

**Review und Bewertung von
Reaktionsratenkoeffizienten für Argon für
numerische Simulationen**

**Review and evaluation of Argon ionization
reaction rate coefficients for numerical simulations**

Bachelorarbeit von
cand. aer. Jens Schmidt
IRS-14-S073

Betreuer:
PD Dr.-Ing. Georg Herdrich

Institut für Raumfahrtssysteme, Universität Stuttgart
Oktober 2014

Inhaltsverzeichnis

Kurzfassung	1
Abstract	1
Nomenklatur	2
1 Einleitung	4
2 Grundlagen	5
2.1 Stoßionisation und Drei-Körper-Rekombination	5
2.2 Ionisation aus angeregten Zuständen	6
2.3 Gleichgewichtskonstante	7
2.4 Wirkungsquerschnitt	9
2.5 Messverfahren zur Bestimmung von Wirkungsquerschnitten	10
2.6 Reaktionsratenkoeffizienten	11
3 Übersicht der Modelle für Stoßionisation	13
3.1 Modell von Thomson (1912)	13
3.2 Modell von Drawin (1961)	14
3.3 Modell von Hoffert und Lien (1967)	16
3.4 Modell von Lotz (1967)	17
3.5 Modell von Lennon et al. (1988)	18
3.6 Modell von Simpson (1990)	18
3.6.1 Von Simpson verwendete Wirkungsquerschnitte	19
3.6.2 Arrhenius-Fit des Simpson Modells	20
3.7 Modell von Annaloro et al. (2012)	20
3.8 Weitere Modelle	20
3.8.1 Modell von Bates et al. (1962)	21
3.8.2 Modell von Hinnov und Hirschberg (1962)	22
3.8.3 Modell von Gryziński (1965)	22
3.8.4 Modell von Funahashi und Takeda (1968)	23
3.8.5 Modell von Houwing et al. (1991)	23
3.8.6 Modell von Owano et al. (1993)	23
3.8.7 Modell von van den Sanden et al. (1993)	24
3.8.8 Modell von Vorob'ev (1994)	24
3.8.9 Modell von Bernshtam et al. (2000)	24
4 Übersicht der verwendeten Experimentaldaten	26
4.1 Smith (1930)	27
4.2 Tate und Smith (1932)	28
4.3 Asundi und Kurepa (1963)	28
4.4 Rapp und Englander-Golden (1965)	28
4.5 Schram et al. (1966)	29
4.6 Srinivasan und Rees (1967)	29
4.7 Wetzal et al. (1986)	30
4.8 Tachibana et al. (1986)	30
4.9 Straub et al. (1995)	32
4.10 Bewertung der Ergebnisse aus den Experimenten	32

5	Übersicht über Simulationen mit den verschiedenen Modellen	34
5.1	Low-power argon arcjet wind tunnel	34
5.2	Expanding Transsonic Argon Plasma	35
5.3	Gas Tungsten Arc Welding (GTAW)	36
5.4	RD5-Plasmaquelle	37
6	Vergleich und Bewertung der Modelle	41
6.1	Definition der Vergleichskriterien	41
6.2	Zusammenfassung und vergleichende Bewertung der Modelle	42
7	Zusammenfassung und Ausblick	46
	Literatur	48
A	Anhang	52
A.1	Modell von Annaloro et al.	52
A.2	Modell von Bernstham et al.	52
A.3	Modell von Drawin	52
A.4	Modell von Hoffert und Lien	52
A.5	Modell von Houwing	53
A.6	Modell von Lennon et al.	53
A.7	Modell von Lotz	53
A.8	Modell von Simpson	54
A.9	Modell von Thomson	55
A.10	Modell von van den Sanden et al.	55
A.11	Diagramm der Modelle	56

Kurzfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurden verschiedene Modelle zur Berechnung von Reaktionsratenkoeffizienten für die erste Stufe der Stoßionisation und Rekombination von Argon verglichen und ein für die numerische Simulation geeignetes Modell ausgewählt. Dies ist notwendig, da sich die vorhandenen Modelle teilweise um mehrere Größenordnungen unterscheiden. Ein Vergleich verschiedener Modelle innerhalb des Bereiches einer Elektronentemperatur von 2000 K bis 30000 K soll ein eindeutiges Ergebnis liefern. Die Modelle wurden im Hinblick auf die Qualität der zugrundeliegenden Wirkungsquerschnitte, Bewertungen aus vorhanden Simulationen mit den Modellen sowie die in den Modellen berücksichtigten Prozesse der Ionisation untersucht. Auch der Einfluss der Gleichgewichtskonstanten auf die berechneten Ergebnisse wurde untersucht. Es wurde festgestellt, dass angeregte Zustände unterhalb einer Elektronentemperatur von 10000 K einen deutlichen Einfluss auf die Ionisation ausüben, aber in vielen Modellen nicht berücksichtigt werden. Ebenso wurde deutlich, dass viele Modelle auf veralteten Wirkungsquerschnitten basieren. Auch wurde selten ein direkter Vergleich zwischen den verschiedenen Arbeiten durchgeführt. Im Endergebnis wurden die Modelle von Hoffert und Lien [24] sowie von Simpson [42] als für die Simulation geeignet ausgewählt. Das Modell von Hoffert und Lien sowie die Überarbeitung durch Owano et al. [32] wurden aufgrund guter Bewertungen in mehreren Simulationen ausgewählt. Es berücksichtigt angeregte Zustände in vereinfachter Form. Das Modell von Simpson wurde ausgewählt, da es die angeregten Zustände detailliert betrachtet und die zugrundeliegenden Wirkungsquerschnitte eine hohe Qualität aufweisen. Es sind allerdings keine Simulationen bekannt, für die es verwendet wurde. Beide Modelle weisen aufgrund der unterschiedlichen Handhabung der angeregten Zustände Unterschiede auf. Im Temperaturbereich unter sollte das 10000 K Modell von Simpson aufgrund seiner höheren Genauigkeit verwendet werden. Beide Modelle liefern größere Ratenkoeffizienten als das verbreitete Modell von Lotz [29].

Abstract

Within this Work, models for reaction rate coefficients of impact ionization and recombination of argon were investigated and a suitable model for numerical simulations was obtained. This investigation was crucial, as different models for impact ionization provided discrepancies within an order of magnitudes. Different models for the first step of ionization in a range of the electron temperature between 2000 K and 30000 K were compared to obtain a unambiguous result. The models were investigated considering the underlying cross sections and theoretical assumptions, especially different processes of ionization. In addition, attention has been given to the influence of the equilibrium constant. Furthermore, evaluations from simulations using the reviewed models have been taken in account. Excited states proved to have clear influence on the ionization, especially for an electron temperature below 10000 K. Most of the investigated models do not include these states. Also it has become clear that the majority of the models is based on outdated sets of cross-sections and the count of comparisons between the different models is very low. In conclusion, two different models suitable for numerical simulations have been obtained. These are the models of Hoffert and Lien [24] and of Simpson [42]. The model of Hoffert and Lien and its revision by Owano et al. [32] have been chosen based on good evaluations in several numerical simulations. Respect is given to excited states in a simplified manner. The model of Simpson was selected due to the high quality of the underlying cross-sections and the detailed consideration of excited states, although there are no known applications of this model. Both models show a discrepancy of the results due to the different handling of excited states. For an electron temperature below 10000 K, the use of the model of Simpson is recommended. Both models provide higher rate coefficients as the common model of Lotz [28].

Nomenklatur

Formelzeichen	Bezeichnung
$[A_j], [B_k]$	Konzentration [mol m^{-3}]
A_i, B_i, C, S, P	Koeffizient [-]
a, b, c	Koeffizient [-]
Da	Damköhler-Zahl [-]
D	Diffusionskoeffizient [$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$]
E	Elektronentemperatur [eV]
f_1, f_2	Korrekturfaktoren [-]
g_0, g_i	Korrekturfaktoren [-]
j, k	Index [-]
i_e, i_i	Spannung am Elektronen- bzw. Ionendetektor [V]
K_{eq}	Gleichgewichtskonstante [m^{-3}]
k_f	Ratenkoeffizient [$\text{m}^3 \text{s}^{-1}$]
k_b	Rekombinationsratenkoeffizient [$\text{m}^6 \text{s}^{-1}$]
L	Charakteristische Länge [m]
Ma	Mach-Zahl [-]
N_e, N_i^+	Anzahl Elektronen bzw. Ionen [-]
n	Dichte [m^{-3}]
P_{mn}	Reaktionsratenkoeffizient des Übergangs von Zustand m zu Zustand n
p	Druck [Pa]
S_{mn}	Ratenkoeffizient des Übergangs von Zustand m zu Zustand n
T_e	Elektronentemperatur [K]
t	Zeit [s]
U	Verhältnis von Ionisationsenergie zu Elektronentemperatur [-]
u_i	Zustandssumme der i-ten Spezies [-]
\bar{v}_e	Mittlere Geschwindigkeit der Elektronen [m s^{-1}]
v, w	Strömungsgeschwindigkeit [m s^{-1}]
x, y	Koordinaten [m] bzw. normierte Elektronentemperatur [-]
z	Koordinate [m]
Z	Stufe der Ionisierung [-]
α	Ionisationsgrad [-]
β	Koeffizient [-]
κ	Isentropenexponent [-]
λ	Freie Weglänge [cm]
σ	Wirkungsquerschnitt [cm^2]
σ_T	Totaler Wirkungsquerschnitt [cm^2]
σ_j	Wirkungsquerschnitt der j-ten Reaktion [cm^2]
τ	Charakteristische Relaxationszeit [s]
Θ	Charakteristische Temperatur [K]
μ	Übergangswahrscheinlichkeit [%]
ν	Stöchiometrischer Koeffizient [-]
ξ_j	Anzahl der Elektronen auf der äußeren Schale bei j-ter Ionisationsstufe [-]

Konstanten

$a_0 = 0,529177 \cdot 10^{-11} \text{ m}$	Bohrscher Radius
$e_0 = 1,602 \cdot 10^{-19} \text{ C} = 4,8 \cdot 10^{-10} \text{ Fr}$	Elementarladung
$k = 1,38062 \cdot 10^{-23} \text{ J K}^{-1}$	Boltzmann-Konstante
$m_e = 9,10936 \cdot 10^{-31} \text{ kg}$	Masse des Elektrons
$m_{Ar} = 6,6335 \cdot 10^{-26} \text{ kg}$	Masse des Argon-Atoms
$h = 6,626 \cdot 10^{-34} \text{ J s}$	Planck-Konstante
$E_i = 15,76 \text{ eV} = 2,53144 \cdot 10^{-11} \text{ erg}$	1. Ionisierungsenergie von Argon
$E_{i,2} = 27,6 \text{ eV}$	2. Ionisierungsenergie von Argon
$E_{A,1}^* = 12,1 \text{ eV}$	Energie des 1. angeregten Zustandes von Argon
$\epsilon_{*1} = 4,21 \text{ eV}$	Energiebandbreite der angeregten Zustände von Argon
$\Theta_{ion} = 183100 \text{ K}$	Charakteristische Temperatur der 1. Ionisation
$\Theta_{A,1}^* = 135300 \text{ K}$	Charakteristische Temperatur des 1. angeregten Zustandes
$\pi = 3,14159$	Kreiszahl
$Ryd = 13,6 \text{ eV}$	Rydberg-Energie
$T = \frac{e}{k} \cdot E = \frac{1,602 \cdot 10^{-19} \text{ C} \cdot 1 \text{ eV}}{1,381 \cdot 10^{-23} \text{ J/K}} = 11600 \text{ K}$	Elektronentemperatur in Kelvin für 1 Elektronenvolt

Indizes

A,*	Auf Angeregte Zustände bezogen
Ar	Auf Argon bezogen
i	Auf Ionisation bezogen
M	Auf Metastabile Zustände bezogen
R	Auf Resonanz-angeregte Zustände bezogen
e	Auf Elektronen bezogen
T	Auf Teilchen bezogen
mn	Übergang von Zustand m zu Zustand n

1 Einleitung

Die Kenntnis der absoluten Größe und des relativen Verlaufs der Ratenkoeffizienten und Ionisationsquerschnitte als Funktion der Elektronenenergie ist dann von Wichtigkeit, wenn Plasmazustände bei chemischem Nichtgleichgewicht berechnet werden sollen. Dies ist am Institut für Raumfahrtssysteme (IRS) insbesondere bei der numerischen Simulation von Magnetoplasmadynamischen Triebwerken (MPDs) wie auch bei verwandten Problemen wie thermischen Plasmageneratoren von Interesse. In der vorliegenden Arbeit sollen daher mit ingenieurwissenschaftlichen Methoden die Unterschiede zwischen verschiedenen Modellen zur Berechnung von Ratenkoeffizienten beziehungsweise Ionisationsquerschnitten in Argon-Plasmen erarbeitet werden. Das besondere Interesse resultiert hierbei aus der Tatsache, dass die vorhandenen Modelle untereinander eine große Streuung der Ratenkoeffizienten um mehrere Größenordnungen im für technische Anwendungen wichtigen Temperaturbereich zwischen 3000 K und 25000 K aufweisen. Daher soll eine Bewertung der vorliegenden Modelle vorgenommen werden, um zu bestimmen, welches sich für die Berechnung von Nichtgleichgewichtszuständen am besten eignet. Dazu werden verschiedene Arbeiten zur Bestimmung von Reaktionsratenkoeffizienten herangezogen, die im Verlauf des letzten Jahrhunderts entstanden sind. Für eine weitergehende Bewertung werden die verschiedenen den Modellen zugrundeliegenden Experimentaldaten wie auch die theoretischen Grundlagen in Form der berücksichtigten Ionisationsprozesse betrachtet, um eine Einschätzung der Unterschiede zwischen den Modellen zu ermöglichen. Um die Qualität der Experimentaldaten zu beurteilen, werden sowohl die verwendeten Verfahren und damit verbundene Messfehler wie auch generelle Tendenzen der Ergebnisse berücksichtigt. In einem letzten Schritt werden Simulationen betrachtet, welche die Modelle verwendet haben, um anhand der Ergebnisse und Bewertungen in den einzelnen Arbeiten einen weiteren Indikator für die Qualität zu bekommen. Dabei ist eine sorgfältige Auswahl der Simulationen notwendig, da in vielen Simulationen nicht besonders detailliert auf die Qualität des chemischen Modells eingegangen wird. Des Weiteren werden in vielen Arbeiten mehrere Modelle verwendet oder bekannte Modelle variiert beziehungsweise erweitert. So ist eine direkte Vergleichbarkeit nur in seltenen Fällen gewährleistet. Trotzdem ist es möglich, Aussagen über die Qualität der Modelle zu treffen. Ebenso soll bei Modellen, die nicht direkt für die numerische Simulation anwendbar sind, überprüft werden, ob es möglich ist, diese entsprechend anzupassen. Falls die Anwendbarkeit nicht gegeben ist, soll eine Begründung gegeben werden, warum dieses nicht weitergehend betrachtet wurde. Neben der Einschränkung auf den Temperaturbereich von 2000 K bis 30000 K wurde außerdem nur die erste Stufe der Ionisation betrachtet, auch wenn Modelle [8, 29] für höhere Ionisationsstufen vorhanden sind.

2 Grundlagen

Eine der Eigenschaften von hochenthalpen Plasmen mit hohen Geschwindigkeiten ist das Vorhandensein chemischen Nichtgleichgewichts, wenn die Strömungsgeschwindigkeit größer ist als die Relaxationszeit der chemischen Reaktionen im Plasma. Dieses Verhältnis lässt sich durch die Damköhler-Zahl

$$Da = \frac{\tau_{flow}}{\tau_{chem}} \quad (2.1)$$

beschreiben, wobei $\tau_{chem} = (k_b \cdot n_e^2 - k_f n_{Ar})^{-1}$ und $\tau_{flow} = L/w$ die charakteristischen Relaxationszeiten der chemischen Reaktionen respektive der Strömungsgeschwindigkeit w [26] darstellen. Dabei gibt in Gleichung 2.1 L die charakteristische Länge, n die Dichte von Argon respektive Elektronen an, sowie k_f und k_b die Reaktionsratenkoeffizienten. Für einen Großteil der Plasmaströmungen ist eine sehr niedrige Damköhler-Zahl $Da \ll 1$ charakteristisch, da die Strömungsgeschwindigkeit deutlich größer ist, als die Relaxationszeit der chemischen Reaktionen. Um die Geschwindigkeit der dominierenden Reaktionen zu beurteilen, ist es notwendig, die zugehörigen Ratenkoeffizienten zu kennen. So können die Zusammensetzung und damit die Eigenschaften des Plasmas für die numerische Simulation bestimmt werden. Die Zusammensetzung eines Plasmas bestimmt sich dabei unter anderem durch die Geschwindigkeit der Ionisation. Die auftretenden Ionisationsarten sind Stoßionisation durch Elektronen und Schwereteilchen sowie Strahlungsionisation, die im Hinblick auf den in dieser Arbeit betrachteten Temperaturbereich nicht weiter berücksichtigt wurde.

2.1 Stoßionisation und Drei-Körper-Rekombination

Bei der Stoßionisation durch Elektronen trifft ein Elektron mit hoher Geschwindigkeit auf ein Elektron, welches die äußere Schale eines Atoms besetzt. Eine schematische Darstellung dieser Reaktion ist in Bild 1 zu erkennen. Die Ionisation tritt dann auf, wenn die beim Stoß zwischen den Teilchen übertragene Energie größer ist als die Ionisierungsenergie E_i , welche als Bindungsenergie des Elektrons an das Atom interpretiert werden kann [22]. Für die in dieser Arbeit hauptsächlich betrachtete erste Ionisation von Argon wird mit dem Literaturwert $E_i = 15,76 \text{ eV}$ gerechnet [1]. Die benötigte Energie für die Ionisation verringert sich, wenn sich das Atom in einem angeregten

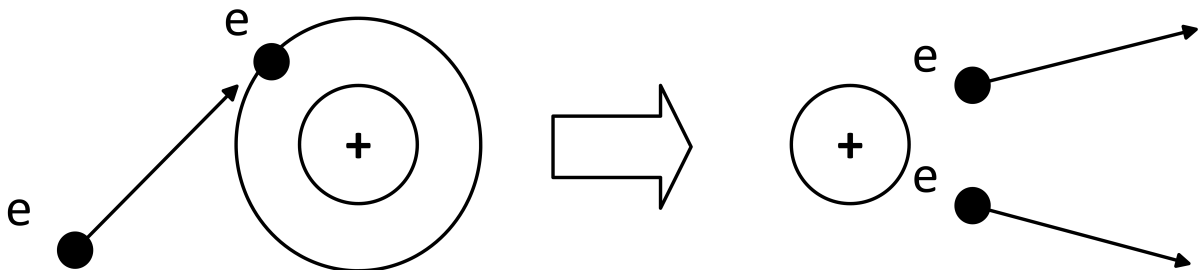
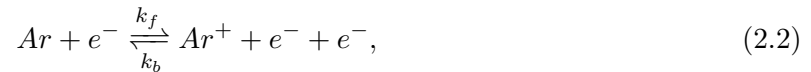


Bild 1: Stoßionisation durch Elektronen

Zustand befindet. (Siehe Kapitel 2.2) Die Reaktionsgleichung der Stoßionisation lautet



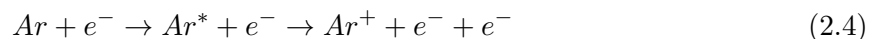
wobei die Rückreaktion Drei-Körper-Rekombination genannt wird [19]. An dieser nimmt neben dem Elektron, welches sich wieder auf die äußere Schale begibt, ein weiteres Elektron teil. Diesem wird die überschüssige Energie zu der kinetischen Energie hinzu gefügt. Atome und Ionen können die Energie nicht schnell genug aufnehmen und kommen daher als dritter Körper nicht in Frage. Für den Fall einer sehr niedrigen Temperatur im Plasma findet keine Stoßionisation durch Elektronen vom Grundzustand aus statt. Stattdessen spielt Ionisation von angeregten Zuständen aus (siehe Kapitel 2.2) eine Rolle, wie auch die Ionisation durch Schwerteilchen-Stöße, die durch die Reaktionsgleichung



beschrieben wird. Bei diesen ist das stoßende Teilchen kein Elektron, sondern ein anderes Atom. Dies können nicht nur Argon-Atome sein, sondern auch andere Atome aus Verunreinigungen oder bei Gasgemischen.

2.2 Ionisation aus angeregten Zuständen

In elektrischen Entladungen mit hoher Energie der Elektronen existieren hohe Besetzungsdichten für die verschiedenen angeregten Zustände. Bei diesen wird ein Atom durch Elektronenstoß oder Absorption von Strahlung angeregt. Insgesamt besitzt Argon 75 anregbare Zustände [50], diese besitzen allerdings meist eine sehr kurze Lebensdauer ($10^{-8} - 10^{-6}$ s). Ein angeregter Zustand wird Resonanz-angeregt genannt, wenn ein Strahlungsübergang zum Grundzustand möglich ist. Diese Zustände haben eine besonders kurze Lebensdauer und tragen daher nur zu einem sehr geringen Teil zu den chemischen Reaktionen im Plasma bei. Sollte ein Strahlungsübergang nicht möglich sein, wird der Zustand metastabil genannt. Metastabile Zustände haben eine längere Lebensdauer und tragen daher zu den chemischen Reaktionen bei [19]. Von diesen angeregten Zuständen aus kann eine Ionisation durch Elektronenstoß erfolgen. In diesem Fall ist die benötigte Energie des stoßenden Elektrons geringer als bei der Ionisation vom Grundzustand aus. Es kann auch die sogenannte schrittweise Ionisation gemäß der Reaktionsgleichung



stattfinden, bei welcher ein Atom mehrfach durch einen Stoß mit Elektronen eine Energieerhöhung auf einen höher angeregten Zustand erfährt, bis die Ionisierungsenergie überschritten wird. Dieses Phänomen tritt im Energiebereich unterhalb der ersten Ionisierungsenergie auf. Daher hat diese Art der Ionisation im niedrigen Temperaturbereich einen nicht zu vernachlässigenden Einfluss [19]. Dies ist den Wirkungsquerschnitten für die Ionisation vom Grundzustand und aus angeregten Zuständen in Bild 2 zu entnehmen. Sie stammen aus der Arbeit von Tsurubuchi

et al. [49]. Dabei ist der Wirkungsquerschnitt der angeregten Zustände mit einer Gewichtung entsprechend der Wahrscheinlichkeit, sie anzutreffen, gemittelt worden.

