht. Dies würde bedeuten, daß in dieser Kammer die sensitive Zone richtig nach oben wandert, sodaß die Beweglichkeit im unteren Bereich, wo sie gemessen wird, wieder zunimmt. Eine Erklärungsmöglichkeit für das nur leichte Ansteigen beim dritten Experiment wird später gegeben.

Zunächst soll der weitere Verlauf der Experimente diskutiert werden, was sehr schwer fällt, da keine Gemeinsamkeiten mehr zuverlässig erkennbar sind. Vielmehr scheint es so, daß die Unberechenbarkeit der Ereignisse in der Kammer mit zunehmender Dauer des Experiments stark zunimmt. Woran könnte dies liegen? Zum einen sammelt sich in der Kammer immer mehr von der 15 $h$-Aktivität des $^{24}Na$ an, wodurch die Ionendichte immer weiter steigt, was, wie oben gezeigt wurde, die Experimente erschwert. Zum andern läuft ja während des ganzen Experiments immer Alkohol nach, verdunstet oben und kondensiert an allen etwas kälteren Stellen in der Kammer. So sammelt sich an manchen Orten in der Kammer wegen der für die Messungen notwendigen Inneneinrichtung viel Alkohol an, der das empfindliche Diffusions-Gleichgewicht stören kann. Darin könnte auch die Erklärung für das nur schwache Ansteigen der Mobilität nach dem ersten Absinken beim zweiten Experiment liegen. Während beim ersten Experiment vor den eigentlichen Messungen die Kammer gut evakuiert wurde, und nur Eichmessungen bzw. Gasverteilungsmessungen mit reinem Neon gemacht wurden, wurde vor dem zweiten Experiment zum Test die Beweglichkeit in Ethanol bei Zimmertemperatur untersucht, wodurch die Kammer schon vor Beginn des Experiments unter "Alkoholeinfluß" stand und vielleicht deshalb früher

[12]H. Slätis: Nuclear Instruments and Methods 1, 213 (1957)

"durchdrehte", d.h. nicht mehr richtig funktionierte.

# Kapitel 5

# Vorschläge für weitere Experimente und Ausblick

In der vorliegenden Arbeit wurde gezeigt, daß die vorgestellte Tracermethode die Messung von relativen Ionengeschwindigkeiten erlaubt. Gleichzeitig wurde aber deutlich, daß die nie vollkommen beseitigten Verunreinigungen die Messungen stark beeinflußten. Deshalb erscheint es notwendig, die Meßapparatur dahingehend zu verbessern, daß man mit hochreinen Gasen messen kann. Dazu könnte der Einsatz eines Massenspektrometers zur Gasanalyse hilfreich sein, wenn es gelingt, aus der unter verhältnismäßig hohem Druck stehenden Meßkammer eine *repräsentative* Gasprobe in das Massenspektrometer zu bringen, was erfahrungsgemäß nicht einfach ist.

Noch einen Schritt weiter wäre die Untersuchung der Temperaturabhängigkeit der Beweglichkeit. Während zu kälteren Temperaturen hin die Messungen bis auf die notwendige Kühlung nicht sehr viel schwieriger werden sollten, gibt es bei höheren Temperaturen ein weiteres Problem mit den Verunreinigungen. Denn üblicherweise werden Gassysteme durch Ausheizen gereinigt, wobei die Ausheiztemperatur weit über der Meßtemperatur liegen sollte. Somit liegt die Schwierigkeit bei Messungen mit hohen Temperaturen darin, daß man dann bei noch erheblich höheren Temperaturen ausheizen muß, um die Verunreinigungen möglichst gut zu beseitigen. Gerade bei Messung der Temperaturabhängigkeit ist diese Beseitigung noch wichtiger als bei anderen Experimenten, da die Änderung der Temperatur einen großen Einfluß auf die Clustergröße hat.

Zur Untersuchung der Anwendbarkeit der Methode zum Nachweis der Bildung von größeren Clustern könnte auch die Fortführung des Experiments mit der Diffusionsnebelkammer sinnvoll sein, wenn es gelingt, die Diffusionskammer zumindest einige Zeit lang in einem wohldefinierten, reproduzierbaren Zustand zu betreiben. Dann könnte man vielleicht durch verfeinerte Untersuchungsmethoden nicht nur die geringe Beweglichkeit der Cluster selbst nachweisen, sondern auch weitere Aufschlüsse über das Verhalten der Diffusionskammer außerhalb des 'steady state' erfahren, z.B. über das Wandern der sensitiven Zone bei Anwesenheit von verschieden großen Ionenkonzentrationen.

Aufgrund der bei den bisherigen Messungen verwendeten elektrischen Felder konnte die Rekombination der Ionen bis zum Zerfall des isomeren Zustands vernachlässigt werden. Sorgt man aber dafür, daß die Felder kleiner werden, könnte die Ionendichte so groß werden, daß eine nennenswerte Rekombination auftritt. Um dies zu untersuchen, könnte man versuchen nicht mehr – wie bisher – nur mit Gleichspannungsfeldern sondern auch mit anderen Spannungsformen, z.B. Rechteck- oder überlagerten Wechselspannungen zu arbeiten. Dies wäre sinnvoll, wenn die Ionen ohne elektrisches Feld besser rekombinieren

können als im elektrischen Feld. Dies ist nicht unwahrscheinlich, da sich bei Abwesenheit negativer Ionen zur Rekombination positive Ionen und Elektronen treffen müssen, was wegen der hohen Elektronengeschwindigkeiten im Feld schwieriger sein sollte.

