



P.T. Herrn Professor Kleinig
 " " Bartl als Referenten
 zur Begutachtung. Wien, am 6. Juni 1974
 Der Dekan:

25.184

Untersuchung des Tröpfchenwachstums
 in einer schnellen Expansionsnebelkammer

Dissertation
 zur Erlangung des Doktorgrades
 an der Philosophischen Fakultät
 der Universität Wien



eingereicht von
 Paul Wagner
 im Juni 1974

Diss. D 01128

10. JULI 1974
 Dr. phil. ...

Meinen Eltern

I N H A L T S V E R Z E I C H N I S

0) Zusammenstellung der verwendeten Bezeichnungen	1
1) Einleitung	6
2) Theoretische Grundlagen	10
2.1) Wachstum von Flüssigkeitströpfchen	10
2.1.1) Wachstum eines einzelnen Tröpfchens in unendlich ausgedehnter Umgebung	11
2.1.2) Wachstumsvorgang in einem Tröpfchen- aerosol	23
2.2) Thermodynamische Bedingungen in der Expansionskammer	29
2.3) Lichtstreuung an Kugeln	35
2.3.1) Skizze der Mie'schen Streutheorie	36
2.3.2) Streuung an mehreren Kugeln	47
3) Versuchsanordnung	50
3.1) Meßprinzip	50
3.2) Mechanischer Aufbau	56
3.2.1) Befeuchter	56
3.2.2) Expansionskammer	58
3.3) Optischer Aufbau	62
3.4) Steuerung des Meßzyklus	71
3.5) Meßeinrichtungen	74
3.6) Aerosolquellen	78
4) Messungen und Diskussion	83
4.1) Messung des Primärlichtflusses	83
4.2) Messung des Streulichtverlaufes unter ver- schiedenen Streuwinkeln und Messung des Druckverlaufes	84
4.3) Konzentrationsbestimmung aus der Höhe der Streulichtmaxima	92
4.3.1) Eichung des Rich-Kondensationskern- zählers	92
4.3.2) Konzentrationsmessungen bei verschie- denen Expansionsverhältnissen	96

4.4) Größenbestimmung aus der Lage der Streulichtextrema	105
4.4.1) Tröpfchenwachstum bei verschiedenen Tröpfchenkonzentrationen und Expansionsverhältnissen	105
4.4.2) Vergleich mit der Tröpfchenwachstums- theorie	112
5) Zusammenfassung	128
6) Literatur	132
7) Anhang	136

A B B I L D U N G S V E R Z E I C H N I S

Fig. 1	Kondensationskernzähler nach AITKEN	8
Fig. 2	Blockdiagramm der Versuchsanordnung	52
Fig. 3	Blockdiagramm der automatisierten Anlage zur Steuerung des Expansionszyklus	53
Fig. 4	Zeitplan des automatischen Meßzyklus	54
Fig. 5	Abbildung der gesamten Versuchsanordnung	57
Fig. 6	Grundriß der Expansionskammer	59
Fig. 7	Aufriß der Expansionskammer	60
Fig. 8	Abbildung der Expansionskammer mit Photomultiplier	63
Fig. 9	Abbildung der Pockelszelle mit Polarisator	66
Fig. 10	Spannungs- und Intensitätsverlauf an der Pockelszelle	66
Fig. 11	Geometrie der Streulichtmeßanordnung	67
Fig. 12	Blockschaltbild der Steuerelektronik	72
Fig. 13	Schaltbild des Strom-Spannungs-Wandlers	76
Fig. 14	Blockdiagramm des Kondensationskernzählers nach RICH	79
Fig. 15	Prinzipieller Aufbau des Benzolruß-Aerosolgenerators	82
Fig. 16	Prinzipieller Aufbau des Latex-Aerosolgenerators	82
Fig. 17, 18, 19, 20, 21, 22	gemessener Druck- und Streulichtverlauf, Streuwinkel 15° , 45° , 65° , 90° , 145° , 165°	85, 86
Fig. 23, 24	Intensitätsfunktion $i_1(m, \alpha, \theta)$ als Funktion von α bei $m = 1,33$ und $\theta = 15^\circ$ bzw. 45°	88
Fig. 25	Gemessene Streulichtintensität als Funktion des Streuwinkels bei einer festen Verzögerungszeit	90
Fig. 26	Intensitätsfunktion $i_1(m, \alpha, \theta)$ als Funktion von θ bei $m = 1,33$ und $\alpha = 6,8$	91
Fig. 27, 28, 29	Einfluß der Lichtextinktion in der Expansionskammer bei verschiedenen Tröpfchenkonzentrationen	94

Fig. 30	Einfluß von Diffusion und Koagulation im Befeuchter	95
Fig. 31	Eichkurven des Kondensationskernzählers nach Rich	97
Fig. 32, 33, 34	Gemessene Tröpfchenkonzentration als Funktion des Expansionsverhältnisses für Kochsalzkerne, Latexkerne, Benzolrußkerne	99-101
Fig. 35	Unterer Grenzradius aktivierbarer Kondensationskerne als Funktion des Expansionsverhältnisses gemäß Kelvin-Gibbs-Gleichung	103
Fig. 36	Gemessene Tröpfchenkonzentration als Funktion des unteren Grenzradius aktivierbarer Benzolrußkerne	104
Fig. 37	Mittels gepulsten Lichtes gemessener Streulichtverlauf	107
Fig. 38	Mittels kontinuierlichen Lichtes gemessener Streulichtverlauf	108
Fig. 39	Einfluß der Beschaffenheit wasserunlöslicher Kondensationskerne auf das Tröpfchenwachstum	108
Fig. 40, 41	Gemessenes Tröpfchenwachstum für Latexkerne bei verschiedenen Tröpfchenkonzentrationen und dem Expansionsverhältnis 1,17 bzw. 1,37	110,111
Fig. 42, 43	Berechnetes Tröpfchenwachstum bei 100 %iger Sättigung im Befeuchter für das Expansionsverhältnis 1,17 bzw. 1,37	114
Fig. 44, 45, 46, 47	Berechnetes Tröpfchenwachstum bei 87 %iger Sättigung im Befeuchter für das Expansionsverhältnis 1,17 und verschiedenen Tröpfchenkonzentrationen	116,117
Fig. 48, 49, 50, 51	Berechnetes Tröpfchenwachstum bei 75 %iger Sättigung im Befeuchter für das Expansionsverhältnis 1,37 und verschiedenen Tröpfchenkonzentrationen	118,119
Fig. 52, 53, 54, 55	Berechneter zeitlicher Verlauf von Temperatur bzw. Wasserdampfsättigungsverhältnis in der Expansionskammer für das Expansionsverhältnis 1,37 bei den Tröpfchenkonzentrationen 5k bzw. 100k	121,122
Fig. 56, 57, 58, 59, 60, 61	Berechnete Anfangsphasen der Kondensation für das Expansionsverhältnis 1,37 bei den Tröpfchenkonzentrationen 5k und 100k	124-126

O) ZUSAMMENSTELLUNG DER VERWENDETEN BEZEICHNUNGEN:

Lateinische Buchstaben:

