

Abb. 2. Registrierbeispiele.

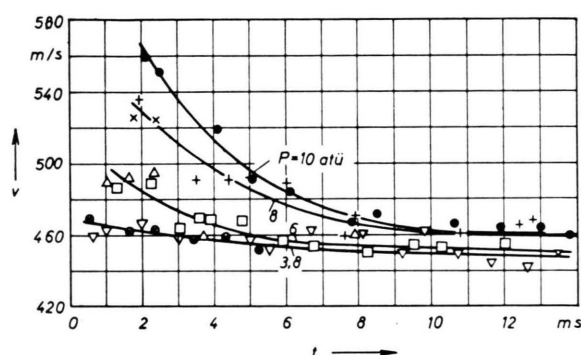


Abb. 3. Meßergebnisse für verschiedene Membranplatzdrucke p . den Geschwindigkeits-Kurven stehen in guter Übereinstimmung mit der aus dem Zeitintervall zwischen Registrierbeginn (d. h. Platzen der Membran) und Ankunft am Rohrende folgenden mittleren Geschwindigkeit. Infolge des kleinen Rohrquerschnitts findet bei allen Versuchen eine schnelle Abnahme der Geschwindig-

keit auf einen vom Anfangsdruck nur noch wenig abhängenden Endwert zwischen etwa 450 und 470 m/s statt. Die dem Meßsignal überlagerten Amplitudenschwankungen und Verzerrungen sind zweifelsohne auf die der „durchsichtigen“ Stoßwellenfront nachfolgende verwirbelte Mediengrenze oder Membransplitter zurückzuführen. Infolge dieser Unregelmäßigkeit ist ein quantitativer Vergleich mit den Daten der Stoßwellenfront, wie sie aus der HUGONIOU-Gleichung folgen (Druck, Temperatur, Dichte), noch nicht möglich; es läßt sich vorläufig nur eine mittlere Größenordnung des Reflexionskoeffizienten ermitteln. Dazu wurde das Austritts-ende des Rohres über einen geeichten Abschwächer mit einem Kurzschlußschieber ($|R|=1$) abgeschlossen und bei verschiedener Dämpfung der maximale und minimale Richtstrom des in Serie mit dem OHMSchen Eingangswiderstand des Meßverstärkers liegenden Nachweisdetektors gemessen, der sich bei zwei um $1/4$ verschiedenen Stellungen des Kurzschlußschiebers ergab. Durch Umrechnung auf die Eingangsspannung des geeichten Meßverstärkers erhält man auf diese Weise eine Eichkurve für die Spitzenwerte der registrierten Signalwechselspannung als Funktion des Reflexionskoeffizienten. Im Mittel ergaben sich so bei Anfangsdrücken um 6 atü Reflexionskoeffizienten der Größenordnung 10^{-5} , einem eben noch erkennbaren DOPPLER-Signal entsprachen Werte der Größenordnung 10^{-6} , während die bei $p \approx 10$ atü auftretenden Maximal-Amplituden einem R -Wert $\approx 10^{-4}$ zuzuordnen sind. Gemäß (2) entsprechen diesem Bereich von $R=10^{-6}$ bis 10^{-4} DK-Sprünge $\Delta n \approx 2 \cdot 10^{-3}$ bis $2 \cdot 10^{-2}$.

Diese Werte der Mikrowellen-Reflexionskoeffizienten liegen in der gleichen Größenordnung wie das von GREENE, COWAN und HORNIG gemessene optische Reflexionsvermögen schwacher Stoßwellen⁴.

⁴ G. R. COWAN u. D. F. HORNIG, J. Chem. Phys. **18**, 1008 [1950]. — E. F. GREENE, G. R. COWAN u. D. F. HORNIG, J. Chem. Phys. **19**, 427 [1951]; **21**, 617 [1953].