Als Anwendungen für die beschriebene Tracer-Methode kommen vorallem Beweglichkeitsmessungen in der Nähe des Kondensations- und des kritischen Gebiets verschiedener Gase in Frage. Zunächst natürlich bei Neon selbst, da dann das bestrahlte und das zu messende Gas gleich wären. Allerdings ist die Siedetemperatur von Neon bei Normaldruck 27.1 $K$ und die kritische Temperatur 44.4 $K$ beim kritischen Druck von 27.22 $bar$, sodaß für Untersuchungen in diesen Gebieten mit flüssigem Helium gekühlt werden müßte. Besonders interessant bei Experimenten am Kondensationspunkt wäre eine Bestimmung der Clustergrößen, sei es der Mittelwert oder sogar die ganze Clustergrößenverteilung, da schon Munson[1] ein Clustern von Edelgasatomen auf Alkaliionen bei tiefen Temperaturen beobachtet hat. Da neben dem idealen Gasgesetz auch die Van-der-Waals-Gleichung in der Nähe des Kondensationspunktes nicht mehr gilt, klingt es verlockend, die Abweichungen davon durch die Bildung von Clustern und einer dadurch verringerten Teilchenzahl zu erklären.

Nicht weniger interessant wären Beweglichkeitsmessungen in der Nähe des kritischen Punktes. Das Hauptproblem jedoch dürfte darin liegen, daß die Gase am kritischen Punkt einige thermodynamische Besonderheiten aufweisen, die eine lange Zeit erfordern, bis sich das thermodynamische Gleichgewicht eingestellt hat. Dies wurde besonders deutlich bei der Untersuchung der Elektronenbeweglichkeiten in diesem Gebiet[2]. Dies hat zur Folge, daß die Anwendung des $^{24}Ne$ als Mutterisotop des $^{24m}Na$ mit seiner Halbwertszeit von nur 3.38 Minuten schon allein deswegen schwierig sein dürfte.

[1] R.J. Munson, K. Hoselitz: Proceedings of the Royal Society of London **A172**, 43 (1939)

[2] vgl. S. 66ff in R. Eibl: "Untersuchungen zur Elektronenbeweglichkeit in Argon insbesondere im Bereich des kritischen Punktes", Dissertation an der TUM, 1986

# Anhang A

# Programm zur Berechnung der Abhängigkeit des Peakflächenverhältnisses von der Geschwindigkeit der $^{24m}Na^{+}$-Ionen für eine einfache Geometrie

Gegeben sei die Geometrie von Abbildung A.1: Sowohl der Detektorkristall als auch die Meßkammer seien zylindrisch und ihre Zylinderachsen seien beide mit der z-Achse des so gewählten Koordinatensystems identisch. Der Ursprung liege im Mittelpunkt des Detektorkristalls. Es wird so gerechnet, als werde im Detektor jedes $\gamma$-Quant registriert, das durch die von dem vereinfachten Kristall gebildete Fläche geht. Daß die Effizienz für verschiedene $\gamma$-Energien verschieden ist, spielt keine Rolle, da es ein konstantes Verhältnis ist, das am Schluß bei der Normierung herausfällt.

Die Meßkammer habe den den Radius R, die Länge L und A sei der Abstand zwischen dem Kristall und dem linken Ende der Kammer.

Im Prinzip arbeitet das Programm nun so, daß es zu einer gegebenen Ionengeschwindigkeit unter Vernachlässigung der Diffusionsbewegung für alle Punkte in der Meßkammer die mittleren Raumwinkeländerungen aufintegriert.

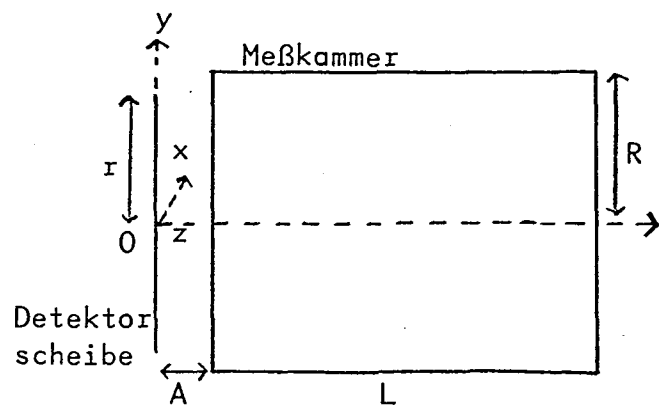



Abbildung A.1: Für die Computersimulation benutzte Geometrie

1. In einem ersten Schritt soll jetzt der Raumwinkel $\Omega$ berechnet werden, unter dem der Detektorkristall von einem beliebigen Punkt des Koordinatensystems aus gesehen wird, wobei ohne Einschränkung $z>0$ angenommen werden soll. Allgemein gilt:

$$\Omega = \int_{\vartheta_1}^{\vartheta_2} \sin\vartheta d\vartheta \int_{\varphi_1}^{\varphi_2} d\varphi = \int_{\vartheta_1}^{\vartheta_2} \sin\vartheta d\vartheta(\varphi_2 - \varphi_1)$$

