

Messung der Ionisations-Relaxations-Zeiten von Krypton und Xenon in einem Stoßwellen-geheizten Plasma

H. CARLS

Institut für Experimentalphysik der Universität Kiel

(Z. Naturforsch. 27 a, 1597—1601 [1972]; eingegangen am 26. August 1972)

Measurement of Ionization-Relaxation-Times in Shock Heated Krypton and Xenon

Total ionization-relaxation times have been measured in shocked noble gases (Kr, Xe) by means of interferometric, schlieren and spectroscopic methods. For Xenon, there is good agreement with relaxation times, measured by other authors. For Krypton, experimental data have not been found in the literature. Discrepancies with calculated relaxation times are discussed.

Einführung

In einem thermischen Plasma werden die freien Elektronen vorwiegend in Elektron-Atom-Stößen gebildet, es sei denn, die Elektronendichte im Plasma ist sehr gering. Genau das ist aber der Fall, wenn ein Gasvolumen durch eine starke Stoßwelle komprimiert und aufgeheizt wird. Unmittelbar hinter der Stoßfront (Dichtesprung), die nur einige freie Weglängen dick ist, sind nur die Translations-Freiheitsgrade der schweren Teilchen angeregt. (Wir betrachten hier und im folgenden einatomige Gase.) Freie Elektronen können zunächst nur durch Atom-Atom-Stöße gebildet werden. Nach Abschätzungen von WONG und BERSHADER¹ spielen für Mach-Zahlen unter 18 Photoionisation und Elektronendiffusion eine untergeordnete Rolle. Erst bei höheren Elektronendichten werden die effektiveren Elektron-Atom-Stöße für den Ionisationsprozeß vorherrschend.

Die Erzeugung der ersten freien Elektronen läuft, wie HARWELL und JAHN² durch Messungen zeigten, in einem Zwei-Stufen-Prozeß ab. Im ersten Schritt, der die Geschwindigkeit der gesamten Reaktion bestimmt, wird ein Atom in den ersten angeregten Zustand gehoben. Im zweiten Schritt wird dieses angeregte Atom dann stoßionisiert.

I	$A + A \rightarrow A^* + A$	Anregung
II	$A^* + A \rightarrow A^+ + e$	Ionisation

Details zu diesem Modell sind in der Literatur an verschiedenen Stellen zu finden³⁻⁷.

Berechnete Ionisations-Relaxations-Zeiten hängen sehr empfindlich von den numerischen Werten für die Atom-Atom-Stoßquerschnitte ab, da der erste Bereich der Relaxationszone (Bildung freier Elek-

tronen in Atom-Atom-Stößen) bei niedrigen Mach-Zahlen den größten Teil der Gesamt-Relaxationszeit ausmacht. Diese Querschnitte konnten bisher experimentell nur ziemlich ungenau bestimmt werden, wobei die Ergebnisse der einzelnen Autoren stark streuen (siehe dazu Diskussion). Die experimentelle Bestimmung von Ionisations-Relaxations-Zeiten ermöglicht umgekehrt, zusammen mit den Rechnungen, Rückschlüsse auf die Stoßquerschnitte.

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit der Messung von Ionisations-Relaxations-Zeiten in Krypton und Xenon. Es wurden interferometrische, Schlieren-optische und spektroskopische Meßmethoden benutzt.

Für Xenon ergibt sich gute Übereinstimmung der Ergebnisse mit Messungen anderer Autoren. Für Krypton sind bisher keine experimentell bestimmten Relaxationszeiten in der Literatur zu finden. In beiden Fällen zeigen sich jedoch starke Abweichungen zwischen theoretischen und experimentellen Werten; mögliche Ursachen werden diskutiert.