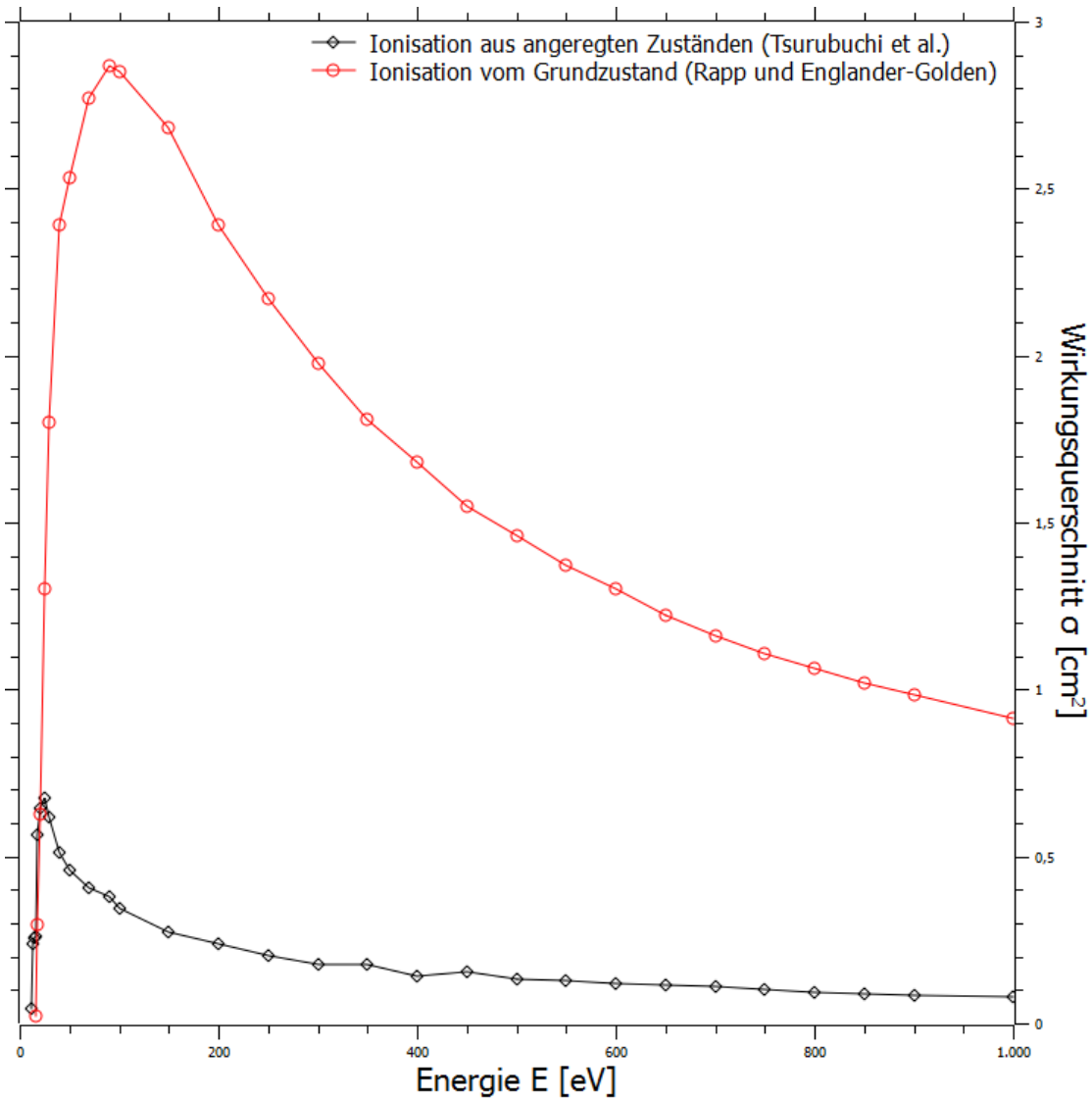


Bild 2: Wirkungsquerschnitt der Stoßionisation vom Grundzustand und von angeregten Zuständen ausgehend

2.3 Gleichgewichtskonstante

Die Gleichgewichtskonstante gibt an, bei welchem Verhältnis von Edukten A und Produkten B mit den stöchiometrischen Koeffizienten ν bei einer Reaktion die Hin- und Rückreaktion im Gleichgewicht vorliegen [5]. Sie lässt sich mit der Gleichung

$$K_{eq}(T_e) = \frac{k_f}{k_b} = \frac{\prod_j [A_j]^{\nu_{A,j}}}{\prod_k [B_k]^{\nu_{B,k}}} \quad (2.5)$$

darstellen und stellt ebenfalls ein Verhältnis der Reaktionsraten dar. Unter der Annahme, dass die chemischen Reaktionen im Plasma sich im Gleichgewicht befinden, lässt sich über die Saha-Eggert-Gleichung [22, 24]

$$K_{eq}(T_e) = 2 \cdot \frac{u_{i+1}}{u_i} \cdot \left(\frac{2\pi m_e k T_e}{h^2} \right)^{\frac{3}{2}} \cdot \exp\left(-\frac{\Theta_{ion}}{k T_e}\right) \quad (2.6)$$

die Zusammensetzung des Plasmas bestimmen. Dabei enthalten die Zustandssummen u_i die statistischen Gewichte und Quantenzustände eines i -fach ionisierten Teilchens. Über diese kann die Gleichgewichtskonstante berechnet werden, wie es zum Beispiel für den Direct-Monte-Carlo-Simulation(DMCS)-Code FLEXI vorgenommen wurde [31]. Die für FLEXI berechneten Gleichgewichtskonstanten wurden mit Ergebnissen von Park et al. verifiziert [33]. Die so berechnete Gleichgewichtskonstante stimmt, wie in Bild 3 zu erkennen, mit dem Verhältnis der Re-

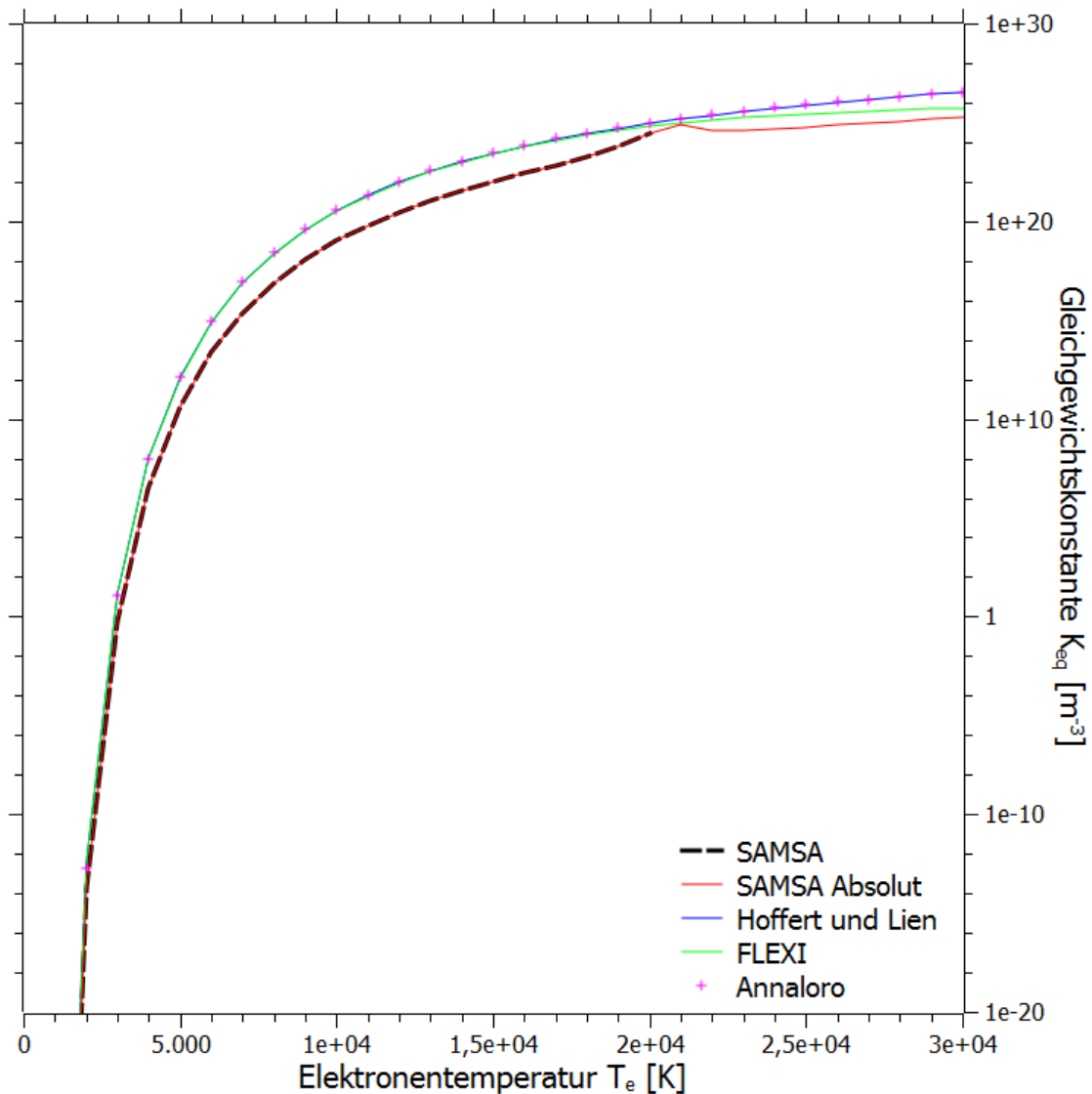


Bild 3: Ergebnis der unterschiedlichen Berechnungen der Gleichgewichtskonstante

aktionsratenkoeffizienten des Modells von Annaloro et al. [2] überein. Die Zustandssummen können ebenfalls wie im Code SAMSA (Self-Applied-Field-Thruster-Algorithm) mit Polynomen höherer Ordnung bestimmt werden [22]. Nach Hoffert und Lien [24] kann vereinfachend angenommen werden, dass $2 \cdot \frac{u_{i+1}}{u_i} = 12$ beträgt. Um in dieser Arbeit den Hin- bzw. Rückreaktionsratenkoeffizient über Gleichung 2.5 zu bestimmen, wurde die Gleichgewichtskonstante aus Gleichung 2.6 mit dieser Annahme berechnet. In Bild 3 sind die Unterschiede zwischen den mit verschiedenen Methoden berechneten Gleichgewichtskonstanten zu erkennen. Dabei ist festgestellt worden, dass die Polynome, welche der Code SAMSA zur Berechnung der Zustandssumme u_1 verwendet, nur bis 20000 K gültig sind, und für höhere Temperaturen negative Ergebnisse liefern. Eine Korrektur wurde versucht, bei welcher in Gleichung 2.6 das Verhältnis der Zustandssummen $\frac{u_{i+1}}{u_i}$ zu $\frac{|u_{i+1}|}{u_i}$ korrigiert wurde. Diese Korrektur wurde in Bild 3 als SAMSA Absolut dargestellt. Ebenso wurde der Unterschied zwischen den auf verschiedene Arten berechneten Gleichgewichtskonstanten wird deutlich. In dieser Arbeit wurden, soweit nicht anders angemerkt, zur Berechnung der Reaktions- bzw. Rekombinationsratenkoeffizienten über die Gleichgewichtskonstante die Ergebnisse von Hoffert und Lien verwendet.

2.4 Wirkungsquerschnitt

Der Wirkungsquerschnitt

$$\sigma = \frac{1}{\lambda \cdot n_T} \quad (2.7)$$

beschreibt die Wahrscheinlichkeit, mit der ein Teilchen innerhalb eines endlichen Volumens mit einem anderen Teilchen reagiert. Der Wirkungsquerschnitt kann für alle Arten von Reaktionen bestimmt werden. Geometrisch kann er, wie in Bild 4 dargestellt, als Kreis mit der Fläche σ interpretiert werden, der sich mit einem der Reaktionspartner bewegt [19]. Wenn der andere Reaktionspartner diesen Kreis passiert, kommt eine Reaktion zustande. In Gleichung 2.7 bezeichnet n_T die Teilchendichte und λ die mittlere freie Weglänge, also den Bereich, in dem es zu keiner Kollision kommt. Im Fall der Stoßionisation ist das eine Teilchen ein Elektron und das andere

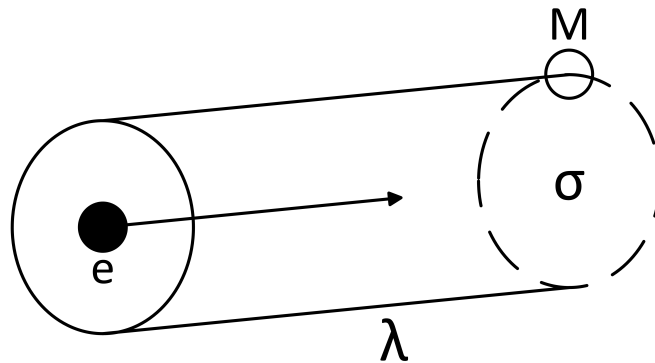


Bild 4: Geometrische Interpretation von Wirkungsquerschnitt σ und freier Weglänge λ von Elektron e und Reaktionspartner M

Teilchen Argon beziehungsweise die Elektronen in der äußeren Schale von Argon. Die typische Größe von Atomen und Molekülen bewegt sich zwischen $1 - 3 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^2$, dementsprechend bewegen sich die üblichen Größen von Wirkungsquerschnitten zwischen $10^{-16} - 10^{-15} \text{ cm}^2$. Bei hohen Elektronentemperaturen ab etwa $50 - 60 \text{ eV}$ nimmt der Wirkungsquerschnitt wieder ab. Dies hat den Grund, dass sich einhergehend mit einer hohen mittleren Geschwindigkeit der Elektronen die Zeit verringert, die den Reaktionspartnern zur Interaktion bleibt. Die Gleichungen zur Berechnung der Wirkungsquerschnitte sowie die verschiedenen experimentellen Verfahren zu ihrer Bestimmung bilden einen der wesentlichen Unterschiede zwischen den im Rahmen dieser Arbeit betrachteten Modellen zur Bestimmung von Ratenkoeffizienten. Des Weiteren ist zwischen den Wirkungsquerschnitten der Einzelreaktionen, wie z.B. Ionisation aus dem Grundzustand, durch Anregung, oder Vibrations- und Rotationsenergie bei Molekülen, und dem totalen Wirkungsquerschnitt zu unterscheiden, der die Summe aller Wirkungsquerschnitte gemäß

$$\sigma_T = \sum_{j=1}^T \sigma_j \quad (2.8)$$

darstellt [28].

2.5 Messverfahren zur Bestimmung von Wirkungsquerschnitten

Um die Wirkungsquerschnitte der Stoßionisation zu bestimmen, kommen verschiedene experimentelle Verfahren zum Einsatz. Die jeweiligen Ausführungen der Experimentalanordnungen unterscheiden sich allerdings so weit, dass eine einfache Unterscheidung der Methoden zur Ermittlung von Wirkungsquerschnitten nicht möglich ist. Details zu den verschiedenen Messverfahren werden in Kapitel 4 gegeben, in diesem Abschnitt sollen nur die grundlegenden experimen-

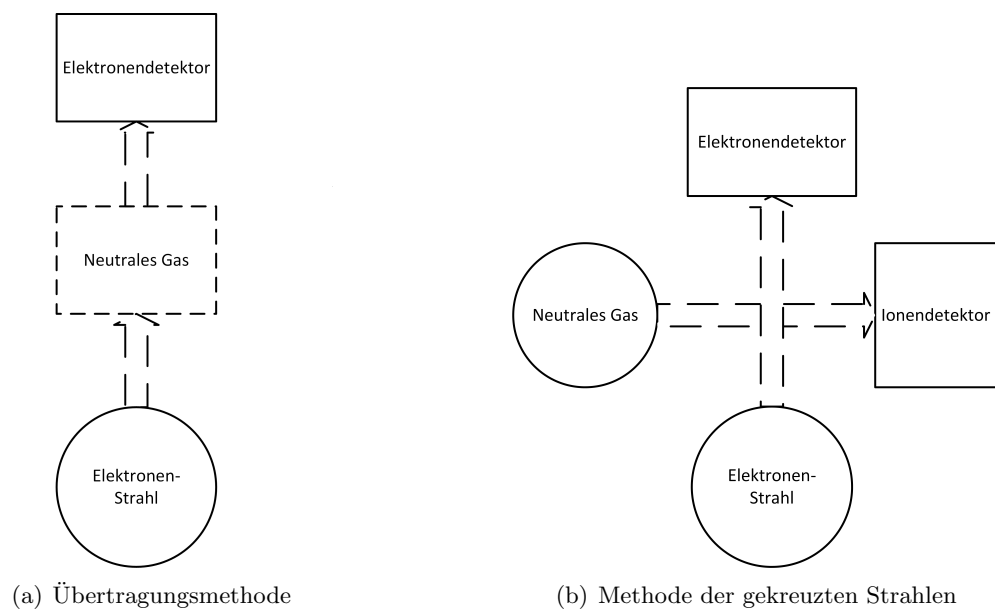


Bild 5: Messverfahren zur Bestimmung von Wirkungsquerschnitten

tellen Verfahren erläutert werden. Es kann zwischen zwei Methoden unterschieden werden, dem in Bild 5(a) dargestellten Übertragungsverfahren zur Bestimmung totaler Wirkungsquerschnitte und der in Bild 5(b) dargestellten Methode der gekreuzten Strahlen, die bevorzugt angewandt wird um Ionisationsquerschnitte zu bestimmen.

- Das Übertragungsverfahren wird auch Ramsauer-Methode genannt [36]. Ein Elektronenstrahl mit bekannter Energie wird auf eine Kammer mit dem neutralen Gas gerichtet. Die Anzahl an Elektronen vor der Kammer sowie nach der Interaktion wird gemessen. Dieses Verhältnis wird benutzt, um den Wirkungsquerschnitt zu bestimmen. Diese Methode ist vom Prinzip sehr einfach, allerdings ist es technisch sehr aufwändig, die Energie des Elektronenstrahls genau zu bestimmen. Auch ist es mit hohem technischen Aufwand verbunden, die Streuung der Elektronen zu messen, was in einem systematischen Fehler resultiert [36].
- Bei der Methode der gekreuzten Strahlen wird ein Elektronenstrahl rechtwinklig mit einem Strahl aus neutralen Atomen gekreuzt. Bei der Verwendung eines Ionisationsrohrs wird dabei die Spannung eines Ionendetektors sowie eines Elektronendetektors gemessen. Eine neuere Methode ist, die Zeit zu messen, die die Elektronen bis zum Erreichen des Elektronendetektors benötigen. Dabei wird der Elektronenstrahl gepulst und der Unterschied in der Zeit bei Ab- oder Anwesenheit des neutralen Gases gemessen. Diese Methode wird auch Time-of-Flight(TOC)-Methode genannt. Mit Hilfe eines Massenspektrometers werden unterschiedliche Ionisationsstufen gemessen. Ein großes Problem aller Methoden ist allerdings, den sehr geringen Gasdruck ($400 - 700 \cdot 10^{-4}$ Pa) akkurat zu messen. Daher beziehen sich viele Verbesserungen auf die möglichst genaue Messung des Gasdrucks während des Experiments, um den Messfehler des Verfahrens zu verringern.

2.6 Reaktionsratenkoeffizienten

Die Reaktionsrate ist definiert als die Anzahl von Reaktionen, die in einem bestimmten Zeitabschnitt innerhalb eines bestimmten Volumens ablaufen. Ratenkoeffizienten dienen dazu, die Geschwindigkeit chemischer Reaktionen zu beschreiben. Sie lassen sich auf alle Arten von elementaren Reaktionen anwenden und können durch Integration

$$k_f(T_e) = \bar{v}_e \cdot \int_{\frac{E_i}{kT_e}}^{+\infty} x e^x \sigma(x) dx \quad (2.9)$$

über die Wirkungsquerschnitte $\sigma(x)$ einer Reaktion bestimmt werden [2, 28]. Die mittlere Geschwindigkeit der Elektronen, welche sich aus der Maxwell-Verteilung herleiten lässt, wird durch

$$\bar{v}_e = \sqrt{\frac{8kT_e}{\pi m_e}} \quad (2.10)$$

gegeben [28]. In der Praxis werden Ratenkoeffizienten durch die Arrhenius-Gleichung

$$k_f(T_e) = CT_e^\beta e^{-\frac{\Theta_{ion}}{T_e}} \quad (2.11)$$

angenähert, wobei die Konstanten C und β so bestimmt werden, dass sie mit den Ergebnissen aus der numerischen Integration der Gleichung 2.9 übereinstimmen. Über die Gleichgewichtskonstante lässt sich der Ratenkoeffizient der Rückreaktion gemäß der Beziehung $k_b = \frac{k_f}{K_{eq}}$ aus Gleichung 2.5 bestimmen. Über dieselbe Beziehung lässt sich auch der Vorwärtsreaktions- aus dem Rückwärtsreaktionsratenkoeffizient bestimmen.

3 Übersicht der Modelle für Stoßionisation

In diesem Kapitel soll eine Übersicht über die bekannten Modelle für Stoßionisation gegeben werden. Die theoretischen Details werden kurz erläutert, wie auch die in den Arbeiten vorhandenen Gleichungen und Koeffizienten. Diese lassen sich des Weiteren in grundlegende Modelle für die Bestimmung von Ionisationsquerschnitten und weitergehende Modelle für Reaktionsratenkoeffizienten einteilen. Sie sind, soweit möglich, chronologisch geordnet. Alle Ergebnisse aus den betrachteten Arbeiten wurden mit den Ergebnissen aus der Gleichung von Lotz (Kapitel 3.4) verglichen, welche bisher für die Berechnung von magnetoplasmadynamischen Antrieben und Plasmageneratoren mit dem Programm SAMSA verwendet wurde. Wie in Bild 6 zu erkennen, wurden in der vorliegenden Arbeit alle Ratenkoeffizienten in einem Bereich von 0 K bis 30000 K dargestellt und verglichen. Höhere Temperaturbereiche spielen im Hinblick auf den technischen Anwendungsbereich der Ergebnisse der Arbeit keine Rolle. Vereinzelt wurden auch Temperaturen bis 40000 K betrachtet, insbesondere um bei der Annäherung von Ratenkoeffizienten durch Polynome akkurate Ergebnisse zu erhalten. Des Weiteren ist zu erwähnen, dass bei einigen Modellen [2, 24, 42] der angegebene gültige Temperaturbereich nur bis 20000 K angegeben ist, für andere wiederum eine allgemeine Gültigkeit angenommen wird [28]. Es lässt sich allerdings in Bild 6 erkennen, dass die Unterschiede zwischen den Ratenkoeffizienten im Bereich über 20000 K deutlich geringer sind, als in den niedrigeren Temperaturbereichen. Daher ist davon auszugehen, dass in diesem Bereich die Unterschiede eine geringere Rolle spielen und daher auch Modelle mit einer nur für einen niedrigen Bereich angegebenen Gültigkeit ebenfalls in einem höheren Temperaturbereich anwendbar sind. Dies kann auch angenommen werden, da der relative Unterschied der Modelle in diesem Bereich konstant bleibt, die Modelle mit einem geringeren Gültigkeitsbereich also einen ähnlichen Verlauf haben, wie solche, die einen größeren Temperaturbereich abdecken. Mögliche Ungenauigkeiten sollten in der endgültigen Auswertung allerdings beachtet werden. Einige Modelle dienen nur zur Bestimmung der Rekombinationsratenkoeffizienten. Der Ionisationsratenkoeffizient wird über den Zusammenhang mit der Gleichgewichtskonstante aus Gleichung 2.5 berechnet. Daher ist ein Vergleich der Rekombinationsratenkoeffizienten ebenfalls von Interesse, um die Qualität der Modelle zu beurteilen. Der Verlauf der Rekombinationsratenkoeffizienten der betrachteten Modelle, sowie einiger weiterer Modelle, welche in Kapitel 3.8 betrachtet werden, ist in Bild 7 zu erkennen. In diesem lassen sich auch die eindeutigen Unterschiede zwischen verschiedenen Modellen zur Rekombination erkennen.

3.1 Modell von Thomson (1912)

Das Modell von Thomson [48] ist das älteste Modell zur Berechnung von Ionisationsquerschnitten. Das Modell basiert auf den Überlegungen der Elektrodynamik, welche die Prozesse der Stoßionisation nicht korrekt wiedergeben. Daher weist das Modell einen systematischen Fehler auf (siehe Bild 6). Zur Berechnung der Wirkungsquerschnitte wird die Gleichung

$$\sigma(E) = \xi_j \cdot \frac{\pi e_0^4}{E} \cdot \left(\frac{1}{E_i} - \frac{1}{E} \right) \quad (3.1)$$

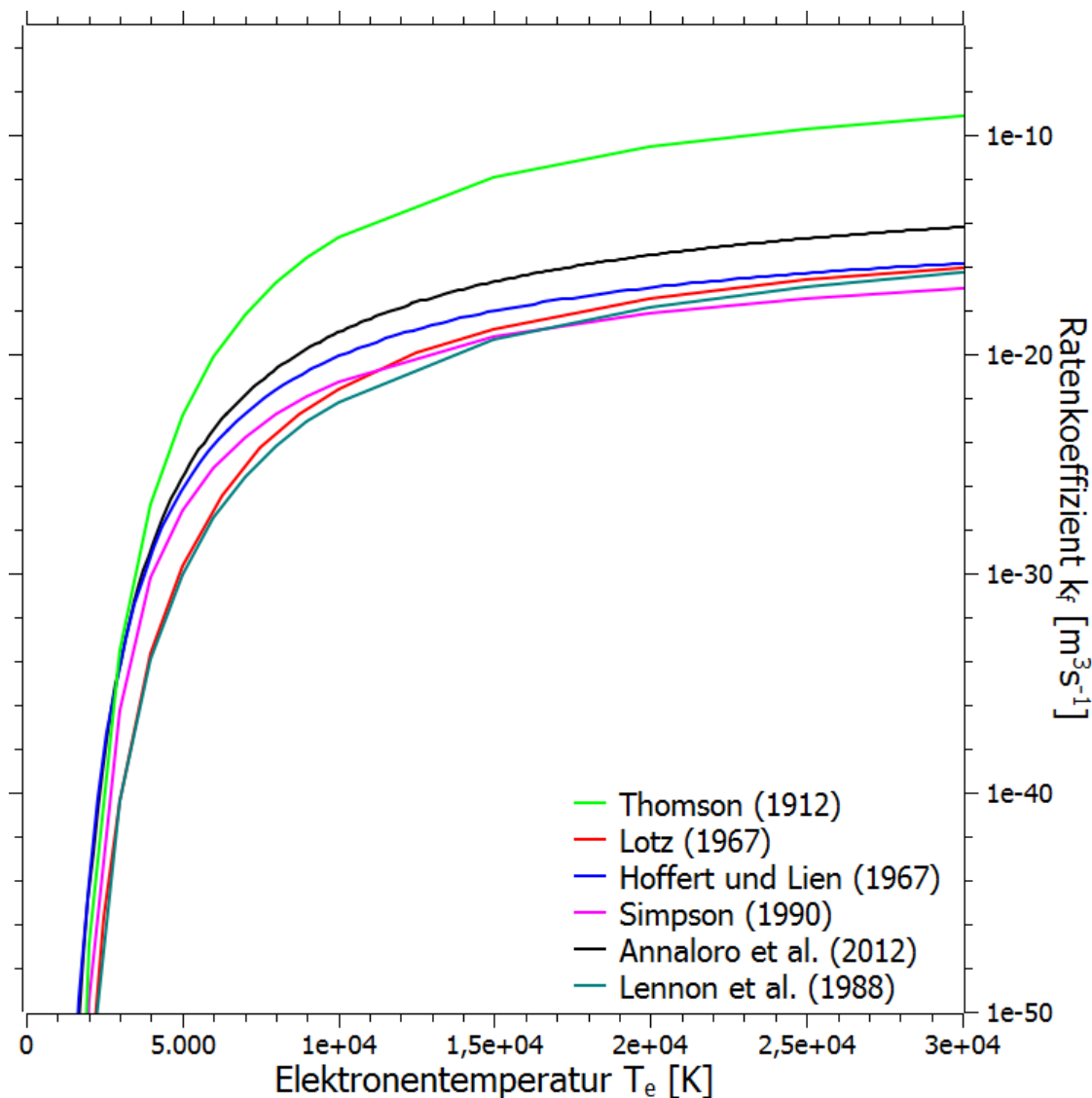


Bild 6: Ratenkoeffizienten über die Elektronentemperatur

benutzt [16], bei welcher $\xi_j = 8$ die Anzahl der gleichwertigen freien Elektronen auf der äußeren Schale angibt, $E_i = 2,53144 \cdot 10^{-11}$ erg die Ionisationsenergie des Grundzustandes und E die Energie der Elektronen, ebenfalls in erg. Die Elektronenladung ist durch $e_0 = 4,8 \cdot 10^{-10}$ Fr gegeben. Wie in Bild 6 zu sehen, sind die aus dem Modell von Thomson bestimmten Ratenkoeffizienten insbesondere für Temperaturen über 3000 K deutlich höher als die aus späteren Arbeiten. Die Gleichung 3.1 bildet allerdings die Grundlage für verschiedene Modelle wie von Drawin [16] und Vriens [52].