Die Bezeichnungen können aus den Abbildungen A.1 und A.2 abgelesen werden. Es wird nun für einen Punkt mit den Koordinaten $(0, y, z)$ der Raumwinkel $\Omega$ als Integral angegeben. Wegen der Zylindersymmetrie kann auf eine x-Koordinate verzichtet werden; später wird dann statt $\Omega(x, y, z)$ mit $\Omega(0, \sqrt{x^2+y^2}, z)$ gerechnet. Offensichtlich ist:

$$\vartheta_1 = \frac{\pi}{2} + \arctan\frac{y-r}{z} \quad und \quad \vartheta_2 = \frac{\pi}{2} + \arctan\frac{y+r}{z}$$

Aus der Zeichnung liest man ab: $\varphi_1 = \varphi_2$ (da $x=0$), $\tan\varphi_1 = \frac{s}{d}$, $d = \frac{z}{\sin\vartheta}$ (deshalb darf $z$ nicht Null werden).
Mit Pythagoras folgt: $s = \sqrt{(2r-e)e}$
$e$ erhält man aus $\vartheta = \frac{\pi}{2} + \arctan\frac{y-r+e}{z}$:

$$e = r - y + z\tan(\vartheta - \frac{\pi}{2})$$

Nach trivialem Einsetzen:

$$\Omega(0, y, z) = 2\int_{\vartheta_1}^{\vartheta_2} \sin\vartheta \arctan\left[\frac{\sin\vartheta}{z}\sqrt{r^2 + (y + z\cot\vartheta)^2}\right] d\vartheta$$

Es wurde zwar versucht, dieses Integral analytisch zu lösen, es gelang aber nur für $y=0$, d.h. für Punkte auf der $z$-Achse.

2. Im zweiten Schritt soll nun die mittlere Raumwinkeländerung für ein Ion, das zur Zeit $t=0$ am Ort $(x, y, z_o)$ entsteht, berechnet werden. Die Raumwinkeländerungen für ein einzelnes Ion zu berechnen, ist insofern unmöglich, als daß der Zerfall des metastabilen Zustands den statistischen Gesetzen des radioaktiven Zerfalls gehorcht. Eine Rechnung mit der mittleren Zerfallszeit verbietet sich hier wegen der Nichtlinearität der Raumwinkeländerungen pro Zeit und wegen der Begrenzung der Bewegung durch die Elektroden. Deswegen mußte dem Ion zum Entstehungszeitpunkt eine Aktivität $A_0$ zugeordnet werden[1], die im Laufe der Zeit abnimmt: $A(t) = A_0\exp(-\lambda t)$ mit $\lambda = \frac{\ln 2}{T_{1/2}}$ und $T_{1/2} = 20\,ms$. Mit konstanter Geschwindigkeit $v = \frac{dz}{dt}$: $A(z) = A_0\exp(-\lambda\frac{z-z_0}{v})$. Dabei ist zu beachten, daß $v$ als positiv definiert wurde, wenn sich das Ion in positive $z$-Richtung bewegt. Um den mittleren Raumwinkel $\Omega(x, y, z_0)$ für das $472\,keV$-$\gamma$-Quant dieses Ions zu berechnen, muß man über sein ganzes Leben die mit der Aktivität multiplizierten Raumwinkel aufintegrieren und auf die mittlere Aktivität normieren:

$$\overline{\Omega}(x, y, z_0) = \frac{\int_0^\infty A(t)\Omega(t)dt}{\int_0^\infty A(t)dt}$$

[1]Es ist natürlich problematisch, einem einzelnen Ion eine Aktivität zuzuordnen. Zur Vereinfachung der Rechnung sei es hier erlaubt, da $A_0$ bei der Normierung herausfällt.