Experimenteller Aufbau

Für die Untersuchungen wurden wasserstoffgetriebene Stoßwellenrohre konventioneller Bauart benutzt. Die meisten Messungen (Schlieren-optisch und spektroskopisch) wurden an einem Rohr mit rundem Querschnitt ($\phi = 7$ cm) durchgeführt. Die Längen von Hoch- und Niederdruckteil sind 100 cm bzw. 350 cm. Die interferometrischen Messungen wurden an einem Rohr aus Edelstahl mit rechteckigem Querschnitt (5×7 cm²) gemacht. Hoch- und Niederdruckteil dieses Rohres sind 100 cm bzw. 400 cm lang. Die Interferometerfenster haben die Abmessungen 5×11 cm und befinden sich 315 cm von der Membran entfernt. Eine genaue Beschreibung der Rohre findet sich in^{8,9}.

Zur Vermeidung langer Wartezeiten beim Einlassen des Testgases in das Stoßrohr wird das Gas (Krypton



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 digitalized 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.

bzw. Xenon reinst der Fa. Linde, Fremdgaspartialdruck kleiner als 500 ppm) vor dem Versuch aus der Druckflasche über ein Reduzierventil in ein Vorratsgefäß gefüllt. Der Enddruck im Niederdruckventil kann bereits hier eingestellt werden, da das Expansionsverhältnis Vorratsflasche/Niederdruckteil sehr genau bekannt ist. Die Wartezeit zwischen dem Abtrennen der Pumpe und dem „Schuß“ kann so auf etwa 1 Minute beschränkt werden. Damit beträgt, bei einem Gesamtvolumen von 12 Litern, der Partialdruck durch Fremdgase im Augenblick des Experimentes etwa $5 \cdot 10^{-4}$ Torr, was bei 5 Torr Anfangsdruck einer Verunreinigung des Gases im Expansionsteil von 100 ppm entspricht.

Benutzt man als Maß für die Verunreinigungen das Verhältnis der Ionen (im Gleichgewichtszustand) die von Verunreinigungen herrühren zur Zahl der Ionen des Testgases, so liegt dieser Wert in allen Experimenten unter 0,2%. Nach BIBERMAN et al.¹⁰ sollten Verunreinigungen unter 1% keinen oder nur einen sehr geringen Einfluß auf die Relaxationszeiten haben.

Geschwindigkeitsmessung

Die thermodynamischen Zustandsgrößen im Plasma hinter der einfallenden Stoßwelle können bei bekannter Stoßfrontgeschwindigkeit aus den Rankine-Hugoniot-Beziehungen berechnet werden. Die Geschwindigkeit des einfallenden Stoßes wird mit Hilfe eines Strahl-Ablenk-Verfahrens (beam deflection) gemessen, das den Dichtegradienten der vorbeilaufenden Stoßfront an vier Stellen des Rohres (jeweils 50 cm voneinander entfernt) registriert. Aus dem räumlichen Abstand der Meßstellen und dem zeitlichen Abstand der Signale ergibt sich die Geschwindigkeit.

Der Fehler in der Geschwindigkeitsmessung wird im wesentlichen durch Ungenauigkeiten in der Registrierung der Zeitdifferenzen bestimmt. Er beträgt 0,5% bei einer typischen Stoßfrontgeschwindigkeit von 0,25 cm/ μ sec. Innerhalb dieser Fehlergrenzen stimmen die drei gemessenen Geschwindigkeiten überein. Nichtstationarität bzw. eine Änderung der Stoßfrontgeschwindigkeit wurde nicht festgestellt.

Messung der Relaxationszeit

Die Relaxationszeiten für Ionisation, d. h. die Zeit zwischen dem Aufheizen des Plasmas (Durchgang der Stoßfront, Dichtesprung) und dem Erreichen des maximalen Wertes in der Elektronendichte, konnten auf verschiedene Weise bestimmt werden.

a) Interferometrisch

Für den Brechungsindex eines teilweise ionisierten Gases, bestehend aus Elektronen, neutralen Atomen und einfach ionisierten Teilchen, gilt:

$$n - 1 = 2\pi (n_0 a_0 + n_+ a_+) - \frac{1}{2} \left(\frac{\omega_p}{\omega} \right)^2$$

