

11
102
1004

Leibniz
Universität
Hannover

Berichte aus der Sensorik und Messtechnik
Prof. Dr.-Ing. S. Zimmermann

Erik Bunert

Nicht-radioaktiver Elektronenstrahler als Ionisationsquelle für Elektroneneinfangdetektoren und die Ionenmobilitätsspektrometrie



Institut für Grundlagen der Elektrotechnik und Messtechnik
Fachgebiet Sensorik + Messtechnik

Band 7

Nicht-radioaktiver Elektronenstrahler als Ionisationsquelle für Elektroneneinfangdetektoren und die Ionenmobilitätsspektrometrie

Von der Fakultät für Elektrotechnik und Informatik
der Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover
zur Erlangung des akademischen Grades

Doktor-Ingenieur

(abgekürzt: Dr.-Ing.)

genehmigte Dissertation

von Herrn

Dipl.-Ing. Erik Bunert

geboren am 08.12.1987

in Salzgitter

2021

1. Referent: Prof. Dr.-Ing. Stefan Zimmermann

2. Referent: Prof. Dr.-Ing. Holger Blume

Vorsitz: Prof. Dr.-Ing. Heyno Garbe

Tag der Promotion: 24. September 2021

Berichte aus der Sensorik und Messtechnik

Band 7

Erik Bunert

**Nicht-radioaktiver Elektronenstrahler als
Ionisationsquelle für Elektroneneinfangdetektoren
und die Ionenmobilitätsspektrometrie**

Shaker Verlag
Düren 2021

Bibliografische Information der Deutschen Nationalbibliothek

Die Deutsche Nationalbibliothek verzeichnet diese Publikation in der Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte bibliografische Daten sind im Internet über <http://dnb.d-nb.de> abrufbar.

Zugl.: Hannover, Leibniz Univ., Diss., 2021

Copyright Shaker Verlag 2021

Alle Rechte, auch das des auszugsweisen Nachdruckes, der auszugsweisen oder vollständigen Wiedergabe, der Speicherung in Datenverarbeitungsanlagen und der Übersetzung, vorbehalten.

Printed in Germany.

ISBN 978-3-8440-8276-0

ISSN 2365-2055

Shaker Verlag GmbH • Am Langen Graben 15a • 52353 Düren

Telefon: 02421 / 99 0 11 - 0 • Telefax: 02421 / 99 0 11 - 9

Internet: www.shaker.de • E-Mail: info@shaker.de

Vorwort

Die vorliegende Dissertation entstand während meiner Tätigkeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Grundlagen der Elektrotechnik und Messtechnik der Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover.

Auch wenn am Ende nur ein einzelner Name auf der Dissertation steht, so wäre eine solche Arbeit ohne die vielfältige Unterstützung von Professoren, Kolleginnen und Kollegen, Studierenden, Freunden und Verwandten nicht möglich gewesen. Daher möchte ich mich an dieser Stelle bei all jenen bedanken, die mir – in welcher Form auch immer – mit Rat und Tat während dieser Zeit zur Seite standen.

Besonderer Dank gilt meinem Doktorvater Prof. Dr.-Ing. Stefan Zimmermann, der nicht nur die fachliche Betreuung meiner Doktorarbeit übernommen hat, sondern bereits seit meiner Tätigkeit als wissenschaftliche Hilfskraft durch seine fordernde Art, das in mich gesetzte Vertrauen sowie seine persönliche Unterstützung entscheidend zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen hat. Darüber hinaus bedanke ich mich bei Prof. Dr.-Ing. Holger Blume für die Übernahme des zweiten Referats sowie bei Prof. Dr.-Ing. Heyno Garbe für den Vorsitz der Prüfungskommission.

Des Weiteren gilt mein Dank auch den Mitarbeiterinnen und Mitarbeitern des Instituts, mit denen ich teilweise bereits seit dem Studium zusammengearbeitet und zusammen gefeiert habe, auf deren Hilfe ich – auch bei immer wieder überraschenden Deadlines – jederzeit zählen konnte, mit denen ich hitzige wissenschaftliche Diskussionen führen und zum Feierabend wieder gemeinsam ein Getränk genießen konnte, die immer durch einen ausreichenden Vorrat an „kinder Riegeln“ für mein leibliches Wohl gesorgt haben, die mir bei kniffligen Problemen, sowohl dienstlicher als auch privater Natur, beratend zur Seite standen und die meine unter Schlafentzug geschriebenen Texte geduldig gelesen haben. Zudem bedanke ich mich bei meinem Freundeskreis, der insbesondere in anstrengenden oder schwierigen Phasen für mich da war, mich motiviert und hin und wieder bei einem Glas Wein für Abwechslung gesorgt hat.

