

Absorptionsspektroskopie an resonanzverbreiterten Atomlinien zur Dichtemessung in Düsenstrahlen

W. BRUNNER

Max-Planck-Institut für Physik und Astrophysik, Institut für extraterrestrische Physik,
Garching bei München

(Z. Naturforsch. 24 a, 1063—1065 [1969]; eingegangen am 2. April 1969)

Die Absorptionsspektroskopie an resonanzverbreiterten Atomlinien wird als einfaches und genaues Meßverfahren beschrieben, das vor allem für Untersuchungen an Zweiphasengemischen geeignet ist, bei denen ein Anteil aus Metalldampf besteht. Die zum Verständnis notwendige Theorie wird kurz skizziert und ein Anwendungsbeispiel beschrieben. Dabei handelt es sich um eine Zweiphasenexpansion ins Vakuum, die mit einer Metallverdampfung verbunden ist.

Zur Erzeugung künstlicher Metalldampfwolken* in der Ionosphäre wird das jeweilige Metall aus Zweiphasenströmungen verdampft.

Bei der genauen Untersuchung von Zweiphasenströmungen ist es notwendig, gasförmige und feindisperse kondensierte Anteile, deren Strömungsgeschwindigkeiten bei niederen Drucken sehr unterschiedlich sein können, selektiv zu erfassen, ohne daß bei der Messung an einer Komponente die andere gestört wird. Häufig ist der Partikelanteil massenmäßig so groß, daß — zumal wenn noch Kondensation bzw. Verdampfung ** in der Strömung stattfindet — eine Impulsmessung des Gases bzw. Dampfes auf Grund des Staudruckes (Pitot-Rohre) unmöglich wird. Interferometrie- und Schlierenverfahren werden ebenfalls durch den absorbierenden Staub problematisch. Die absorptionsspektroskopische Bestimmung der Dichte von Metalldämpfen ist ohne Störung durch Kondensatteilchen möglich, da sich das Spektrum des Dampfes grundsätzlich von dem des kondensierten Materials unterscheidet. Besteht die Gasphase nur aus gleichartigen Metallatomen im Dichtebereich zwischen 10^{14} und 10^{17} cm^{-3} , so beherrscht die Resonanzwechselwirkung den Mechanismus der Linienverbreiterung. In diesem Fall ergeben sich breite, leicht zu vermessende Absorptionslinien, die zudem in einfacherem Zusammenhang mit der Dampfdichte stehen. Damit kann man bei einer Zweiphasenexpansion Aussagen über die Ausbreitung der Strömung nach der Düse oder der Strömungsquelle erhalten und z. B. entscheiden, ob bei der Expansion eine Kondensation des Dampfes

fes oder eine Nachverdampfung flüssiger Partikel eintritt, die wiederum das gesamte Strömungsverhalten entscheidend beeinflußt^{1, 2}.

I. Der Mechanismus der wirksamen Linienverbreiterung

Für typische Resonanzlinien von Metallen (z. B. Ba, 5535 Å, $f = 1,4$) wird man im genannten Dichtebereich zwischen $10^{14} - 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ (bei jedem ins Vakuum expandierenden axialsymmetrischen Düsenstrahl findet sich ein für Messungen hinreichend langes Entfernungsintervall von der Düse mit derartigen Dampfdichten) optisch dichte Linien erhalten.

Durchstrahlt man quer zur Strömungssachse, so gilt für die Intensität einer Absorptionslinie bei der Frequenz ω :

$$I_\omega = I_{\omega, 0} \cdot e^{-f^k dl}, \quad (1)$$

$I_{\omega, 0}$ = Kontinuumsintensität des optischen Hintergrundes,

l = durchstrahlte Länge (das Integral über den gesamten Lichtweg genommen).

Dann gilt nach obigen Voraussetzungen für den Absorptionskoeffizienten k :³

$$k = \frac{2 \pi^2 e^2}{m c} N f \frac{\gamma}{2 \pi} \frac{1}{(\omega - \omega_0)^2 + (\gamma/2)^2}, \quad (2)$$

γ = Dämpfungskonstante,

ω_0 = Frequenz in der Linienmitte,

f = Oszillatorenstärke,

N = Atomdichte des Dampfes.

¹ W. BRUNNER, C. COSMOVICI u. K. W. MICHEL, *Physica* **41**, 218 [1969].

² W. BRUNNER u. K. W. MICHEL, *Mitt. Astron. Ges.* **25**, 220 [1968].

³ A. UNSÖLD, *Physik der Sternatmosphären*, Springer-Verlag, Berlin 1955.