Hier bedeuten a_i die Polarisierbarkeiten für das Atom bzw. Ion und $\omega_p^2 = 4\pi n_e e^2/m_e$ die Plasmafrequenz. Es wird angenommen, daß $\omega \gg \omega_p$ ist, daß man weit von Resonanzlinien entfernt ist und daß die Zahl der Atome in angeregten Zuständen klein gegenüber der Zahl der Atome im Grundzustand ist. Diese Voraussetzungen sind für die Edelgase, mit ihren hoch liegenden ersten angeregten Niveaus, recht gut erfüllt. In Abb. 1 ist ein Inter-

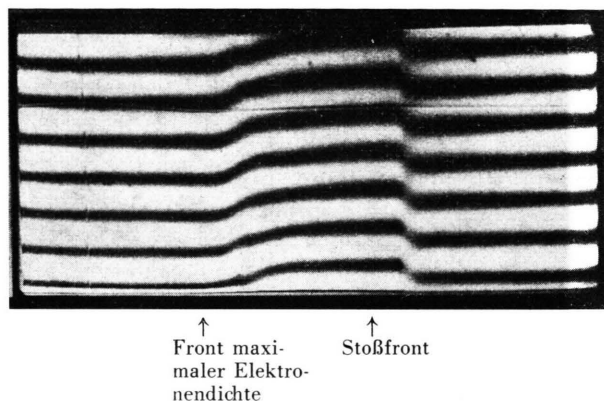


Abb. 1. Interferogramm (Mach-Zehnder) einer Stoßwelle in Krypton. Die Größe des Gesichtsfeldes ist 11×5 cm; die Versuchsbedingungen waren: Vorlanddruck: $p_0 = 2,0$ Torr; Stoßfrontgeschwindigkeit: $U = 2,9 \cdot 10^5$ cm/ μ sec; Mach: 13,3; Belichtungszeit: 0,6 μ sec, $\lambda = 6380$ Å, $\Delta\lambda = 190$ Å.

ferogramm einer Stoßwelle, das mit einem Mach-Zehnder-Interferometer aufgenommen wurde, wiedergegeben. Die Stoßwelle läuft von links nach rechts. Die Stoßfront ist unscharf (Bewegungsunschärfe). Aus dem Abstand der Ebene maximaler Elektronendichte zur Stoßfront erhält man, bei bekannter Stoßfrontgeschwindigkeit, die Relaxationszeit für Ionisation.

b) Schlierentechnik

In einem Schlierenverfahren mißt man nicht – wie bei der Interferometrie – den Brechungsindex, sondern dn/dx bzw. dn/dt . Es wurde folgender experimenteller Aufbau benutzt: Ein Lichtstrahl (Laser) von ca. 1,2 mm Durchmesser durchquert das Stoßwellenrohr senkrecht zur Ausbreitungsrichtung der

Stoßwelle und fällt, etwa 3 m vom Rohr entfernt, auf eine Blendenkante, die so justiert ist, daß die Hälfte des Lichtbündels auf einen hinter der Blende stehenden SEV gelangt. In der oberen Spur von Abb. 2 ist das Signal wiedergegeben. Breitet sich im