A_{λ}	Streukoeffizient
a_0	Anfangsradius des Tröpfchens ($t=0$)
a	Tröpfchenradius, Kugelradius
B_{λ}	Streukoeffizient
b	Radius einer das Tröpfchen umgebenden Zelle
C	Anzahl der Tröpfchen pro Volumseinheit (Tröpfchenkonzentration)
c	Lichtgeschwindigkeit
c_p	Spezifische Wärmekapazität bei konstantem Druck
c_v	Spezifische Wärmekapazität bei konstantem Volumen
D	Diffusionskoeffizient des Dampfes im Trägergas
d	Durchmesser des Beobachtungsstrahles
\vec{E}	elektrische Feldstärke
\vec{E}_0	Amplitude der elektrischen Feldstärke der Primärwelle
$E_0 = \vec{E}_0 $	
\vec{E}	komplexe Amplitude der elektrischen Feldstärke
$E_r, E_{\theta}, E_{\phi}$	Physikalische Komponenten von \vec{E} in räumlichen Polarkoordinaten
\vec{E}_t	Tangentialkomponente von \vec{E}
F	Fläche der Blendenöffnung der Lichtmeßapparatur
f	Verteilungsfunktion
f_m	lokale Maxwellverteilung
$f_k(\theta)$	Winkelabhängigkeit der Streulichtintensität nach k -facher Streuung
H_C	Stationärer Wärmefluß durch die Tröpfchenober- fläche im Kontinuumsbereich
\vec{H}	magnetische Feldstärke
\vec{H}_0	Amplitude der magnetischen Feldstärke der Primärwelle
$H_0 = \vec{H}_0 $	
\vec{H}	komplexe Amplitude der magnetischen Feldstärke
$H_r, H_{\theta}, H_{\phi}$	Physikalische Komponenten von \vec{H} in räumlichen Polarkoordinaten
\vec{H}_t	Tangentialkomponente von \vec{H}
$H_{\lambda + \frac{1}{2}}^{(2)}$	Hankelfunktion zweiter Art mit halbzahliger Konstante

I_C	stationärer Massefluß durch die Tröpfchenoberfläche im Kontinuumsbereich
I_T	stationärer Massefluß durch die Tröpfchenoberfläche im Übergangsbereich
I_F	stationärer Massefluß durch die Tröpfchenoberfläche im Bereich freier Gasmoleküle
I_o	Intensität der Primärwelle
I	Intensität der Sekundärwelle
I_{\perp}, I_{\parallel}	Intensitäten der senkrecht bzw. parallel zur Streuebene linear polarisierten Komponenten der Sekundärwelle
I_u	Intensität der Sekundärwelle bei unpolarisierter Primärwelle
i_{\perp}, i_{\parallel}	Intensitätsfunktionen
$J_{\ell+\frac{1}{2}}$	Besselfunktion mit halbzahliger Konstante
K	Wärmeleitvermögen des Trägergases
$Kn = \frac{\ell}{a}$	Knudsenzahl
\vec{k}	Wellenzahlvektor
$k = \vec{k} $	
$k_e = i\omega(\epsilon - \frac{i\sigma}{\omega})$	
$k_m = i\omega\mu$	
L	spezifische Umwandlungswärme des Kondensats
ℓ	mittlere freie Weglänge
M	Molekulargewicht des Dampfes
M_T	Molekulargewicht des Trägergases
m	komplexer Brechungsindex
m_T	Tröpfchenmasse
$N_{\ell+\frac{1}{2}}$	Neumannfunktion mit halbzahliger Konstante
n	reeller Brechungsindex
P_{ℓ}^m	Kugelfunktion 1. Art
P_i	Anfangsgesamtdruck in der Expansionskammer vor der Expansion
P_i'	Anfangsdruck im Rezipienten vor der Expansion
P_e	Endgesamtdruck in der Expansionskammer unmittelbar nach der Expansion ($t=0$)

P	Partialdruck des Dampfes
P_i	Anfangspartialdruck des Dampfes in der Expansionskammer vor der Expansion
$P_e, (P_\infty)_0$	Endpartialdruck des Dampfes in der Expansionskammer unmittelbar nach der Expansion ($t = 0$)
P_∞	Partialdruck des Dampfes in großem Abstand vom Tröpfchen in der Expansionskammer
P_a	Partialdruck des Dampfes über der Tröpfchenoberfläche
$P_S(T)$	Sättigungsdampfdruck über einer ebenen Flüssigkeitsoberfläche bei Temperatur T
Q_k	relative Intensität des Streulichtes nach k -facher Streuung
q	Abstand von der Achse des Laserstrahles
R	Universelle Gaskonstante
r	Abstand vom Tröpfchen- bzw. Kugelmittelpunkt
$S = \frac{P}{P_S(T)}$	Sättigungsverhältnis des Dampfes (relative Feuchte)
$S_\ell(\xi) = \sqrt{\frac{\pi\xi}{2}} J_{\ell+\frac{1}{2}}(\xi)$	
T	absolute Temperatur
T_i	Anfangstemperatur in der Expansionskammer vor der Expansion
$T_e, (T_\infty)_0$	Endtemperatur in der Expansionskammer unmittelbar nach der Expansion ($t = 0$)
T_∞	Temperatur in großem Abstand vom Tröpfchen in der Expansionskammer
T_a	Temperatur an der Tröpfchenoberfläche (Temperatur des Tröpfchens)
$T_\ell(\xi) = -\sqrt{\frac{\pi\xi}{2}} N_{\ell+\frac{1}{2}}(\xi)$	
t	Zeit ($t = 0$ ist Ende der Expansion)
$U_\ell(\xi) = S_\ell(\xi) + i T_\ell(\xi) = \sqrt{\frac{\pi\xi}{2}} H_{\ell+\frac{1}{2}}^{(2)}(\xi)$	
\bar{u}	mittlere Geschwindigkeit der Dampfmoleküle
V_i	Anfangsvolumen einer volumsdefinierten Expansionskammer vor der Expansion
V_e	Endvolumen einer volumsdefinierten Expansionskammer nach der Expansion
V	Volumen einer druckdefinierten Expansionskammer

V'	Volumen des Rezipienten einer druckdefinierten Expansionskammer
\bar{v}	mittlere absolute Geschwindigkeit der Dampfmoleküle
\vec{x}	Ortsvektor
$Z(\theta)$	Länge des Streuvolumens
z	Koordinate in der Achse des Laserstrahles

Griechische Buchstaben:

$$\alpha = \frac{2\pi a}{\lambda} \quad \text{Größenparameter}$$

$$\alpha_m, \alpha_t \quad \text{Masseakkomodationskoeffizient, thermischer Akkomodationskoeffizient}$$

$$\beta = \frac{p_i}{p_e} \quad \text{(Druck)expansionsverhältnis}$$

$$\gamma = \frac{v_e}{v_i} \quad \text{(Volums)expansionsverhältnis}$$

$$\Delta P = P_i - P_i' \quad \text{Druckdifferenz zwischen druckdefinierter Expansionskammer und Rezipient vor der Expansion}$$

$$\delta = \zeta l \quad \text{Fuchs'sche Sprungdistanz}$$

$$\epsilon \quad \text{Dielektrizitätskonstante}$$

$$\eta \quad \text{Absorptionsindex}$$

$$\theta \quad \text{Streuungswinkel, in dem die Lichtmeßapparatur zentriert ist}$$

$$\theta \quad \text{Streuungswinkel } (\theta = 0 \text{ ist Primärriichtung)}$$

$$\kappa = \frac{c_p}{c_v} \quad \text{Verhältnis der spezifischen Wärmen für das Gemisch aus Trägergas und Dampf}$$

$$\kappa_T, \kappa_D \quad \text{Verhältnisse der spezifischen Wärmen für Trägergas bzw. Dampf}$$

$$\lambda \quad \text{Wellenlänge der elektromagnetischen Wellen im Außenraum der Kugel}$$

$$\mu \quad \text{Permeabilität}$$

$$\Pi_e, \Pi_m \quad \text{Debye-Potentiale}$$

$$\pi_l \quad \text{Winkelkoeffizient}$$

ρ_T	Partialdichte des Trägergases
ρ_F	Dichte der Tröpfchenflüssigkeit
ρ, ρ_D	Partialdichte des Dampfes
$(\rho_\infty)_0$	Endpartialdichte des Dampfes in der Expansionskammer unmittelbar nach der Expansion ($t = 0$)
ρ_∞	Partialdichte des Dampfes in großem Abstand vom Tröpfchen in der Expansionskammer
ρ_a	Partialdichte des Dampfes über der Tröpfchenoberfläche
σ	elektrische Leitfähigkeit
σ_F	Oberflächenspannung der Tröpfchenflüssigkeit
τ	Zeit in der Größenordnung der mittleren Stoßzeit der Gasmoleküle
τ_λ	Winkelkoeffizient
Φ_0	Gesamter einfallender Fluß des Laserstrahls
Φ	gesamter Streulichtfluß durch die Blendenöffnung
Φ_q	Streulichtfluß durch die Blendenöffnung, herrührend von einem Tröpfchen
ϕ	Streuazimut
ω	Kreisfrequenz der elektromagnetischen Wellen

