

Radialverteilung der Nachleuchte-Lichtintensität im Stickstoff

P. Kocian

Laboratoire de Physique Appliquée, Ecole Polytechnique
Fédérale de Lausanne, Suisse

(Z. Naturforsch. 31 a, 1431–1432 [1976];
eingegangen am 3. August 1976)

Radial Distribution of the Light-intensity in Nitrogen Afterglow

The radial distribution of the first positive band system in nitrogen afterglow in dependence on the discharge current and on the pressure has been investigated. The measurements were made in the pressure range 0.06 torr–6 torr. It has been found that the radial profile of the intensity follows approximately the square of the J_0 Bessel function.

1. Einleitung

Bei elektrischen Entladungen im Stickstoff kann man unter gewissen Bedingungen das Nachleuchten (afterglow) beobachten. Das Nachleuchten tritt entweder im Strömungssystem hinter der Entladung oder im statischen System nach dem Ausschalten der Entladung auf. Es handelt sich um Strahlung von N_2 -Molekülen, welche nicht unter dem Einfluß des elektrischen Feldes sind. Das Nachleuchten enthält vorwiegend das erste positive Bandensystem des Stickstoffs, welches dem Übergang $N_2(B^3\Pi_g) \rightarrow N_2(A^3\Sigma_u)$ entspricht. Das Spektrum des Nachleuchtens muß vom Spektrum der Entladung unterschieden werden. Das Entladungsspektrum enthält zusätzlich das zweite positive Bandensystem.

Die Lichtintensität des Nachleuchtens ist nicht nur durch die Betriebsparameter der Entladung – wie Entladungsstrom oder Druck – beeinflußt, sondern auch durch die Reinheit des Gases und durch die Eigenschaften der Gefäßwand¹, obwohl deren Rolle bisher nicht vollkommen geklärt ist. Aus diesem Grund enthält die Fachliteratur auf diesem Gebiet sehr oft gegensätzliche Ergebnisse^{2–4}.

Die Eigenschaften des Nachleuchtens wurden in zahlreichen Arbeiten beschrieben (vgl. ⁵ und dort angegebene Literatur), aber keine Arbeit beschäftigte sich bisher, weder theoretisch noch experimentell, mit der Radialstruktur des Nachleuchtens.

2. Experimentelles

Große Aufmerksamkeit wurde der Reinheit der Entladungsatmosphäre gewidmet. Für unsere Experimente wurde eine Standardvakuumapparatur benutzt. Eine zweistufige Rotationspumpe mit Öldiffusionspumpe und der Kühlwanne ermöglichen, ein Endvakuum von 10^{-7} Torr im Entladungsraum zu erreichen. Die Entladung wurde in einem Pyrexrohr von 60 mm Innendurchmesser und 600 mm Länge

im strömenden Stickstoff erzeugt. Zuerst wurde das Rohr mehrere Stunden ent gast, auf einige hundert Grad aufgeheizt und mit strömendem Stickstoff gespült. Wir verwendeten Messer-Griesheim-Stickstoff vom Reinheitsgrad 99,995%, welcher vor dem Eintritt ins Entladungsrohr noch Oxisorb und eine CO_2 -Kühlwanne passierte. Die Strömungsgeschwindigkeit wurde mit zwei Nadelventilen geregelt und mit einem Rotameter gemessen. Die Entladung wurde von einem hochstabilisierten Heinzinger-Netzgerät 3,5 kV – 2 A gespeist. Die Hohlzylinderelektroden aus Molybdän waren in Seitenröhren angebracht. Die Untersuchungen wurden in der Gleichstromentladung durchgeführt, wo, besonders bei stärkeren Strömen, die Möglichkeit der Verunreinigung durch Kathodenzerstäubung besteht. Deshalb wurden die Messungen im strömenden System durchgeführt. Um den Einfluß der Strömung auf die Lichtintensität des Nachleuchtens zu verhindern, mußte die Strömungsgeschwindigkeit klein gehalten werden. Mehrere Experimente zeigten, daß bei einer Geschwindigkeit von 5 cm s^{-1} die Entladungsatmosphäre rein genug bleibt, und deshalb wurde diese Strömungsgeschwindigkeit gewählt. Das Nachleuchten wurde im Entladungsrohr nach dem Abschalten der Entladung mit einem Einmeter-Czerny-Turner-Gitterspektrometer (SPEX Typ 1704) untersucht. Das Bandenspektrum wurde mit einer Photomultiplier Philips XP 1002, Spektraltyp S-20 über einen Schreiber erhalten. Die Achse des Spektrometers war parallel zur Achse des Entladungsrohres angeordnet. Vor der Optik des Spektrometers wurde eine kleine Irisblende angesetzt und das Spektrometer senkrecht zur Achse des Entladungsrohres verschiebbar gemacht, so daß es möglich war, die Lichtintensität an verschiedenen Punkten des Rohrquerschnitts zu messen. Der Einfallswinkel war $0^\circ 21'$, so daß auf dem weitesten Punkt des Nachleuchtens die räumliche Auflösung 2,4 mm war. Die Lichtintensität wurde ununterbrochen während der Entladung und nach dem Abschalten der Entladung registriert. Die Werte der Amplitude auf dem Registrierpapier 0,1 s nach dem Abschalten der Entladung wurden zur Auswertung genommen.