3.2 Modell von Drawin (1961)

Das Modell von Drawin [16,17] ist der direkte Nachfolger des Modells von Thomson zur Berechnung von Ionisationsquerschnitten und beinhaltet eine empirische Anpassung der Gleichung 3.1

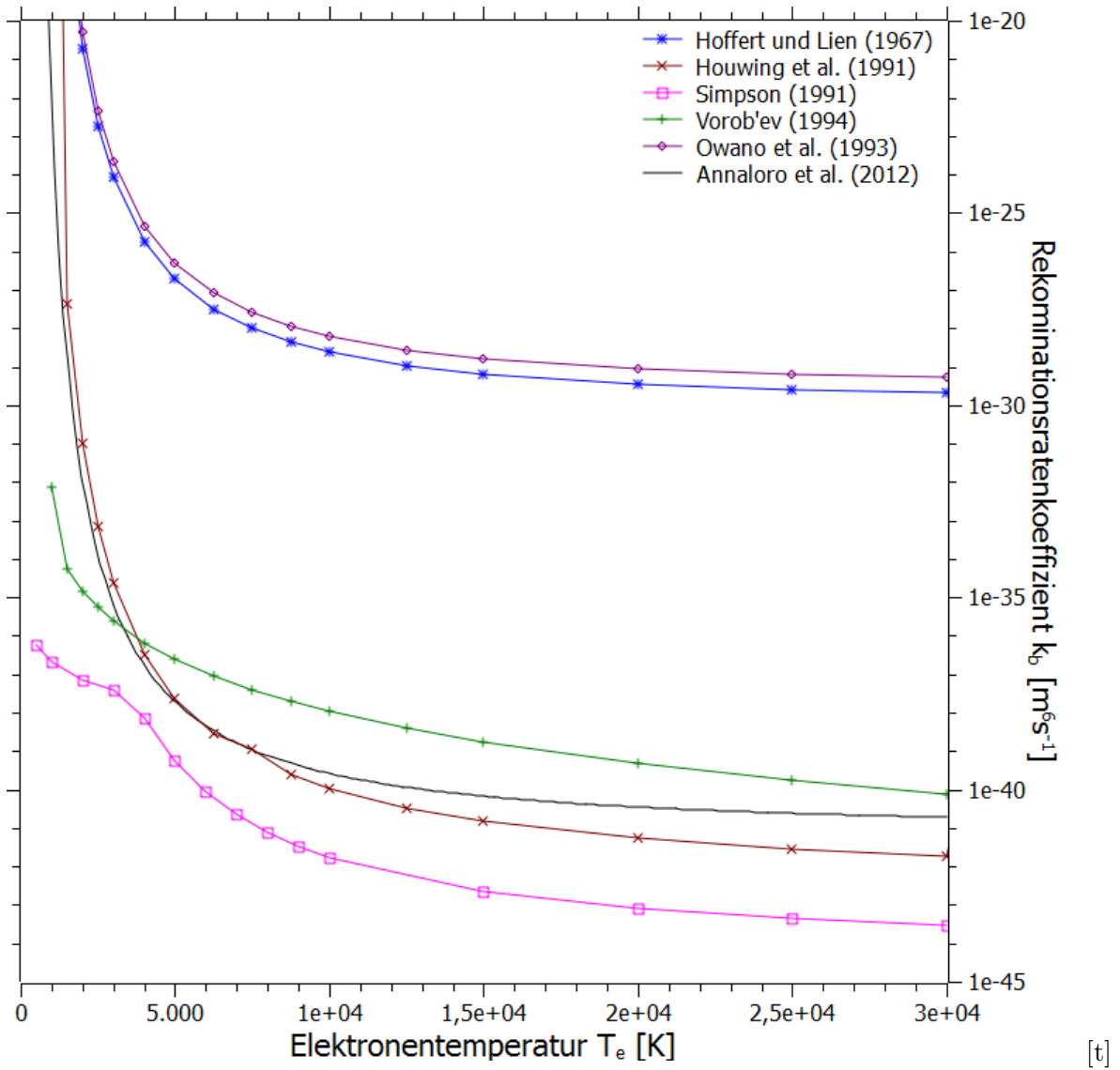


Bild 7: Rekombinationsratenkoeffizienten über die Elektronentemperatur

zur Berechnung der Wirkungsquerschnitte

$$\sigma(E) = 2,66 \cdot \xi_n \cdot \pi a_0^2 \cdot \left(\frac{E_{A,1}^*}{E_i} \right)^2 \cdot f_1 \cdot \frac{U-1}{U^2} \cdot \ln(1,25 f_2 U) \quad (3.2)$$

in Abhängigkeit der Elektronentemperatur. Dabei ist $U = \frac{E}{E_i}$ und $E_{A,1}^*$ die Ionisationsenergie des 1. angeregten Zustandes von Argon. Das Ergebnis wird durch die Faktoren f_1 und f_2 korrigiert. Der Bohrsche Radius geht über a_0 in die Gleichung ein. Das Modell wurde für Argon anhand der experimentellen Ergebnisse von Smith [43] sowie Asundi und Kurepa [4] (siehe Bild 10) überprüft. Beide Experimente kamen allerdings zu Ergebnissen der bestimmten Wirkungsquerschnitte, welche im Vergleich mit aktuellen Experimentaldaten sehr hoch sind. Im Vergleich mit anderen Modellen für Wirkungsquerschnitte liefert das Modell von Drawin, wie in Bild 8 zu erkennen, durchschnittliche Ergebnisse, die in der Mitte zwischen den Werten anderer Modelle

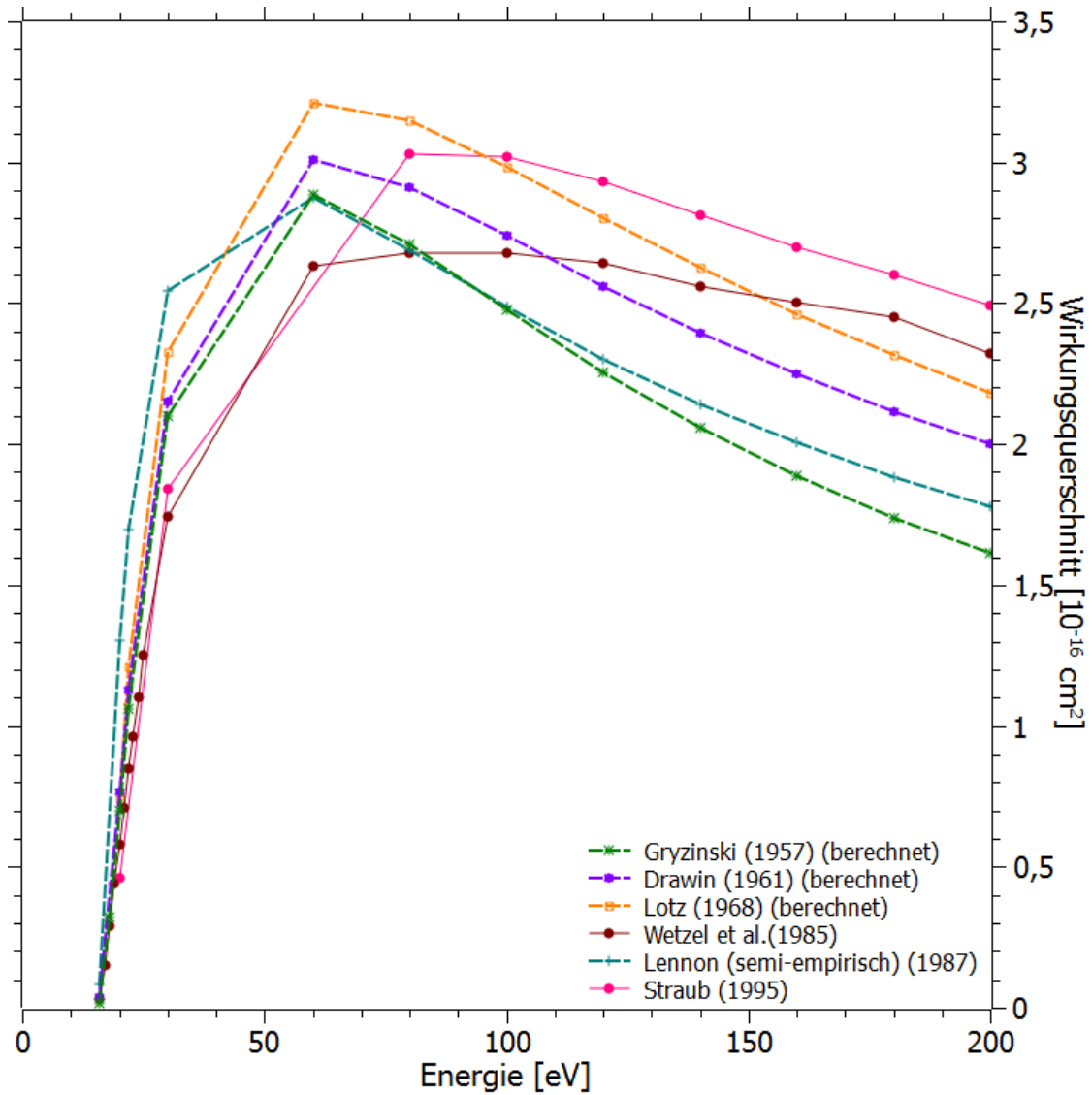


Bild 8: Mit verschiedenen Modellen berechnete Wirkungsquerschnitte für die Ionisation vom Grundzustand im Vergleich zu aktuellen Experimentaldaten

liegen.

3.3 Modell von Hoffert und Lien (1967)

Das Modell von Hoffert und Lien [24] ist gültig für einen Temperaturbereich von 3000 K bis 20000 K. In Bild 6 ist zu erkennen, dass es sich im Temperaturbereich über 20000 K den Ergebnissen der anderen Modelle annähert. Nach Hoffert und Lien ergibt sich die Gleichung

$$k_f(T_e) = 3,75 \cdot 10^{-16} \cdot T_e^{1,5} \cdot \left(\frac{\Theta_{A,1}^*}{T_e} + 2 \right) \cdot \exp\left(- \frac{\Theta_{A,1}^*}{T_e} \right) \quad (3.3)$$

für den Ratenkoeffizient für die Elektronen-Stoßionisation. Hoffert und Lien gehen davon aus, dass Atome effektiv ionisiert sind, wenn sie sich im angeregten Zustand befinden. Daher findet

sich die charakteristischen Temperatur $\Theta_{A,1}^*$ des 1. angeregten Zustandes in Gleichung 3.3, statt der charakteristischen Temperatur der ersten Ionisation. Die Rekombinationsrate ergibt sich über die Gleichung 3.3 und die Gleichgewichtskonstante

$$K_{eq}(T_e) = 2,9 \cdot 10^{-16} \cdot T_e^{1,5} \cdot \exp\left(\frac{-\Theta_{ion}}{T_e}\right). \quad (3.4)$$

Dementsprechend ergibt sich die Gleichung

$$k_b(T_e) = \frac{k_f(T_e)}{K_{eq}(T_e)} = 1,29 \cdot 10^{-32} \cdot \left(\frac{\Theta_{A,1}^*}{T_e} + 2\right) \cdot \exp\left(\frac{\Theta_{ion} - \Theta_{A,1}^*}{T_e}\right) \quad (3.5)$$

für die Drei-Körper-Rekombination. Dabei ist bekannt, dass das Modell in niedrigen Energiebereichen (bis 10000 K) Fehler produziert [42] und zu hohe Ergebnisse liefert, da die Ionisation in diesem Bereich durch die Vereinfachung als größer angenommen wird, als sie tatsächlich ist. Diese Fehler sind allerdings bekannt, daher lassen sich Probleme bei der Berechnung mit dem Modell von Hoffert und Lien in diesen Temperaturbereichen relativ einfach erkennen. Das Modell von Hoffert und Lien wurde in verschiedenen Variationen aufgrund seiner Einfachheit und Robustheit bei der Anwendung in numerischen Simulationen bereits in mehreren Arbeiten [6, 26] verwendet. Ebenso wurde es von Chang und Pfender [14] im Vergleich mit anderen, auch in dieser Arbeit betrachteten Modellen als zuverlässig bewertet.

3.4 Modell von Lotz (1967)

Das ebenfalls 1967 von Lotz veröffentlichte Modell [28, 29] dient sowohl zur Bestimmung von Wirkungsquerschnitten wie auch von Ratenkoeffizienten. Es hat sich insbesondere in der Fusionsforschung, aber auch in vielen anderen Bereichen zur Berechnung von Ratenkoeffizienten durchgesetzt, da es gerade in höheren Temperaturbereichen (über 30000 K) sehr akkurate Ergebnisse liefert. Das Modell betrachtet nur die Ionisation vom Grundzustand aus nach dem Ansatz von Bethe [9] sowie von Rudge und Schwartz [38]. Allerdings werden Mehrfachionisation, Verringerung des Ionisationspotenzials und die Ionisation von angeregten Zuständen vernachlässigt [28]. Diese Effekte spielen gerade im unteren Temperaturbereich eine Rolle, daher liefert das Modell in diesem Bereich niedrigere Ratenkoeffizienten, wie in Bild 6 zur erkennen. Die Gleichung wurde durch Lotz mehrfach variiert, bis eine hinreichende Annäherung für den Wirkungsquerschnitt

$$\sigma_i(E) = a_i q_i \frac{\ln(E/E_i)}{E \cdot E_i} \left(1 - b_i \exp\left[-c_i \left(\frac{E}{E_i} - 1\right)\right]\right), E_i \leq E \quad (3.6)$$

der i-ten Ionisationsstufe mit 3 freien Parametern erhalten wurde. Die Ergebnisse dieser Gleichung wurde mit den Ergebnissen von Drawin verglichen. Um den Ratenkoeffizienten zu bestimmen, muss Gleichung 3.6 mit der Maxwell-Verteilung für die Elektronentemperatur

$$\frac{dn_e}{n_e} = \frac{2}{kT_e} \left(\frac{E}{\pi kT_e}\right)^{\frac{1}{2}} \exp\left(\frac{-E}{kT_e}\right) dE \quad (3.7)$$

multipliziert werden, um die Gleichung

$$k_f(T_e) = 6,7 \cdot 10^{-7} \sum_{i=1}^3 \frac{a_i q_i}{T_e^{3/2}} \cdot \left(\frac{1}{E_i/T_e} \int_{E_i/T_e}^{\infty} \frac{e^{-x}}{x} dx - \frac{b_i \exp(c_i)}{E_i T_e + c_i} \int_{E_i/T_e + c_i}^{\infty} \frac{e^{-y}}{y} dy \right) \quad (3.8)$$

zu erhalten. In der Praxis werden die Integrale in Gleichung 3.8 mit Hilfe der trigonometrischen Interpolationsformel approximiert [22]. Dabei geben x und y die normalisierte Elektronentemperatur an. Die in den Gleichungen 3.6 und 3.8 angegebenen numerisch bestimmten Koeffizienten a_i , b_i , c_i und q_i finden sich im Anhang in Tabelle A.7.

3.5 Modell von Lennon et al. (1988)

Das Modell von Lennon et al. [27] verfolgt einen semi-empirischen Ansatz. Die Wirkungsquerschnitte wurden für hohe Energien aus den Experimenten von Wetzell et al. [53] sowie für niedrige Energien aus den Daten von Rapp und Englander-Golden [37] interpoliert. Damit gelangt man zu der Gleichung

$$\sigma(E) = \frac{1}{E_i E} \left[A \cdot \ln\left(\frac{E}{E_i}\right) + \sum_{j=1}^5 B_j \left(1 - \frac{E_i}{E}\right) \right] \quad (3.9)$$

für die Wirkungsquerschnitte in Abhängigkeit von der Energie. Dabei ist E_i die erste Ionisierungsenergie. A und B_j beschreiben die im Anhang in Tabelle A.6 gegebenen Koeffizienten aus der Interpolation. Für die Ionisationsratenkoeffizienten wird die Gleichung

$$k_f(T_e) = \exp\left(\frac{-E_i}{kT_e}\right) \cdot \left(\frac{kT_e}{E_i}\right)^{(1/2)} \cdot \sum_{j=0}^5 a_j \left[\log_{10}\left(\frac{kT_e}{E_i}\right)\right]^j \quad (3.10)$$

für den Bereich $E_i/10 < kT_e < 10E_i$ angegeben. Für den Temperaturbereich über $10E_i$ wird eine andere Gleichung angegeben. Dieser Bereich wird in der vorliegenden Arbeit allerdings nicht weiter betrachtet, da er für die Vergleiche mit den anderen Modellen nicht relevant ist.

3.6 Modell von Simpson (1990)

Das Modell von Simpson [42] für die Rekombination soll vor allem die Fehler des Modells von Hoffert und Lien (Kapitel 3.3) korrigieren. Es ist mindestens in einem Bereich von 2000 K bis 16000 K anwendbar, da die zugrundeliegenden Polynome für diesen Bereich mit einer Genauigkeit von 1% an die vorhandenen Kurven angepasst wurden. Für die Rekombinationsratenkoeffizienten wird von Simpson die Gleichung

$$k_b(T_e) = \left(C \cdot \frac{g_0}{g_i}\right) \left(S'_{0i} + S'_{0*} \cdot \frac{\exp\left(\frac{\epsilon_{*i}}{k_b T_e}\right)}{1 + b(T_e)}\right) \quad (3.11)$$

angegeben. In Verbindung mit dem Vorfaktor $C = 0,5 \cdot \left(\frac{2\pi k m_e T_e}{h^2}\right)^{-\frac{3}{2}}$ dienen die Faktoren $g_0 = 1$ und $g_i = 6$ dazu, das Verhältnis von Ionen zu Atomen im Grundzustand wiederzugeben. ϵ_{*i} gibt die Bandbreite aller angeregten Zustände an. Um den Fehler im Modell von Hoffert und

Lien im niedrigen Temperaturbereich zu korrigieren, wird ein Verzweigungsfaktor

$$b(T_e) = g_0 \cdot \frac{1}{P_{*i}} \cdot \left(S'_{0*} \exp\left(\frac{\epsilon_{*i}}{k_b T_e}\right) - P_{0*} \right) \quad (3.12)$$

eingeführt, der im niedrigen Temperaturbereich ansteigt und die Kurve, wie in Bild 7 zu erkennen, variiert. Die Koeffizienten S'_{0i} , S'_{0*} , P'_0 , P'_{0i} beschreiben dabei Ratenkoeffizienten für die verschiedenen Arten von Übergängen (siehe Anhang, Tabelle A.8) und wurden durch Simpson numerisch auf Basis von verschiedenen, in Kapitel 3.6.1 genauer erläuterten, Modellen für Wirkungsquerschnitte berechnet. Daraus resultiert ein im Temperaturbereich zwischen 3000 K und 10000 K höherer Ionisationsratenkoeffizient. Dabei wurden die einzelnen Querschnitte aufsummiert und numerisch integriert, um über die Gleichung

$$S_{mn} = \exp\left(\frac{E_i}{kT_e}\right) \left(\frac{8kT_e}{\pi m_e}\right)^{0.5} \cdot \int_0^{+\infty} \sigma_{mn} \left(\delta y + \frac{E_i}{kT_e}\right) e^{-\delta y} d(\delta y) \quad (3.13)$$

die Ratenkoeffizienten der Übergänge des Zustands m zu n zu erhalten. In Gleichung 3.13 gilt $y = \frac{E_i}{kT_e}$ für die normalisierte Elektronenenergie, daher ist $\sigma_{mn} = 0$ für E_i .

Das Modell von Simpson betrachtet den Einfluss der angeregten Spezies sehr detailliert, das gesamte Energieband der angeregten Spezies geht über $\epsilon_{*i} = 4,21eV$ in die berechneten Rekombinationsratenkoeffizienten ein. Dies stellt einen deutlichen Unterschied zu vielen anderen Modellen dar, insbesondere dem von Hoffert und Lien. So ist die Formel 3.11 eine Kombination aus verschiedenen Reaktionsratenkoeffizienten für unterschiedliche Übergänge.

3.6.1 Von Simpson verwendete Wirkungsquerschnitte

Um die Stoßionisation durch Elektronen vom Grundzustand aus zu betrachten, wurden von Simpson die Wirkungsquerschnitte von Wetzal et al. [53] verwendet. Dieser werden in Gleichung 3.11 als S'_{0i} repräsentiert. Die experimentellen Daten wurden mit kubischen B-Splines angenähert. Eine genauere Betrachtung der Experimentaldaten findet sich in Kapitel 4.7.

Um die als S'_{0k} in Gleichung 3.11 repräsentierten Wirkungsquerschnitte für die Übergänge von angeregten Zuständen aus zu berücksichtigen, wurden die berechneten Daten von Bretagne et al. [12] benutzt, die gute Übereinstimmung mit den aktuelleren Daten von Vlcek [50] zeigen. Für die Übergänge von den 1s-Zuständen aus wurden die Daten von Tachibana [46] benutzt.

Für die Berechnung der in Gleichung 3.12 als P_{0i} berücksichtigten Stoßionisation von angeregten Zuständen aus wurden die Querschnitte

$$\sigma(E) = \frac{\pi e_0^4}{E + \alpha E_i} \cdot \left(\frac{5}{3E_i} - \frac{1}{E} - \frac{2E_i}{3E^2} \right) \quad (3.14)$$

nach Vriens [52] benutzt, dessen Modell hierbei eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten von Dixon et al. [15] zeigt. Die Gleichung 3.14 stellt dabei eine Anpassung der Gleichung 3.1 von Thomson dar. Es ist zu beachten, dass $E_i = 2,53144 \cdot 10^{-11}$ erg und $e = 4,8 \cdot 10^{-10}$ Fr betragen.

3.6.2 Arrhenius-Fit des Simpson Modells

Um das Modell von Simpson in gängige numerischen Simulationsverfahren zu implementieren, wurden die Ratenkoeffizienten für die Ionisation im Rahmen dieser Arbeit mit Hilfe einer angepassten Arrhenius-Funktion

$$k_f(T_e) = C \cdot T_e^\beta e^{-\frac{\Theta_{ion}}{T_e}} \quad (3.15)$$

approximiert. Die Koeffizienten für diese finden sich im Anhang in Tabelle A.9.