Mikrowellen-Untersuchungen an Gasedetonations-Plasmen *

VON B. KOCH, H. FREIWALD UND H. W. KOCH

Deutsch-Französisches Forschungsinstitut
St.-Louis (Ht. Rhin), Frankreich

(Z. Naturforschg. **19 a**, 396—398 [1964]; eingegangen am 3. Februar 1964)

Bereits vor längerer Zeit wurde gezeigt, daß die hochionisierte Front einer sich in einem festen Sprengstoff ausbreitenden Detonationswelle ein hohes Reflexionsvermögen für aus dem noch nicht detonierten Material her auffallende Mikrowellen besitzt^{1, 2}. Außer der Geschwindigkeit läßt sich auf Grund der aus der

Plasmaphysik her bekannten Beziehungen zwischen Reflexions- bzw. Absorptionsvermögen und Konzentration freier Ladungsträger auf diese Weise aus der beobachteten Rückstrahlintensität bzw. Durchlässigkeit unter gewissen Annahmen zumindest die Größenordnung der in dieser Grenzschicht vorhandenen Elektrendichte bestimmen.

Die Rückstreuung an der ionisierten Grenzschicht wurde bereits in den früheren Untersuchungen in der Form nachgewiesen, daß die an der Front reflektierte Strahlung mit der ausgesandten Welle in einer Phasenbrücke kohärent überlagert und die sich hierbei als Folge der mit Detonationsgeschwindigkeit V veränderlichen Phasenlage zwischen beiden Wellen ergebende

* Vorgetragen auf der Physikertagung Hamburg am 10. 9. 1963.

¹ B. KOCH, C. R. Acad. Sci., Paris **236**, 661 [1953].

² G. F. CAWSEY, J. L. FARRANDS u. S. THOMAS, Proc. Roy. Soc., Lond. A **248**, 499 [1958].



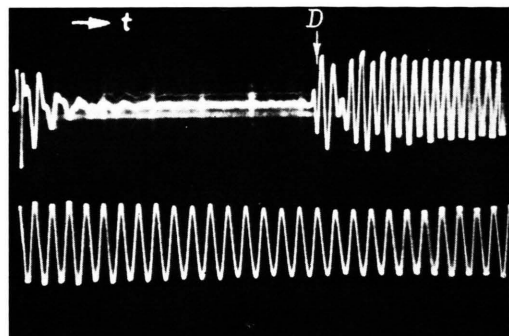


Abb. 2 a. Oszillogramm einer Detonation in $C_2H_2:O_2=50:50$; obere Zeitlinie: $300 \mu s$, untere Zeitlinie: $200 \mu s$. Zeitliche Überdeckung beider Zeitlinien 10%, Beginn der Detonation bei D.

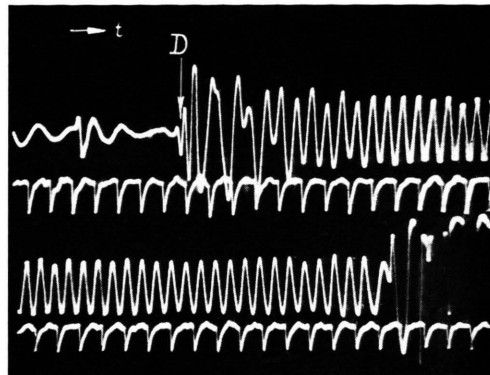


Abb. 2 b. Oszillogramm mit verzögerter Auslösung; Zeitmarke: 100 kHz. Überdeckung beider Zeitlinien wie in Abb. 2 a. Beginn der Detonation bei D.

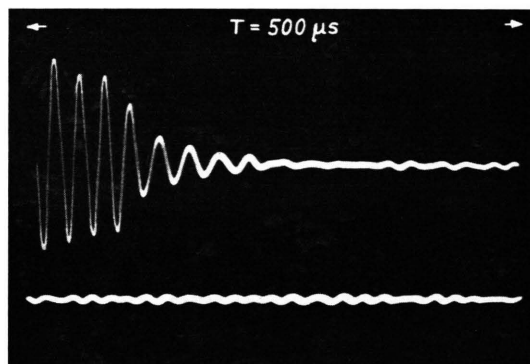


Abb. 4. Registrierung der Durchlässigkeit über einen Zeitraum von etwa 1 ms nach Zündung eines Gemisches $C_2H_2:O_2=50:50$. Meßfrequenz: 35 GHz, Testfrequenz 40 kHz. Direkt-empfang des amplitudenmodulierten Senders am hinteren Rohrende (einmalige Durchstrahlung der gesamten Rohrlänge).