Hochgestellte Indizes:

P	Primärwelle
S	Sekundärwelle
I	Außenraum der Kugel
II	Innenraum der Kugel

1) EINLEITUNG

Unter einem Aerosol versteht man ein System aus festen, flüssigen oder gemischten Teilchen, die in einem Gas suspendiert sind. Je nach der Teilchengröße werden verschiedene Methoden zur Untersuchung von Aerosolen eingesetzt. Bei Teilchen mit Durchmessern größer als $0,5 \mu\text{m}$ kann die Bestimmung der Teilchenanzahl und des Teilchendurchmessers durch Trägheitsabscheidung aus Strömungen erfolgen. Zu diesem Zweck sind verschiedene Geräte, wie Kaskadenimpaktoren und Aerosolzentrifugen entwickelt worden. Außerdem ist eine Beobachtung der Teilchen im Mikroskop möglich. Daneben kann auch eine optische Untersuchung der Teilchen vorgenommen werden durch Messung der Lichtextinktion oder der Lichtstreuung. Bei Teilchendurchmessern unter $0,5 \mu\text{m}$ werden die beschriebenen Meßmethoden ungenau, unter $0,1 \mu\text{m}$ sind die meisten nicht mehr anwendbar.

Teilchen mit Durchmessern unter $0,1 \mu\text{m}$ kommt jedoch große Bedeutung zu, da sie in der Atmosphäre in großer Konzentration als Folge chemischer und photochemischer Prozesse gebildet werden. Ihre Kleinheit macht sie relativ stabil und erlaubt auch beim Atemvorgang das Eindringen in die Lungentiefe. Dementsprechend ist es notwendig, auch für diese Größen Untersuchungsmethoden zu entwickeln. Im Prinzip ist es möglich, Teilchen dieser Größe im Elektronenmikroskop zu beobachten. Dieses Verfahren ist jedoch nicht nur äußerst zeitraubend, sondern ist auch auf im Vakuum nicht verdampfende Teilchen beschränkt. Aus diesen Gründen ist das elektronenmikroskopische Verfahren für die Praxis meist ungeeignet.

Bei einer anderen Meßmethode wird die Untersuchung submikroskopischer Teilchen auf die Untersuchung sichtbarer Teilchen zurückgeführt. Zu diesem Zweck muß ein hinreichendes Anwachsen der Teilchen erreicht werden. Ein solcher Wachstumsvorgang kann dadurch hervorgerufen werden, daß in übersättigtem Wasserdampf an den Teilchen Wasserdampf kondensiert. Bei dieser heterogenen Kondensation können bei entsprechenden Wasserdampfsättigungsverhältnissen Teilchen mit Durchmessern ab etwa $0,005 \mu\text{m}$ als Kondensationskerne wirken und in Tröpfchen übergeführt werden. Der übersättigte Wasserdampf wird meist durch adiabatische Expansion feuchtgesättigter Luft in einer Expansionskammer hergestellt. Die entstehenden Kondensations-tröpfchen können visuell gezählt oder optisch untersucht werden.

Die historisch ersten Kondensationskernzähler wurden von AITKEN in den Jahren 1888 bis 1892 und SCHOLZ im Jahr 1932 konstruiert. Der prinzipielle Aufbau eines Kondensationskernzählers nach AITKEN ist in Fig. 1 dargestellt. Den Boden der Expansionskammer K bildet eine Glasplatte G mit Millimeterraster. Die bei einer Expansion entstehenden Tröpfchen sedimentieren unter dem Einfluß der Schwerkraft zu dieser Glasplatte und können dort visuell gezählt werden. Die Expansionen werden so oft wiederholt, bis sich keine neuen Tröpfchen mehr bilden. Bei dieser Art der Messung können mehrere Fehler auftreten, unter anderem ungenaue Einstellung des Kolbens P, Undichtigkeit des Zählers und visuelle Zählfehler (es muß schnell gezählt werden, damit die sedimentierten Tröpfchen nicht vorher verdampfen). Der Meßbereich erstreckt sich ca. von 125 bis $200.000 \text{ Teilchen/cm}^3$.

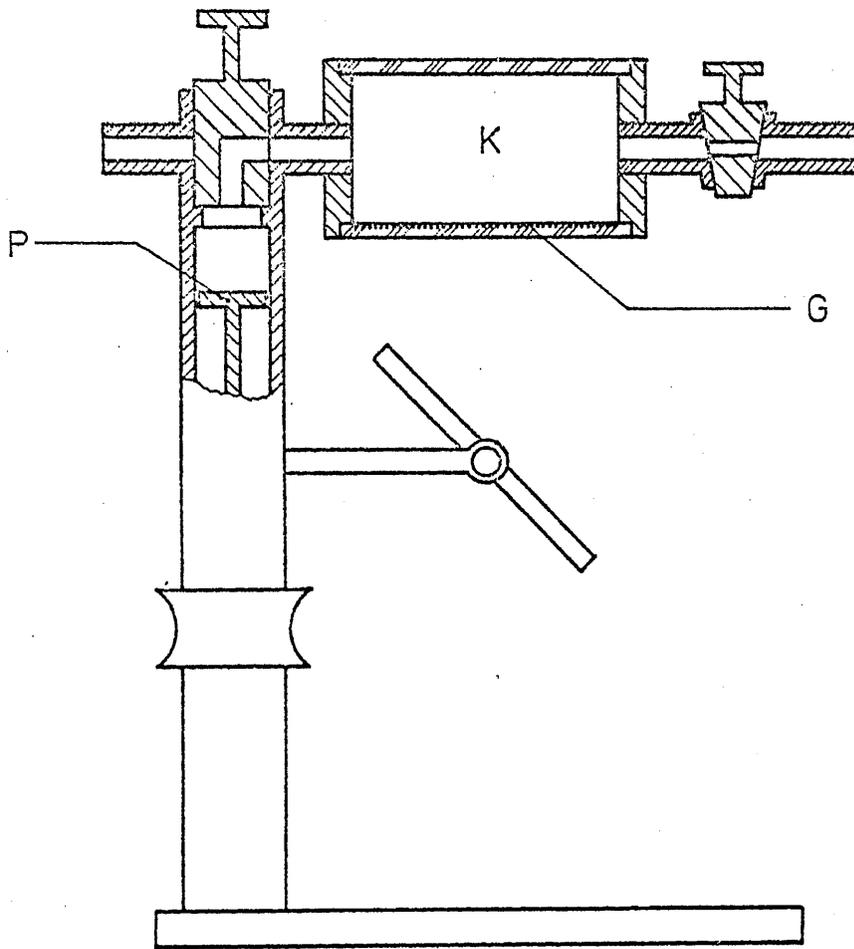


Fig. 1 Kondensationskernzähler nach AITKEN

Ein entscheidender Fortschritt wurde von POLLAK in den Jahren 1946 bis 1959 erreicht. In dem Kondensationskernzähler von POLLAK wird die Tröpfchenkonzentration nicht durch visuelles Auszählen, sondern durch Messung der Lichtextinktion des bei der Expansion entstehenden Nebels bestimmt. Diese Meßmethode ist wesentlich bequemer, erfordert jedoch eine empirische Eichung. Der Meßbereich liegt etwa zwischen 130 und 450.000 Teilchen/cm³, die Lichtextinktionen liegen dabei zwischen 5 % und 94 %.