3.7 Modell von Annaloro et al. (2012)

Das 2012 veröffentlichte Modell von Annaloro [2] ist von den in dieser Arbeit betrachteten Modellen das Jüngste. Das Modell wurde nicht nur für Argon, sondern hauptsächlich zur Beschreibung der Stoßionisation von Kohlenstoff, Stickstoff und Sauerstoff für die Wiedereintrittssimulation entwickelt. Es ist gültig für einen Temperaturbereich von 3000 K bis 20000 K. Die verwendeten totalen Wirkungsquerschnitte der Ionisation basieren auf der Arbeit von Drawin (Kapitel 3.2). Zur Bestimmung des Ratenkoeffizienten aus den Wirkungsquerschnitten wird ebenfalls die Gleichung 2.9 verwendet. Mit den aus der Integration bestimmten Werten wurde daraufhin die Arrhenius-Funktion

$$k_j(T_e) = C_j T_e^{\beta_j} e^{-\frac{\Theta_j}{T_e}} \quad (3.16)$$

für die Ratenkoeffizienten approximiert. Die für Argon interpolierten Werte finden sich im Anhang in Tabelle A.1. Gleichung 3.16 wird mit anderen Parametern auch für die Rekombination verwendet. Diese finden sich ebenfalls im Anhang. Wie in Bild 6 zu erkennen, liefert das Modell für Annaloro über den gesamten Temperaturbereich höhere Werte als andere aktuelle Modelle. Dies ist darauf zurückzuführen, dass die totalen Wirkungsquerschnitte für die Integration verwendet werden. In anderen Modellen werden im Gegensatz dazu nur Wirkungsquerschnitte für die Ionisation vom Grundzustand oder aus angeregten Zuständen verwendet. Trotzdem ist das Ergebnis erstaunlich, da sich die von Drawin berechneten Wirkungsquerschnitte, wie in Bild 8 zu erkennen, im selben Bereich bewegen, wie die in anderen Modellen berechneten Wirkungsquerschnitte. So kann nicht erklärt werden, warum das Modell von Annaloro et al. solch hohe Ergebnisse liefert.

3.8 Weitere Modelle

Der Vollständigkeit halber werden in diesem Abschnitt weitere Modelle vorgestellt, auch wenn diese in der weiteren Arbeit nicht berücksichtigt wurden. Die vorgestellten Modelle stellen größtenteils nur Variationen der bisher vorgestellten Arbeiten dar, die keine großen Unterschiede zu den Originalen einführen. Auch sind Modelle enthalten, welche zwar für Argon verwendet werden, aber aus verschiedenen Gründen nicht den Kriterien entsprechen, welche für diese Arbeit angesetzt wurden. Sie waren nicht einfach implementierbar oder wichtige Koeffizienten fehlten. Dabei lässt sich generell feststellen, dass diese Modelle nicht in großem Maßstab verwendet und

validiert wurden. Um eine Vergleichbarkeit mit den bisher vorgestellten Modellen zu ermöglichen, werden die in diesem Abschnitt erwähnten Modelle, in einem Diagramm mit den anderen Modellen in Bild 9 dargestellt, sowie in einem Diagramm mit dem Rückwärtsratenkoeffizienten in Bild 7.

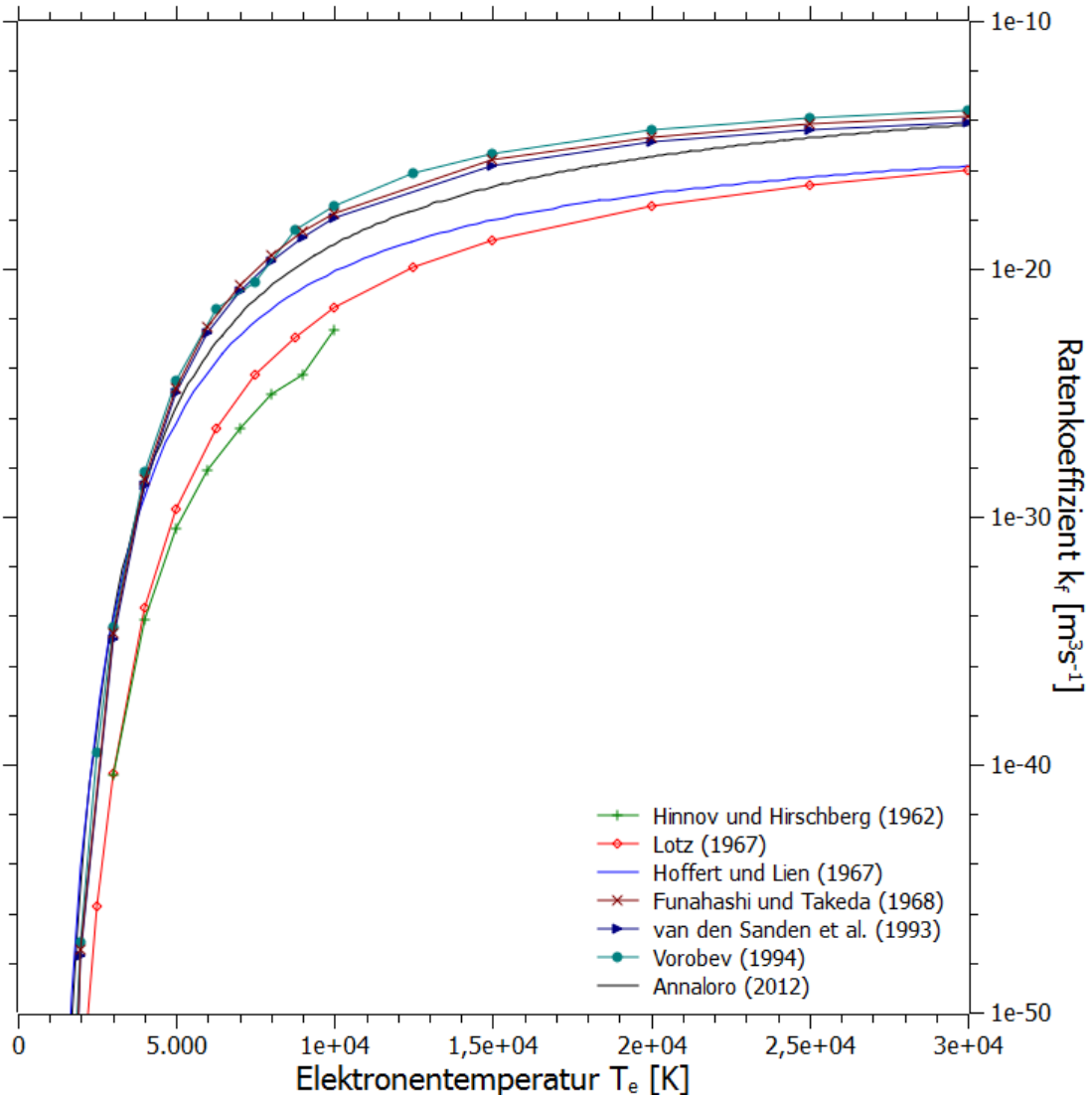


Bild 9: Ratenkoeffizienten für weitere Modelle.

3.8.1 Modell von Bates et al. (1962)

Das auch als Kollisions-Strahlungs-Modell bekannte Modell von Bates et al. [7] ist eines der ersten umfassenden Modelle zur Bestimmung von Rekombinationsratenkoeffizienten in Plasmen. Die berücksichtigten Effekte enthalten unter anderem die Drei-Körper-Rekombination und Stoßionisation, des Weiteren superelastische und inelastische Stöße. Auch Strahlungsan- sowie abregung werden betrachtet, genau wie Strahlungs-Rekombination und Photo-Ionisation. Für all diese Effekte wurden die Ratenkoeffizienten bestimmt. Die Arbeit von Bates et al. umfasst

allerdings nur Wasserstoff, so dass sie nicht direkt verglichen werden kann. Andere Arbeiten, wie die von Simpson [42], vergleichen sich aber mit den Rekombinationsratenkoeffizienten von Bates et al.. Daher scheint das Modell auch für Argon anwendbar zu sein. Im Rahmen dieser Arbeit war es allerdings nicht möglich, die Unterschiede zwischen dem Modell für Wasserstoff und dem für Argon so nachzuvollziehen. Aus diesem Grund konnte keine für die Simulation anwendbare Gleichung gewonnen werden, mit der ein Vergleich möglich gewesen wäre.

3.8.2 Modell von Hinnov und Hirschberg (1962)

Das Modell von Hinnov und Hirschberg [23] stellt ein weiteres Modell zur Bestimmung der Ratenkoeffizienten dar. Bei diesem wird über den Temperaturbereich integriert, um die Ionisationsrate

$$\ddot{\alpha} = n_{Ar} n_e \pi e_0^4 \left(\frac{8}{\pi m_e} \right)^{0,5} k T_e^{-3/2} \int_{x_i}^{\infty} (x_i^{-1} - x^{-1}) \cdot \exp^{-x} dx \quad (3.17)$$

mit $x = E/kT_e$ zu berechnen. Dabei bestimmt sich das Integral näherungsweise zu $(2/5)x_i \exp(-x_i)$, was zu dem Ausdruck

$$C_i n_{Ar} = (4/5) \pi e^4 \left(\frac{2}{\pi m_e k T_e} \right)^{0,5} E_i^{-1} \cdot \exp\left(\frac{-E_i}{k T_e}\right) n_{Ar} n_e \quad (3.18)$$

für die Ionisationsrate führt. Über

$$\frac{-\partial n_e}{\partial t} = k_b n_e^2 \quad (3.19)$$

lässt sich der Rekombinationsratenkoeffizient bestimmen. Das Modell von Hinnov und Hirschberg beachtet sowohl Ionisation vom Grundzustand als auch von angeregten Zuständen aus. Das Modell selber gilt nur für Helium, mit Integration der Gleichung 3.17 über die spezifischen Daten von Argon lassen sich in der Praxis auch Rekombinationsratenkoeffizienten für diese Spezies berechnen. Da dies in der Arbeit von Simpson [42] bereits durchgeführt wurde, wird die Bewertung von Simpson für das Modell von Hinnov und Hirschberg herangezogen. Die von Simpson angegebenen Daten sind in Bild 9 dargestellt.

3.8.3 Modell von Gryziński (1965)

Das Modell von Gryziński [21] ist eines der ältesten Modelle zur Berechnung von Wirkungsquerschnitten für die Stoßionisation durch Elektronen, aber auch durch Schwerteilchen. Dabei ist der Wirkungsquerschnitt der ersten Ionisationsstufe definiert durch

$$\sigma(E) = 16 \cdot 10^{-16} \cdot g_i \left(\frac{E}{E_i} \right) \cdot r \left(3,08 \cdot 10^{-5}; \frac{E}{E_i} \right), \quad (3.20)$$

wobei im nicht-relativistischen Energiebereich für den Korrekturfaktor $r(x, y) = 1$ gilt. Neben dem Anfangswirkungsquerschnitt $16 \cdot 10^{-16} \text{cm}^2$ ist

$$g_i(x) = \frac{1}{x} \left(\frac{x-1}{x+1} \right)^{(3/2)} \cdot \left[1 + \frac{2}{3} \left(1 - \frac{1}{2x} \right) \cdot \ln(2,7 + (x-1)^{1/2}) \right] \quad (3.21)$$

Das Modell von Gryziński ist rein analytisch und basiert auf theoretischen Überlegungen zu Stößen zwischen Kollisionspartnern. Die Ionisation von angeregten Zuständen aus wurde nicht gesondert betrachtet, allerdings enthält das Modell auch Wirkungsquerschnitte für die Ionisation durch Querteilchenstöße. Das Modell wurde vom Autor nicht validiert, liegt bei der Berechnung aber generell unter der Ergebnissen anderer Modelle für Wirkungsquerschnitte wie auch unter aktuellen Experimentalwerten, wie in Bild 8 zu erkennen.

3.8.4 Modell von Funahashi und Takeda (1968)

Das Modell von Funahashi und Takeda [20] ist ein einfaches Modell zur Beschreibung der Rekombination von Argon-Plasmen im Temperaturbereich von $10^3 \text{ K} < T_e < 10^4 \text{ K}$ sowie mit einer Dichte von $10^{16} \text{ cm}^{-3} < n < 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. Die Gleichung zur Beschreibung des Rekombinationsratenkoeffizienten hat dabei die Form

$$k_b(T_e) = C \cdot \beta \cdot T_e^{-9/2}. \quad (3.22)$$

Die Konstante C bestimmt sich dabei zu $5,6 \cdot 10^{-9} \text{ K}^{9/2} \text{ cm}^6 \text{ sec}^{-1}$ und wurde experimentell ermittelt, in dem die Rate $\frac{\partial n_e}{\partial t}$ gemessen wurde. Das Modell wurde aufgrund seiner Einfachheit und seinem beschränkten Temperaturbereich nicht genauer betrachtet. Nach Takashi et al. ist es aber für Temperaturen unter 3000 K zur Ermittlung des Ratenkoeffizienten anwendbar.

3.8.5 Modell von Houwing et al. (1991)

Bei der Arbeit von Houwing et al. [25] wurde ein Experiment mit expandierenden Argon- und Neon-Plasmen durchgeführt. Dabei wurden über Wellenlängen-Interferometrie Messungen der Schwerteilchen-Dichte sowie des Anteils an ionisierten Spezies durchgeführt. Um die in Bild 7 dargestellte Rekombinationsrate des Plasmas zu bestimmen, wurden die Gradienten des Anteils an ionisierten Spezies gemessen. Daraus wurden Koeffizienten für 2 unterschiedliche Modelle bestimmt, zum einen für die Koeffizienten in Gleichung 3.3 von Hoffert und Lien, sowie für die Gleichung 3.24 aus dem Modell von van den Sanden et al. [39]. Die Messgenauigkeit wird von Houwing et al. mit $\pm 50 \%$ angegeben, die daraus bestimmten Koeffizienten finden sich in Tabelle A.5 im Anhang .

3.8.6 Modell von Owano et al. (1993)

Das Modell von Owano et al. [32] stellt eine Überarbeitung der Rekombinationsraten des Modells von Hoffert und Lien dar [24]. Dabei wird ein Modell des partiellen Gleichgewichts eingeführt. Über verschiedene Umformungen wird die Gleichung

$$k_b(T_e) = 3,3 \cdot 10^{-32} \left(\frac{\Theta_{A,1}^*}{T_e} \right) \cdot \exp \left(\frac{\Theta_{ion} - \Theta_{A,1}^*}{T_e} \right) \quad (3.23)$$

zur Berechnung der Rekombinationsratenkoeffizienten bestimmt. An dieser Gleichung ist bereits die Ähnlichkeit zu Gleichung 3.5 von Hoffert und Lien erkennbar. Die beiden Modelle unterschied-

den sich nur anhand des Vorfaktors. Das Verhältnis um den Faktor 3 ist aber im Verhältnis mit den Unterschieden zwischen den anderen Modellen zu gering, um das Modell genauer zu betrachten. In der Arbeit von Owano et al. wird des weiteren festgestellt, dass es wahrscheinlich ist, dass die realen Rekombinationsraten größer sind als die im Modell bestimmten.

3.8.7 Modell von van den Sanden et al. (1993)

Das Modell von Sanden et al. [39] behandelt die Rekombination in einem expandierenden Argon-Plasma. Es wurden die Elektronentemperaturen und -dichten gemessen. Dabei wird der Rekombinationsratenkoeffizient experimentell bestimmt, um Koeffizienten zur Approximation durch

$$k_b(T_e) = C \cdot T_e^\beta \quad (3.24)$$

zu erhalten. Die so bestimmten Koeffizienten C und n finden sich im Anhang in Tabelle A.11. Das Modell von Sanden et al. zeigt über den gesamten Temperaturbereich eine Übereinstimmung mit der Rekombinationsrate des Modells von Hoffert und Lien. Aus diesem Grund wurde es nicht weiter betrachtet.

3.8.8 Modell von Vorob'ev (1994)

Das Modell von Vorob'ev [51] dient dazu, Rekombinationsratenkoeffizienten in Plasmen zu berechnen. Dazu wird die sehr einfache Gleichung

$$k_b(E) = 5,4 \cdot 10^{-39} Z^3 E^{-9/2} \quad (3.25)$$

angegeben, in welcher Z die Stufe der Ionisation angibt. Aus Bild 9 kann man erkennen, dass der über die Gleichgewichtskonstante berechnete Ratenkoeffizient der Ionisation ab 4000 K eine Tendenz in die Richtung des Ratenkoeffizienten von Annaloro et al. [2] aufweist. Das Modell von Vorob'ev ist ab 3000 K gültig, unterhalb dieser Temperatur wird davon ausgegangen, dass $k_b = E^{-9/2}$ gilt [10]. Aufgrund dieser Vereinfachungen und der im Endergebnis sehr geringen Unterschiede zu dem Modell von Annaloro wird das Modell hier nicht weiter betrachtet.

3.8.9 Modell von Bernshtam et al. (2000)

Das im Jahr 2000 veröffentlichte Modell von Bernshtam [8] zur Berechnung von Wirkungsquerschnitten über die Formel

$$\sigma_i(E) = C_l \cdot \left(\frac{Ryd}{E_i} \right)^{2-\delta_i} \xi_j b_i \frac{\ln(E/E_i)}{E/E_i} \quad (3.26)$$

stellt eine Überarbeitung des Modells von Lotz für höhere Ionisationsstufen dar. Unter anderem wurde ein Verzweigungsfaktor b_i eingeführt, der die bei Lotz vernachlässigten Übergänge durch angeregte Zustände abbilden soll. In Gleichung 3.26 gibt ξ_j die Anzahl der Elektronen auf der äußeren Schale für die jeweilige Ionisationsstufe an. Um mit dem Modell zu rechnen, müssen die

empirisch bestimmten Koeffizienten C_l sowie δ_l verwendet werden, die in Tabelle A.2 angegeben sind. Da das Modell nur höhere Ionisationsstufen betrachtet und der Fokus in dieser Arbeit auf der ersten Ionisation liegt, wurde es im weiteren Verlauf nicht weiter beachtet.

4 Übersicht der verwendeten Experimentaldaten

Im Verlauf des letzten Jahrhunderts wurden im Zusammenhang mit der Bestimmung der Eigenschaften von Plasmen verschiedene experimentelle Methoden zur Bestimmung von Wirkungsquerschnitten wie auch von Ratenkoeffizienten entwickelt [36]. Einige der mit diesen Methoden bestimmten Experimentaldaten bilden die Grundlage für die Modelle aus Kapitel 3, insbesondere bei den semi-empirischen Modellen. Aber auch für die anderen Modelle wurden die Ergebnisse der Experimente zum Vergleich herangezogen. Dabei wurde bei mehreren experimentell bestimmten Wirkungsquerschnitten der Stoßionisation vom Grundzustand, die in Bild 10 dargestellt sind, eine Abweichung untereinander, als auch von den in Bild 8 dargestellten berechneten Wirkungsquerschnitten festgestellt. Um also die Qualität der Modelle beurteilen zu können, ist eine möglichst genaue Kenntnis der zugrunde liegenden Experimentaldaten von

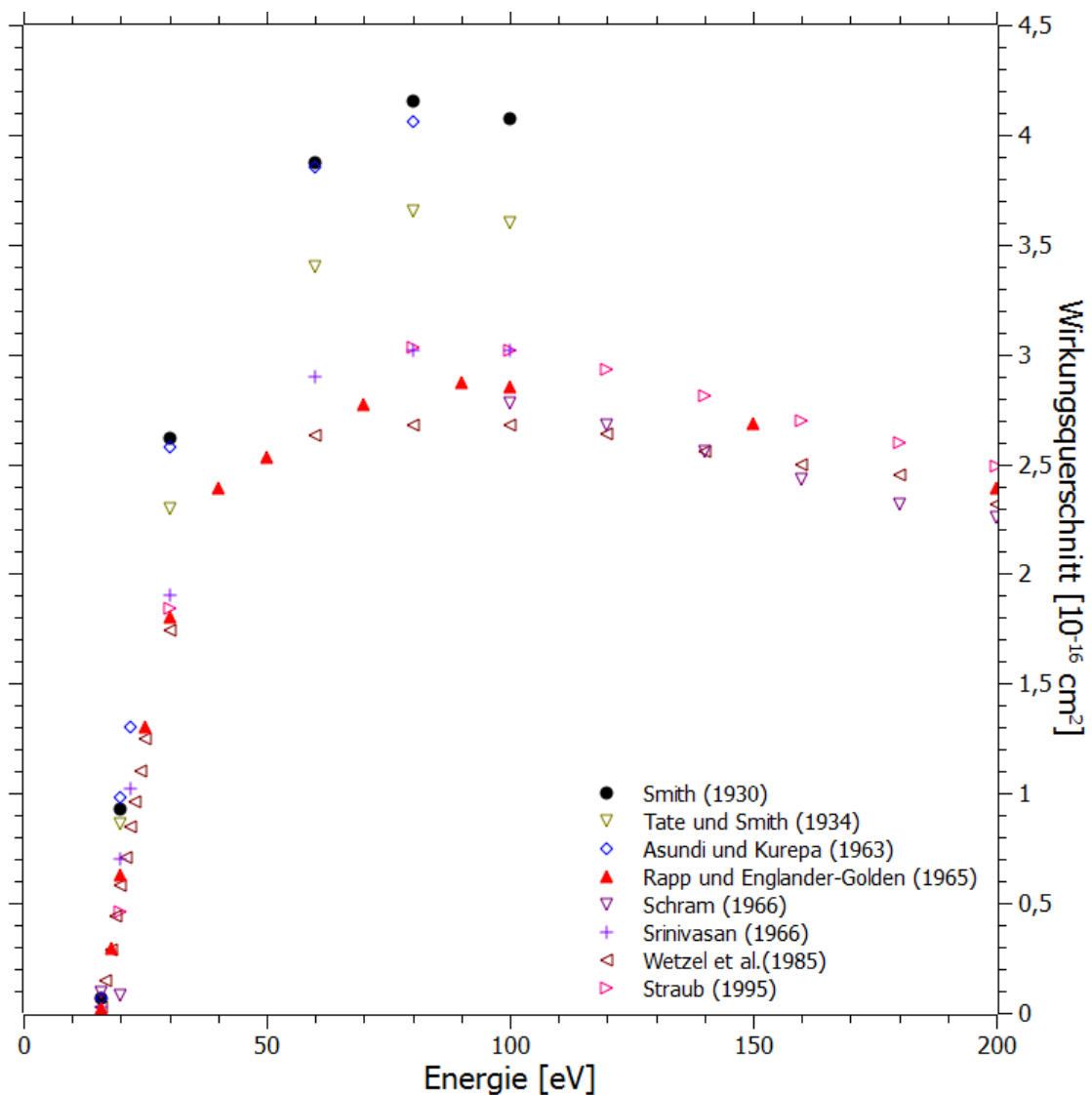


Bild 10: Experimentell bestimmte und berechnete Wirkungsquerschnitte der Stoßionisation.

Vorteil. Daher werden in diesem Kapitel die in verschiedenen Experimenten bestimmten Wirkungsquerschnitte qualitativ und quantitativ verglichen, um eine möglichst genaue Beurteilung der Experimentaldaten zu halten. Dazu werden sie auch mit den mit Hilfe von Modellen berechneten Wirkungsquerschnitten [16, 27, 28] verglichen.

4.1 Smith (1930)

Die Messungen vom Smith [43] aus dem Jahre 1930 sind die ersten, die allgemein zitiert und benutzt werden. Dabei wurde eine verfeinerte Methode aus früheren Experimenten verwendet. Die Experimentalapparatur besteht, wie in Bild 11 dargestellt, aus einem von einer Spule umgebenen Kupferrohr, in welchem sich das Gas befindet. Die Elektronenquelle F besteht aus einem Wolfram-Draht, von welchem ausgehend die Elektronen mit Hilfe der Spule S durch zwei Lochblenden S1 und S2 mit 1,5 mm Durchmesser beschleunigt werden. Das von der Spule erzeugte Magnetfeld dient ebenfalls dazu, den Elektronenstrahl einzuengen, sowie Elektronen und Ionen zu trennen. Durch diese Begrenzung der Elektronen wird die Anwesenheit von Sekundärelektronen aus den Metallen vermieden. Eine Platte P1 am Ende des Rohrs dient bei diesem Aufbau dazu, die auftreffenden Elektronen zu messen, eine weitere Platte senkrecht zum Kupferrohr P2 wird dazu verwendet, die Anzahl der Ionen zu bestimmen. Die Gase wurden mit den bekannten Methoden auf Unreinheiten überprüft, dabei wurden keine Verunreinigungen festgestellt. Auch wenn das Gas im Versuch als statisch angenommen wird, wird es doch über den Versuchszeitraum konstant erneuert. Um den geforderten niedrigen Druck ($0,2377 \cdot 10^{-3}$ Pa) zu bestimmen, wurde der Druck mit Hilfe einer Quecksilbersäule gemessen. Nach dem ein bestimmter Druck erreicht ist, wird der Apparat von dem Druckmessgerät abgetrennt. Insgesamt wurde laut Smith eine höhere Präzision als in früheren Experimenten erreicht, da genauere Messmethoden angewandt wurden. Trotzdem lässt sich im Vergleich zu anderen Messungen (siehe Bild 10) feststellen, dass die Ergebnisse von Smith tendentiell größer sind, als die in späteren Experimenten ermittelten Ergebnisse. Das Modell von Drawin [17] wurde anhand der Daten von Smith überprüft, und zeigt über einen kleinen Temperaturbereich Übereinstimmung mit den Daten, wie beim Vergleich der Bilder 8 und 10 zu erkennen. Auch Gleichung 3.1 von Thomson [16] wurde anhand der Daten verifiziert. Es wurde allerdings gerade in den niedrigen und hohen Energiebereichen nur eine geringe Übereinstimmung festgestellt.