3. Meßergebnisse und Diskussion

Abbildung 1 zeigt die Radialverteilung der Nachleucht-Intensität bei verschiedenen Entladungsströmen und Drucken. Diese Verteilung wird nicht nur durch Diffusion, sondern auch besonders durch die Volumenreaktionen bestimmt. Es ist bekannt, daß das Stickstoff-Nachleuchten vorwiegend das erste positive Bandensystem enthält. Die charakteristische Eigenschaft dieses Spektrums ist das Intensitätsmaximum in der Umgebung von 5820 Å, welches den Übergängen vom zwölften, elften und zehnten

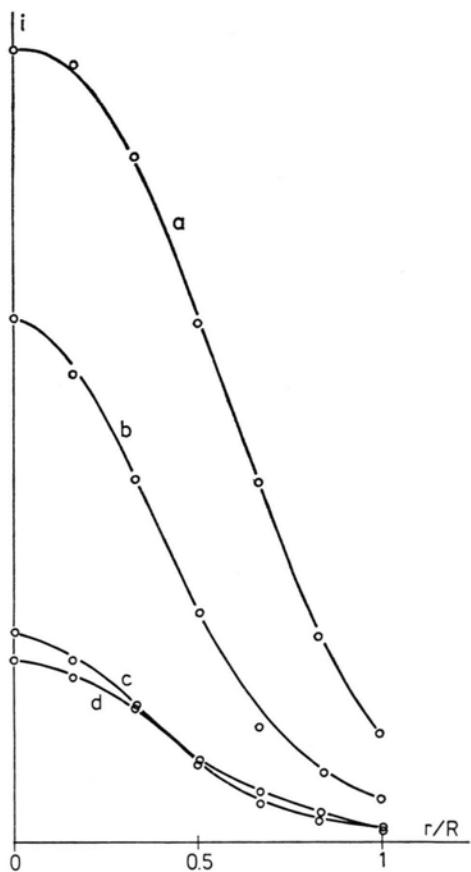
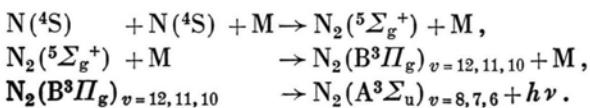


Abb. 1. Radialverteilung der Lichtintensität des Nachleuchtens bei verschiedenem Entladungsstrom und Druck. a) 100 mA; 0,06 Torr. b) 100 mA; 0,6 Torr. c) 100 mA; 6 Torr. d) 50 mA; 0,6 Torr.