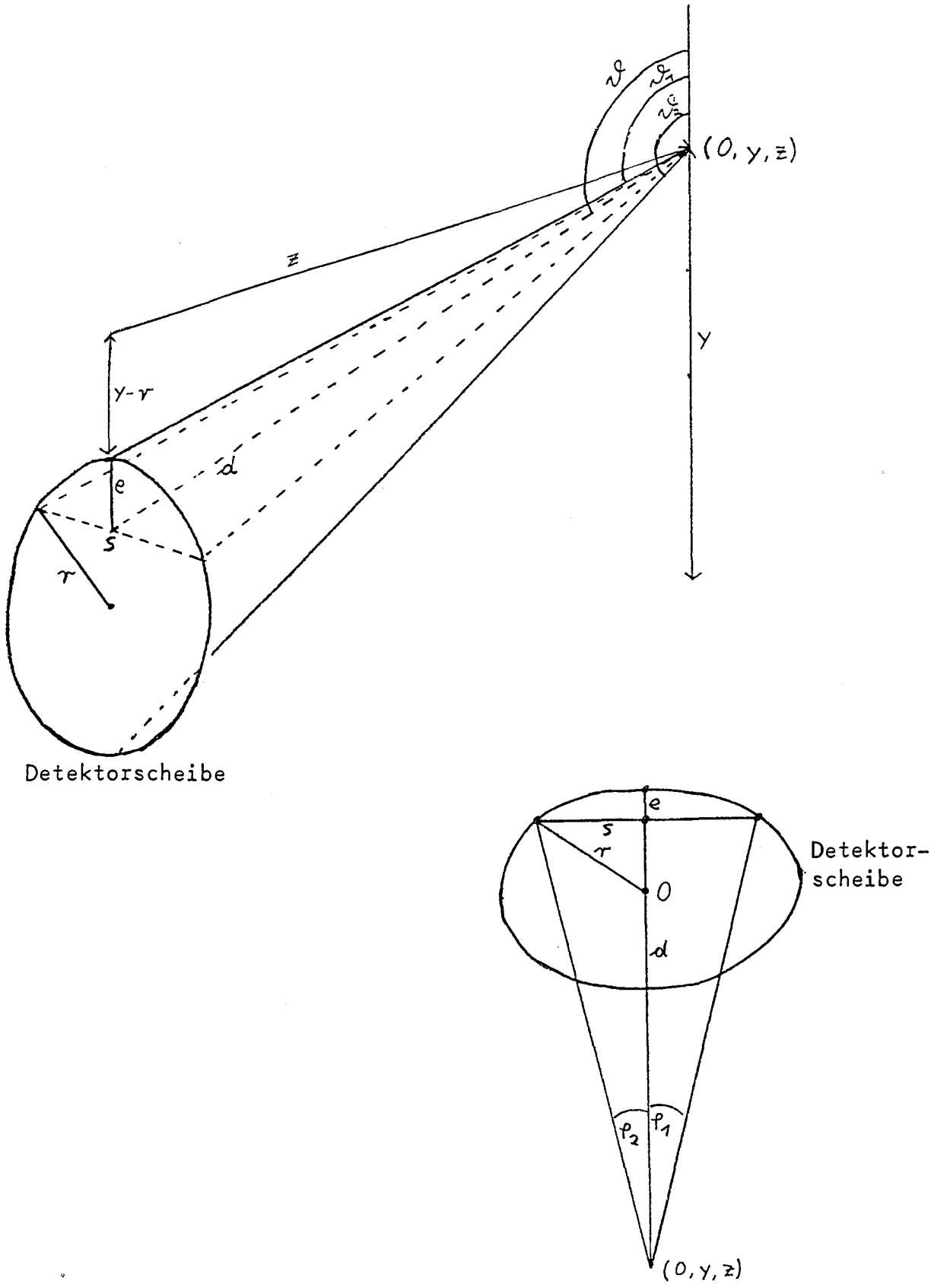



Abbildung A.2: Skizze der Geometrie mit den in der Rechnung benutzten Bezeichnungen

Das Ion erreiche zum Zeitpunkt $t_1$ die Elektrode bei $z_1$. Ab $t_1$ bewegt es sich dann nicht mehr. Somit ist das Integral in zwei Teile zu spalten, wobei das Integral im Nenner der obigen Formel zu $A_0$ berechnet wurde:

$$\overline{\Omega}(x,y,z_0) = \frac{\lambda}{A_0}\left[\int_0^{t_1} A_0 e^{-\lambda t}\Omega(t)dt + \Omega(0,y,z_1)\int_{t_1}^{\infty} A_0 e^{-\lambda t}dt\right]$$

Beim ersten Integral wird $t$ durch $\frac{z-z_0}{v}$ substituiert und das zweite Integral läßt sich sofort lösen:

$$\overline{\Omega}(x,y,z_0) = \frac{\lambda}{v}\int_{z_0}^{z_1} \Omega(0,y,z)e^{-\lambda\frac{z-z_0}{v}}dz + \Omega(0,y,z_1)e^{-\lambda\frac{z_1-z_0}{v}}$$

Für $z_1$ muß eine Fallunterscheidung gemacht werden: $z_1 = A$ für $v < 0$ und $z_1 = A+L$ für $v > 0$.
Der Fall $v = 0$ muß extra behandelt werden, was aber trivial ist.

3. Im dritten Schritt muß man, um den Gesamtraumwinkel für die mit $v$ bewegten Teilchen zu erhalten, nur noch über das gesamte Meßkammervolumen integrieren:

$$\overline{\Omega}_{ges}(v) = \frac{1}{V}\int_V \overline{\Omega}(x,y,z_0)dV$$

Bis hierher kann man sehr leicht auf andere Geometrien abändern. Jetzt aber wird die Zylindersymmetrie ausgenutzt, um triviale Integrale analytisch zu lösen.

$$\begin{aligned}
\overline{\Omega}_{ges}(v) &= \frac{1}{V}\int_{z_{0min}}^{z_{0max}} dz_0 \int_0^R \rho\, d\rho \int_0^{2\pi} d\varphi \overline{\Omega}(0,\rho,z_0) \\
&= \frac{1}{V}\int_{z_{0min}}^{z_{0max}} dz_0 \int_0^R \rho\, d\rho\, 2\pi \left[\frac{\lambda}{v}\int_{z_0}^{z_1} dz \left(\Omega(0,\rho,z)e^{-\lambda\frac{z-z_0}{v}}\right) + \right. \\
&\qquad \left. + \Omega(0,\rho,z_1)e^{-\lambda\frac{z_1-z_0}{v}}\right] \\
&= \frac{2\pi}{V}\int_{z_{0min}}^{z_{0max}} dz_0 \left[\frac{\lambda}{v}\int_{z_0}^{z_1} dz \left(e^{-\lambda\frac{z-z_0}{v}}\int_0^R d\rho\, \rho\Omega(0,\rho,z)\right) + \right. \\
&\qquad \left. + e^{-\lambda\frac{z_1-z_0}{v}}\int_0^R d\rho\, \rho\Omega(0,\rho,z_1)\right]
\end{aligned}$$