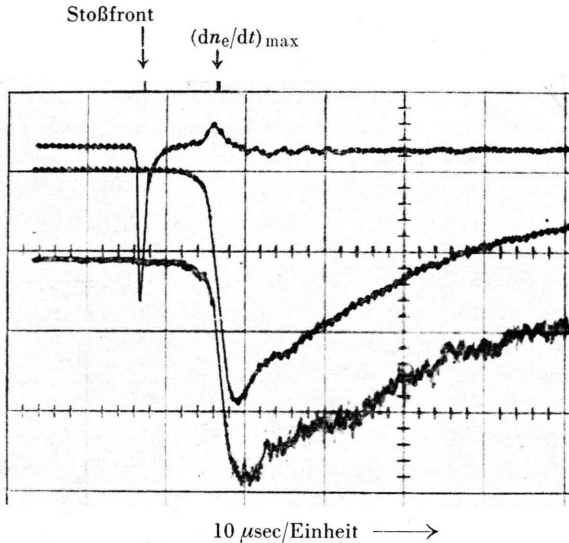


Abb. 2. Oszillogramm: Die obere Spur zeigt das Schlierensignal. Die unteren Spuren geben das Eigenleuchten der Stoßwelle bei 4000 Å und bei 1226 Å wieder. Die Parameter der Stoßwelle waren: Mach 11,5 in 5 Torr Krypton.

Rohr eine Stoßwelle aus, so wird der Laserstrahl bei Durchgang der Stoßfront abgelenkt, das volle Licht fällt auf den SEV und verursacht die erste negative Spitze. Nachdem die Front an der Meßstelle vorbeigelaufen ist, kehrt der Lichtstrahl in die Nullage zurück. Die später nachfolgende Ionisationsfront bewirkt ebenfalls eine Ablenkung des Strahles, jetzt jedoch in anderer Richtung (positiver Buckel in Abbildung 2).

c) Lichtemission

Gleichzeitig mit dem Schlieren-Signal wurde an demselben Ort das Eigenleuchten des Plasmas hinter der Stoßwelle registriert. Mit einem schmalbandigen Interferenzfilter ($\Delta\lambda = 80 \text{ Å}$) bzw. einem Monochromator wurde die Intensität in einem linienfreien Bereich des Kontinuums registriert. Die Kontinuumsstrahlung wurde aus optisch dünner Schicht emittiert und ist proportional n_e^2/\sqrt{T} . Die Oszillographen-Spuren 2 und 3 in Abb. 2 geben den Verlauf des Eigenleuchtens der Stoßwelle bei 4000 Å und 1226 Å wieder. Man sieht, daß die Wendepunkte im Anstieg des Kontinuumsignals ($I \sim n_e^2$) gut mit dem Maxi-

mum des Schlierensignals ($\sim \text{grad } n_e$) zusammenfallen.

Die eigentliche Stoßfront, der Dichtesprung, kann spektroskopisch nicht beobachtet werden, da die Elektronendichte zunächst zu gering ist. Die gleichzeitige Registrierung von Schlieren-Signal und Kontinuumsleuchten erlaubt jedoch eine genauere Festlegung der Front maximaler Elektronendichte und damit der Relaxationszeiten.

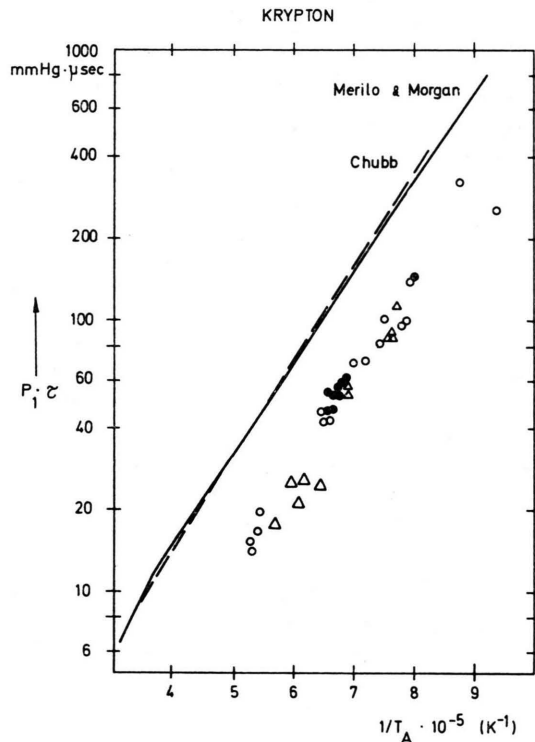


Abb. 3. Das Produkt von Vorlanddruck und Relaxationszeit gegen die reziproke Temperatur, unmittelbar hinter der Stoßfront. \triangle interferometrische Messungen, \circ spektroskopische und Schlieren-optische Messungen. Bei den ausgefüllten Kreisen handelt es sich um Mittelwerte aus 4–7 Versuchen. Die Kurven stellen berechnete Werte dar.