zum achten, siebenten und sechsten Vibrationsniveau entspricht. Ungefähr 12% der Totalemission des Nachleuchtens werden von diesen Übergängen ausgestrahlt. Deshalb haben wir unsere Messungen bei diesen Wellenlängen ausgeführt. Mit einer Spaltbreite von 0,6 mm haben wir ein Auflösungsvermögen von fast 10 nm bekommen, so daß wir den Wellenlängenbereich von etwa 5750–5830 Å umfaßt haben. In diesem Gebiet befinden sich die drei intensivsten Übergänge 12–8, 11–7, 10–6. Es ist wohl bekannt⁶, daß die Besetzung der oberen Ni-

veaus durch die Rekombination von N-Atomen im Grundzustand (4S) verursacht wird. Zur Diskussion nehmen wir das Schema von Berkowitz⁷ an:



Die Energie der Niveaus $v=12, 11, 10$ liegt unterhalb der Dissoziationsenergie der Stickstoffmoleküle (9,76 eV). Der Übergang von einem höheren Niveau als 12 wird nicht beobachtet. Es wurde gefunden, daß die Geschwindigkeitskonstante dieser Volumenrekombination von mehreren Parametern des Nachleuchtens abhängig ist, die durch Rayleighs Formel dargestellt werden können⁸:

$$I = C(T) n^2 p,$$

wo I die Strahlungsintensität des ersten positiven Systems, $C(T)$ eine temperaturabhängige Konstante, n die Atomkonzentration und p der Totaldruck sind. Rayleigh hatte die Beziehung $I \sim T^{-0,64}$ zwischen der Nachleuchtintensität und der Temperatur gefunden⁸. Man sieht, daß die Lichtintensität stark von der Atomkonzentration abhängig ist. Groth und Warneck⁹ haben gezeigt, daß die Atomkonzentration in der Stickstoffentladung von der Konzentration der positiven Ionen N_2^+ , von der Elektronenkonzentration n_e und von der Elektronentemperatur T_e abhängig ist. Im Druckbereich 0,06–1 Torr kann man voraussetzen, daß die Radialverteilung von N_2^+ und n_e der Bessel-Funktion J_0 folgt. Die Radialverteilung der Lichtintensität des Nachleuchtens ändert sich also mit J_0^2 . Dieser Verlauf ist durch die Gradienten der Neutralgas- und Elektronentemperatur deformiert. Der Radialgradient von T_g in der Stickstoffentladung ist gut bekannt und wurde gemessen¹⁰. Der Radialgradient der Elektronentemperatur wurde bisher in der Stickstoffentladung nicht untersucht. In der Mitte der Röhre unterstützt T_e die Atomkonzentration, während die Neutralgas-temperatur sie unterdrückt. Alle diese Ergebnisse bestätigen qualitativ die von uns gefundene Radialverteilung der Lichtintensität des Nachleuchtens. Zur präzisen Auswertung wäre es nötig, $T_e(r)$ und die Zeitabhängigkeit aller Größen zu kennen.

¹ R. J. Strutt, Proc. Roy. Soc. A **91**, 303 [1915]. — B. Blocklehurst u. K. R. Jennings, Reactions of the Nitrogen Atoms in the Gas Phase, Progress in Reaction Kinetics, Vol. 4, Pergamon Press 1967.

² U. H. Kurzweg u. H. P. Broida, J. Mol. Spectry **3**, 388 [1959].

³ R. A. Young u. R. L. Sharpless, J. Chem. Phys. **39**, 1071 [1971].

⁴ I. M. Campbell u. B. A. Thrush, Proc. Roy. Soc. A **296**, 201 [1967].

⁵ A. N. Wright u. C. A. Winkler, Active Nitrogen, Academic Press, New York 1968.

⁶ G. G. Mannella, Chem. Rev. **63**, 1 [1963].

⁷ J. Berkowitz, W. A. Chupka u. G. B. Kostiakowski, J. Chem. Phys. **25** 457 [1956].

⁸ L. Rayleigh, Proc. Roy. Soc. A **176**, 1 [1940].

⁹ W. Groth u. P. Warneck, Z. Phys. Chem. Neue Folge **10**, 323 [1957].

¹⁰ S. Pfau u. P. Grigull, Beiträge zur Analyse der physikalischen Grundlagen der Stoffwandlung in nichtisothermen Plasmen. Universität Greifswald 1975.