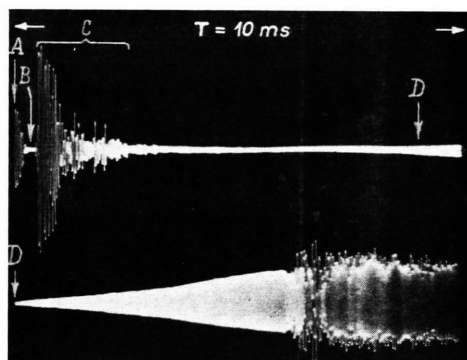


Abb. 5. Durchlässigkeit der Detonationsstrecke während etwa 20 ms nach Zündung. Meßstrahlung (9,6 GHz) wird an hinterem Rohrende an amplitudenmoduliertem Kristall reflektiert, d. h. Nachweis erfolgt nach zweimaligem Durchtritt durch die Meßstrecke. A: Testsignal, B: Detonationsvorgang, C: DOPPLER-Signal durch ausströmende Gase, D: Wiederbeginn der Durchlässigkeit.

„DOPPLER-Schwebung“ $f_D = 2Vn/\lambda$ oszillographisch registriert wurde. Wenn der Versuch in einem Rohr mit dem Innendurchmesser d erfolgt und das unzersetzte Material die DK ε besitzt, ist bekanntlich

$$n = \sqrt{\varepsilon - (\lambda/\lambda_{gr})^2},$$

wobei für eine in einem kreiszylindrischen Querschnitt erregte H_{11} -Welle (s. u.) $\lambda_{gr} = 1,706 \cdot d$ gilt.

Das gleiche Verfahren wurde von uns neuerdings auf die Untersuchung von detonativen Reaktionen in Gasgemischen mit der doppelten Absicht angewandt, einerseits die Meßgenauigkeit für die Detonationsgeschwindigkeit als einer für quantitative thermodynamische Untersuchungen über bei höheren Temperaturen schnell verlaufende Reaktionen kennzeichnenden Größe und andererseits die Elektronendichte in der Grenzschicht bzw. dem dahinter befindlichen hocherhitzten Gasvolumen zu ermitteln und mit anderweitig bekannten Ergebnissen zu vergleichen.

Die Messungen wurden an bereits in anderem Zusammenhang von uns³ und anderen Autoren^{4,5} untersuchten Acetylen-Sauerstoff-Gemischen verschiedener Zusammensetzung durchgeführt. Die experimentelle Anordnung ergibt sich aus Abb. 1:

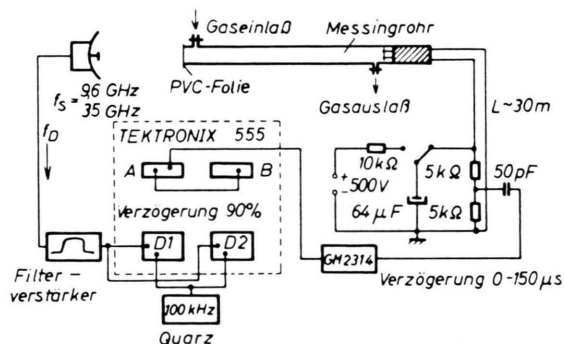


Abb. 1. Schema der Versuchsanordnung.

Das Gemisch wird am Ende eines starkwandigen Metallrohres (mit kreiszylindrischem oder rechteckigem Querschnitt) durch einen explodierenden Draht aus einer Kondensatorbatterie ($64 \mu\text{F}$, 500 V) gezündet. Von dieser Energie kommt wegen der langen Zuleitungen jedoch mit Sicherheit weniger als die Hälfte zur Wirkung. Nach einer gewissen Verpuffungsperiode entsteht eine sich parallel zur Rohrachse in Richtung auf das andere, mit einer dünnen Kunststoffolie verschlossene Rohrende ausbreitende nahezu ebene Detonationsfront. Durch Einstrahlung von Mikrowellenenergie von $3,2 \text{ cm}$ oder $8,6 \text{ mm}$ Wellenlänge in dieses Rohrende mittels einer aus einem Arm einer Mikrowellenbrücke erregten Parabolantenne⁶ läßt sich wahlweise entweder die Reflexion an der Front in Form eines „DOPPLER-Signals“ oder deren Durchlässigkeit in Form einer Amplitudenregistrierung eines Testsignals verfolgen. Letzteres wird entweder unter zweimaliger Durchstrahlung