Ergebnisse

In den Abb. 3 und 4 ist für Krypton und Xenon das Produkt von Vorlanddruck und Relaxationszeit gegen die reziproke Temperatur, unmittelbar hinter der Stoßfront, eingezeichnet. Die Temperatur wurde aus der gemessenen Frontgeschwindigkeit über die Rankine-Hugoniot-Beziehungen berechnet. Bei den interferometrisch bestimmten Werten, in Abb. 3 als Dreiecke gekennzeichnet, handelt es sich um Einzelmessungen. Bei den Schlieren-technisch und spektro-

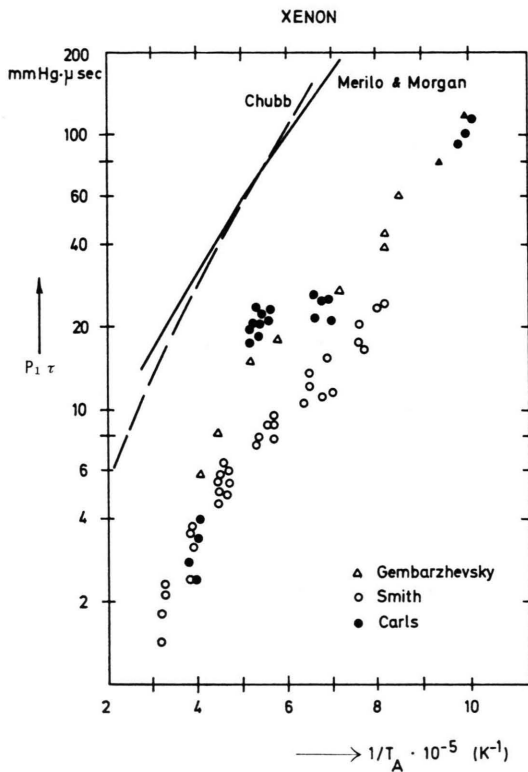


Abb. 4. Das Produkt aus Vorlanddruck und Relaxationszeit gegen die reziproke Temperatur, unmittelbar hinter der Stoßfront. Die Kurven stellen theoretische Werte dar.

skopisch bestimmten Relaxationszeiten wurden pro Experiment vier Werte gemittelt. An zwei Stellen am Rohr, 50 cm voneinander entfernt, wurde je ein Wert mit Hilfe der Schlieren-Anordnung und ein Wert aus dem Kontinuumsverlauf gemessen. Eine Reihe von Experimenten mit dicht beieinanderliegenden Parametern ergaben fast gleiche Ergebnisse. In diesen Fällen wurden die Relaxationszeiten aus ca. 4–7 Versuchen gemittelt und als gefüllte Kreise in Abb. 3 eingezeichnet. Die Versuchsbedingungen bewegten sich in den Bereichen:

Krypton	Xenon
$1,8 < p_0 < 10$ (Torr)	$2,0 < p_0 < 20$ (Torr)
$14 > \text{Mach} > 10,5$	$16,5 > \text{Mach} > 10$

Diskussion

a) Xenon

In Abb. 4 sind außer den hier beschriebenen Meßwerten experimentell bestimmte Relaxationszeiten von SMITH⁵ und GEMBARZHEVSKY et al.¹¹ sowie berechnete Werte von CHUBB⁶ und von MERILO und