Führt man nun $\Omega_S(z) = \int_0^R d\rho\, \rho\Omega(0,\rho,z)$ als mittleren Raumwinkel ein, unter dem die Ionen einer Scheibe der konstanten Koordinate $z$ den Detektorkristall sehen, so steckt die ganze Winkelabhängigkeit in diesem Integral. Um die Rechenzeit zu minimieren wurde deshalb in einem ersten Teilprogramm für sehr dicht liegende Stützstellen $z$ die Funktion $\Omega_S(z)$ für die Parameter R und r berechnet und in einem File abgespeichert. Abbildung A.3 zeigt ein typisches Ergebnis. Im zweiten Teilprogramm wurden dann die Werte $\Omega_S(z)$ in ein Feld gelesen uns so konnte $\Omega_S(z)$ leicht mit ausreichender Genauigkeit mit linearer Interpolation zwischen zwei Stützstellen um Größenordnungen schneller berechnet werden, als wenn für jedes $z$ das Integral für $\Omega_S(z)$ berechnet würde.
Sämtliche Integrationen konnten wegen der Gutmütigkeit der Funktionen im Hinblick auf Singularitäten oder ähnlichen Problemen mit der sehr schnellen Romberg-Quadratur-Methode durchgeführt werden. Nur für betragsmäßig sehr kleine $v$ ist

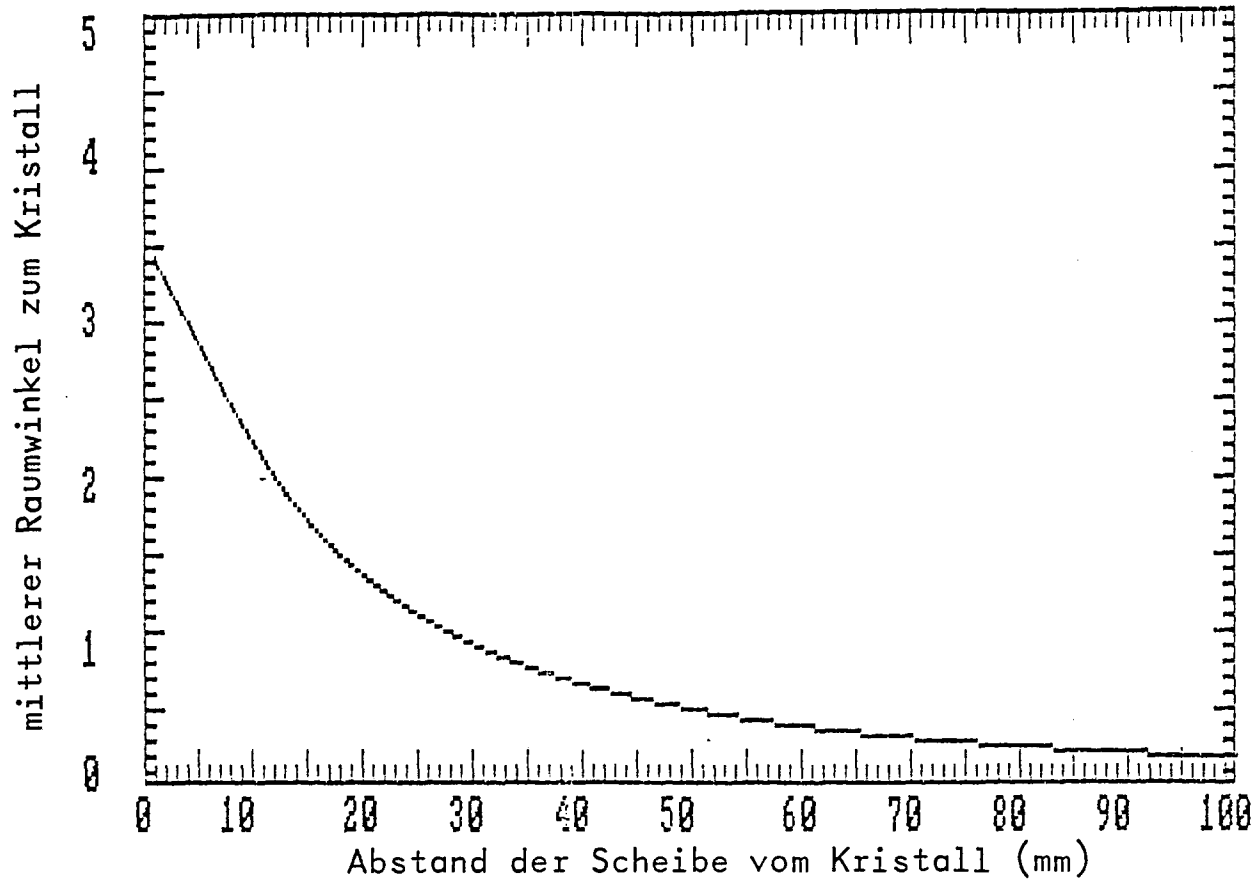



Abbildung A.3: Mittlerer Scheibenraumwinkel

Mittlerer Raumwinkel, unter dem Scheiben mit $z=const$ in der Meßkammer den Detektorkristall sehen, in Abhängigkeit vom Abstand z vom Kristall. Rechnung mit $r=22.5\,mm$ und $R=30\,mm$

Vorsicht geboten, da dann die Exponentialfunktion $e^{-\lambda\frac{z-z_0}{v}}$ Schwierigkeiten bereitet. Außerdem wären Unannehmlichkeiten für sehr kleine $A$ zu erwarten. Dies spielt jedoch keine Rolle, da dies bei einem realistischen Fall nicht auftreten kann.