des Gasvolumens mit Hilfe der Phasenbrücke und eines an das hintere Rohrende angebrachten, als Reflektor wirksamen amplitudenmodulierten Kristalldetektors bei gleichzeitiger Abtrennung dieser Testmodulation vom DOPPLER-Signal oder aber – bei nur einmaligem Durchtritt der Strahlung durch das absorbierende Gasvolumen – durch direkten Empfang der jetzt amplitudenmodulierten Meßstrahlung mittels dieses Detektors registriert.

Abb. 2 a, b ** stellen zwei Registrierbeispiele für die Reflexion an der Detonationsfront eines Gemisches $\text{C}_2\text{H}_2 : \text{O}_2 = 50 : 50$ dar, wobei der Gesamtvorgang zwecks Erhöhung der Auswertegenauigkeit auf die beiden Zeitlinien eines Zweistrahloszillographen aufgeteilt wurde. Abb. 2 a zeigt zu Beginn des Vorganges im Anschluß an den abklingenden Zündimpuls zunächst eine Verpuffungsperiode von etwa $180-200 \mu\text{s}$ Dauer ohne auswertbares Signal, nach deren Ablauf sich ein für eine stabile und definierte Grenzschicht kennzeichnendes weitgehend störungs- und verzerrungsfreies DOPPLER-Signal ausbildet. Eine weitere Auflösung des Oszillogramms und damit Erhöhung der Auswertegenauigkeit ist durch verzögerte Auslösung der Registrierung gegen Ende des Anlaufintervalls und durch Vergleich mit einer Zeitmarke hoher Genauigkeit möglich, Abb. 2 b.

Abb. 3 zeigt das Ergebnis von je drei für die Gemische $50 : 50$ und $33,3 : 66,7$ in einem Rohr von 36 mm Innendurchmesser bei einer Freiluftwellenlänge von $3,2 \text{ cm}$, entsprechend einer Rohrwellenlänge von $3,75 \text{ cm}$ ($\varepsilon_{\text{Gas}} \approx 1$) durchgeführten Messungen, und zwar den Geschwindigkeitsverlauf über einen Rohrtteil von 562 mm Länge, wobei jeweils fünf Halbwellenlängen von je $18,75 \text{ mm}$ zu einer Meßbasis von $93,7 \text{ mm}$ zusammengefaßt wurden. Die Mittelwerte jeder Messung sind gesondert zwischen den Meßpunkten 3 und 4 eingetragen. Bei der Auswertung wurde die durch anderweitige Erfahrungen nahegelegte und durch Prüfung des Polarisationszustandes des Mikrowellenfeldes im

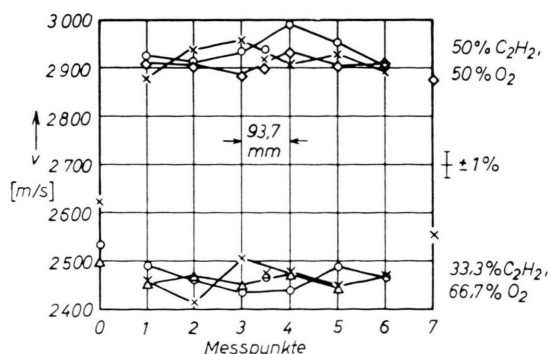


Abb. 3. Ergebnisse der Detonationsgeschwindigkeitsmessungen an zwei verschiedenen $\text{C}_2\text{H}_2-\text{O}_2$ -Gemischen über eine Rohrlänge von $56,2 \text{ cm}$.

³ H. FREIWALD u. H. W. KOCH, Chem. Ing. Techn. **35**, 439 [1963].

⁴ M. J. BRETON, Ann. Comb. Liq. **11**, 487 [1936].