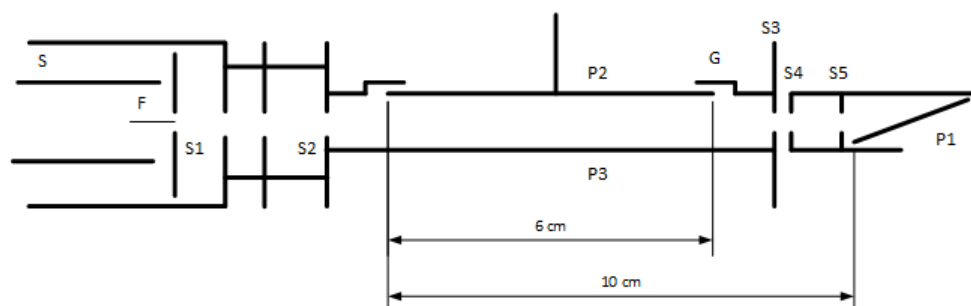


Bild 11: Experimenteller Aufbau von Smith

4.2 Tate und Smith (1932)

Tate und Smith [47] versuchen mit ihrem 1932 veröffentlichten Daten eine Korrektur der Ergebnisse von Smith [43] aus dem Jahr 1930. Dafür nutzen sie eine ähnliche Apparatur wie bereits in Kapitel 4.1 erläutert. Die Veränderung bestand hauptsächlich aus einer zusätzlichen Öffnung zu der Pumpe, um das Gas zu erneuern. Durch diese Öffnung wird der Einfluss der an der Elektronenquelle entstandenen Elektronen und Ionen auf die Messung verringert. Insgesamt erhalten Tate und Smith deutlich geringere Messwerte als Smith in seiner vorherigen Messung, was sich durchaus auf das verbesserte Messverfahren zurückführen lässt.

4.3 Asundi und Kurepa (1963)

Asundi und Kurepa [4] greifen in ihrer im Jahr 1963 veröffentlichten Arbeit früher angewandte Methoden zur Messung von Wirkungsquerschnitten auf, unter anderem die Methode von Smith aus Kapitel 4.1, sowie eine relative Methode, bei welcher die Daten auf das Ergebnis von Smith für den Wirkungsquerschnitt bei einer Energie von 80 eV bezogen wurden. Dabei wurde der Apparat von Smith verändert, insbesondere der Elektronendetektor wurde dahingehend verbessert, dass Ionen, die innerhalb des Detektors erzeugt werden, die Ionisationskammer nicht erreichen. Für diesen Apparat wurden die Wirkungsquerschnitte mit der Formel

$$\sigma = \frac{i_i}{i_e} \cdot \frac{T}{273} \cdot \frac{1}{pL \cdot 3 \cdot 353 \cdot 10^{-16}} \text{ cm}^2 \quad (4.1)$$

aus den experimentell bestimmten Werten berechnet. In dieser stehen i_i und i_e für die Spannung am Ionen- respektive Elektronendetektor. Druck, Temperatur und Länge der Ionisationskammer werden durch p , T , und L angegeben.

Der Apparat zur relativen Bestimmung der Wirkungsquerschnitte verwendet ein ähnliches Verfahren wie der von Smith, allerdings befindet sich innerhalb des Systems eine Anordnung von Trennwänden, die einen Großteil der Ionen ansammeln. Diese führen dazu, dass sich die absolute Anzahl an Ionen genauer messen lässt, als im ursprünglichen Aufbau. Insgesamt erhalten Asundi und Kurepa, wie in Bild 10 zu erkennen, bis zu einer Elektronentemperatur von 100 eV ähnliche Ergebnisse für Argon wie Smith. Sie kommen daher zu dem Schluß, das ihr Meßverfahren korrekt sein muss.

4.4 Rapp und Englander-Golden (1965)

Die Versuche von Rapp und Englander-Golden [37] aus dem Jahre 1965 zur Bestimmung der totalen Wirkungsquerschnitte wurden für viele verschiedene Gase durchgeführt, unter anderem auch für Argon. Dabei sollte die Methode von Smith verbessert werden. Die verwendete Apparatur hat eine große Ähnlichkeit zu der von Tate und Smith [47]. Die totalen Wirkungsquerschnitte berechnen sich durch die Gleichung

$$\sigma_T = \frac{i_i}{i_e \cdot n_T \cdot \lambda}, \quad (4.2)$$

wobei i_i sowie i_e die an den Detektoren gemessenen Spannungen angeben und der Rest identisch zu Gleichung 2.7 ist. In dem Experiment wurde unter anderem durch mehrfache Variation der Feldspannung des Ionendetektors überprüft, ob die Messung korrekt ist. Des Weiteren wurden für jede gemessene Energie des Elektronenstrahls mehrfache Messungen durchgeführt, deren Ergebnisse nur übernommen wurden, wenn die Abweichung bei $\pm 0,5$ % lag. Um den Fehler der Druckmessung mit Hilfe des McLeod-Quecksilbermanometers zu vermeiden, wurde mit diesem der Druck nur für H_2 bestimmt, bei welchem nur ein geringer Fehler ± 3 % vorhanden ist. Die anderen gemessenen Wirkungsquerschnitte wurden dann in ein Verhältnis zu den für H_2 bestimmten Wirkungsquerschnitten gesetzt. Insgesamt lässt sich sagen, dass die von Rapp und Englander-Golden bestimmten Ergebnisse insbesondere im Vergleich zu denen von Smith sowie Asundi und Kurepa deutlich niedriger liegen, aber aufgrund der verbesserten und genaueren Methode deutlich bessere Ergebnisse liefern.

4.5 Schram et al. (1966)

Schram et al. [40,41] untersuchen in ihrer Arbeit Wirkungsquerschnitte in den beiden Energiebereichen von $0,6 - 20$ eV sowie von $100 - 600$ eV. Die Arbeit ist aus dem Grund, dass sie mehrfach als Vergleich für andere Arbeiten herangezogen wird, sehr interessant. Der experimentelle Aufbau hatte die folgende Form: Ein Elektronenstrahl wird zwischen zwei Kondensator-Platten gelenkt, zwischen denen sich das neutrale Gas befindet. Durch das elektrische Feld werden die Ionen dann abgelenkt, und treffen so auf den Ionendetektor. Schram et al. kommen in ihrer Arbeit zu dem Schluss, dass im Vergleich mit früheren Arbeiten von Asundi und Kurepa [4] sowie Rapp und Englander-Golden [37] die Ergebnisse deutlich niedriger liegen, wie in Bild 10 zu erkennen. Diesen Unterschied begründen sie hauptsächlich mit den in anderen Arbeiten nicht bekannten Ungenauigkeiten bei der Druckmessung. Im Vergleich mit den theoretischen Daten für Argon aus dem semi-empirischen Ansatz zu Bestimmung von Wirkungsquerschnitten von Vriens [52] erhalten sie für den kompletten Energiebereich eine relativ gute Übereinstimmung, die Abweichung beträgt insgesamt $+4$ bis -5 %.

4.6 Srinivasan und Rees (1967)

Srinivasan und Rees [44] verfolgen eine unterschiedliche Methode im Vergleich zu früheren Messungen, auch wenn der grundlegende Aufbau der Apparatur der selbe ist, wie bei Smith. Um das Problem zu vermeiden, dass Argon und andere Edelgase durch das Quecksilber der Messapparatur diffundieren, wurde eine andere Methode zu Bestimmung des Gasdrucks sowie des Messfehlers für diesen Wert gewählt. Dabei wurden die Drücke für die jeweiligen Gase in einer anderen Apparatur mit dem im Experiment verwendeten McLeod-Quecksilbermanometer gemessen. In dieser wurde der Unterschied zwischen dem gemessenen Druck bei statischen Gas und bei Gas, das erneuert wird, gemessen. Daraus wurde mit Hilfe der Formel

$$\frac{\sigma}{\sigma_{gemessen}} = \frac{p_{gemessen}}{p_{wahr}} \quad (4.3)$$

eine Korrektur für die Messwerte des Wirkungsquerschnitts durchgeführt. Es wurde dabei angenommen, dass der Fehler über den gesamten Versuch konstant ist. Mit Hilfe dieser Methode konnte der systematische Fehler verringert werden, was sich auch in den Messergebnissen äußert (vgl. Bild 10), die bei Srinivasan und Rees unter den Ergebnissen der älteren Experimente von Smith sowie von Asundi und Kurepa liegen.

4.7 Wetzal et al. (1986)

Wetzal et al. [53] nutzen für ihre Experimente die Methode der gekreuzten Strahlen (siehe Kapitel 2.5). In der Versuchsanordnung wird ein Strahl aus neutralem Gas beschleunigt und mit einem Elektronenstrahl gekreuzt. Mit mehreren Techniken wird dabei sichergestellt, dass beide Strahlen eine geringe Streuung aufweisen, sodass auch jeweils alle Ionen bzw. Elektronen vom Detektor aufgefangen werden. Mit dem Ionendetektor lassen sich hierbei die einzelnen Ionisationsstufen bis zum 3. Grad der Ionisation messen. Der Wirkungsquerschnitt wird bestimmt durch

$$\sigma(E) = \frac{i_i(E)v_e v_n}{i_e(E)RF(v_e^2 + v_n^2)^{1/2}}, \quad (4.4)$$

wobei $i_i(E)$ und $i_e(E)$ die an Ionen- und Elektronendetektor mit einer Genauigkeit von 8 % bzw. 1 % gemessenen Spannungen darstellen, v_n und v_e die mit einer Genauigkeit von 1 % gemessenen Geschwindigkeiten der beiden Strahlen, R den Massenstrom des Neutral-Gas-Strahls in Atomen/Sekunde und F den Grad der Überschneidung der beiden Strahlen mit einer Genauigkeit von 2 % bis 3 % respektive 5 %. Eine Messung von $\sigma(E)$ besteht also aus einer möglichst genauen Messung aller Einzelwerte. Die gesamte Ungenauigkeit einer Messung unter Beachtung aller einzelnen Ungenauigkeiten beträgt 12 %. Das Neutral-Gas besteht dabei zum größten Teil aus Atomen im Grundzustand. Wetzal et al. stellen im Endergebnis fest, dass ihre aus den einzelnen Wirkungsquerschnitten der Ionisationsstufen addierten totalen Wirkungsquerschnitte gute Übereinstimmung mit den Daten von Rapp und Engländer-Golden [37] sowie neueren Messungen von Kurepa et al. [4] zeigen. So liegen die Ergebnisse von Wetzal et al. innerhalb der von den anderen Autoren angegebenen Genauigkeiten, wie in Bild 10 zu erkennen. Aus diesem Grund kommen Wetzal et al. zu dem Schluss, dass die im Rahmen des Experiments berechneten Ungenauigkeiten von $\pm 12 - 15$ % in Wirklichkeit geringer sind, als von ihnen angenommen. Ein Unterschied zu den Messungen von Schram et al. [41] wurde festgestellt, der wohl aus einem systematischen Fehler in der Arbeit von Wetzal et al. resultiert.

4.8 Tachibana et al. (1986)

Die Experimente von Tachibana et al. [46] dienen dazu, die Ratenkoeffizienten der Anregung von Argon auf die beiden metastabilen Zustände $1s_5$ und $1s_3$ sowie die beiden Resonanz-angeregten Zustände $1s_4$ und $1s_2$ zu bestimmen. Dabei wurde die Absorption einer Entladung zwischen zwei Elektroden mit Hilfe eines einstellbaren Dioden-Lasers untersucht. Der gesamte Versuchsaufbau

ist in Bild 12 zu erkennen. Dabei bestimmt sich aus

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} + w_e \frac{\partial n_e}{\partial z} = k_f n_{Ar} n_e \quad (4.5)$$

die Zeit und Orts-Abhängigkeit der Elektronendichte, wobei z den Abstand von der Kathode, N die Dichte der Argon-Atome, w_e die Elektronendriftgeschwindigkeit und k_f den Ratenkoeffizient der Ionisation angeben. Aus dieser Gleichung bestimmen sich die Ratenkoeffizienten k_M und k_R für die metastabilen

$$\frac{\partial n_M}{\partial t} = k_M n_e n_{Ar} + D \frac{\partial^2 n_M}{\partial z^2} - (k_1 n_{Ar} + k_2 n_{Ar}^2) n_M \quad (4.6)$$

sowie für die Resonanz-angeregten Zustände

$$\frac{\partial n_R}{\partial t} = k_R n_e n_{Ar} - \mu_I R, \quad (4.7)$$

wobei K_1 und K_2 die Raten für die Rückreaktion der metastabilen Zustände angeben, D den Diffusionskoeffizient für metastabile Zustände und μ_I die mit einer Genauigkeit von $\pm 5\%$ bestimmte Übergangswahrscheinlichkeit zum Grundzustand für die Resonanz-angeregten Zustände. Das größte Problem bei der Messung stellt dabei der Effekt dar, dass bei einer Gasdichte von $1 \cdot 10^{16} - 3 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ die 1s-Zustände mit den neutralen Atomen interagieren. Bei geringeren Dichten tritt der Verlust hauptsächlich durch Diffusion und bei höheren Dichten durch Drei-Körper-Kollisionen auf. Generell sind die Gasdichten der metastabilen Zustände größer als die der Resonanz-angeregten Zustände. Ein weiteres Problem in dem Experiment stellt die Verunreinigung mit Stickstoff und Sauerstoff dar, die schon bei einem Anteil von 10 ppm einen Einfluss in der Größe der Interaktion mit den neutralen Argon-Atomen haben. Insgesamt kommen Tachibana et al. zu einer möglichen Unsicherheit von $\pm 25\%$ bzw. $\pm 30\%$ für die Ratenkoeffizienten der metastabilen respektive Resonanz-angeregten Zustände. Diese Werte enthalten des Weiteren die Unsicherheiten aufgrund von geometrischen Faktoren ($\pm 10\%$) und der Messfehler der gemes-

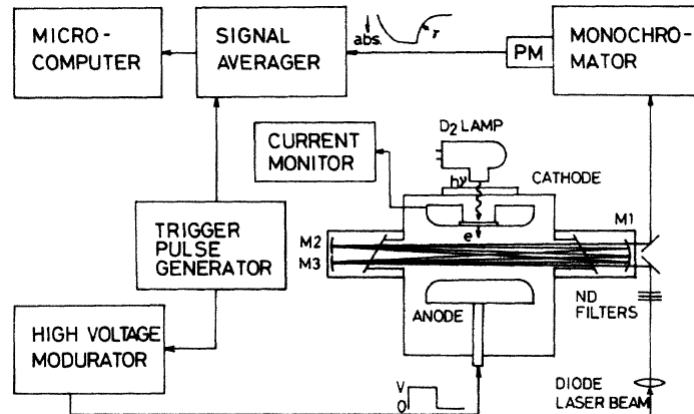


Bild 12: Experimentalaufbau von Tachibana et al. [46]

senen Spannungen sowie der Gasdichte (beides $\pm 5\%$). Im Endeffekt ist die Übereinstimmung der gemessenen Ratenkoeffizienten allerdings im Vergleich mit anderen Autoren wie Burgmanns and Smeets [13] sowie Bozin et al. [11] recht gut, auch wenn diese in ihren Experimenten die Koeffizienten im Gegensatz zu Tachibana et al. indirekt bestimmt haben.

4.9 Straub et al. (1995)

Straub et al. bestimmen in ihrem Experiment [45] die Wirkungsquerschnitte der Stoßionisation von Argon für die 1. bis 4. Stufe der Ionisation. Auch die totalen Wirkungsquerschnitte wurden aus der gewichteten Summe $\sigma_T = \sum_{j=1}^4 (j \cdot \sigma_j)$ bestimmt. Dabei wurden die Wirkungsquerschnitte für eine Energie von 15,76 – 1000 eV untersucht. Der Experimentalaufbau besteht aus einem gepulsten Elektronenstrahl innerhalb einer mit Argon mit einem Druck von $3 \cdot 10^{-6}$ Pa gefüllten Kammer. Der Druck wird mit Hilfe eines Plattenfedermanometers gemessen, die Genauigkeit der Druckmessung beträgt $\pm 2,5\%$ aufgrund von Messfehlern und $\pm 1\%$ aufgrund der Kalibration. Die Elektronen passieren eine Interaktions-Region zwischen zwei geerdeten Kupferplatten, welche zur Konzentration des Strahls dienen und werden in einem in Faraday-Detektor aufgefangen. Hinter jedem Elektronenpuls wird ein elektrisches Feld erzeugt, durch welches die erzeugten Ionen abgelenkt werden und auf eine Öffnung in der Bodenplatten treffen. In der Öffnung befindet sich ein Ionendetektor, welcher Zeit und Ort des Auftreffens der Ionen misst. Die Ungenauigkeit der Detektoren beträgt dabei $\pm 0,5\%$. Aus den gemessenen Werten bestimmt sich der Wirkungsquerschnitt

$$\sigma_i = \frac{N_i^+}{N_e n \lambda}, \quad (4.8)$$

bei dem N_i^+ die Anzahl Ionen angibt, die durch eine Anzahl N_e an Elektronen erzeugt werden, die die charakteristischen freie Weglänge λ in einem Gas der Dichte n zurücklegen. Insgesamt wird die relative Ungenauigkeit der bestimmten Wirkungsquerschnitte mit $\pm 2\%$ angegeben, die absolute Ungenauigkeit bei einer Energie von 200 eV mit $\pm 3\%$ sowie für alle anderen Energieniveaus mit $\pm 3,5\%$. Straub et al. kommen zu dem Ergebnis, dass ihre Messungen sehr exakte Daten liefern, die, wie in Bild 10 deutlich wird, über einen großen Bereich insbesondere mit den Ergebnissen von Wetzell et al. übereinstimmen. Die von ihnen ermittelten Experimentaldaten sind die aktuellsten gemessenen Wirkungsquerschnitte, die im Rahmen der vorliegenden Arbeit betrachtet wurden.

4.10 Bewertung der Ergebnisse aus den Experimenten

Wie bereits in den vorherigen Abschnitten festgestellt und auch in Bild 10 zu erkennen, zeigen die in den Experimenten gemessenen Ergebnisse für die Wirkungsquerschnitte die Tendenz, im Laufe der Jahre geringer zu werden. Dies ist eindeutig auf eine Verbesserung in der Qualität der experimentellen Verfahren zurückzuführen. Es lässt sich daher generell feststellen, dass die Ergebnisse der jüngeren Experimente genauer sind, was sich auch an einer größeren Übereinstimmung der Experimentaldaten untereinander feststellen lässt. Daher sollten die Wirkungsquerschnitte der älteren Experimente nicht mehr verwendet werden. Die im Rahmen dieser Arbeit betrachteten

experimentell gemessenen Wirkungsquerschnitte, welche am aktuellsten und bei Betrachtung der Ungenauigkeiten der Verfahren die genauesten Ergebnisse liefern, sind eindeutig die Daten von Schram et al. [41], Wetzal et al. [53] sowie Straub et al. [45]. Modelle, welche sich auf diese experimentell bestimmten Wirkungsquerschnitte beziehen, sind also zumindest für den Vorgang der direkten Stoßionisation am genauesten. Zu den experimentell bestimmten Ratenkoeffizienten lässt sich generell sagen, dass durch die komplexen Messverfahren die Genauigkeit relativ gering ist, aber zumindest die Größenordnung der Ratenkoeffizienten deutlich wird. Um die Qualität der Modelle auf die Experimente zurückzuführen, ist also unter anderem auf die Aktualität der für die Modelle verwendeten Wirkungsquerschnitte zu achten. Auch als Vergleich für die von Lotz [29] und Drawin [16] berechneten Wirkungsquerschnitte bieten die Experimentaldaten gute Möglichkeiten. Dabei lässt sich beobachten, dass auch in neueren Modellen eher veraltete Wirkungsquerschnitte verwendet werden, insbesondere bei dem Modell von Annaloro [2]. Es wird aber nicht deutlich, aus welchem Grund die Autoren diese Wirkungsquerschnitte verwendeten. Es scheint als wären ihnen neuere Experimentaldaten nicht bekannt, da keinerlei Vergleiche zwischen den benutzten Wirkungsquerschnitten und aktuellen Experimentaldaten gezogen wird.

5 Übersicht über Simulationen mit den verschiedenen Modellen

Um die Qualität der verschiedenen Modelle weitergehend zu unterscheiden, ist es von Interesse, die Ergebnisse von Simulationen, in welchen mit diesen Modellen gerechnet wird, zu untersuchen. Daraus lässt sich erkennen, ob sich durch verschiedene Modelle Änderungen in den Simulationen ergeben. Auch kann eine Bewertung der Ergebnisse in den einzelnen Arbeiten einen Aufschluss über die Qualität der Modelle geben, wenn dort eine Validierung mit Hilfe von Experimentaldaten durchgeführt wird. Dabei wurden in der vorliegenden Arbeit nur Simulationen betrachtet, bei welchen eine genauere Betrachtung des verwendeten chemischen Modells sowie der zugehörigen Ratenkoeffizienten vorgenommen wird.

5.1 Low-power argon arcjet wind tunnel

Lichtbogen-geheizte Argon-Windkanäle werden üblicherweise eingesetzt, um Plasmen für die Simulation atmosphärischer Strömungen zu erzeugen. Dabei stellt Argon, da es ein ein-atomiges Gas ist, eine Vereinfachung zur Simulation dar. Um die Qualität der Simulation eines solchen Kanals zu beurteilen und mit realen Messdaten zu vergleichen, wurde eine einfache Umströmung eines stumpfen Körpers experimentell und numerisch untersucht [26]. Der betrachtete Windkanal besteht dabei aus Kathode, Anode und einer Überschalldüse, die mit einer Vakuum-Kammer verbunden ist. Für die Simulation der Nichtgleichgewichtsschemie wurde das Modell von Owano et al. [32] verwendet, welches eine Überarbeitung des Modells von Hoffert und Lien [24] darstellt. Für eine Elektronentemperatur unter 3000 K wurde der Ansatz von Funahashi und Takeda [20] verwendet, welcher aussagt, dass $k_b(T_e) = 5,6 \cdot 10^{-21} T_e^{-9/2}$ gilt. Dieser Zusammenhang wird auch von Hinnov und Hirschberg [23] für Wasserstoff-ähnliche dichte Plasmen mit einer Elektronentemperatur unter 4000 K angegeben. Der Ionisationsratenkoeffizient wurde über die Gleichgewichtskonstante berechnet.

Im Rahmen der Simulation wurde insbesondere das chemische Nichtgleichgewicht genauer betrachtet. Dabei wurde erkannt, dass die Strömung in der Düse und im Freistrahler innerhalb der Vakuum-Kammer sich im chemisch und thermodynamisch eingefrorenen Zustand befindet, da eine sehr niedrige Damköhler-Zahl ($Da = 4,0 \cdot 10^{-3} - 7,3 \cdot 10^{-2}$) vorliegt. Es wurde festgestellt, dass der höchste Ionisationsgrad von $\alpha = 32\%$ an der Kathode vorliegt und innerhalb der Düse aufgrund des eingefrorenen Nichtgleichgewichts konstant bei $\alpha = 10\%$ liegt. Ebenso wurde festgestellt, dass am Düsenende ein Ionisationsgrad von $\alpha = 4\%$ bei einer Schwerteilchen- sowie Elektronentemperatur von 620 K respektive 3250 K vorliegt. Im Endergebnis wurde festgestellt, dass die im Rahmen einer weiteren Arbeit experimentell ermittelten Ergebnisse sehr genau mit denen aus der Simulation übereinstimmen, insbesondere im Bezug auf das chemische Nichtgleichgewicht. Aus diesem Grund wurde das entworfene Chemie-Modell für validiert erklärt. Da das verwendete Modell für die Ratenkoeffizienten dem von Hoffert und Lien sehr ähnelt, kann so ein Rückschluss auf die Qualität eben dieses Modells gezogen werden.