Bei modernen Kondensationskernzählern wird nicht die Lichtextinktion, sondern die Intensität des gestreuten Lichtes für die Bestimmung der Kernkonzentration herangezogen. Handelsübliche Geräte haben vollautomatische Expansionszyklen mit einer Zykluszeit unter 1 Sekunde, wodurch ein rasches Ansprechen auf Konzentrationsänderungen erreicht wird. Die Eichung solcher Geräte wird meist mit dem POLLAK-Zähler vorgenommen.

Allgemein muß festgehalten werden, daß es bis heute durchaus noch nicht gesichert ist, ob man mit einem Kondensationskernzähler die tatsächlich vorliegende Kernkonzentration mißt. Mehrere Fehlerquellen sind denkbar:

- 1) ein Tröpfchen kann mehr als einen Kern enthalten
- 2) sehr kleine Tröpfchen sind optisch nicht feststellbar
- 3) sehr kleine Kerne werden erst bei verhältnismäßig hoher Übersättigung aktiviert
- 4) Kerne aus hydrophoben Substanzen können unter Umständen überhaupt nicht aktiviert werden.
- 5) Bei sehr hohen Kernkonzentrationen kann der Fall eintreten, daß der Wasserdampfgehalt der Expansionskammer nicht zur Bildung hinreichend großer Tröpfchen ausreicht, sodaß die Zählung der Tröpfchen problematisch wird.

In der vorliegenden Arbeit wird die Tröpfchenkonzentration und der zeitliche Verlauf des Tröpfchenradius unter verschiedenen Bedingungen auf optischem Wege quantitativ gemessen. Ziel der Untersuchung ist die Klärung des Einflusses der Kernkonzentration und der Beschaffenheit der Kerne auf Tröpfchenkonzentration und Tröpfchenwachstum. Außerdem wird ein neuer Ansatz zur näherungsweise Berechnung des Tröpfchenwachstums gemacht und ein Vergleich der numerischen Ergebnisse mit den experimentellen Resultaten durchgeführt.

2) THEORETISCHE GRUNDLAGEN

2.1) Wachstum von Flüssigkeitströpfchen

Über das Wachstum von Flüssigkeitströpfchen ist eine große Anzahl von Arbeiten veröffentlicht worden. Die grundlegende Arbeit stammt von MAXWELL (1890). Seine Berechnung basiert auf den bekannten Kontinuums-Gleichungen für Diffusion und Wärmeleitung. In den folgenden Jahren konnten einige idealisierende Voraussetzungen in der Theorie MAXWELL's schrittweise beseitigt werden. Eine sehr übersichtliche Zusammenfassung dieser Arbeiten und einen reichhaltigen Literaturnachweis beinhaltet das Buch von FUCHS (1959). In neuerer Zeit wurden von mehreren Autoren, unter anderem BROCK (1966, 1967) weitere Fortschritte erzielt. Durch näherungsweise Lösung der Boltzmann'schen Transportgleichung ist es gelungen, das Problem des Kondensationsprozesses an Tröpfchen, deren Durchmesser in der Größenordnung der mittleren freien Weglänge des umgebenden Gases liegt, zu behandeln. FUCHS und SUTUGIN (1971) geben eine Übersicht über die neuere Entwicklung. Für die Anwendung auf Kondensationskernzähler ist das Problem des gleichzeitigen Wachstums mehrerer Tröpfchen wesentlich. Die exakte Lösung dieses Problems ist kompliziert, worauf bereits FUCHS (1934) hingewiesen hat. Abschätzungen und Näherungen sind jedoch von verschiedenen Autoren (z.B. REISS (1951)) vorgenommen worden. Im folgenden werden die Grundzüge der Theorie des Wachstums von Flüssigkeitströpfchen dargestellt, soweit sie für die vorliegende Arbeit von Bedeutung sind. Eine neue Näherung für das gleichzeitige Wachstum mehrerer Tröpfchen wird durchgeführt.

2.1.1) Wachstum eines einzelnen Tröpfchens in unendlich ausgedehnter Umgebung

Man betrachtet ein aus zwei Komponenten bestehendes physikalisches System. Die eine Komponente ist nur in gasförmigem Zustand vorhanden und wird als Trägergas bezeichnet. Die zweite Komponente, das Kondensat, ist ebenfalls in gasförmigem Zustand vorhanden (Dampf), daneben ist jedoch auch ein aus Kondensat bestehendes Flüssigkeitströpfchen vorhanden, dessen Radius a klein ist gegen die Systemdimensionen. In der vorliegenden Arbeit wird stets als Trägergas Luft, als Kondensat Wasser verwendet.

Für die Berechnung der Wachstumsvorgänge werden folgende Voraussetzungen gemacht:

- 1) Es treten keine chemischen Reaktionen auf.
- 2) Konvektionsströmungen oder Tröpfchenbewegungen seien vernachlässigbar (aus der Veröffentlichung von FRÖSSLING (1938) geht hervor, daß der Einfluß der Gravitation zu vernachlässigen ist, sofern der Teilchenradius unter $10 \mu\text{m}$ bleibt).
- 3) Sowohl das Dampfdichtefeld als auch das Temperaturfeld seien bereits stationär geworden.
- 4) An der Tröpfchenoberfläche sei der Dampf stets gesättigt.
- 5) Der Dampfdruck sei stets viel kleiner als der Gesamtdruck.
- 6) Wärmeübertragung durch Konvektion und Strahlung werde vernachlässigt.

Für den Kondensationsvorgang sind sowohl Massefluß als auch Wärmefluß durch die Oberfläche des Tröpfchens maßgebend. Es werde für das weitere vereinbart, daß ein Fluß dann als positiv bezeichnet wird, wenn er nach außen gerichtet ist. Die Berechnung der Transport-

erscheinungen verläuft sehr unterschiedlich, für verschiedene Tröpfchengrößen. Der entscheidende Parameter für die Berechnung der Flüsse ist die Knudsen-Zahl, definiert als $Kn = \lambda/a$, wobei λ die mittlere freie Weglänge im umgebenden Gas und a den Radius des Tröpfchens bedeutet.

$Kn \ll 1$: Bereich des Gaskontinuums (continuum regime).

In diesem Bereich sind die bekannten Kontinuums-Gleichungen für Diffusion und Wärmeleitung anwendbar.

$Kn \gg 1$: Bereich der freien Gasmoleküle (free molecule regime).

In diesem Bereich können die Flüsse durch einfache gaskinetische Berechnungen ermittelt werden. In der Nähe des Tröpfchens treten keine Molekülzusammenstöße auf.

$Kn \approx 1$: Übergangsbereich (transition regime).

Eine strenge Behandlung des Problems ist in diesem Bereich nur durch Lösung der Boltzmann'schen Transportgleichung möglich. Es können jedoch Näherungen erreicht werden mittels der sogenannten Methode der gleitenden Gasströmung. Diese Methode liefert jedoch nur in einem sehr beschränkten Bereich von Knudsen-Zahlen in der Nähe des Kontinuumsbereichs gute Resultate.