4. In einem vierten Schritt konnten noch zwei Korrekturen mit den abgespeicherten Werten gemacht werden:

   - Berücksichtigung des 'shake off effects' (vgl. 2.1): Die oben berechneten $\overline{\Omega}_{ges}(v)$ gelten ja nur, wenn alle Ionen die gleiche Driftgeschwindigkeit $v$ haben. Durch den 'shake off effect' haben aber ca. 20% der Ionen durch die doppelte Ladung auch die doppelte Geschwindigkeit. Dem konnte dadurch Rechnung getragen werden, daß man das korrigierte

     $$\overline{\Omega}_{ges\ S}(v) = 0.8\,\overline{\Omega}_{ges}(v) + 0.2\,\overline{\Omega}_{ges}(2v)$$

     verwendete, wobei unter v dann die Geschwindigkeit der einfach geladenen Ionen zu verstehen ist.

   - Berücksichtigung eines Untergrundanteils: In den Zuleitungen zur Kammer und im ganzen Gassystem befindet sich auch bestrahltes Neon, sodaß auch von dort Beiträge zu den beiden Peaks kommen, allerdings unabhängig von der Spannung immer im selben Verhältnis zueinander. Um diesen Anteil zu berücksichtigen, konnte das Verhältnis U dieser unbeweglichen zu den beweglichen Ionen eingegeben werden, sodaß sich korrigiert ergibt:

     $$\overline{\Omega}_{ges\ S\ U}(v) = \frac{1}{1+U}\left[\overline{\Omega}_{ges\ S}(v) + U\,\overline{\Omega}_{ges\ S}(0)\right]$$

5. Zum Abschluß können die Werte noch auf den Wert bei $v=0$ normiert werden, was dann das normierte Verhältnis $V_n$ des mittleren Gesamtraumwinkels mit Geschwindigkeit $v$ zu dem mit $v=0$ ergibt:

   $$V_n = \frac{\overline{\Omega}_{ges\ S\ U}(v)}{\overline{\Omega}_{ges\ S\ U}(0)}$$

# Literaturverzeichnis


F. Ajzenberg-Selove et al.: Physical Review **C15**, 1 (1977)

"Anleitung fürs Anfängerpraktikum", TUM-internes Skript

G.R. Akridge et al.: The Journal of Chemical Physics **62**, 4578 (1975)

L. Bergmann, C. Schaefer: "Lehrbuch der Experimentalphysik", Bd.I Walter de Gruyter, Berlin-New York, 9. Auflage, 1974

R.J. Beuhler, L. Friedmann: The Journal of Chemical Physics **77**, 2549 (1982)

A. Blanc: Bull. Soc. Franc. de phys. 1908, S.156

R.B. Brode: Review of Modern Physics **11**, 222 (1939)

A.W. Castleman Jr., I.N. Tang: The Journal of Chemical Physics **57**, 3629 (1972)

C.D. Coryell, N. Sugarman: "Radiochemical Studies: The Fission Products", McGraw Hill Book Company Inc., New York-Toronto-London, 1951

B.J. Dropesky, A.W. Schardt: Physical Review **102**, 426 (1956)

I. Dzidic, P. Kebarle: The Journal of Chemical Physics **74**, 1466 (1970)

O. Echt, K. Sattler, E. Recknagel: Physical Review Letters **47**, 1121 (1981)

R. Eibl: "Untersuchungen zur Elektronenbeweglichkeit in Argon insbesondere im Bereich des kritischen Punktes", Dissertation an der TUM, 1986

A. Einstein: Annalen der Physik **19**, 371 (1906)

S. Flügge: "Handbuch der Physik", Bd. VL, Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg-New York, 1958

H. Franke (Hrsg.): "Lexikon der Physik", Franckh'sche Verlagshandlung Stuttgart, 3. Auflage, 1969

J.L. Franklin (Hrsg.): "Ion-Molecule Reactions", Plenum Press, New York, 1972

W. Gentner, H. Maier-Leibnitz, W. Bothe: "An Atlas of Typical Expansion Chamber Photographs", Pergamon, London, 1954

C. Gerthsen, H.O. Kneser, H. Vogel: "Physik", Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg-New York, 14. Auflage, 1982

R.C. Greenwood: Physics Letters **23**, 482 (1966)

M.R. Hoare: Advances in Chemical Physics **40**, 49 (1979)

E. Huenges, H. Muthig, H. Morinaga: Proc. IX. Conf. on Cyclotrons and their Applications, Caen Univ., Frankreich, S. 111 (1981)

R.D. James et al.: The Journal of Chemical Physics **62**, 740 (1975)

R. Kebarle et al.: Journal of the American Chemical Society **89**, 6393 (1967)

A.S. Keverling Buisman, P.J.M. Smulders: Nuclear Physics **A228**, 205 (1974)

A.S. Keverling Buisman et al.: Nuclear Physics **A176**, 161 (1971)

V. Kment, A. Kuhn: "Technik des Messens radioaktiver Strahlung", Akademische Verlagsgesellschaft Geest & Portig KG, Leipzig, 1960