5.2 Expanding Transsonic Argon Plasma

Peerenboom et al. untersuchen in ihrer Arbeit [34] die Eigenschaften eines von einer Entladung ausgehenden expandierenden Argon-Plasmas mit einer sehr einfachen Geometrie, um ein neues, für die Simulation verwendetes Modell zu validieren. Dieses wurde dabei mit den Ergebnissen aus vorhergehenden Modellen verglichen. Diese einfacheren Modelle beschreiben dabei jeweils einzeln die beiden Abschnitte der in Bild 13 zu erkennenden rotationssymmetrischen Geometrie. Innerhalb des kleineren Zylinders findet dabei die Entladung statt. Für die Simulation wurde ebenfalls davon ausgegangen, dass sich das Plasma im lokalen thermodynamischen Gleichgewicht (local thermodynamical equilibrium - LTE) befindet. Um den Vorgang der Ionisation des Plasmas zu beschreiben, wurde für die Stoßionisation ein Arrhenius-Fit für das Modell von Lotz [28], wie auch ein Modell zur Beschreibung der schrittweisen Ionisation über angeregte Zustände mit Hilfe eines weiteren, effektiven Ratenkoeffizienten verwendet. Aus diesem Grund wurden die angeregten Atome nur zur Beschreibung der Ionisation berücksichtigt und gehen nicht in die sonstigen Reaktionen ein. Auch Mehrfach-Ionisation wurde nicht berücksichtigt. Dieses sehr einfache chemische Modell wurde im Hinblick auf das beabsichtigte Ergebnis der Simulation verwendet. Es wird allerdings darauf hingewiesen, dass Simulationen bei der Berücksichtigung komplexerer chemische Reaktionen dazu neigen, nicht zu konvergieren. Weiterhin wurde der Einfluss einer Variation der Drücke in Einlauf und Expansionskammer untersucht. Das Ergebnis der Validierung ergab, dass die mit dem neuen Modell durchgeführten Simulationen zu den selben Ergebnissen gelangen wie die vorherigen, einzelne Abschnitte betrachtenden Modelle. Da diese bereits validiert sind, kann die Aussage getroffen werden, dass die Simulation trotz des sehr einfachen chemischen Modells für die Ionisation korrekte Ergebnisse liefert. Somit kann das für die Simulation verwendete chemische Modell als korrekt angenommen werden. Dabei ist zu beachten, dass nicht nur die Ionisation vom Grundzustand, sondern auch die aus angeregten Zuständen berücksichtigt wurde, was dafür spricht, dass nicht nur allein die Ionisation vom Grundzustand zu berücksichtigen ist, um ein Argon-Plasma zu beschreiben.

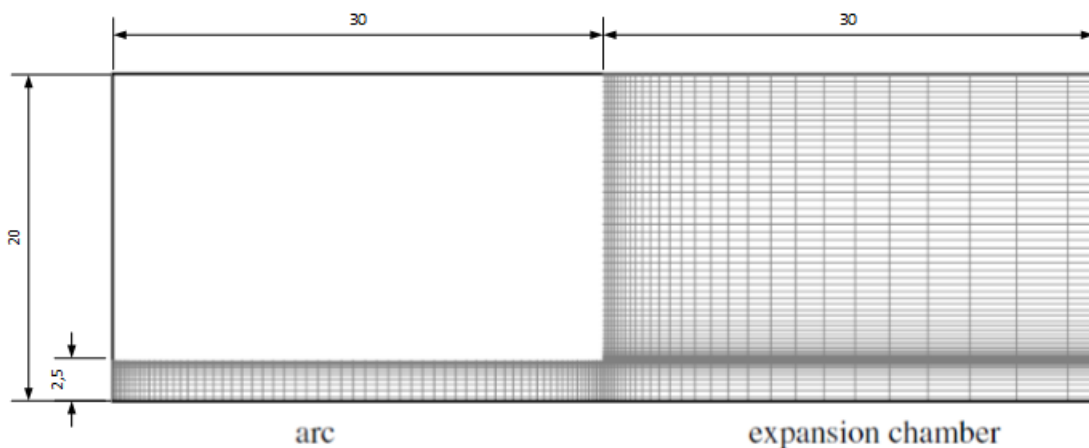


Bild 13: Geometrie und Gitter der Argon-Simulation (Quelle: Peerenboom et al.) [34]

5.3 Gas Tungsten Arc Welding (GTAW)

Um die Eigenschaften eines beim Schutzgas-Schweißen entstehenden Plasmas zu bestimmen, wurden 2 Simulationen einer Entladung in Argon unter atmosphärischem Druck durchgeführt [6]. Eine der Simulationen wurde dabei unter der Annahme lokalen thermodynamischen Gleichgewichts (LTE) durchgeführt, die andere unter der Annahme von unterschiedlichen Temperaturen für Elektronen und Schwerteilchen. Es wurde ebenfalls von chemischem Nichtgleichgewicht ausgegangen, weshalb ein sehr genaues Modell mit mehreren Gleichungen zur Beschreibung der chemischen Reaktionen im Plasma verwendet wurde. Es wurden neben der Stoßionisation und der Rekombination die Ionisation von angeregten Zuständen sowie Schwerteilchen-Stöße berücksichtigt. Zur Berechnung wurde dabei der kommerzielle Code CFD-ACE+ eingesetzt [18]. Dabei wurde für die Stoßionisation das Modell von Lotz [28] verwendet, für die Rekombination das Modell von Hoffert und Lien [24]. Die berechneten Daten wurden dabei mit experimentell bestimmten Werten verglichen. Die für den Vergleich interessanten Eigenschaften dieser Simulation bestehen unter anderem aus der Simplizität der Geometrie (siehe Bild 14) und der für Schweißsimulationen relativ genauen Betrachtung des chemischen Modells. Insgesamt wurde ein großer Unterschied zwischen den Simulationen im LTE und denen im thermodynamischen Nichtgleichgewicht festgestellt. Auch war die Übereinstimmung der LTE-Daten mit denen aus den Experimenten sehr gering, mit den Daten aus der Nichtgleichgewichts-Simulation jedoch groß.

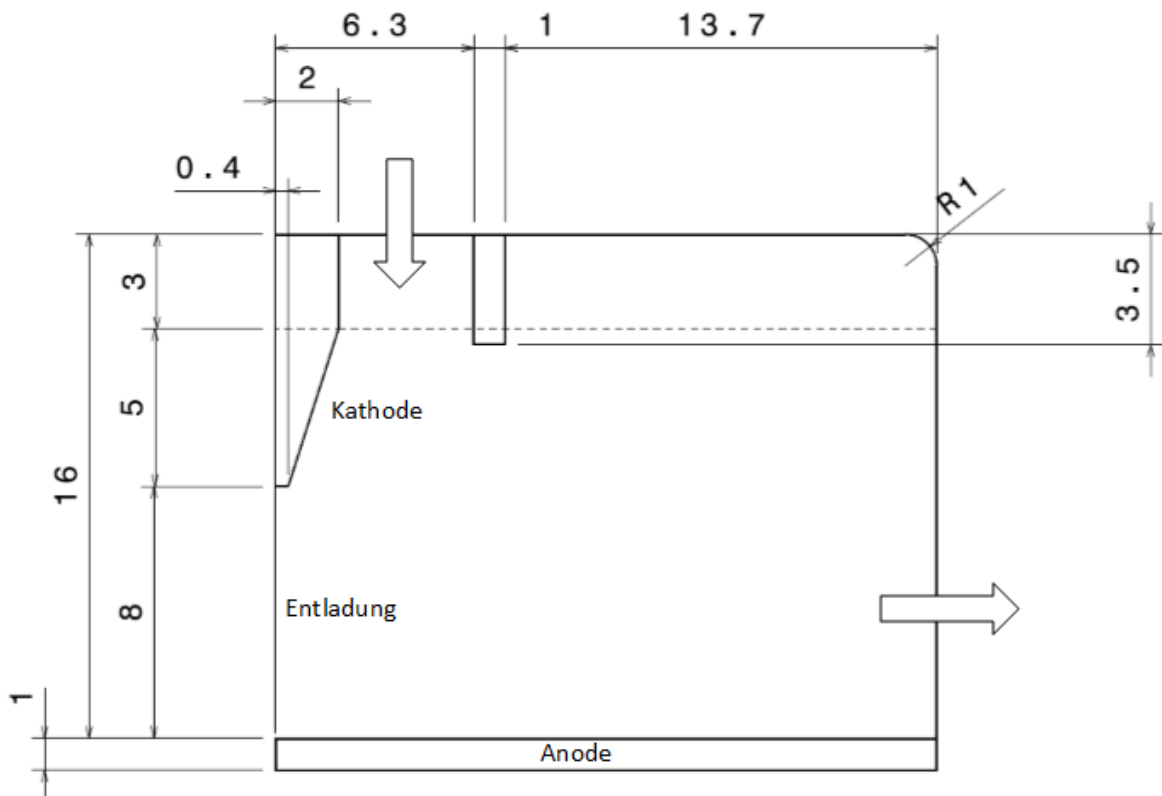


Bild 14: Geometrie der GTAW-Simulation

5.4 RD5-Plasmaquelle

Um das am IRS entwickelte Simulationsprogramm SAMSA (Self-Applied-Field-Thruster-Algorithm) zu validieren, wurden Simulationen verschiedener Experimente, unter anderem des am IRS entwickelten Plasmabeschleunigers RD5, durchgeführt. Die Geometrie sowie beispielhafte Simulationsergebnisse für Elektronentemperatur T_e und Ionisationsgrad α lassen sich in Bild 15 erkennen. Da die Ergebnisse, welche mit dem Modell von Lotz und der ursprünglich in SAMSA implementierten Gleichgewichtskonstanten eine zu niedrige Ionisation im Vergleich mit den Experimentaldaten aufwiesen, wurden zum Vergleich andere Modelle für die Stoßionisation implementiert. In den Simulationen wurden mehrfach die Modelle ausgetauscht, um einen Einfluss der unterschiedlichen Modelle auf die Simulationsergebnisse zu untersuchen. Dabei wurden auch die Gleichungen zur Bestimmung der Gleichgewichtskonstante variiert, hierbei wurde ein größerer Einfluss der Gleichgewichtskonstante, je nach verwendetem Modell, festgestellt. Die ge-

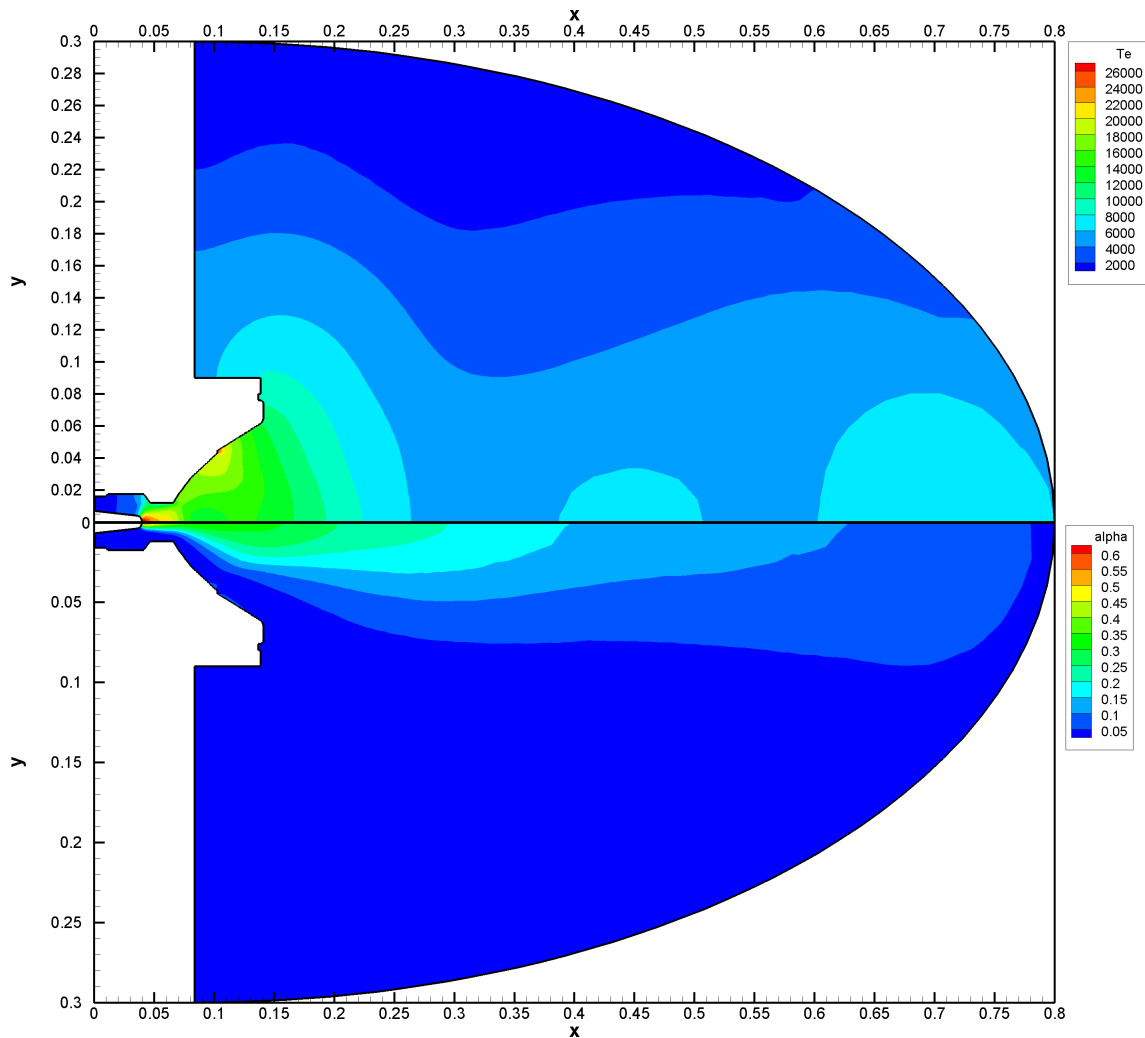


Bild 15: Ergebnisse der Simulation des RD5-Plasmabeschleunigers mit Modell und Gleichgewichtskonstante von Hoffert und Lien, Elektronentemperatur T_e und Ionisationsgrad α über Koordinaten x und y

ringen Unterschiede sind deutlich in Bild 16 zu erkennen. Auf diesen sind die axialen Verläufe der Elektronentemperatur T_e , der Elektronendichte n_e , der statische Druck p_s , der Machzahl Ma sowie der Ionisationsgrad α zu erkennen. Dabei wurden sowohl Gleichgewichtskonstante wie auch chemisches Modell variiert. Dabei steht in der Legende HL an der ersten Stelle für die aus der Gleichung 3.3 von Hoffert und Lien bestimmte Gleichgewichtskonstante, SAMSA für die ursprüngliche im Code implementierte Gleichgewichtskonstante. An der zweiten Stelle beschreibt HL das chemische Modell von Hoffert und Lien, sowie Simpson und Lotz die entsprechenden Modelle. Es wurde dabei festgestellt, dass eine Variation der Modelle keine so großen Auswirkungen auf die Simulation hatte, wie erwartet. In Bild 17 lassen sich Simulationsergebnisse für Elektronentemperatur T_e , Reaktions- und Rekombinationsratenkoeffizient k_f und k_b sowie Ionisationsgrad α , Axialgeschwindigkeit v_z sowie Damköhler-Zahl Da erkennen entlang der Symmetrie-Achse erkennen. Es lässt sich erkennen, dass die Damköhler-Zahl über den Großteil des Verlaufs der Strömung deutlich größer als 1 ist, begründet auf den im Vergleich zur Strömungsgeschwindigkeit immer noch hohen Reaktions- und Rekombinationsratenkoeffizienten. Daher wird deutlich, dass sich ein Großteil der Strömung entlang der Symmetrie-Achse im chemischen Gleichgewicht befindet. Dies kann den geringen Einfluss der unterschiedlichen Modelle für Ratenkoeffizienten auf die Simulation erklären. Ebenso ist in Bild 16 zu erkennen, dass nur das Modell von Simpson in Kombination mit der Gleichgewichtskonstante von Hoffert und Lien einen deutlichen Unterschied der Simulationsergebnisse aufweist. Die aus der Simulation gewonnenen Daten konnten außerdem für einen kurzen Abschnitt mit bereits bekannten Experimentaldaten validiert werden. Besonders erstaunlich ist dabei, dass keine der Simula-

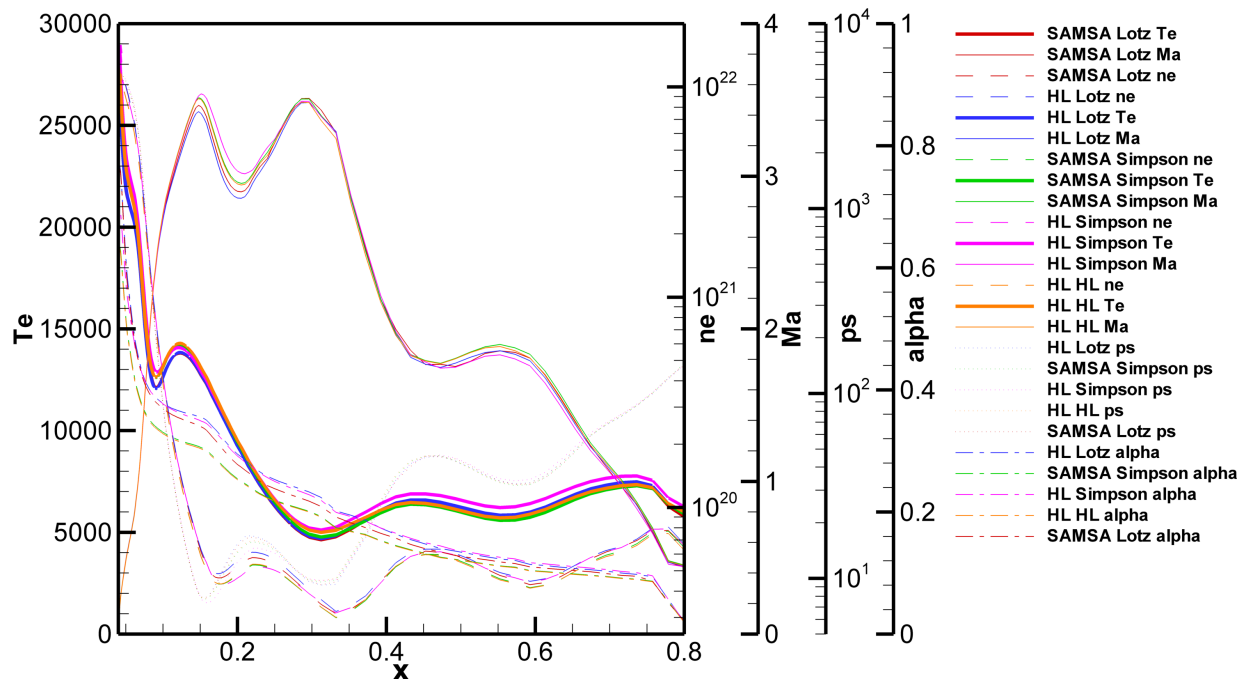


Bild 16: Ergebnisse der Simulation des RD5-Plasmabeschleunigers mit verschiedenen Modellen für die Ratenkoeffizienten, Elektronentemperatur T_e , Elektronendichte n_e und Ionisationsgrad α sowie Statischem Druck p_s

tionen den am Plasmabeschleuniger experimentell bestimmten Ergebnissen entspricht, welche in Bild 18 zu dargestellt sind. In diesem sind die zwei Ergebnisse der Simulation, welche die größten Unterschiede aufweisen, im Vergleich zu Experimentaldaten dargestellt. Dabei zeigt die Elektronendichte eine qualitative Übereinstimmung, die Übereinstimmung mit der experimentell bestimmten Machzahl ist allerdings groß. Dabei ist anzumerken, dass die Machzahl dabei aus der Beziehung

$$\frac{p_{tot}}{p_s} = \frac{\kappa - 1}{2} \cdot Ma^2 \left[\frac{(\kappa + 1) Ma^2}{4\kappa Ma^2 - 2(\kappa - 1)} \right]^{\frac{1}{\kappa - 1}} \quad (5.1)$$

zwischen dem mit einer Pitot-Sonde bestimmten Druck p_{tot} und dem der Simulation entstammenden statischen Druck $p_s(x)$ iterativ mit $\kappa = 1,67$ berechnet wurde. Dabei kann davon ausgegangen werden, dass der Isentropenexponent des ionisierten Gases nicht um mehr als 5 % abweicht [3]. Dies geschah aus dem Grund, dass die Machzahl ursprünglich mit konstantem statischen Druck $p_s = const. = 30 \text{ Pa}$ berechnet wurde, welcher dem Tankdruck des Versuchs entspricht. Dies stellt eine deutliche Abweichung von dem in Bild 16 darstellten Verlauf des Druckes dar. Besonders groß ist der Unterschied bei der Elektronentemperatur, hierbei zeigen Experiment und Simulation weder qualitative noch quantitative Übereinstimmung. Dies könnte auf einen Fehler bei der Messung der Elektronentemperatur mit elektrostatischen Sonden auf der Basis von Wolfram-Drähten zurückzuführen sein, der durch eine hohe Sondentemperatur be-

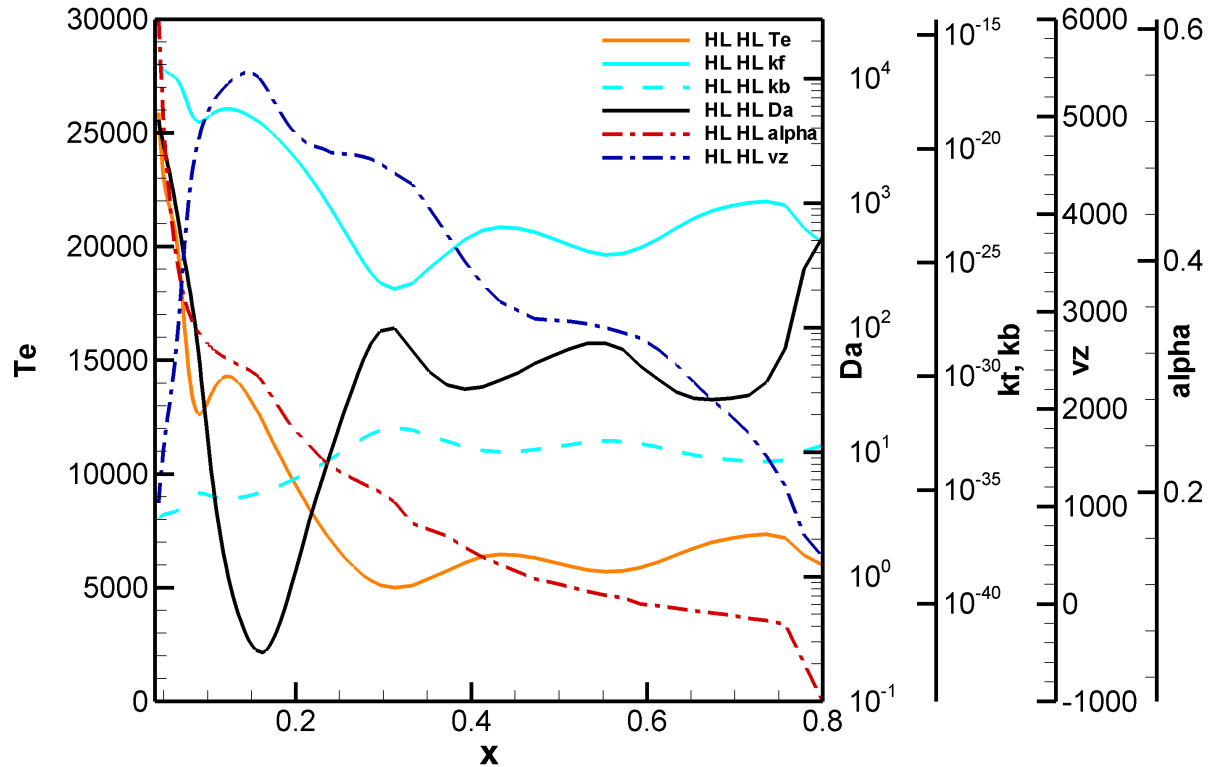


Bild 17: Ergebnisse der Simulation des RD5-Plasmabeschleunigers mit verschiedenen Modellen sowie Experimentaldaten für Elektronentemperatur Te [K], Damköhlerzahl Da , Ratenkoeffizienten kf und kb , Ionisationsgrad α und Axialgeschwindigkeit vz

gründet ist. Da die Sondentemperatur allerdings nicht bekannt ist, kann der Unterschied nicht auf Fehler in der Messung oder das verwendete Chemie-Modell zurückgeführt werden. Generell kann aber auch auf weitere Fehlerquellen in dem Code SAMSA geschlossen werden, die nicht nur im Chemie-Modell zu suchen sind.