Für die Berechnung des Massentransportes sei zunächst der Kontinuumsbereich vorausgesetzt. Aus der Erhaltung der Masse folgt die Kontinuitätsgleichung

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \text{div}(\rho \vec{u}) = 0, \quad (2.1)$$

wobei ρ die Dampfdichte und \vec{u} die mittlere Geschwindigkeit der Dampfmoleküle bedeuten. Für die Flußdichte $\rho \vec{u}$ wird der übliche phänomenologische lineare Ansatz

$$\rho \vec{u} = -D \operatorname{grad} \rho \quad (2.2)$$

gemacht mit dem Diffusionskoeffizienten D des Dampfes im Trägergas. (2.2) wird auch als 1. Fick'sches Gesetz bezeichnet. Kombination von (2.1) und (2.2) ergibt die Diffusionsgleichung

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} - D \Delta \rho = 0, \quad (2.3)$$

die häufig als 2. Fick'sches Gesetz bezeichnet wird. Die Voraussetzung der Stationarität des Dichtefeldes ergibt wegen der offensichtlichen Kugelsymmetrie folgende Gleichung in Kugelkoordinaten:

$$\frac{d^2 \rho}{dr^2} + \frac{2}{r} \frac{d\rho}{dr} = 0 \quad (2.4)$$

Die Randbedingungen lauten

$$\rho(r = \infty) = \rho_{\infty} \quad (2.5)$$

$$\rho(r = a) = \rho_a$$

(2.4) und (2.5) werden gelöst durch

$$\rho = (\rho_a - \rho_{\infty}) \frac{a}{r} + \rho_{\infty} \quad (2.6)$$

Aus der hyperbolischen Dichteverteilung (2.6) ergibt sich mit Hilfe von (2.2) die Flußdichte an der Tröpfchenoberfläche zu

$$\rho \vec{u} = -D \left. \frac{d\rho}{dr} \right|_{r=a} = D \frac{\rho_a - \rho_{\infty}}{a}$$

woraus unmittelbar der Massefluß I_C durch die Tröpfchenoberfläche gewonnen wird:

$$I_C = 4\pi a D (\rho_a - \rho_\infty). \quad (2.7)$$

Der Index C steht dabei für continuum regime. Die Voraussetzung der geringen Dampfdichte gestattet die Anwendung der Zustandsgleichung für ideale Gase, womit (2.7) ohne großen Fehler in die Form

$$I_C = \frac{4\pi a D M}{RT_\infty} (p_a - p_\infty) \quad (2.8)$$

gebracht werden kann, wobei p_a den Dampfdruck über der Tröpfchenoberfläche und p_∞ , T_∞ Dampfdruck und Temperatur in großer Entfernung bedeuten. Im allgemeinen ist p_a durch die Kelvin-Gibbs-Gleichung

$$p_a = p_S(T_a) \exp\left(\frac{2M\sigma_F}{R\rho_F T_a} \frac{1}{a}\right) \quad (2.9)$$

für den Dampfdruck über einer gekrümmten Oberfläche gegeben, wobei σ_F die Oberflächenspannung, ρ_F die Dichte und T_a die Temperatur der Flüssigkeit bezeichnen. $p_S(T_a)$ ist der Sättigungsdampfdruck über einer ebenen Flüssigkeitsoberfläche bei der Temperatur T_a . Es zeigt sich, daß für Wassertropfchen mit $a > 0,1 \mu\text{m}$ in guter Näherung $p_a = p_S(T_a)$ gesetzt werden kann. Damit erhält man aus (2.8):

$$I_C = \frac{4\pi a D M}{RT_\infty} (p_S(T_a) - p_\infty). \quad (2.10)$$

Die Berechnung des Massetransportes für den Bereich freier Gasmoleküle beruht auf einfachen gaskinetischen Überlegungen. Man erhält für die mittlere absolute Flußdichte den Ausdruck $\rho\bar{v}/4$, wobei ρ die Dampfdichte

und \bar{v} die mittlere absolute Geschwindigkeit der Dampfmoleküle bezeichnen.

Der Fluß durch die Tröpfchenoberfläche ergibt sich unter der Voraussetzung, daß keine Molekülzusammenstöße stattfinden als Differenz von austretendem und eintretendem Fluß zu

$$I_F = 4\pi a^2 \bar{v} \alpha_m \frac{1}{4} (\rho_a - \rho_\infty). \quad (2.11)$$

Der Index F steht für free molecule regime. Der Masseakkomodationskoeffizient α_m stellt die Wahrscheinlichkeit dar, daß ein die Tröpfchenoberfläche treffendes Dampfmolekül kondensiert.

Die Berechnung des Massetransportes im Übergangsbereich gestaltet sich etwas komplizierter. SAHNI (1966) und BROCK (1966, 1967) haben Näherungslösungen der Boltzmann'schen Transportgleichung angegeben. Sie verwendeten dabei die auf BHATNAGAR, GROSS und KROOK (1954) zurückgehende Linearisierung des Kollisionsterms zu $(f_m - f)/\tau$, die als BGK-Approximation bekannt ist, wobei f die gesuchte Verteilungsfunktion, f_m die lokale Maxwell-Verteilung und τ von der Größenordnung der mittleren Stoßzeit ist. Die von SAHNI angegebene Lösung hat nach der von SMIRNOV (1971) durchgeführten Verallgemeinerung auf beliebige Masseakkomodationskoeffizienten α_m die Form

$$I_T = \frac{I_c}{1 + A \cdot Kn}. \quad (2.12)$$

Der Index T steht für transition regime.

Der Koeffizient A ist durch

$$A = \Lambda + \frac{4}{3\alpha_m} - \frac{4}{3}$$

gegeben, wobei Λ als Funktion von Kn^{-1} tabelliert ist.
Für die Grenzfälle erhält SAHNI

$$\begin{aligned} \Lambda &= 0,710 && \text{für } Kn \ll 1 \\ \Lambda &= 1,333 && \text{für } Kn \gg 1 . \end{aligned} \quad (2.13)$$

FUCHS (1969) verwendet die empirische Interpolationsformel

$$\Lambda = \frac{1,333 Kn + 0,71}{Kn + 1} = \frac{1,333 + 0,71 Kn^{-1}}{1 + Kn^{-1}} \quad (2.14)$$

die offensichtlich mit den angegebenen Grenzwerten (2.13) für Λ übereinstimmt. Aus (2.12) ergibt sich für den Grenzfall $Kn \ll 1$

$$I_T = \frac{I_C}{1 + \left(\frac{4}{3\alpha_m} - 0,623 \right) Kn} , \quad (2.15)$$

während man für $Kn \gg 1$

$$I_T = \frac{I_F}{1 + \frac{3\alpha_m}{4} Kn^{-1}} \quad (2.16)$$

erhält.

In der Nähe des Kontinuumsbereiches kann in guter Näherung die Methode der gleitenden Gasströmung angewendet werden, die auf FUCHS zurückgeht. Dabei wird angenommen, daß für $a < r < a + \delta$ der Massetransport dem Bereich freier Gasmoleküle entspricht, während für $r > a + \delta$ der Kontinuumsbereich vorliegt.

δ ist dabei von der Größenordnung der mittleren freien Weglänge λ . Mit der Bezeichnung ρ ($r = a + \delta$) = ρ_1 erhält man aus der Tatsache, daß die Flüsse durch die Tröpfchenoberfläche und durch die Fläche $r = a + \delta$ gleich sind

$$I_T = \pi a^2 \bar{v} \alpha_m (\rho_a - \rho_1) = 4\pi(a+\delta) D (\rho_1 - \rho_\infty) .$$

Durch Elimination von ρ_1 und mittels des Ansatzes $\delta = \zeta \lambda$ erhält man unter Verwendung des gaskinetisch gewonnenen Ausdruckes $D = \bar{v} \lambda / 3$

$$I_T = \frac{I_C}{\frac{4}{3} \frac{Kn}{\alpha_m} + \frac{1}{1+\zeta Kn}} . \quad (2.17)$$

Aus (2.17) ergibt sich für $Kn \ll 1, \zeta = \frac{2}{3}$

$$I_T = \frac{I_C}{1 + \left(\frac{4}{3\alpha_m} - \frac{2}{3} \right) Kn} , \quad (2.18)$$

während man für $Kn \gg 1, \zeta = 1$ folgenden Ausdruck erhält:

$$I_T = \frac{I_F}{1 + \frac{3\alpha_m}{4} Kn^{-2}} . \quad (2.19)$$

Durch Vergleich mit (2.16) erkennt man, daß (2.19) nicht den richtigen Ausdruck für I_T darstellt. Dagegen erhält man sehr gute Übereinstimmung von (2.15) und (2.18). Damit im Einklang steht die Tatsache, daß die Methode der gleitenden Gasströmung allgemein nur nahe dem Kontinuumsbereich anwendbar ist.