T. Kondrow, K. Mitsuke: The Journal of Chemical Physics **83**, 2612 (1985)

P. Krebs, V. Giraud, M. Wantschik: Physical Review Letters **44**, 211 (1980)

E. Krämer, G. Mairle, G. Kaschl: Nuclear Physics **A165**, 353 (1971)

H. Kuchling: "Taschenbuch der Physik", Verlag Harri Deutsch, Thun und Frankfurt/Main, 5.-7. Auflage, 1985

Landolt, Börnstein: "Zahlenwerte und Funktionen aus Physik, Chemie, Astronomie, Geophysik und Technik", Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg-New York, 6. Auflage, 1969

P. Langevin: Ann. chim. phys. **(7) 28**, 289 (1903)

P. Langevin: C.R. **140**, 232 (1905)

C.M. Lederer, V.S. Shirley: "Table of Isotops", John Wiley & Sons Inc., New York, 7.Auflage, 1978
P. Lenard: Annalen der Physik **60**, 329 (1919)
H.S.W. Massey: Advances in Physics **1**, 395 (1939)
E.W. McDaniel, E.A. Mason: "The Mobility and Diffusion of Ions in Gases", John Wiley & Sons Inc., New York, 1973
E.W. McDaniel: "Collision Phenomena in Ionized Gases", John Wiley & Sons Inc., New York, 1964
R.J. Munson, A.M. Tyndall: Proceedings of the Royal Society of London **A172**, 28 (1939)
R.J. Munson, K. Hoselitz: Proceedings of the Royal Society of London **A172**, 43 (1939)
R.J. Munson: Proceedings of the Royal Society of London **A172**, 51 (1939)
H. Muthig: "Herstellung von Radioisotopen mit dem Tritonenstrahl für neuartige Anwendungen: $^{42}Ar$-Nuklidgenerator und $^{63}Ni$-Mössbauereffekt", Dissertation an der TUM, 1984
T.S. Needels, C.E. Nielsen: Review of Scientific Instruments **21**, 976 (1950)
R.A. Nielsen: Physical Review **50**, 950 (1936)
L.C. Northcliff, R.F. Schilling: Nucl. Data Tabl. **A7**, 255 (1970)
T. Nozaki et al.: J. Appl. Radiat. Isot., **27**, 17 (1975)
"Periodensystem der Elemente", VCH-Verlagsgesellschaft, Weinheim, 1985
J.A. Pollock: Nature **95**, 286 (1915)
K. Przibram: in "Handbuch der Physik" (Hrsg.: H. Geiger, K. Scheel), Bd. XXII, Teil I, Kap. 4, Verlag von Julius Springer, Berlin, 1933
W. Riezler: "Einführung in die Kernphysik", Hermann Hübener Verlag, Berlin-Buxtehude, 1950
B.B. Rossi, H.H. Staub: "Ionization Chambers and Counters", McGraw Hill Book Company Inc., New York-Toronto-London, 1949
E. Rutherford, J. Chadwick, C.D. Ellis: "Radiations from Radioactive Substances", University Press, Cambridge, 1951
G.N. Salaita: Nuclear Physics **A170**, 193 (1971)
R.A. Schluter, S.C. Wright: Review of Scientific Instruments **26**, 1053 (1955)
W. Seelmann-Eggebert, G. Pfennig, H. Münzel: "Karlsruher Nuklidkarte", Gersbach und Sohn Verlag, München, 4. Auflage, 1974
K. Siegbahn: "Alpha-, Beta- and Gamma-Ray Spectroskopy", Bd.II, North-Holland Publishing Company, Amsterdam, 3. Auflage, 1968
H. Slätis: Nuclear Instruments and Methods **1**, 213 (1957)
D.F.H. Start et al.: Nuclear Physics **A206**, 207 (1973)
G.M. Thomson et al.: The Journal of Chemical Physics **58**, 2402 (1973)
A.M. Tyndall, C.F. Powell: Proceedings of the Royal Society of London **A136**, 145 (1932)
A.M. Tyndall, G.C. Grindly, P.A. Sheppard: Proceedings of the Royal Society of London **A110**, 358 (1926) und A121, 185 (1928)
B.W. van de Waal: The Journal of Chemical Physics **79**, 3948 (1983)
R.C. Weast, "Handbook of Chemistry and Physics", The Chemical Rubber Co., Ohio, 51. Auflage, 1970
H. Wegmann, E. Huenges, H. Muthig, H. Morinaga: Nuclear Instruments and Methods **179**, 217 (1981)
W.H. Westphal: "Physikalisches Wörterbuch", Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg-New York, 1952
B. Yavorsky, A. Datlaf: "Handbook of Physics", Mir Publishers, Moscow 1975

# Abbildungsverzeichnis


2.1 Niederenergetischer Teil des Niveauschemass von $^{24}Na$ . . . . . 5
2.2 Ausschnitt aus der Karlsruher Nuklidkarte . . . . . 5
2.3 Zerfallsschemata von $^{24}Ne$ zu $^{24}Na$ und $^{24}Na$ zu $^{24}Mg$ . . . . . 7
2.4 Schematische Zeichnung zur Veranschaulichung der Raumwinkeländerungen bei der Bewegung der Ionen . . . . . 9
2.5 Anteil C der Clusterionen für verschiedene Wasserpartialdrücke . . . . . 16
2.6 Vergleich von $C(\frac{E}{p})$ mit $C(\frac{E}{p^2})$ . . . . . 17
2.7 Enthalpien und freie Energien für Clusterreaktionen mit Wassermolekülen . 19
2.8 Relative Anteile der Clustergrößen in Abhängigkeit vom Wasserdampfdruck für $Na^+(H_2O)_n$-Cluster bei $T = 300K$ . . . . . 19
2.9 Freie Energie (a) und relative Häufigkeit (b) in Abhängigkeit von der Clustergröße . . . . . 20
2.10 Gleichgewichtsverteilungen von $H^+(H_2O)_n$–Clustern bei zwei verschiedenen Temperaturen in Abhängigkeit vom Druck. . . . . 22