Sonderdruckanforderungen erbeten an: W. BRUNNER, Max-Planck-Institut für Physik und Astrophysik, Institut für extraterrestrische Physik, D-8046 Garching bei München.

* G. HAERENDEL, R. LÜST u. E. RIEGER, *Planet. Space Sci.* **15**, 1 [1967].

** R. D. AUER, MPI-PAE/Extraterr. 8/68 [1968].



Dieses Werk wurde im Jahr 2013 vom Verlag Zeitschrift für Naturforschung in Zusammenarbeit mit der Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften e.V. digitalisiert und unter folgender Lizenz veröffentlicht: Creative Commons Namensnennung-Keine Bearbeitung 3.0 Deutschland Lizenz.

Zum 01.01.2015 ist eine Anpassung der Lizenzbedingungen (Entfall der Creative Commons Lizenzbedingung „Keine Bearbeitung“) beabsichtigt, um eine Nachnutzung auch im Rahmen zukünftiger wissenschaftlicher Nutzungsformen zu ermöglichen.

This work has been digitized and published in 2013 by Verlag Zeitschrift für Naturforschung in cooperation with the Max Planck Society for the Advancement of Science under a Creative Commons Attribution-NoDerivs 3.0 Germany License.

On 01.01.2015 it is planned to change the License Conditions (the removal of the Creative Commons License condition "no derivative works"). This is to allow reuse in the area of future scientific usage.

Mit genügender Genauigkeit kann man setzen:

$$\gamma = \gamma_S + \gamma_C,$$

γ_S = Strahlungsdämpfungskonstante,
 γ_C = Stoßdämpfungskonstante.

Kennt man diese beiden Größen, so hat man einen einfachen Zusammenhang zwischen Dichte und Linienbreite. Für Resonanzlinien ergibt sich für die Strahlungsdämpfungskonstante

$$\gamma_S = \sum_n A_{m,n} = 0,6670 \sum_n \frac{g_n}{g_m} \frac{f_{m,n}}{\lambda_{m,0}^2}. \quad (3)$$

Dabei sind g_m und g_n die statistischen Gewichte von oberem und unterem Zustand.

Bei Atomdichten zwischen 10^{14} und 10^{17} cm^{-3} wird die Verbreiterung von Spektrallinien erlaubter Dipolübergänge zum Grundzustand hauptsächlich von der Resonanzverbreiterung beherrscht. Für die Stoßdämpfungskonstante wird hier der folgende Ausdruck angegeben⁴:

$$\gamma_C = 1,92 \cdot 2 \pi (g_m/g_n)^{1/2} (e^2 f/m \omega_0) N = A f N. \quad (4)$$

Bemerkenswert ist, daß dieses Ergebnis unabhängig von der Geschwindigkeitsverteilung der stoßenden Teilchen ist und damit die Temperatur als schwer zu erhaltende Kenngröße wegfällt.

In hinreichend großem Abstand von der Linienmitte wird auf jeden Fall in Formel (2) gelten

$$(A\omega)^2 \gg [(\gamma_S + \gamma_C)/2]^2, \quad (5)$$

so daß

$$k \approx (\pi e^2 / m c) N f (\gamma_S + A f N) / (A\omega)^2. \quad (9)$$

Die Äquivalentbreite W_ω ist dann für $N = \text{const}$ auf der Strecke l

$$W_\omega = \int_0^\infty [(I_{\omega,0} - I_\omega) / I_{\omega,0}] d\omega \\ = V^{1/2} \pi^2 e^2 / m c \cdot \sqrt{N l f (\gamma_S + A f N)}. \quad (7)$$

Zum Beispiel im Fall der Bariumresonanzlinie (5535 \AA ; $f = 1,4$; $l = 1 \text{ cm}$) hat diese Wachstumskurve den in Abb. 1 gezeigten Verlauf. Man ersieht daraus direkt, daß bei kleineren Dichten $W_\omega \sim VN$ ist, während bei höheren Dichten beide Größen einander direkt proportional sind, wodurch sich eine hohe Meßgenauigkeit erreichen läßt.

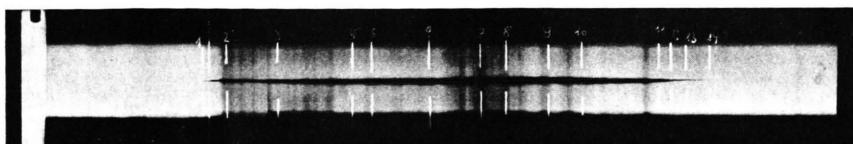


Abb. 2. Registrieraufnahme einer Absorptionslinie.