Gemäß (2.15), (2.18) erkennt man, daß bei Normalbedingungen für Tröpfchen mit $a > 0,5 \mu\text{m}$ I_C eine gute Näherung für den Massefluß darstellt.

Die Berechnung des Energietransportes verläuft völlig analog zum Massetransport. Entsprechend (2.7) erhält man im Kontinuumsbereich für den Wärmefluß H_C durch die Tröpfchenoberfläche

$$H_C = 4\pi aK(T_a - T_\infty), \quad (2.20)$$

wobei K das Wärmeleitvermögen des Trägergases bezeichnet. Der Index C steht für continuum regime. Bei der Herleitung von (2.20) wird angenommen, daß der Energietransport nur im Trägergas erfolgt, was wegen der vorausgesetzten niedrigen Dampfdichte zulässig ist. Außerdem wird die Wärmeübertragung durch Konvektion und Strahlung vernachlässigt.

Die Berechnung des Wärmeflusses im Bereich freier Gas-moleküle und im Übergangsbereich wurde von SMIRNOV (1971) durchgeführt. Entsprechend dem Masseakkomodationskoeffizienten wird dabei ein thermischer Akkomodationskoeffizient α_t verwendet. Die Ergebnisse sind analog zum Massetransport und zeigen, daß bei Normalbedingungen für Tröpfchen mit $a > 0,5 \mu\text{m}$ H_C eine gute Näherung für den Wärmefluß darstellt.

Um eine Berechnung des Tröpfchenwachstums vornehmen zu können, ist eine Verbindung von Masse- und Energietransport notwendig. Zu dieser Verbindung gelangt man durch die Annahme, daß die Wärmekapazität des Tröpfchens so klein ist, daß die gesamte freiwerdende Umwandlungswärme durch die Tröpfchenoberfläche austritt.

Damit ergibt sich für den Kontinuumsbereich:

$$H_C = - L I_C , \quad (2.21)$$

wobei L die spezifische Umwandlungswärme bezeichnet.

Mittels (2.20), (2.21) erhält man einen weiteren Ausdruck für den Massefluß:

$$I_C = - \frac{4\pi a K}{L} (T_a - T_\infty). \quad (2.22)$$

Zur Elimination von T_a und $p_S(T_a)$ aus den Gleichungen (2.10) und (2.22) verwendet man die Clausius-Clapeyron'sche Gleichung, die durch Vernachlässigung des spezifischen Volumens der Flüssigkeit und Einsetzen der Zustandsgleichung für ideale Gase folgende Form annimmt:

$$\frac{d p_S(T)}{dT} = \frac{L p_S(T) M}{RT^2} . \quad (2.23)$$

Durch Integration von $r = \infty$ bis $r = a$ erhält man ohne großen Fehler den Ausdruck

$$\ln \frac{p_S(T_a)}{p_S(T_\infty)} = \frac{LM}{RT_\infty^2} (T_a - T_\infty). \quad (2.24)$$

Aus (2.10), (2.22) und (2.24) erhält man schließlich in guter Näherung

$$I_C = \frac{4\pi a (p_S(T_\infty) - p_\infty)}{\frac{RT_\infty}{DM} + \frac{L^2 M p_S(T_\infty)}{KRT_\infty^2}} \quad (2.25)$$

Die detaillierte Herleitung von (2.25) findet sich beispielsweise in MASON (1957).

Die durch den Massetransport hervorgerufene Änderung des Tröpfchenradius bewirkt eine Störung der Stationarität von Dichte- und Temperaturfeld. FUCHS (1959) bemerkt, daß eine exakte Berücksichtigung dieser Nichtstationarität sehr kompliziert ist. In den meisten Fällen sind jedoch die Relaxationszeiten des Systems klein gegen die typischen Wachstumszeiten. Damit kann das Dichte- und das Temperaturfeld als quasistationär angenommen werden, d.h. beide Felder haben in jedem Augenblick die stationäre Form, die den gerade vorliegenden Randbedingungen entspricht. Mit dieser Annahme erhält man

$$I_C = - \frac{dm_T}{dt}, \quad (2.26)$$

wobei $m_T = 4\pi a^3 \rho_F / 3$ die Masse des Tröpfchens bedeutet. ρ_F ist die Dichte der Tröpfchenflüssigkeit. Durch Kombination von (2.25) und (2.26) ergibt sich

$$a \frac{da}{dt} = \frac{p_\infty - p_S(T_\infty)}{\frac{R\rho_F T_\infty}{DM} + \frac{L^2 M \rho_F p_S(T_\infty)}{KRT_\infty^2}} \quad (2.27)$$

Falls die rechte Seite von (2.27) konstant ist, liefert die Integration schließlich unter Berücksichtigung der Anfangsbedingungen das folgende Wachstumsgesetz:

$$a^2 = a_0^2 + \frac{2(p_\infty - p_S(T_\infty)) t}{\frac{R\rho_F T_\infty}{DM} + \frac{L^2 M \rho_F p_S(T_\infty)}{KRT_\infty^2}} \quad (2.28)$$

Die durchgeführten Berechnungen führen zu dem Schluß, daß (2.28) für einzelne Tröpfchen mit $a > 0,5 \mu\text{m}$ eine gute Näherung darstellt.

Aus dem Wachstumsgesetz (2.28) ist ersichtlich, daß das Tröpfchenwachstum sowohl von der Diffusion, als auch von der Wärmeleitung bestimmt wird. Der Nenner auf der rechten Seite von (2.28) besteht nämlich aus einem, die Diffusionskonstante D enthaltenden Massetransportterm und einem das Wärmeleitvermögen K enthaltenden Energietransportterm.

In neuerer Zeit wurde die Berechnung des Tröpfchenwachstums auch für den Übergangsbereich vorgenommen.

FUKUTA und WALTER (1970) verwendeten die Methode der gleitenden Gasströmung zur Berechnung von Masse- und Energietransport. Die erhaltenen Gleichungen sind daher nur nahe dem Kontinuumsbereich gültig. Durch Verbindung der Flüsse gemäß (2.21) und unter Anwendung von (2.24) gelangen FUKUTA und WALTER zu einem Ausdruck entsprechend (2.25), bei dem die beiden Summanden im Nenner (Massetransportterm und Energietransportterm) durch entsprechende Faktoren korrigiert sind. Diese Faktoren sind sowohl vom Tröpfchenradius, als auch von den Akkomodationskoeffizienten α_m und α_t abhängig. Aus den numerischen Berechnungen geht hervor, daß diese Korrekturfaktoren erst bei Tröpfchenradien oberhalb von ungefähr $100 \mu\text{m}$ weitgehend unabhängig von den Akkomodationskoeffizienten gleich 1 gesetzt werden können. Dieses Ergebnis unterscheidet sich von der Gleichung (2.25), die bereits für Radien über $0,5 \mu\text{m}$ Unabhängigkeit von α_m und α_t vorhersagt. Außerdem zeigt sich, daß die Korrekturfaktoren auch unter der Annahme $\alpha_m = \alpha_t = 1$ vom Tröpfchenradius abhängig sind und erst für Radien oberhalb von $10 \mu\text{m}$ in guter Näherung weggelassen werden können. Durch numerische Integration gelangen FUKUTA und WALTER auch zu Tröpfchenwachstumskurven.