Zuletzt bedanke ich mich bei meiner Schwester für ihre ständige Motivation sowie bei meinen Eltern, die mich immer bedingungslos unterstützt und mir so diesen Weg ermöglicht haben.

Hannover im September 2021

Erik Bunert

Kurzfassung

Im Rahmen der dieser Dissertation zugrundeliegenden Arbeiten wurde eine hermetisch verschlossene, miniaturisierte, nicht-radioaktive Elektronenquelle (NEQ) einschließlich einer kompakten Ansteuerungselektronik aufgebaut und ausführlich charakterisiert. Außerdem erfolgte die Demonstration von Funktionalität und Einsetzbarkeit der NEQ als Ionisationsquelle anhand zweier konkreter Anwendungsbeispiele. Der Aufbau der NEQ erforderte zunächst die Entwicklung einer vakuumdichten Aufbau- und Verbindungstechnik. Weiterhin wurde eine kompakte Ansteuerungselektronik entwickelt, welche die Erzeugung von selbst extrem kurzen Elektronenpulsen mit Pulsbreiten von nur 23 ns ermöglicht. Zur Untersuchung des Ionisationsverhaltens der NEQ wurde unter anderem die dreidimensionale Ionendichteverteilung mit Hilfe eines speziellen Detektors und Bildrekonstruktionsverfahren untersucht, um die Geometrie des Ionisationsbereiches an die NEQ anzupassen.

Die Entwicklung eines nicht-radioaktiven Elektroneneinfangdetektors (ECD) demonstrierte die Eignung der NEQ als Ionisationsquelle. Hiermit konnten zu radioaktiven ECDs vergleichbare Nachweisgrenzen von 1 ppbv (6 ng/l) sowie ein vergleichbarer linearer Bereich von $6,6 \cdot 10^3$ für 1,1,2-Trichlorethan erreicht werden. Zusätzlich erfolgte der Aufbau eines Ionenmobilitätsspektrometers (IMS) mit NEQ als Ionisationsquelle. Die erzeugten Ionenpopulationen der Spektren entsprechen hierbei den von einem IMS mit radioaktiver Tritium-Quelle erzeugten Ionenpopulationen. Außerdem wurde mit Hilfe sehr kurzer Elektronenpulse, also kurzer Ionisationszeiten, die Beeinflussbarkeit der chemischen Ionisationsprozesse untersucht. Darüber hinaus ermöglichen die kurzen Ionisationspulse den Aufbau eines IMS ohne Ionentor. Abschließend wurde daher ein solcher Aufbau charakterisiert und mit einem IMS mit herkömmlichem Ionentor verglichen.

Schlagwörter:

Nicht-radioaktive Elektronenquelle, Elektroneneinfangdetektor, ECD, Gaschromatographie, GC, Ionenmobilitätsspektrometrie, IMS.

Abstract

This dissertation describes the development and characterization of a hermetically sealed, miniaturized, non-radioactive electron source including compact electronics. In addition, functionality and usability of such a non-radioactive electron source as an ionization source was demonstrated using two specific applications. First, the development of the non-radioactive electron source required the development of a vacuum-tight assembly and connection technology. Furthermore, a compact electronic control system was developed, which allows the generation of electron pulses with extremely short pulse widths down to 23 ns. In addition, the ionization behavior of the non-radioactive electron source was investigated. Therefore, the generated three-dimensional ion density distribution was investigated using a special detector and image reconstruction techniques to adapt the ionization region to the non-radioactive electron source.