⁵ G. B. KISTIAKOWSKY, H. T. KNIGHT u. M. E. MALIN, J. Chem. Phys. **20**, 884 [1952].

⁶ B. KOCH, ATM-Blatt V 143-4, Juni 1960.

** Abb. 2 a, b und 4, 5 auf Tafel S. 396 a.

Rohrinneren gestützte Annahme gemacht, daß bei dieser Form der Anregung nur die H_{11} -Welle mit maßgeblicher Amplitude in Erscheinung tritt.

Die mittleren Geschwindigkeitswerte sind unter Ausschluß der durch Anlauf und Ausströmung beeinflussen Werte (s. Abb. 3) für beide Mischungsverhältnisse einschließlich der sich aus der Streuung der einzelnen Meßwerte ergebenden mittleren quadratischen Fehler in nachfolgender Tabelle zusammengefaßt:

Mischungsverhältnis $C_2H_2 : O_2$		
Vers. Nr.	50 : 50	33,3 : 66,7
1	$2908 \pm 7 \text{ m/s}$	$2467 \pm 7 \text{ m/s}$
2	$2939 \pm 13 \text{ m/s}$	$2463 \pm 9 \text{ m/s}$
3	$2920 \pm 12 \text{ m/s}$	$2475 \pm 15 \text{ m/s}$
Gewichtetes Mittel:	$2920 \pm 9 \text{ m/s}$	$2467 \pm 3,5 \text{ m/s}$

In den Meßfehlern von etwa $\pm 1,5$ bzw. 3‰ für den Mittelwert aus drei Versuchen sind die durch möglicherweise nicht ganz gleiches Mischungsverhältnis bedingten Abweichungen mit enthalten.

Die gute Übereinstimmung dieser Werte mit anderweitigen Messungen^{4, 5} bei vergleichbaren Rohrdurchmessern sowie die Verzerrungsfreiheit des DOPPLER-Signals sind ein Zeichen für die Eindeutigkeit des erregten Wellentyps H_{11} .

Eine Bestimmung der Durchlässigkeit in Richtung der Rohrachse erfolgte sowohl für 3,2 cm wie für 8,6 mm Wellenlänge nach den beiden oben skizzierten Verfahren in einem aus rechteckigem S-Band Hohlleiterprofil (Innenmaße $72,5 \times 34,2 \text{ mm}^2$) hergestellten und an beiden Enden mit kontinuierlich auf X- bzw. Q-Bandprofil überleitenden Profilstücken versehenen Versuchsrohr. Die Zündung erfolgte am hinteren Rohrende in einem seitlichen Stutzen.

Abb. 4 stellt ein für beide Meßfrequenzen typisches Oszillogramm dar, das den schnellen Abfall des am hinteren Rohrende empfangenen Testsignals noch innerhalb der zur Detonation überleitenden Verpuffungsperiode auf einen im Rauschpegel untergehenden Betrag zeigt. Die Schwächung beträgt demnach unmittelbar nach Ausbildung einer nur wenige Zentimeter dicken stationären Ionisationsschicht mindestens etwa 30 dB. Aus dieser hohen Abschwächung und der beobachteten störungsfreien Reflexion darf geschlossen werden, daß die kritische Plasmafrequenz $f_p = 9 \cdot 10^3 \sqrt{N_e}$ (unter Außerachtlassung der Stoßfrequenz) etwa in der Größenordnung 10^{10} Hz , entsprechend einer unteren Grenze der Elektronenkonzentration N_e der Größenordnung $\approx 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ liegt.