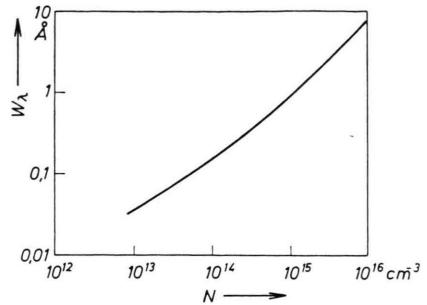


Abb. 1. Wachstumskurve der Bariumresonanzlinie.

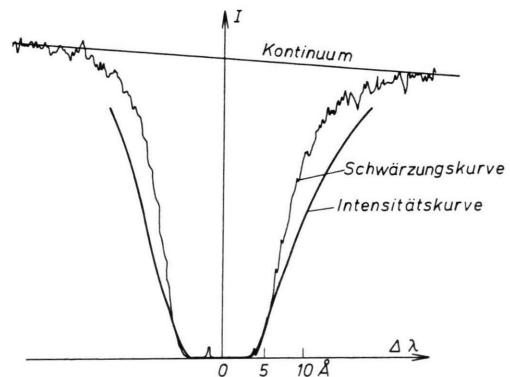


Abb. 3. Schwärzungs- und Intensitätskurve im Schnitt a-a von Abb. 2.

Wenn man aus den erhaltenen Absorptionslinien die Dampfdichte praktisch bestimmen will, so hat man bezüglich der Auswertung zwei Möglichkeiten:

- man bestimmt die Äquivalentbreite,
- man bestimmt die Halbwertsbreite.

Schneller und einfacher ist die Bestimmung der Halbwertsbreite.

Ist die Dichte über dem Sehstrahl nicht konstant, so gilt allgemein

$$I = I_0 \exp \left\{ - \frac{\pi e^2 f}{m c (A\omega)^2} \int_0^l [N(l) \gamma_S + N^2(l) \gamma_C] dl \right\}. \quad (8)$$

Ist die Form des Dichteprofils bekannt, so werden zweckmäßigerweise Mittelwerte eingeführt:

$$\langle N \rangle = (1/l) \int_0^l N(l) dl, \quad (9)$$

$$\langle N^2 \rangle = (1/l) \int_0^l N^2(l) dl. \quad (10)$$

II. Experimentelle Anordnung

In einem Reaktionsgefäß befanden sich ca. 100 g einer exothermen Mischung aus CuO + nBa ($1 \leq n \leq 5$), die nach einer schnellen Durchreaktion (ca. 10 ms) eine Temperatur von 2500 °K erreichte und durch eine konvergente Düse in eine Vakuumkammer von 20 m^3 Inhalt (anfänglich 10^{-6} Torr) ausströmte. Als Treibgas wurde etwas N₂ in Form von NaN₃ beigegeben. Während der Entspannung verfiel die Flüssigkeit in kleine Tröpfchen ($0,2 \mu \leq r \leq 20 \mu$), aus denen während des Fluges das Barium weiterverdampfte. Dieser Ausströmungsvorgang war gut reproduzierbar und konnte in Düsenabständen von weniger als 1 m als quasistationär behandelt werden. Die Resonanzlinie des Ba (5535 Å), die bei der Durchstrahlung des Düsenstrahls mit dem Licht einer Xe-Lampe in Absorption entstand, wurde zeitaufgelöst registriert. Als Meßgeräte wurden verwendet: ein Prismenspektrograph (Zeiss-Jena, $f=130 \text{ cm}$, Auflösungsvermögen $0,1 \text{ \AA}$ bei 5535 Å) und eine kontinuierlich laufende Registrierkamera (Zeiss-Oberkochen, Vorschubgeschwindigkeit ca. 80 cm/sec). Eine so erhaltene Absorptionslinie zeigt Abb. 2. Die Schwärzungs- und Intensitätskurve (geglättet) im Schnitt a-a ist in Abb. 3 dargestellt.

Für die Abhängigkeit der Dampfdichte vom (halben) Strömungswinkel ergab sich wie bei homogenen Düsenstrahlen⁵ mit genügender Genauigkeit ein \cos^2 -Profil mit einem maximalen Strömungswinkel⁶ von ca. 60° . Damit ließ sich ohne weiteres der Zusammenhang zwischen den mittleren Dichten $\langle N \rangle$ und den meßbaren Halbwertsbreiten der Linien berechnen.