3.1 Schematischer Schnitt durch die vertikale Mittelebene der Bestrahlungskammer . . . . . 24
3.2 Schematischer Schnitt durch die vertikale Mittelebene der Meßkammer . . 26
3.3 Schematische Skizze des Gashandlingsystems . . . . . 27
3.4 $\gamma$-Spektrum des bestrahlten und in die Meßkammer gepumpten Gases . . . 29
3.5 $R_n(\frac{E}{p})$ für Neon . . . . . 31
3.6 Simulationskurve für $R_n(\frac{E}{p})$ . . . . . 32
3.7 Vergleich der berechneten Fitkurve mit der experimentellen Kurve. . . . . 33
3.8 Schematische Skizze der elektrischen Feldlinien in der Meßkammer . . . . . 34
3.9 Skizze von Meßkammer und Detektor . . . . . 35
3.10 Beweglichkeit von $Na^+$-Ionen in Neon für verschiedene Drücke . . . . . 36
3.11 Peakflächenverhältnisse und Beweglichkeiten bei verschiedenen Gasgemischen 38
3.12 Eich- und Fitkurve mit Feldhomogenisierung bei reinem Neon . . . . . 39
3.13 Peakflächenverhältnisse und relative Beweglichkeiten bei verschiedenen Gasgemischen . . . . . 41
3.14 Relative Beweglichkeiten in Abhängigkeit von der Ethanolkonzentration . . 44
3.15 Abhängigkeit der reduzierten Beweglichkeiten vom Druck . . . . . 45
3.16 $\frac{1}{(\frac{\mu_{0Ne}}{\mu_{0ges}})-1}$ in Abhängigkeit vom Gesamtdruck. . . . . 47
3.17 $R_n(\frac{E}{p})$ für verschieden gut gereinigte Gase . . . . . 48

4.1 Skizze der Diffusionskammer mit Detektor und Abschirmung . . . . . 52
4.2 Horizontaler Querschnitt durch die Diffusionskammer unterhalb des unteren Fensters. . . . . 53
4.3 Temperaturen, Partialdrücke und Übersättigungen in einer Diffusionskammer 55

4.4 Temperaturverteilung in der Diffusionskammer . . . . . 58
4.5 Eichkurve für reines Neon: normierte Peakflächenverhältnisse in Abhängigkeit von $\frac{E}{p}$ . . . . . 60
4.6 Relative Beweglichkeit, Temperatur und Ethanolpartialdruck bei der ersten Diffusionskammermessung . . . . . 62
4.7 Relative Beweglichkeit bei der zweiten Diffusionskammermessung . . . . . 63
4.8 Abhängigkeit der Beweglichkeit von der Teilchengröße nach Lenard . . . . 65

A.1 Für die Computersimulation benutzte Geometrie . . . . . A-1
A.2 Skizze der Geometrie mit den in der Rechnung benutzten Bezeichnungen . A-3
A.3 Mittlerer Scheibenraumwinkel . . . . . A-5

Ein herzliches

*Dankeschön*

Herrn Prof. Morinaga für die Aufnahme als Diplomand in seinem Institut, für seine beinahe ununterbrochen hervorsprudelnden Ideen und Anregungen und für seinen Eifer, mir Fortbildungsmöglichkeiten zu beschaffen.

Herrn Dr. E. Huenges, meinem Betreuer, der bei vielen Problemen Rat wußte und das Zyklotron immer wieder hervorragend zum Laufen brachte.

Herrn Dr. Panagiotis Komninos für seine stete Diskussionsfreudigkeit, die uns so manchen interessanten Abend bescherte. Die Gründlichkeit seines Denkens hat mich vor manchem Irrtum bewahrt.

Herrn Dipl.-Phys. Markus Trautmannsheimer, meinem Zimmerkollegen, für seine Anteilnahme an meinen Erfolgen und Mißerfolgen. Seine nicht rein wissenschaftlich geprägte Gesprächigkeit sorgte öfters für die notwendige Abwechslung.

Herrn Dr. Johann Heinzl, ohne den unsere Computer nicht einmal die Hälfte Wert wären.

Frl. Petra Loibl für die Hilfe bei chemischen Fragen und die Besorgung vieler Kleinigkeiten.

den Herren H. Edlinger, W. Kern, H.Koch und H. Petzold und allen anderen von der Zyklotronmannschaft für ihre Hilfe in Rat und Tat bei allen technischen Fragen.

allen von E17, die mich so freundlich aufgenommen und in vielerlei Hinsicht unterstützt haben.

Herrn Dr. A. Kasuya (Tohoku-Universität, Sendai, Japan) für seine schier unbegrenzte Diskusssionsfreudigkeit, für das Interesse an meiner Arbeit und für seine Hilfe bei den letzten Messungen.