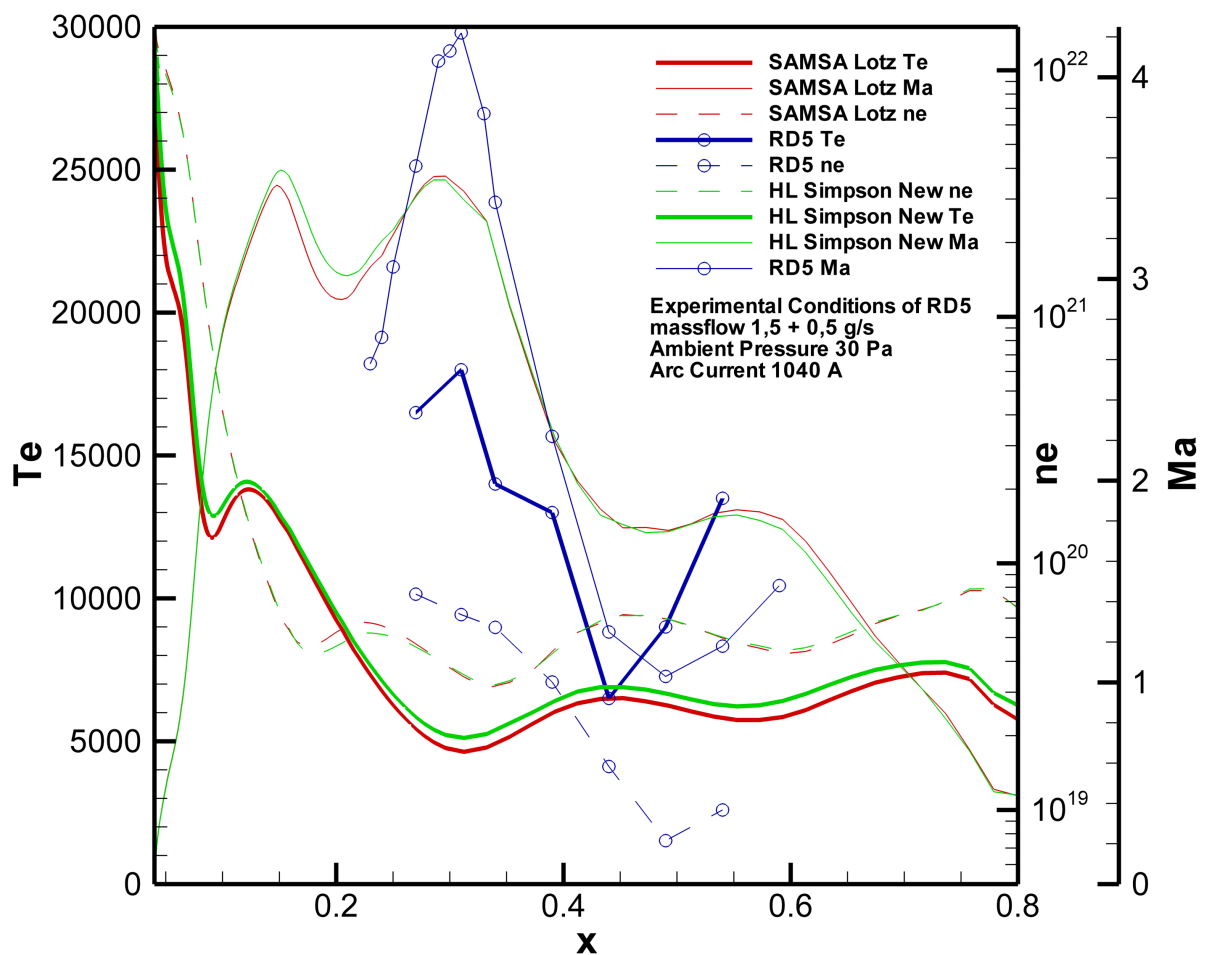


Bild 18: Ergebnisse der Simulation des RD5-Plasmabeschleunigers mit verschiedenen Modellen sowie Experimentaldaten für die Elektronentemperatur T_e , Elektronendichte n_e , Mach-Zahl Ma

6 Vergleich und Bewertung der Modelle

In den vorherigen Kapiteln wurden verschiedene Modelle für Stoßionisation und Rekombination untersucht, sowie deren Grundlagen erläutert. Es wurden ebenfalls einige Beispiele für die Anwendung dieser Modelle in numerischen Simulationen gezeigt, anhand derer sich die Qualität dieser beurteilen lässt. Dabei lässt sich feststellen, dass in mehreren Modellen nicht nur die reine Stoßionisation vom Grundzustand aus betrachtet wurde, sondern ebenfalls die von angeregten Zuständen ausgehende Ionisation. Diese wurde dabei je nach Modell unterschiedlich detailliert betrachtet. Aus diesen Ergebnissen lässt sich schlussfolgern, dass die Ionisation über angeregte Zustände in den Modellen nicht zu vernachlässigen ist. Modelle, welche nur die Ionisation vom Grundzustand aus betrachten, sollten also entweder um die Ionisation aus angeregten Zuständen erweitert oder nicht benutzt werden. Gerade der Einfluss dieser verschiedenen Prozesse lässt einen Rückschluss darauf zu, warum sich die verschiedenen Modelle um mehrere Größenordnungen unterscheiden. Die auftretenden Prozesse sind allerdings nicht die einzigen Kriterien, nach denen sich die Modelle vergleichen lassen.

6.1 Definition der Vergleichskriterien

Da die verschiedenen Modelle jeweils für unterschiedliche Bereiche konzipiert wurden, ist es schwierig, sie anhand eines einzigen Kriteriums zu bewerten. Es muss daher erst einmal bestimmt werden, auf welche Art sich die Modelle vergleichen lassen. Dafür lassen sich 6 Kriterien festlegen, die im Rahmen dieser Arbeit betrachtet werden:

- Temperaturbereich, in dem das Modell gültig ist
- Berücksichtigte Ionisations-Prozesse
- Alter des Modells
- Qualität der zugrundeliegenden experimentellen bzw. berechneten Wirkungsquerschnitte
- Qualität und Quantität der zum Vergleich herangezogenen Modelle und Experimente
- Bewertung aus Simulationen, in denen das Modell verwendet wurde

Insbesondere die Qualität der zugrundeliegenden Wirkungsquerschnitte hat einen hohen Einfluss auf die Modelle, da die Wirkungsquerschnitte direkt über die Integration in den Ratenkoeffizienten eingehen. Daher spielt auch eine Rolle, ob nur Wirkungsquerschnitte für die Stoßionisation, oder auch die Wirkungsquerschnitte für weitere Prozesse berücksichtigt werden. Die Zusammenhänge der verschiedenen Modelle mit den Wirkungsquerschnitten lassen sich Tabelle 1 sowie Bild A.11 im Anhang entnehmen. Der Temperaturbereich, in dem das Modell gültig ist, hat nur eine geringe Auswirkung auf die Vergleichbarkeit, wie im Anfang von Kapitel 3 bereits erläutert. Er gibt aber insbesondere, wenn nur Approximationen durch Arrhenius-Funktionen angegeben sind, einen Einblick, für welchen Bereich approximiert wurde. Dies ist besonders wichtig, wenn die Modelle außerhalb des gültigen Temperaturbereichs verwendet werden sollen, da sonst die

selben Probleme wie bei der Gleichgewichtskonstante des SAMSA-Codes auftreten könnten, wie in Kapitel 2.3 erläutert. Die Bewertungen der Modelle, welche in Simulationen angegeben werden, können für diese Arbeit nur verwendet werden, wenn der Einfluss der Ratenkoeffizienten auf die Simulation detailliert betrachtet wird. Daher konnten mehrere Simulationen, welche ebenfalls Plasmen im chemischen Nichtgleichgewicht untersuchten, nicht einbezogen werden. Besonderes Interesse bietet ebenfalls noch der Vergleich mit experimentell bestimmten Ratenkoeffizienten und anderen Modellen. Dabei ist zu beachten, dass nur in wenigen Arbeiten die erhaltenen Ergebnisse mit anderen Arbeiten im Detail verglichen werden beziehungsweise nur in wenigen Fällen auf die Resultate dieser Vergleiche und die Unterschiede in den Ergebnissen eingegangen wird.

6.2 Zusammenfassung und vergleichende Bewertung der Modelle

Da sich die in dieser Arbeit betrachteten Modelle über einen erheblichen Zeitraum erstrecken und das Alter auch eine gewisse Orientierung für die Modelle bietet, ist es sinnvoll, die Modelle chronologisch zu betrachten und zu vergleichen.

Dabei beginnt der Ablauf mit dem in Kapitel 3.1 vorgestellten Modell von Thomson aus dem Jahr 1912, welches gerade im Vergleich mit den jüngeren Modellen sehr hohe Werte liefert. Dies ist eindeutig auf den zur damaligen Zeit noch geringen Kenntnisstand über die Elektronenstoßionisation zurückzuführen. Auch die experimentellen Daten, welche sich später auf Thomson beziehen, liefern eindeutig zu hohe Werte für die Wirkungsquerschnitte. Aus diesem Grund ist das Modell von Thomson für numerische Simulationen, bei denen die genaue Kenntnis der Zusammensetzung des Plasmas eine Rolle spielt, eindeutig nicht mehr verwendbar. Das 50 Jahre später entwickelte Modell von Drawin (Kapitel 3.2) zur Berechnung von Wirkungsquerschnitten baut auf dem Modell von Thomson auf. Dabei wurde versucht, mit Hilfe einer korrigierten Formel die Ergebnisse der berechneten Wirkungsquerschnitte zu verbessern. Es wurde aber eine empirische Anpassung der Formel entwickelt, die im Vergleich mit Experimentaldaten deutlich bessere Ergebnisse liefert, welche sich in einem ähnlichen Bereich wie verwandte Modelle für Wirkungsquerschnitte bewegen. Dies ist insofern interessant, da die so bestimmten Wirkungsquerschnitte Grundlage für das Modell von Annaloro bilden.

Um neben den Wirkungsquerschnitten ebenfalls die Ratenkoeffizienten exakt bestimmen zu können, wurde 1967 das Modell von Lotz (siehe Kapitel 3.4) entwickelt, welches über einen semi-empirischen Ansatz versucht, die Stoßionisation genauer zu beschreiben. Dabei wurden die mit dem Modell von Drawin berechneten Wirkungsquerschnitte für die Stoßionisation mit Hilfe von experimentell bestimmten Daten angepasst. Das Ergebnis wurde als Modell für Wirkungsquerschnitte wie auch für Ratenkoeffizienten verwendet. Das Modell wurde sehr lange für die Berechnung von Plasmen verwendet und hat sich durchgesetzt, allerdings werden Prozesse wie die von angeregten Zuständen ausgehende Ionisation vernachlässigt.

Das in Kapitel 3.3 betrachtete Modell von Hoffert und Lien wiederum wurde analytisch entwickelt, es wurden allerdings aus Experimentaldaten stammende Konstanten verwendet. Es wurden außerdem im Gegensatz zu dem Modell von Lotz die angeregten Zustände und deren Einfluss

Modell	Jahr	Berechnung	Art des Modells	Temperaturbereich	Berücksichtigte Prozesse	Zugrundeliegende Daten	Zum Vergleich herangezogene Daten
Thomson [48]	1912	k_f, σ	Analytisch	nicht angegeben	Stoßionisation	Keine	Keine
Drawin [16, 17]	1961	σ	Analytisch	nicht angegeben	Stoßionisation	Keine	Smith [43], Tate und Smith [47]
Lotz [28, 29]	1967	k_f, σ	Semi-empirisch	nicht angegeben	Stoßionisation	[16, 17, 37]	Drawin
Hoffert und Lien [24]	1967	k_f, k_b	Analytisch	3000 - 20000 K	Stoßionisation, Angeregte Zustände (Vereinfacht)	[35]	keine
Lennon et al. [27]	1988	k_f, σ	Semi-empirisch	nicht angegeben	Stoßionisation	[37, 53]	Lotz
Simpson [42]	1990	k_b	Empirisch	2000 - 16000 K	Stoßionisation, Angeregte Zustände	[12, 46, 53]	Hinnov und Hirschberg [23], Hoffert und Lien
Annaloro et al. [2]	2012	k_f, k_b	Analytisch	2000 - 20000 K	Stoßionisation, Angeregte Zustände	[16]	Nelson et al. [30]

Tabelle 1: Übersicht über die unterschiedlichen Modelle

auf die Ionisation berücksichtigt. Dabei wurde allerdings die Vereinfachung getroffen, dass Atome, welche sich im angeregten Zustand befinden, effektiv ionisiert sind. Dadurch ergeben sich im Verhältnis zu anderen Modellen relativ hohe Ergebnisse, die sich aber durchaus durch den Einfluss der angeregten Zustände rechtfertigen lassen. Dies liegt darin begründet, dass die Ionisation angeregter Zustände eine geringere Energie des Elektrons benötigt und so bereits bei niedrigeren Elektronentemperaturen eine Stoßionisation stattfindet. Das Modell von Hoffert und Lien wurde durch Owano et al. überarbeitet [32], was allerdings im Vergleich mit anderen Modellen keine großen Unterschiede hervorruft. Des Weiteren wurde es bereits oft für die Simulation von Argon-Plasmen verwendet, da es bekannt dafür ist, akkurate Ergebnisse zu liefern sowie numerisch robust zu sein [34].

Das später veröffentlichte Modell von Lennon et al. (siehe Kapitel 3.5) ist ähnlich dem Modell von Lotz eine empirische Anpassung eines Modells an Experimentaldaten, allerdings wurden andere Wirkungsquerschnitte für die Ionisation vom Grundzustand aus verwendet. Die von Lennon et al. berechneten Ratenkoeffizienten befinden sich, wie in Bild 6 zu erkennen, in einer ähnlichen Größenordnung wie die mit dem Modell von Lotz berechneten Ratenkoeffizienten.

In Kapitel 3.6 wird das Modell von Simpson beschrieben, welches eine Verbesserung gegenüber dem Modell von Hoffert und Lien darstellen soll, da bei diesem die Rekombination im Bereich einer niedrigen Elektronentemperatur von unter 10000 K zu hoch sei. Es wurde allerdings nur eine Gleichung für den Rekombinationsratenkoeffizient gegeben, welcher sich bei Hoffert und Lien nach Gleichung 2.5 aus dem Ionisationsratenkoeffizient berechnet. Dabei lässt sich feststellen, dass über den gesamten Temperaturbereich der Rekombinationsratenkoeffizient von Simpson geringer ist. Das Modell von Simpson ist eines der wenigen Modelle, dem aktuelle Daten für Wirkungsquerschnitte zu Grunde liegen. Daher kann, wie am Ende von Kapitel 4 bereits festgestellt, davon ausgegangen werden, dass die Daten deutlich exakter sind. Insbesondere die Ionisation von angeregten Zuständen aus wurde deutlich genauer betrachtet, als in anderen Modellen. Aus diesem Grund kann davon ausgegangen werden, dass das Modell von Simpson gerade in dem Temperaturbereich bis 10000 K, in welchem die angeregten Zustände eine größere Rolle spielen, bessere Ergebnisse liefert, als zum Beispiel das Modell von Lotz. Das Modell von Hoffert und Lien liefert in diesem Bereich deutlich höhere Ergebnisse, da, wie bereits angemerkt, angeregte Zustände als effektiv ionisiert angenommen werden und die Möglichkeit des Übergangs zum Grundzustand vernachlässigt wird.

Das neueste Modell von Annaloro et al., welches in Kapitel 3.7 beschrieben wird, unterscheidet sich von den meisten anderen Modellen für Reaktionskoeffizienten darin, dass es im Verhältnis zu allen anderen Modellen besonders hohe Ergebnisse liefert. Dies mag darauf zurückzuführen sein, dass alle verschiedenen Arten von Ionisation betrachtet werden. Im Widerspruch dazu steht, dass zur Beschreibung der Stoßionisation vom Grundzustand die Wirkungsquerschnitte von Drawin verwendet werden, welche in ihrer Größenordnung nicht über anderen experimentellen und berechneten Wirkungsquerschnitten liegen. Andererseits wurden die Daten und Wahrscheinlichkeiten für die anderen Übergänge analytisch bestimmt, sodass sich dort der Fehler des Modells finden könnte. Des Weiteren wurde das Modell von Annaloro et al. hauptsächlich für Sauerstoff,

Stickstoff und Kohlenstoff entwickelt. Daher kann es durchaus sein, dass es für Argon einen Fehler aufweist. Die geringe Berücksichtigung des Argons lässt sich auch daher erkennen, dass zum Vergleich der Ergebnisse nur sehr wenige andere Modelle herangezogen wurden und auf die Ergebnisse des Vergleichs nicht weiter eingegangen wurde. Daher liegt die Vermutung nahe, dass die Qualität des Argon-Modells von Annaloro et al. nicht besonders hoch ist. Auch sind aufgrund des geringen Alters bisher keine Simulationen mit dem Modell von Annaloro et al. vorhanden, die eine Beurteilung der Qualität erlauben.

Wie schon im vorherigen Abschnitt angemerkt, lassen sich insbesondere beim quantitativen Vergleich der Modelle deutliche Unterschiede feststellen. Auch qualitativ lassen sich bei Betrachtung der Grundlagen Unterschiede erkennen. Dabei ist insbesondere die Qualität und Auswahl der Wirkungsquerschnitte besonders zu berücksichtigen, da sie eindeutig einen Einfluss auf die Qualität des Ergebnisses hat. Auch die Berücksichtigung der angeregten Zustände spielt eine Rolle. Dabei lassen sich die Modelle aussortieren, welche im Vergleich ein eindeutig zu hohes oder zu niedriges Ergebnis liefern.

Im direkten Vergleich liefern die Modelle von Lotz sowie von Lennon et al. eindeutig zu geringe Ergebnisse, da nur die Ionisation vom Grundzustand aus betrachtet wird. Das Modell von Annaloro et al. liefert aus unklaren Gründen Ergebnisse, welche eindeutig zu groß sind, es lässt sich daher ebenfalls ausschließen. Das Modell von Thomson liefert ebenfalls eindeutig zu hohe Reaktionsratenkoeffizienten, hierbei ist der Grund wohl im Alter und dem analytischen Ursprung des Modells zu suchen.

Insgesamt lassen sich bei Betrachtung der in dieser Arbeit vorgestellten Modelle also nur zwei Modelle hervorheben, welche für die numerische Simulation von MPDs innerhalb unseres Anwendungsbereiches geeignet sind. Dies sind die Modelle von Hoffert und Lien [24] sowie von Simpson [42]. Dabei ist das Modell von Simpson vor allem im niedrigeren Temperaturbereich durch die genauere Betrachtung der Ionisation aus angeregten Zuständen deutlich zuverlässiger, nähert sich aber ab 20000 K Elektronentemperatur dem Modell von Lotz an. Das Modell von Hoffert und Lien ist numerisch deutlich robuster. Im Hinblick auf die Beurteilung durch Simulationen, in denen es verwendet wurde, liefert es aber für den in dieser Arbeit betrachteten Anwendungsbereich gute Ergebnisse. Dieses Resultat ist trotz der im Modell vorhandenen Vernachlässigungen gegeben. Auch die Überarbeitung durch Owano et al. [32] ist daher geeignet, für die Simulation verwendet zu werden.

7 Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurde deutlich, dass die zur Betrachtung der Ionisationsprozesse in Argon-Plasmen verwendeten Modelle für Reaktionsratenkoeffizienten im Temperaturbereich zwischen 2000 K und 30000 K deutliche Unterschiede im Bereich mehrerer Größenordnungen aufweisen. Dieses Ergebnis wurde bei der Untersuchung der verschiedenen Modellen für die Stoßionisation anhand der Vergleiche von theoretischen sowie experimentellen Grundlagen erreicht. Des Weiteren wurden ebenfalls Bewertungen aus vorhandenen numerischen Simulationen berücksichtigt, insofern bei diesen detailliert auf das verwendete chemische Modell eingegangen wurde.

Im Verlauf der Untersuchung der verschiedenen Modelle für Reaktionsratenkoeffizienten wurde dabei festgestellt, dass neben der Stoßionisation vom Grundzustand weitere Ionisationsprozesse einen deutlichen Einfluss auf die Zusammensetzung des Plasmas haben. Insbesondere die Stoßionisation von Atomen, welche sich in angeregten Zuständen befinden, wurde in vielen Modellen vernachlässigt. Auch wenn in dieser Arbeit ein Großteil der Unterschiede zwischen den Modellen anhand dieser Vernachlässigung verdeutlicht wird, existieren noch weitere Prozesse, welche zur genaueren Beschreibung der Ionisation berücksichtigt werden können. So wurden in dieser Arbeit höhere Ionisationsstufen vernachlässigt, ebenso wurde nicht weiter auf den Einfluss der Schwerteilchen-Ionisation eingegangen. Zu den weiteren noch zu berücksichtigenden Prozessen zählen ebenfalls Strahlungsionisation und Rekombination, welche allerdings in anderen Temperatur- und Dichtebereichen (8000K, 16000K, 32000K bei einer Elektronendichte n_e von unter 10^{10} , 10^{11} respektive 10^{12}cm^{-3} [7, 24]) als den betrachteten einen Einfluss auf die Ionisation ausüben. Ebenfalls wird in vielen Simulationen davon ausgegangen, dass diese Effekte nicht zur berücksichtigen sind.

Auch die Qualität der den Modellen für Reaktionsratenkoeffizienten zugrundeliegenden Wirkungsquerschnitte wurde betrachtet, um einen Aufschluss über die Qualität der Modelle zu erhalten. Dabei ist zu beachten, dass trotz neuer Experimentaldaten in den meisten aktuellen Modellen hauptsächlich ältere Datensätze an Wirkungsquerschnitten verwendet werden. Es würde sich anbieten, ein Modell auf der Grundlage neuer Wirkungsquerschnitte zu bilden.

Weiterhin wurde in dieser Arbeit festgestellt, dass eine reine Betrachtung der Reaktionsratenkoeffizienten für die Anwendung in Simulationen nicht zielführend ist, es muss ebenso die Genauigkeit der zugehörigen Gleichgewichtskonstanten berücksichtigt werden. Während die Gleichgewichtskonstante sich in der Theorie für Plasmen relativ einfach beschreiben lässt, wird sie in der Praxis durch Polynome angenähert. Dabei ist die Qualität dieser Polynome maßgeblich, wenn der Reaktions- bzw. Rekombinationsratenkoeffizient über die Beziehung aus Gleichung 2.5 berechnet wird. Ein Unterschied in der berechneten Gleichgewichtskonstante führt zu deutlichen Unterschieden im Ergebnis. Dies ist insbesondere bei den Modellen für die Rekombination von Bedeutung, da bei diesen der Reaktionsratenkoeffizient über die Gleichgewichtskonstante berechnet wird. Generell scheint der Einfluss der Reaktionsratenkoeffizienten bei den im Rahmen dieser Arbeit betrachteten Simulationsfällen geringer zu sein, als erwartet.

Im Endergebnis wurden zwei Modelle zur Beschreibung der Stoßionisation gefunden, welche

qualitativ ausreichende Ergebnisse für Ratenkoeffizienten liefern. Diese sind die Modelle von Simpson [42] sowie von Hoffert und Lien [24]. Die beiden Modelle unterscheiden sich dabei insofern, dass sie unterschiedliche Temperaturbereiche jeweils detaillierter betrachten. Ebenso wurden unterschiedliche Vernachlässigungen gemacht. Generell ist für die meisten Anwendungen das Modelle von Hoffert und Lien vorzuziehen, da dieses über einen weiten Bereich ingenieurmäßig bessere Ergebnisse liefert.

Im Hinblick auf die Vielzahl an Simulationen von Argon-Plasmen ist zu überlegen, ein genaueres Modell für die Reaktionsratenkoeffizienten zu erstellen. Dabei sollte dieses aus Wirkungsquerschnitten, welche auf aktuelleren Experimentaldaten als die vorhanden Modelle basieren, berechnet werden. Die Arbeit von Raju [36] liefert dabei gute Anhaltspunkte zur Bewertung der einzelnen Experimentaldaten. Auch sollten bei neuen Experimenten, welche am IRS simuliert werden, ein genauerer Blick auf die Änderung der Elektronendichte $\frac{\partial n_e}{\partial t}$ in Abhängigkeit der Elektronentemperatur, respektive den sich daraus berechnenden Reaktionsratenkoeffizient geworfen werden. Auch die Erarbeitung eines chemischen Modells, welches nicht nur ionisierte, sondern auch angeregte Spezies und Strahlungsionisation berücksichtigt, würde zu genaueren Ergebnissen in der Simulation beitragen. Eine entsprechen Anpassung eines der bereits vorhandenen Modelle für andere Edelgase (vgl. Hinnov und Hirschberg [23] sowie Bates et al. [7]) könnte die Qualität der Simulationsergebnisse deutlich verbessern. Eine Verbesserung der Simulationsergebnisse könnte des Weiteren dadurch erreicht werden, dass für unterschiedliche Temperaturbereiche unterschiedliche Modelle verwendet werden, für niedrige Temperaturen (zwischen 0 K und 15000 K) beispielsweise das Modell von Simpson und für den Bereich über diesem das Modell von Hoffert und Lien. Dies würde eine einfache Möglichkeit der Verbesserung darstellen, eventuelle Probleme durch Unstetigkeiten beim Übergang zwischen den Modellen müssten allerdings berücksichtigt werden.