For demonstration of the suitability as an ionization source, a non-radioactive electron capture detector (ECD) using the non-radioactive electron source was developed. With this, comparable detection limits of 1 ppbv (6 ng/l) as well as a comparable linear range of $6.6 \cdot 10^3$ for 1,1,2-trichloroethane could be achieved comparable with a radioactive ECDs. Furthermore, an ion mobility spectrometer (IMS) with the non-radioactive electron source as ionization source was built. The ion populations of the spectra correspond well to the ion populations generated by an IMS with a radioactive tritium source. In addition, short electron pulses and thus short ionization times were used to investigate how the chemical ionization processes can be affected by the ionization time. Furthermore, the short ionization pulses allow for a shutterless IMS. Finally, such a setup was characterized and compared to an IMS with a conventional ion shutter.

Keywords:

Non-radioactive electron source, Electron capture detector, ECD, Gas chromatography, GC, Ion mobility spectrometry, IMS.

Inhaltsverzeichnis

Abkürzungen und Konstanten	1
1 Einleitung	5
2 Theoretische Grundlagen und Stand der Technik und Forschung	11
2.1 Ionisationsmethoden	12
2.2 Nicht-radioaktive Erzeugung von freien Elektronen	15
2.2.1 Thermische Emission von Elektronen.....	15
2.2.2 Feldemission von Elektronen	17
2.3 Elektroneneinfangdetektor und Gaschromatographie	20
2.4 Ionenmobilitätsspektrometrie	26
2.5 Definierte Einstellung von Analytkonzentrationen im Probengas	30
2.6 Stand der Technik und Forschung.....	32
3 Aufbau und Charakterisierung einer nicht-radioaktiven Elektronenquelle ...	37
3.1 Auswahl des Elektronenemitters	38
3.1.1 Feldemitter	39
3.1.1.1 Feldemitterstrukturen	40
3.1.1.2 Vergleich des Emissionsverhaltens	43
3.1.1.3 Regelung der Feldemission	50
3.1.2 Thermische Emmitter	57
3.2 Simulation der Elektronentransmission durch eine Siliziumnitrid-Membran	59
3.3 Konstruktion und Aufbau einer hermetisch verschlossenen Kavität	66
3.4 Realisierung einer multifunktionalen Ansteuerungselektronik	72

3.5	Elektronenpulse im Nanosekundenbereich	77
3.5.1	Konzept und Elektronik zur Erzeugung kurzen Elektronenpulse	78
3.5.2	Charakterisierung von Elektronenpulsen im Nanosekundenbereich	81
3.6	Untersuchung der orts aufgelösten Ionenverteilung	90
3.6.1	Bildrekonstruktion mit orts aufgelöstem Faraday-Detektor	95
3.6.2	Ionendichteverteilung der nicht-radioaktiven Elektronenquelle	103
3.6.2.1	Statische Ionendichteverteilung	105
3.6.2.2	Energieabhängige Ionendichteverteilung	108
3.6.2.3	Zeitabhängige Ionendichteverteilung	111
3.6.2.4	Rekombinationsverhalten	114
3.6.3	Ionendichteverteilung einer radioaktiven Tritium-Quelle	116
4	Nicht-radioaktiver Elektroneneinfangdetektor	121
4.1	Konzeption und grundlegende Untersuchung eines nicht-radioaktiven Elektroneneinfangdetektors	122
4.2	Realisierter ECD mit nicht-radioaktiver Elektronenquelle	128
4.3	Konzept und Elektronik für den gepulsten Betrieb zur Verbesserung des linearen Bereichs	130
4.4	Charakterisierung	136
5	Ionenmobilitätsspektrometer mit nicht-radioaktiver Elektronenquelle	143
5.1	Grundlegender Aufbau des IMS mit NEQ und Vergleich mit IMS mit Tritium-Quelle	144
5.2	Beeinflussung der Ionenbildungskinetik	155
5.3	Ionenmobilitätsspektrometer ohne Ionentor	161
6	Zusammenfassung	175

A Konstruktionszeichnungen	179
A.1 Komponenten der NEQ.....	179
A.2 Werkstückaufnahme und Werkzeugeinsätze für Kniehebelpresse	182
A.3 Elektroneneinfangdetektor	185
B Schritt-für-Schritt-Bauanleitung für NEQ	190
Literaturverzeichnis	197
Abbildungsverzeichnis	210
Tabellenverzeichnis	215
Publikationen	217
Betreute Abschlussarbeiten	221
Wissenschaftlicher Werdegang	223