Auf den durch näherungsweise Lösung der Boltzmann'schen Transportgleichung erhaltenen Ausdrücken für Masse- und Energietransport beruht die Berechnung von SMIRNOV (1971). Dementsprechend gelten die von SMIRNOV gewonnenen Ergebnisse für beliebige Knudsen-Zahlen. Die zusätzliche Berücksichtigung des Kelvin-Effektes, der Dampfdruckerniedrigung durch gelöste Substanzen und einer eventuellen elektrischen Ladung des Tröpfchens führt zu einem etwas komplizierten Ausdruck für den Massefluß, der jedoch ebenfalls grundsätzlich die Form (2.25) aufweist. Eine Integration zur Ermittlung des zeitlichen Verlaufes des Tröpfchenradius wird nicht durchgeführt.

Durch Anwendung der von FUCHS (1969) angegebenen Interpolationsformel (2.14) und durch Vernachlässigung der durch die Umwandlungswärme hervorgerufenen Temperaturunterschiede gelingt DAVIES (1973) eine analytische Integration des Ausdruckes für den Massefluß.

Eine Schwäche der moderneren Untersuchungen ist die ungenaue Kenntnis der Akkomodationskoeffizienten. In der Literatur sind für Wasser Werte von α_m zwischen 0,02 (VUL'FSON und LEVIN, 1965) und 1 (JER RU MAA, 1967) angegeben. OKUYAMA und ZUNG (1967) erhalten Masseakkomodationskoeffizienten, die von Tröpfchenradius, Temperatur und anderen Parametern abhängig sind. FUKUTA und WALTER verwenden $\alpha_m = 0,0415$, $\alpha_t = 1$. FUCHS und SUTUGIN (1971) weisen darauf hin, daß der Massetransport im Kontinuumsbereich unabhängig vom α_m und α_t ist, wogegen SCHUSTER (1967) in den Kontinuumsgleichungen den Diffusionskoeffizienten D durch $0,21 D$ ersetzt und gute Übereinstimmung mit seinen Experimenten erhält.

HIRTH und POUND (1963) bemerken, daß elastische Reflexionen von Dampfmolekülen an der Tröpfchenoberfläche sehr unwahrscheinlich sind und dementsprechend für Flüssigkeiten stets $\alpha_t = 1$ gesetzt werden kann. Für die Kondensation an Festkörpern ist jedoch die Berücksichtigung von α_m und α_t sehr wesentlich. BRADLEY (1955) zeigt, daß die Kondensation an Flüssigkeitströpfchen, die mit einem dünnen Verunreinigungsfilm überzogen sind, formal durch Einführung eines sehr kleinen Masseakkomodationskoeffizienten behandelt werden kann.

2.1.2) Wachstumsvorgang in einem Tröpfchenaerosol

Es seien nun mehrere gleich große Tröpfchen statistisch verteilt im betrachteten System vorhanden. Der mittlere Abstand benachbarter Tröpfchen sei groß gegen den Tröpfchenradius. Weil eine nennenswerte gegenseitige Beeinflussung der Tröpfchen nur bei kleinen Knudsenzahlen zu erwarten ist, werde im folgenden der Kontinuumsbereich vorausgesetzt. Der Masse- und Energietransport bewirkt während des Tröpfchenwachstums eine Veränderung der Dampfdichte und Temperatur im gesamten System.

In guter Näherung können diese Vorgänge durch das Zellenmodell (cellular model) beschrieben werden. Dabei wird angenommen, daß sich jedes Tröpfchen im Mittelpunkt einer kugelförmigen Zelle mit isolierenden Wänden befindet, deren Volumen durch das mittlere einem Tröpfchen zur Verfügung stehende Dampfvolumen gegeben ist. Die Randbedingungen (2.5) für das Dichtefeld sind in diesem Fall offensichtlich zu ersetzen durch

$$\rho(r = a) = \rho_a$$

$$\left. \frac{\partial \rho}{\partial r} \right|_{r = b} = 0$$

wobei a den Tröpfchenradius und b den Zellenradius bezeichnet. Eine analoge Änderung ergibt sich auch für das Temperaturfeld. Die Lösung dieses Randwertproblems ist nicht stationär und stößt auf erhebliche Schwierigkeiten. Eine Abschätzung ist in FUCHS (1934) enthalten. REISS und LA MER (1950) geben eine Näherungslösung an, wobei die Umwandlungswärme vernachlässigt wird. CARSTENS (1966) führt die Rechnung für Masse- und Wärmetransport durch und erhält ziemlich komplizierte mathematische Beziehungen. Die numerischen Resultate unterscheiden sich nur wenig von der quasistationären Theorie.

Bei hinreichend niedrigen Tröpfchenkonzentrationen kann auch auf eine andere Weise eine Näherung für das gleichzeitige Wachstum erreicht werden. Aus der Dichteverteilung (2.6) erkennt man, daß nur in der unmittelbaren Umgebung eines Tröpfchens erhebliche Dichtegradienten auftreten, während in größerer Entfernung die Dampfdichte in guter Näherung als räumlich konstant angenommen werden kann. Analoges gilt auch für das Temperaturfeld. Dementsprechend kann jedes Tröpfchen mit einer kugelförmigen Zelle mit Radius b umgeben werden derart, daß innerhalb der Zelle erhebliche Dichte- und Temperaturgradienten und entsprechende Flußdichten auftreten, während außerhalb der Zelle das Dichte- und Temperaturfeld in guter Näherung räumlich konstant ist. Die Berechnung des gleichzeitigen Wachstum mehrerer Tröpfchen kann damit zurückgeführt werden auf die Berechnung für ein Tröpfchen mit den Randbedingungen

$$\begin{aligned}\rho(r = a) &= \rho_a \\ \rho(r = b) &= \rho_\infty\end{aligned}$$

(2.29)

$$\begin{aligned}\text{bzw. } T(r = a) &= T_a \\ T(r = b) &= T_\infty,\end{aligned}$$

wobei ρ_{∞} und T_{∞} während des Wachstumsvorganges langsam zeitlich veränderlich sind.

Die Lösung der Randwertprobleme (2.29) führt auf Ausdrücke für den Masse- bzw. Wärmefluß, die sich um den Faktor $\frac{1}{1-a/b}$ von (2.7) bzw. (2.20) unterscheiden. Weil b stets groß ist gegen a , können in guter Näherung die Berechnungen in 2.1.1) übernommen werden.

Bei der Berechnung von ρ_{∞} und T_{∞} , benützt man die Voraussetzung der niedrigen Tröpfchenkonzentration, die es erlaubt, das Gesamtvolumen aller Zellen gegen das Systemvolumen zu vernachlässigen. Für die Berechnung von T_{∞} kann zunächst wegen der vorausgesetzten geringen Dampfdichte der Dampfanteil gegen das Trägergas vernachlässigt werden. Zusätzlich sei vorausgesetzt, daß der Gesamtdruck zeitlich konstant ist, was für eine druckdefinierte Expansionskammer (siehe 2.2)) zutrifft. Bei einer Änderung der Masse m_T jedes einzelnen Tröpfchens um dm_T wird offensichtlich pro Volumseinheit die Umwandlungswärme $LC dm_T$ freigesetzt, wobei L die spezifische Umwandlungswärme und C die Anzahl der Tröpfchen pro Volumseinheit (Tröpfchenkonzentration) bedeutet. Die entsprechende Änderung der mittleren Temperatur T_{∞} des Systems ergibt sich damit zu

$$dT_{\infty} = \frac{LC dm_T}{\rho_T c_p}, \quad (2.30)$$

wobei c_p die spezifische Wärmekapazität des Trägergases bei konstantem Druck und ρ_T die Dichte des Trägergases bedeutet.