Literatur

- [1] NATIONAL INSTITUTE OF STANDARDS AND TECHNOLOGY (Hrsg.): *NIST Chemistry Webbook*. <http://webbook.nist.gov/cgi/inchi/InChI%3D1S/Ar>. Version: 2014
- [2] ANNALORO, J. ; MOREL, V. ; BULTELE, A. ; OMALY, P. : Global rate coefficients for ionization and recombination of carbon, nitrogen, oxygen, and argon. In: *Phys. Plasmas* 19 (2012), Nr. 073515
- [3] ARTMANN, J. : Über Näherungsmethoden zur Bestimmung der spezifischen Wärmen und des Isentropenexponenten eines thermischen Plasmas. In: *Z. Physik* (1964), Nr. 183, S. 65–76
- [4] ASUNDI, R. ; KUREPA, M. : Ionization Cross Sections in He, Ne, Ar, Kr and Xe by Electron Impact. In: *Journal of Electronics and Control* (1963), Nr. 15, S. 41–50
- [5] ATKINS, P. W. ; PAULA, J. de: *Physikalische Chemie*. 5. Wiley-VCH Verlag, 2013
- [6] BAEVA, M. ; KOZAKOV, R. ; GORCHAKOV, S. ; UHRLANDT, D. : Two-Temperature chemically non-equilibrium modelling of transferred arcs. In: *Plasma Sources Sci. Technol.* 21 (2012), S. 055027
- [7] BATES, D. R. ; KINGSTON, A. E. ; MCWHIRTER, R. W. P.: Recombination between Electrons and Atomic Ions. II. Optically Thick Plasmas. In: *Proc. R. Soc. Lond A* 270 (1962)
- [8] BERNSTAM, V. A. ; RALCHENKO, Y. V. ; MARON, Y. : Empirical formula for cross section of direct electron-impact ionization of ions. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 33 (2000), Nr. 5025
- [9] BETHE, H. A.: Zur Theorie des Durchgangs schneller Korpuskularstrahlen durch Materie. In: *Ann. Physik* (1930), Nr. 5, S. 325
- [10] BIBERMAN, L. M. ; VOROB'EV, V. S. ; YABUKOV, I. T.: Kinetics of Nonequilibrium Low-Temperature Plasma. In: *High Temp* (1967), Nr. 5, S. 201–213
- [11] BOZIN, J. V. ; UROSEVIC, V. U. ; PETROVIC, Z. L.: Experimental investigation of excitation of argon metastables by an electron swarm in argon nitrogen gas mixtures. In: *Z. Phys. A* (1983), Nr. 312, S. 349
- [12] BRETAGNE, J. ; CALLEDE, G. ; LEGENTIL, M. ; PUECH, V. : Relativistic electron-beam-produced plasmas. I: Collision cross sections and loss function in argon. In: *J. Phys. D: Appl. Phys* 19 (1986), S. 761–777
- [13] BURGRNANS, A. L. J. ; SMEETS, A. H. M.: The ionisation coefficient in Ar-Hg mixtures. In: *J. Phys. D: Appl. Phys* (1983), Nr. 16, S. 755

- [14] CHANG, C. H. ; PFENDER, E. : Nonequilibrium Modeling of Low-Pressure Argon Plasma Jets; Part I: Laminar Flow. In: *Plasma Chem Plasma Process* 3 (1989), Nr. 10, S. 473
- [15] DIXON, A. J. ; HARRISON, M. F. A. ; SMITH, A. C. H.: A measurement of the electron impact ionization cross section of helium atoms in metastable states. In: *Book of Abstracts*. Beograd. Yugoslavia, 1973, S. 405
- [16] DRAWIN, H.-W. : Zur formelmäßigen Darstellung der Ionisierungsquerschnitte gegenüber Elektronenstoß. In: *Z. Physik* 164 (1961), Nr. 513, S. 9
- [17] DRAWIN, H.-W. : Zur spektroskopischen Temperatur- und Dichtemessung von Plasmen bei Abwesenheit thermodynamischen Gleichgewichtes. In: *Z. Physik* 172 (1963), Nr. 429
- [18] ESI CFD INC.: *CFD-ACE+*. Paris, 2010
- [19] FRIDMAN, A. ; KENNEDY, L. A.: *Plasma Physics and Engineering*. 2. CRC Press, 2011
- [20] FUNAHASHI, A. ; TAKEDA, S. : Three-Body Electron-Ion Recombination in Argon Plasmas. In: *J. Phys. Soc. Japan* (1968), Nr. 25, S. 298–299
- [21] GRYZINSKI, M. : Classical Theory of Atomic Collisions. I. Theory of Inelastic Collisions. In: *Phys. Rev.* 138 (1965), Nr. 2A, S. 336
- [22] HEIERMANN, J. : *Ein Finite-Volumen-Verfahren zur Lösung magnetoplasmadynamischer Erhaltungsgleichungen*, Universität Stuttgart, Diss., 2002
- [23] HINNOV, E. ; HIRSCHBERG, J. G.: Electron-Ion Recombination in Dense Plasmas. In: *Phys. Rev.* 125 (1962), Nr. 3, S. 795
- [24] HOFFERT, M. I. ; LIEN, H. : QuasiOneDimensional, Nonequilibrium Gas Dynamics of Partially Ionized Two Temperature Argon. In: *Phys. Fluids* 10 (1967), S. 1769
- [25] HOUWING, A. ; BOYCE, R. ; BONE, D. ; JOHNSTON, D. : Measurement of recombination rate parameters in nonequilibrium supersonic expansions of ionized argon and neon. In: *Shock Waves* 1 (1991), Nr. 3, 177–185. <http://dx.doi.org/10.1007/BF01413792>. – DOI 10.1007/BF01413792. – ISSN 0938–1287
- [26] KATSURAYAMA, H. ; ABE, T. : Thermochemical nonequilibrium modeling of a low-power argon arcjet wind tunnel. In: *J. Appl. Phys* (2013), Nr. 113, S. 053304
- [27] LENNON, M. A. ; BELL, K. L. ; GILBODY, H. B. ; HUGHES, J. G. ; KINGSTON, A. E. ; MURRAY, M. J.: Recommended Data on the Electron Impact Ionization of Atoms and Ions: Fluorine to Nickel. In: *J. Phys. Chem. Ref. Data* 17 (1988), S. 1285
- [28] LOTZ, W. : An Empirical Formula for the Electron-Impact Ionization Cross-Section. In: *Z. Physik* 206 (1967), Nr. 205

- [29] LOTZ, W. : Electron-Impact Ionization Cross-Sections and Ionization Rate Coefficients for Atoms and Ions from Hydrogen to Calcium. In: *Z. Physik* 216 (1968), Nr. 241
- [30] NELSON, H. F. ; PARK, C. ; WHITTING, E. E.: Titan Atmospheric Composition by Hypervelocity Shock-Layer Analysis. In: *J. Thermophys.* 2 (1991), Nr. 5, S. 157
- [31] ORTWEIN, P. : *Implementation of a Quantum Kinetic Chemical Model in the PIC-DSMC Code FLEXI*. Mai 2013
- [32] OWANO, T. G. ; KRUGER, C. H. ; BEDDINI, R. A.: Electron-ion three-body recombination coefficient of argon. In: *AIAA Journal* 31 (1993), Jan., Nr. 1, 75–82. <http://dx.doi.org/10.2514/3.11321>. – DOI 10.2514/3.11321. – ISSN 0001–1452
- [33] PARK, C. ; JAFFE, R. L. ; PARTRIDGE, H. : Chemical-Kinetic Parameters of Hyperbolic Earth Entry. In: *J. Thermophys.* 1 (2001), Nr. 15, S. 76–90
- [34] PEERENBOOM, K. S. C. ; GOEDHEER, W. J. ; DIJK, J. v. ; MULLEN, J. J. A. M. d.: Integral simulation of the creation and expansion of a transonic argon plasma. In: *Plasma Sources Sci. Technol.* (2010), Nr. 19, S. 9
- [35] PETSCHKE, H. ; BYRON, S. : Approach to Equilibrium Ionization behind Strong Shock Waves in Argon. In: *Annals of Physics* 1 (1957), S. 270–315
- [36] RAJU, G. G.: Electron-atom Collision Cross Sections in Argon: An Analysis and Comments. In: *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation* 11 (2004), Nr. 4
- [37] RAPP, D. ; ENGLANDER-GOLDEN, P. : Total cross sections for ionization and attachment in gases by electron impact. I. Positive ionization. In: *J. Chem. Phys.* 43 (1965), S. 1464–79
- [38] RUDGE, M. R. H. ; SCHWARTZ, S. B.: The ionization of hydrogen and of hydrogenic positive ions by electron impact. In: *Proc. Phys. Soc.* (1966), Nr. 88, S. 563
- [39] SANDEN, M. C. M. d. ; REGT, J. M. ; SCHRAM, D. C.: Recombination of argon in an expanding plasma jet. In: *Phys. Rev. E* 47 (1993), Apr., Nr. 4, 2792–2797. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevE.47.2792>. – DOI 10.1103/PhysRevE.47.2792
- [40] SCHRAM, B. L.: Partial Ionization Cross Sections of Noble Gases for Electrons with 0.5 -18 keV II. Argon, Krypton and Xenon. In: *Physica* 32 (1966), S. 197–208
- [41] SCHRAM, B. L. ; MOUSTAFA, H. R. ; SCHUTTEN, J. ; HEER, F. J. D.: Ionization Cross sections for Electrons (100-600 eV) in Noble and Diatomic Gases. In: *Physica* 32 (1966), S. 734–740
- [42] SIMPSON, S. W.: Ionisation and recombination rates in argon plasmas. In: *J. Phys. D: Appl. Phys* 22 (1990), S. 1161
- [43] SMITH, P. T.: The ionization of Helium, Neon and Argon by Electron Impact. In: *Phys. Rev.* 36 (1930), S. 1293

- [44] SRINIVASAN, V. ; REES, J. A.: A note on the total ionization cross section for electrons in the inert gases and carbon monoxide. In: *Brit. J. Appl. Phys.* 18 (1967), S. 59
- [45] STRAUB, H. ; RENAULT, P. ; LINDSAY, B. ; SMITH, K. A. ; STEBBINGS, R. F.: Absolute partial and total cross sections for electron-impact ionization of argon from threshold to 1000 eV. In: *Phys. Rev. A* (1995), Nr. 52, S. 1115–1124
- [46] TACHIBANA, K. : Excitation of the 1s₅, 1s₄, 1s₃, and 1s₂ levels of argon by low-energy electrons. In: *Phys. Rev. A* 34 (1986), Nr. 2, S. 1007–1015
- [47] TATE, J. T. ; SMITH, P. T.: The efficiencies of ionization and ionization potentials of various gases under electron Impact. In: *Phys. Rev.* 39 (1932), S. 270
- [48] THOMSON, J. : Ionization by Moving Electrified Particles. In: *Philos. Mag.* 23 (1912), Nr. 136, S. 10
- [49] TSURUBUCHI, S. ; MIYAZAKI, T. ; MOTOHASHI, K. : Electron-impact emission cross sections of Ar. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* (1996), Nr. 29, S. 1785–1801
- [50] VLCEK, J. ; PELIKAN, V. : Excited level populationso f argon atoms in a nonisothermal plasma. In: *J. Phys. D: Appl. Phys* (1986), Nr. 19, S. 1879–1888
- [51] VOROB'EV, V. S.: Kinetics of ionization and recombination in low-temperature plasmas. In: *Plasma Sources Sci. Technol.* 4 (1994), Nr. 163, S. 8
- [52] VRIENS, L. : Energy balance in lowpressure gas discharges. In: *J. Appl. Phys* 9 (1973), Nr. 44, S. 3980–3989
- [53] WETZEL, R. C. ; BAIOCCHI, F. A. ; HAYES, T. R. ; FREUND, R. S.: Absolute cross sections for electron-impact ionization of the rare-gas atoms by the fast-neutral-beam method. In: *Phys. Rev. A* 35 (1986), Nr. 2, S. 559–577

A Anhang

A.1 Modell von Annaloro et al.

$$k_j(T_e) = C_j T_e^{\beta_j} e^{-\frac{\Theta_j}{T_e}} \quad (1.1)$$

j	C_j	β_j	Θ
f	$1,23 \cdot 10^{-19}$	1,511	141480 K
b	$9,41 \cdot 10^{-44}$	0,368	-45430 K

Tabelle A.1: Koeffizienten von Annaloro et al. [2]

A.2 Modell von Bernstham et al.

$$\sigma_i(E) = C_l \cdot \left(\frac{Ryd}{E_i}\right)^{2-\delta_l} \xi_j b_i \frac{\ln(E/E_i)}{E/E_i} \quad (1.2)$$

l	C_l (cm ²)	β_l
s	$1,7794 \cdot 10^{-16}$	0,0471
p	$2,1597 \cdot 10^{-16}$	0,0910
d	$1,2131 \cdot 10^{-16}$	0,3319

Tabelle A.2: Von Bernstham bestimmte Koeffizienten für die unterschiedlichen Schalen [8]

A.3 Modell von Drawin

$$\sigma(E) = 2,66 \cdot \xi_n \cdot \pi a_0^2 \cdot \left(\frac{E_{A,1}^*}{E_i}\right)^2 \cdot f_1 \cdot \frac{U-1}{U^2} \cdot \ln(1,25 f_2 U) \quad (1.3)$$

mit

$$U = \frac{E}{E_i} \quad (1.4)$$

f_1	f_2
0,7 - 1,0	0,8 - 1,2

Tabelle A.3: Koeffizienten von Drawin [16]

A.4 Modell von Hoffert und Lien

$$k_f(T_e) = 3,75 \cdot 10^{-16} \cdot T_e^{1,5} \cdot \left(\frac{\Theta_{A,1}^*}{T_e} + 2\right) \cdot \exp\left(-\frac{\Theta_{A,1}^*}{T_e}\right) \quad (1.5)$$

$$K_{eq}(T_e) = 2,9 \cdot 10^{-16} \cdot T_e^{1,5} \cdot \exp\left(\frac{-\Theta_{ion}}{T_e}\right) \quad (1.6)$$

$$k_b(T_e) = 1,29 \cdot 10^{-32} \cdot \left(\frac{\Theta_{A,1}^*}{T_e} + 2\right) \cdot \exp\left(\frac{\Theta_{ion} - \Theta_{A,1}^*}{T_e}\right) \quad (1.7)$$

$\Theta_{A,1}^*$	Θ_{ion}
135300 K	183100 K

Tabelle A.4: Koeffizienten von Hoffert und Lien [24]

A.5 Modell von Houwing

m_a [kg/mol]	Θ_{Ion} [K]	T_{exc}	C [$m^6 K^{9/2} s^{-1}$]	$k_b^I(a)$ [$m^6 mol^{-2} s^{-1}$]	$k_b^I(b)$ [$m^6 mol^{-2} s^{-1}$]
$39,95 \cdot 10^{-3}$	182850	134800	$9 \pm 3 \cdot 10^{-23}$	$2,366 \cdot 10^3$	$20 \pm 6 \cdot 10^3$

Tabelle A.5: Koeffizienten von Houwing [25]

A.6 Modell von Lennon et al.

$$\sigma(E) = \frac{1}{E_i E} \left[A \cdot \ln\left(\frac{E}{E_i}\right) + \sum_{j=1}^5 B_j \left(1 - \frac{E_i}{E}\right) \right] \quad (1.8)$$

$$k_f(T_e) = \exp\left(\frac{-E_i}{kT_e}\right) \cdot \left(\frac{kT_e}{E_i}\right)^{(1/2)} \cdot \sum_{j=0}^5 a_j \left[\log_{10}\left(\frac{kT_e}{E_i}\right)\right]^j \quad (1.9)$$

A	B_1	B_2	B_3	B_4	B_5
2,532E-13	-2,672E-13	2,543E-13	-7,69E-14	8E-16	6E-16
a_0	a_1	a_2	a_3	a_4	a_5
9,47E-08	1,49E-09	-5,93E-08	1,80E-08	1,30E-08	-9,72E-09

Tabelle A.6: Koeffizienten von Lennon et al. [27]

A.7 Modell von Lotz

$$\sigma_i(E) = a_i q_i \frac{\ln(E/E_i)}{E \cdot E_i} \left(1 - b_i \exp\left[-c_i \left(\frac{E}{E_i} - 1\right)\right] \right), E_i \leq E \quad (1.10)$$

$$k_f(T_e) = 6,7 \cdot 10^{-7} \sum_{i=1}^3 \frac{a_i q_i}{T_e^{3/2}} \cdot \left(\frac{1}{E_i/T_e} \int_{E_i/T_e}^{\infty} \frac{e^{-x}}{x} dx - \frac{b_i \exp(c_i)}{E_i T_e + c_i} \int_{E_i/T_e + c_i}^{\infty} \frac{e^{-y}}{y} dy \right) \quad (1.11)$$

Stufe der Ionisation	Konstanten								
i	a_1	a_2	a_3	b_1	b_2	b_3	c_1	c_2	c_3
Ar I	4.0	4.0	3.0	0.62	0.4	0.9	0.4	0.6	0.2
Ar II	4.2	4.4	3.7	0.3	0.2	0.8	0.6	0.6	0.4
Ar III	4.5	4.5	4.2	0.2	0	0.6	0.6	-	0.5
Ar IV	4.5	4.5	4.5	0	0	0.3	-	-	0.6

Stufe der Ionisation	Elektronenkonfiguration	Ionisationsenergie [eV]			Anzahl der Elektronen		
i	-	E_1	E_2	E_3	q_1	q_2	q_3
Ar I	$3s^23p^6$	15.76	29.25	284.6	6	2	6
Ar II	$3s^23p^5$	27.6	41.7	267.0	5	2	6
Ar III	$3s^23p^4$	40.9	55.5	287.0	4	2	6
Ar IV	$3s^23p^3$	59.7	70.4	308.0	3	2	6

Tabelle A.7: Koeffizienten von Lotz [28, 29]

A.8 Modell von Simpson

$$k_b(T_e) = (C \cdot \frac{g_0}{g_i}) \left(S'_{0i} + S'_{0*} \cdot \frac{\exp(\frac{\epsilon_{*i}}{k_b T_e})}{1 + b(T_e)} \right) \quad (1.12)$$

$$C = 0,5 \cdot \left(\frac{2\pi k m_e T_e}{h^2} \right)^{-\frac{3}{2}} \quad (1.13)$$

$$b(T_e) = g_0 \cdot \frac{1}{P_{*i}} \cdot \left(S'_{0*} \exp\left(\frac{\epsilon_{*i}}{k_b T_e}\right) - P_{0*} \right) \quad (1.14)$$

	S'_{0i}	S'_{0*}	P_{0*}	P_{*i}
C_0	-2,647E-15	3,499E-16	3,817E-15	1,878E-10
C_1	1,622E-18	1,407E-19	2,476E-18	-9,932E-16
C_2	-9,615E-23	2,406E-23	-1,956E-22	-1,489E-18
C_3	5,824E-27	-3,612E-29	9,75E-27	1,297E-22
C_4	-1,373E-31	-2,347E-32	-2,026E-31	-3,429E-27

Tabelle A.8: Koeffizienten von Simpson [42]

$$k_f(T_e) = C \cdot T_e^\beta e^{-\frac{\Theta_{ion}}{T_e}} \quad (1.15)$$

$$\beta = \beta_i + \left(\frac{\beta_{fit,1} T_e}{T_{fit,1}} \right)^{\frac{T_{fit,2}}{\beta_{fit,2} T_e}} \quad (1.16)$$

C	β_i	$\beta_{fit,1}$	$\beta_{fit,2}$	Θ_{ion}	$T_{fit,1}$	$T_{fit,2}$
$1 \cdot 10^{-16}$	1.6	0.5	1	183100 K	6250 K	10000 K

Tabelle A.9: Im Rahmen dieser Arbeit Koeffizienten für den Arrhenius-Fit des Simpson-Modells

A.9 Modell von Thomson

$$\sigma(E) = \xi_j \cdot \frac{\pi e_0^4}{E} \cdot \left(\frac{1}{E_i} - \frac{1}{E} \right) \quad (1.17)$$

$$1\text{eV} = 1,602177 \cdot 10^{-12} \text{erg} \quad (1.18)$$

ξ_j	E_i	e_0
8	$2,53144 \cdot 10^{-11} \text{ erg}$	$4,8 \cdot 10^{-10} \text{ Fr}$

Tabelle A.10: Koeffizienten von Thomson [48]

A.10 Modell von van den Sanden et al.

$$k_b = C_r \cdot T_e^\beta \quad (1.19)$$

Es gilt:

$$T_e^x [\text{eV}] = C_0 \cdot n_e \quad (1.20)$$

Case	χ	C_0	β	C_r
1	11/3	$2,2 \cdot 10^{-8} (1,3)$	-9/2	$3,3 \cdot 10^{-21} (3)$
2	$3,47 \pm 0,26$	$4,7 \cdot 10^{-9} (3)$	$-4,6 \pm 0,39$	$3,2 \cdot 10^{-22} (10)$

Tabelle A.11: Koeffizienten von van den Sanden et al. [39], die Genauigkeit der Faktoren ist in den Klammern angegeben

A.11 Diagramm der Modelle

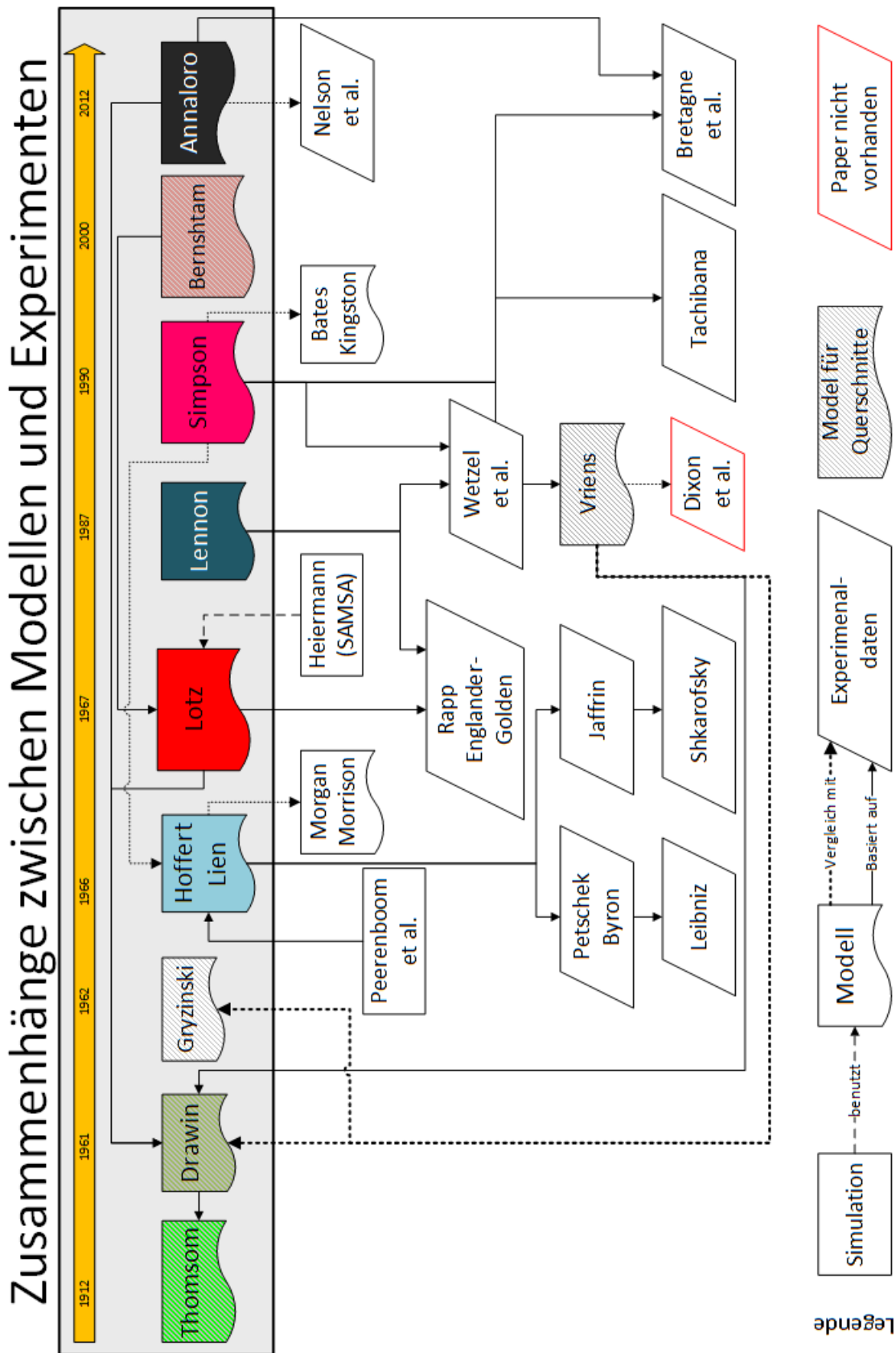


Bild A.1: Verknüpfungen zwischen Modellen und Experimenten für den Ratenkoeffizient der Ionisation von Argon

Hiermit erkläre ich, dass ich die vorliegenden Arbeit nur mit den angegebenen Hilfsmitteln ohne unerlaubte fremde Hilfe selbstständig angefertigt und verfasst habe.

Stuttgart, im Oktober 2014
Jens Schmidt