MORGAN⁷ eingezeichnet. Ältere Messungen von TURNER¹² und von ROTH und GLOERSEN¹³ wurden nicht berücksichtigt, da, wie aus der ausführlichen Diskussion bei Merilo und Morgan hervorgeht, die Ergebnisse von Turner wahrscheinlich durch zu hohe Verunreinigungen verfälscht sind, während bei Roth und Gloersen anscheinend ein Meßfehler vorliegt. (Merilo und Morgan vermuten, daß die Autoren nicht die Relaxationszeiten, sondern die Zeitdifferenz zwischen Stoßfront und Kontaktfront gemessen haben.) Wie man aus Abb. 4 sieht, ist die gegenseitige Übereinstimmung der experimentellen Werte gut, gegenüber den theoretisch ermittelten Relaxationszeiten liegt jedoch eine Abweichung vor, die bei Smith fast einen Faktor 10, gegenüber hier ca. einen Faktor 6 beträgt. Merilo und Morgan zeigen in ihrer Arbeit gute Übereinstimmung ihrer Rechnungen mit den Meßwerten von Smith. Hier liegt aber, wie Gembarzhevsky et al. bemerken, offenbar ein Irrtum bei der Ablesung der Smithschen Daten vor (Skala in cm Hg und mm Hg).

b) Krypton

Für Krypton liegen, außer den hier mitgeteilten, bisher keine experimentellen Werte vor. Auch hier weichen, ebenso wie bei Xenon, Experiment und Theorie voneinander ab. Die gemessenen Relaxationszeiten sind etwa einen Faktor 2,5 kleiner als die von Chubb sowie Merilo und Morgan berechneten Zeiten.

Eine sehr wichtige Größe in den Rechnungen ist der Wirkungsquerschnitt für Atom-Atom-Stoß. Mit HARWELL und JAHN² wird allgemein der Ansatz gemacht:

$$\sigma_{\text{ex}} = C^* (V_0 - V_{\text{ex}}).$$

Hier ist $V_0 = (m_0/4) \cdot g_0^2$, wo m_0 die Atommasse, g_0 die relative Geschwindigkeit zwischen den stoßenden Atomen, V_{ex} die Energie des ersten angeregten Zustandes des Atoms und C^* eine Konstante ist, die experimentell bestimmt wird. CHUBB⁶ weist darauf hin, daß eine Vergrößerung von C^* um den Faktor 5 eine Verkleinerung der Relaxationszeiten um den Faktor 2 zur Folge hat. Sowohl Chubb als auch Merilo und Morgan benutzen in ihren Rechnungen einen Wert für C^* , der von KELLY³ gemessen wurde (Kr: $C^* = 1,4 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2/\text{eV}$).

Vor kurzem hat MEINHOLD¹⁴ die Messung der Atom-Atom-Stoß-Wirkungsquerschnitte mit erhöhter Genauigkeit wiederholt. Er führte seine Experimente

mit Mikrowellen von 0,4 cm aus (Kelly: 1,25 cm). Meinhold erhält für Krypton: $C^* = 9,6 \cdot 10^{19} \text{ cm}^2/\text{eV}$, ein Wert, der um einen Faktor 6,8 größer ist als der von Kelly bestimmte. Würde man diesen Wert den Rechnungen von Chubb zugrunde legen, so wären für Krypton um den Faktor 2,7 kleinere Relaxa-

tionszeiten zu erwarten. Damit ergäbe sich auch Übereinstimmung mit den vorliegenden Messungen.

Herrn Prof. Dr. W. LOCHTE-HOLTGREVEN möchte ich für die mir gewährte Möglichkeit, diese Untersuchung durchzuführen, danken. Der Bundesminister für Bildung und Wissenschaft unterstützte die Arbeit durch Personal- und Sachmittel.

- ¹ H. WONG u. D. BERSHADER, J. Fluid Mech. **26**, 459 [1966].
- ² K. E. HARWELL u. R. G. JAHN, Phys. Fluids **7**, 214 [1964].
- ³ A. J. KELLY, J. Chem. Phys. **45**, 1723 [1966].
- ⁴ M. I. HOFFERT u. H. LIEN, Phys. Fluids **10**, 1769 [1967].
- ⁵ J. A. SMITH, Phys. Fluids **11**, 2150 [1968].
- ⁶ D. L. CHUBB, Phys. Fluids **11**, 2363 [1968].
- ⁷ M. MERILO u. E. J. MORGAN, J. Chem. Phys. **52**, 2192 [1970].
- ⁸ H. CARLS, BMBW-FB K 71-13 [1971].