In Vergleich dazu wurden von SHULER und WEBER⁷ (ebenfalls durch Mikrowellenabsorption) an „fetten“ Acetylen-Sauerstoff-Flammen nur Werte der Größenordnung 2 bis $3 \cdot 10^{10} \text{ cm}^3$ gemessen. Bei Flammentemperaturen um 3200° kann schon dieser Wert nicht durch thermische Gleichgewichts-Ionisation der gasförmigen Verbrennungsprodukte unter Annahme atomaren Kohlenstoffs erklärt werden, sondern legt die Annahme sub-

mikroskopischer Kohlenstoffpartikel mit einer zwischen dem Ionisationspotential des atomaren Kohlenstoffs (11,3 eV) und der Austrittsarbeit ebener Graphitoberflächen (4,35 eV) liegenden Ionisationsspannung als Quelle der Überschußionisation nahe. Leitfähigkeitsmessungen von BASU und FAY⁸ an Detonationsfronten von $C_2H_2 - O_2$ -Gemischen mit Temperaturen von 4000 bis 4200°K haben Werte zwischen 10^{12} und 10^{13} cm^{-3} ergeben. Diese Zahlen entsprechen größenordnungsmäßig dem aus unseren Messungen abgeleiteten Wert. Sie stehen nur bei mageren Gemischen in leidlicher Übereinstimmung mit den sich unter Annahme thermischen Gleichgewichtes aus den Ionisationspotentialen von H_2O und O_2 ergebenden Elektronendichten. Zur Erklärung der bei fetteren Gemischen gefundenen Überschuß-Ionisation wurden von diesen Autoren ebenfalls Graphitteilchen als wesentliche Elektronenspender herangezogen, während nach unserer Auffassung auch die Bildung von NO aus dem im Sauerstoff als Verunreinigung in einer Konzentration von etwa 0,5% vorhandenen N_2 in Betracht zu ziehen ist, wie dies für Detonationen von Gemischen von $2 H_2 + O_2$ von LADERMAN u. a. gezeigt wurde⁹. Trotz geringer Konzentration kann ähnlich wie in Luftstoßwellen NO mit der verhältnismäßig geringen Ionisationsspannung von 9,25 eV wesentlich zur Entstehung einer überthermischen Ionisation Anlaß geben.

Bemerkenswerterweise bleibt die Mikrowellenabsorption innerhalb des Versuchsrohres über wesentlich längere Zeit erhalten, als es dem eigentlichen Detonationsvorgang entspricht: Abb. 5 (gewonnen mit Testreflektor und zweimaligem Durchtritt der Strahlung durch die gesamte Rohrlänge) zeigt in gedrangtem Zeitmaßstab oben links die durch eine völlige Auslöschung des anfänglich noch erkenntlichen Testsignals gekennzeichnete Detonationsperiode von etwa 0,4 ms Dauer. Dieser schließt sich das durch die aus dem Rohrende ausströmenden Gase verursachte DOPPLER-Signal an (dessen Frequenz jetzt in den zur Ausfilterung des Testsignals eingestellten niedrigen Durchlaßbereich des Filterverstärkers fällt), während das Testsignal erst nach etwa 10 ms langsam wieder auf seinen ursprünglichen Amplitudenwert ansteigt (wonach dann akustische Störungen an den Meßgeräten wirksam werden).

Dieser Befund ist u. E. entweder auf eine unerwartet langsame Rekombination innerhalb des Rohres oder möglicherweise ebenfalls auf die Wirkung von fein verteilten Graphitpartikeln zurückzuführen. Messungen über diesen Effekt (u. a. mit transversaler Durchstrahlung des Rohres) sind z. Zt. in Vorbereitung.

Anm.: Während der Abfassung des Vortragsmanuskriptes wurde uns eine Arbeit von EDWARDS u. a.¹⁰ bekannt, die die gleiche Methode auf die Untersuchung von $H_2 - O_2$ -Detonationen bei niedrigem Druck anwenden. Da die Reflexionsbedingungen hierbei offenbar ungünstiger liegen als bei unseren Untersuchungen, ergeben sich keine mit den obigen unmittelbar vergleichbaren Meßresultate.

⁷ K. E. SHULER u. J. WEBER, J. Chem. Phys. **22**, 491 [1954].

⁸ S. BASU u. J. A. FAY, 7. Symp. Combustion, London 1959, S. 277.

⁹ A. J. LADERMAN, G. J. HECHT, R. A. STERN u. A. K. OPPENHEIM, 8. Symp. Combustion, Baltimore 1962, S. 199.

¹⁰ D. H. EDWARDS, E. M. JOB u. T. R. LAWRENCE, Nature, Lond. **195**, 372 [1962].