Diskussion

Die entscheidende Größe bei dem beschriebenen Absorptionsverfahren ist die Stoßdämpfungskonstante γ_C . Die bei ALI und GRIEM⁴ angegebenen Gültigkeitskriterien sind für die gemessenen Absorptionslinien nicht alle erfüllt. Eine Änderung in γ_C sollte sich aber in der Linienform bemerkbar machen; was nicht beobachtet wurde; ebenso wurden keine Asymmetrien festgestellt. Für die Richtigkeit der angegebenen Stoßdämpfungskonstante auch für Abstände bis zu 10 Å von der Linienmitte spricht auch, daß die Messungen über den gesamten Querschnitt des Düsenstrahls (1,20 m) und die, bei denen durch die Öffnungen (7 cm) im Blendrohr nur kleine Ausschnitte mit nahezu homogener Dampfdichte erfaßt werden, gut übereinstimmende Ergebnisse lieferten. Hier war die Gültigkeit der ange-

benen Kriterien auf jeden Fall erfüllt. Messungen zur Prüfung der von ALI und GRIEM⁴ angegebenen Beziehung an stationären Dämpfen mit besserer Genauigkeit sind in Vorbereitung. Bei der Untersuchung von Düsenstrahlen allgemeiner Art werden immer Bereiche auftreten, in denen die Atomdichten zwischen 10^{14} und 10^{17} Teilchen/cm³ liegen, da auch bei anfänglich höherer Konzentration diese auf Grund der Expansion kontinuierlich abnimmt und man dann in den temperaturunabhängigen Bereich der Dämpfungs- bzw. der Resonanzverbreiterung kommt.

In unserem Falle konnten mit der angegebenen einfachen Meßanordnung in Kombination mit üblichen Zweiphasenströmungsmeßverfahren schon grundlegende neue Erkenntnisse über Verdampfungsphänomene im freien Düsenstrahl gewonnen werden, die das gesamte Strömungsverhalten der Zweiphasenexpansion entscheidend beeinflußten^{1, 2}.

Zwei weitere Beispiele mögen illustrieren, daß die vorgeschlagene Absorptionsspektroskopie im Bereich der Resonanzverbreiterung eine ideale Untersuchungsmethode darstellt. Bei Entspannung stoßkomprimierter Festkörper ins Vakuum kann teilweise Verdampfung auftreten, die sich absorptionsspektroskopisch relativ leicht zeitaufgelöst untersuchen lassen. Dadurch kann man Messungen über die Hugoniot-Parameter des Festkörpers erhalten⁷.

Eine Anwendung solcher Festkörperstoßwellen ist die Erzeugung sehr schneller Metalldampfstrahlen ($v > 10 \text{ km/sec}$) mit Hohlladungen (z. B. für künstliche Ionenjets in der Magnetosphäre). Hier erwies sich die beschriebene zeitaufgelöste Absorptionsspektroskopie (mit schmalbandigem Filter und Bildwandlkamera) als geeignete Meßmethode, um die Effektivität solcher Metallverdampfungen zu untersuchen⁸.

Auch bei Stoßwellenmessungen der Verdampfungs geschwindigkeit von in Argon suspendierten Metallrauch und zur Konzentrationsbestimmung der Metallatome hat sich die Absorptionsspektroskopie mit Monochromator und photoelektrischer Registrierung als ein genaues und einfaches Meßverfahren bewährt⁹.

Herrn Prof. Dr. R. LÜST danke ich für die Ermöglichung dieser Arbeit an seinem Institut. Mein besonderer Dank gilt Herrn Dr. K. W. MICHEL für zahlreiche Anregungen und Diskussionen.

⁴ A. W. ALI u. H. R. GRIEM, Phys. Rev. **140**, A 1044 [1965]; **144**, 366 [1966].

⁵ H. ASHKENAS u. F. S. SHERMAN, Rarefied Gas Dynamics, 4. Symp., Herausgeb. J. H. DE LEEUW, Academic Press, New York 1966.

⁶ W. BRUNNER, MPI-PAE/Extraterr. 16/68 [1968]; C. B. COSMOVICI, MPI-PAE/Extraterr. 12/68 [1968].

⁷ YA. ZEL'DOVICH u. YU. P. RAIZER, Physics of Shock Waves and High Temperature Hydrodynamic Phenomena, Academic Press, New York—London 1967, S. 771.

⁸ W. BRUNNER, H. FÖPPL u. K. W. MICHEL, Second Int. Colloquium on Gasdynamics of Explosions and Reactive Systems, IAA, Nowosibirsk 1969.

⁹ F. NAUMANN, Dissertation, Technische Hochschule München, in Vorbereitung.