- ⁹ L. REHDER et al., BMwF-FB K 68-29 [1968].
- ¹⁰ L. M. BIBERMAN, A. KH. MNATSAKANYAN u. I. T. YAKUBOV, Sov. Phys. Uspekhi **13**, 728 [1971].
- ¹¹ G. V. GEMBARZHEVSKY et al., Preprints of the Eighth International Shock Tube Symposium, London 1971.
- ¹² E. B. TURNER, Ph. D. Thesis, Univ. of Michigan 1956.
- ¹³ W. ROTH u. P. GLOERSEN, J. Chem. Phys. **29**, 820 [1958].
- ¹⁴ G. MEINHOLD, BMBW-FB K 72-05 [1972].

Ein neues Verfahren zur Messung der radialen Temperaturverteilung in inhomogenen und instationären Plasmasäulen mit erheblicher Selbstabsorption¹

D. MEINERS und W. WEBER

Institut für Plasmaphysik der Technischen Universität Hannover

(Z. Naturforsch. **27 a**, 1601—1606 [1972]; eingegangen am 18. August 1972)

New Technique for Measuring the Radial Temperature Distribution in Inhomogeneous and Instationary Plasma Columns with Considerable Self-Absorption

The complete lateral distributions of emitted intensity and optical thickness of the instationary plasma column are measured simultaneously by probing the plasma with its own radiation and recording both distributions on a single high-speed spectrum. From these lateral distributions the radial distributions of the coefficients of emission and absorption are calculated and by application of Kirchhoff's law the radial temperature distribution is determined. This new technique has been applied to an exploding wire plasma with 37 000 K on the axis. The mean deviations of three temperature distributions obtained by independent measurements at different wavelengths are less than 3 per cent.

1. Einleitung

Plasmen mit hohen Teilchendichten, wie sie z. B. bei Höchstdruckbögen, Funkenentladungen und Drahtexplosionen auftreten, sind häufig sowohl im Sichtbaren als auch im nahen UV weder in den Linien noch im Kontinuum optisch dünn. In diesen der Messung gut zugänglichen Spektralbereichen sind daher die auf der Voraussetzung optisch dünner Schicht basierenden viel benutzten einfachen diagnostischen Verfahren, welche mit Emissionsmessungen allein ohne Berücksichtigung der Absorption auskommen, nicht anwendbar. Prinzipiell können diese einfachen Verfahren natürlich bei kürzeren Wellenlängen eingesetzt werden, also im Vakuum-UV und

im Röntgen-Gebiet, wo die optische Schichtdicke genügend gering ist. Weil jedoch die Plasmadiagnostik in diesem Spektralbereich mit großem experimentellen Aufwand und mit erheblichen Schwierigkeiten bei der absoluten Kalibrierung der Strahlungsdetektoren verbunden ist und außerdem häufig das die Plasmasäule umgebende Neutralgas nicht transparent ist, kommt auch solchen diagnostischen Methoden eine große Bedeutung zu, welche die Selbstabsorption berücksichtigen und daher im Sichtbaren oder nahen UV angewandt werden können.

Für die Messung der Temperaturverteilung in *stationären* rotationssymmetrischen Plasmasäulen sind zwei Methoden dieser Art bereits seit langem bekannt und erprobt. Bei der Strahldichte-Schichtdicke-Methode werden aus Messungen der Mitte-Rand-Variationen der emittierten Strahldichte und der optischen Schichtdicke die radialen Verteilungen des

Sonderdruckanforderungen an Prof. Dr. D. MEINERS, Physikalisches Institut der Universität Düsseldorf, D-4000 Düsseldorf, Ulenbergstraße 123—131.