Unter der Annahme, daß L , C , ρ_T und c_p im betrachteten Temperaturbereich in ausreichender Näherung konstant sind, erhält man aus (2.30) nach Einsetzen von $m_T = 4\pi a^3 \rho_F / 3$ und Integration unter Berücksichtigung der Anfangsbedingungen, für die mittlere Temperatur des Systems den Ausdruck

$$T_\infty = (T_\infty)_0 + \frac{\rho_F L}{\rho_T c_p} \left[\frac{4\pi}{3} C (a^3 - a_0^3) \right] \quad (2.31)$$

Bei der Berechnung von ρ_∞ geht man von der Voraussetzung aus, daß der durch Kondensation verbrauchte Dampf innerhalb der Tröpfchenwachstumszeit nicht aus der Umgebung ersetzt werden kann. Diese Voraussetzung ist bei volumsdefinierten und druckdefinierten Expansionskammern (siehe 2.2) erfüllt. Eine Masseänderung dm_T jedes einzelnen Tröpfchens entspricht dann offenbar einer Änderung der mittleren Dampfdichte ρ_∞ um

$$d\rho_\infty = - C dm_T. \quad (2.32)$$

Analog wie im Anschluß an (2.30) ergibt sich aus (2.32)

$$\rho_\infty = (\rho_\infty)_0 - \rho_F \left[\frac{4\pi}{3} C (a^3 - a_0^3) \right] \quad (2.33)$$

Durch Anwendung der Zustandsgleichung für ideale Gase und Einsetzen von T_∞ gemäß (2.31) erhält man aus (2.33) nach einigen Umformungen folgenden Ausdruck für den mittleren Dampfdruck:

$$p_\infty = (p_\infty)_0 + \left[\frac{(p_\infty)_0 \rho_F L}{(T_\infty)_0 \rho_T c_p} - \frac{(T_\infty)_0 \rho_F R}{M} \right] \left[\frac{4\pi}{3} C (a^3 - a_0^3) \right] - \frac{\rho_F^2 R L}{\rho_T M c_p} \left[\frac{4\pi}{3} C (a^3 - a_0^3) \right]^2 \quad (2.34)$$

Die Ausdrücke (2.31) und (2.34) beschreiben die Abhängigkeit der mittleren Temperatur und des mittleren Dampfdruckes vom Tröpfchenradius und von der Tröpfchenkonzentration.

Durch Integration der Clausius-Clapeyron'schen Gleichung (2.23) ergibt sich, daß der Sättigungsdampfdruck näherungsweise in die Form

$$p_S(T) = A \exp\left(-\frac{B}{T}\right) \quad (2.35)$$

gebracht werden kann. A und B sind dabei Konstanten. Ist der Sättigungsdampfdruck bei den Temperaturen T_1 und T_2 bekannt, so können die Konstanten A und B berechnet werden und (2.35) liefert nach einiger Rechnung die Interpolationsformel

$$p_S(T) = p_S(T_1) \left[\frac{p_S(T_2)}{p_S(T_1)} \right]^{\frac{T_2(T-T_1)}{T(T_2-T_1)}} \quad (2.36)$$

Die Berechnung von $p_S(T)$ gemäß (2.36) gestaltet sich besonders einfach, wenn $p_S(T_2) = 10 p_S(T_1)$ gewählt wird. Der relative Fehler der Ergebnisse liegt meistens unter 1 %. Für genauere Berechnungen, die oft nicht notwendig sind, können empirische Dampfdruckgleichungen verwendet werden. Für Wasser von 0°C bis 95°C hat beispielsweise GERRY eine empirische Formel aufgestellt, die in WUKALOWITSCH (1958) enthalten ist.

Die Berechnung des Tröpfchenwachstums kann nun durch Integration von (2.27) durchgeführt werden, wobei allerdings die rechte Seite von (2.27) jetzt eine Funktion des Tröpfchenradius a ist.

Unter Berücksichtigung der Anfangsbedingungen erhält man

$$t = \int_{a_0}^a \frac{a'}{p_\infty - p_S(T_\infty)} \left[\frac{\rho_F R T_\infty}{DM} + \frac{L^2 M \rho_F p_S(T_\infty)}{K R T_\infty^2} \right] da' \quad (2.37)$$

Nach Einsetzen von (2.31), (2.34) und (2.36) kann das Integral numerisch ausgewertet werden. Durch Übergang zur Umkehrfunktion erhält man den Tröpfchenradius als Funktion der Zeit. Damit kann durch Einsetzen in (2.31), (2.34) und (2.36) auch die Temperatur T_∞ und das Sättigungsverhältnis ^{†)} $S = p_\infty/p_S(T_\infty)$ als Funktion der Zeit berechnet werden. Ergebnisse der numerischen Auswertungen sind in 4.4.2) dargestellt. Im Grenzfall $C \rightarrow 0$ erhält man offensichtlich wieder das Wachstumsgesetz (2.28) und konstante Werte für T_∞ , p_∞ und S .

Die beschriebene Näherung für das gleichzeitige Wachstum mehrerer Tröpfchen wurde erstmals von REISS (1951) vorgeschlagen. REISS gelangt zu einer (2.33) entsprechenden Gleichung, vernachlässigt jedoch die durch die Umwandlungswärme hervorgerufene Temperaturänderung, was zu erheblichen Abweichungen führen kann. Der Vorteil der in der vorliegenden Arbeit durchgeführten Berechnung gegenüber dem Zellenmodell liegt darin, daß die quasi-stationären Lösungen verwendet werden können und die Berechnung damit wesentlich vereinfacht wird. Außerdem wird der statistischen Anordnung der Tröpfchen Rechnung getragen, während das Zellenmodell strenggenommen eine äquidistante Tröpfchenanordnung voraussetzt, worauf bereits REISS (1951) hingewiesen hat. Nachteilig hingegen erscheint die Beschränkung auf kleine Tröpfchenkonzentrationen. REISS gibt als obere Grenze 10^6 cm^{-3} an, falls der Tröpfchenradius $5 \mu\text{m}$ nicht übersteigt. Dazu ist zu bemerken, daß bei hohen Tröpfchenkonzentrationen das Wachstum bereits bei kleinen Tröpfchenradien zum Stillstand kommt, so daß das Verhältnis hinreichend klein bleibt. Andererseits führen zu große Tröpfchenabstände

†) Das Sättigungsverhältnis wird häufig auch als relative Feuchte oder Übersättigung bezeichnet.

zu langen Relaxationszeiten bei der Einstellung der quasistationären flachen Temperatur- und Dampfdichteprofile, sodaß die Annahme der Quasistationarität nichtmehr gerechtfertigt erscheint. MASON (1951) schätzt ab, daß die Temperatur- und Dampfdichteprofile nach ungefähr 1 ms hinreichend flach werden. Dieser Wert liegt aber noch ungefähr eine Größenordnung unter den typischen Wachstumszeiten.

2.2) Thermodynamische Bedingungen in der Expansionskammer

Zur Herstellung des für die Untersuchung des Tröpfchenwachstums notwendigen übersättigten Dampfes können Mischwolkenkammern oder Expansionskammern eingesetzt werden. In der Mischwolkenkammer wird die Übersättigung durch Mischung von feuchtgesättigten Luftmassen verschiedener Temperatur erzielt. Es bildet sich eine Zone konstanter Übersättigung aus, in der der Tröpfchenwachstumsprozeß stattfinden kann. Ein Nachteil der Mischwolkenkammer besteht darin, daß die Einstellung nennenswerter Übersättigungen langsam erfolgt im Vergleich mit den Tröpfchenwachstumszeiten.

Die Expansionskammer arbeitet im wesentlichen nach dem Prinzip der bekannten Wilson'schen Nebelkammer. Das Innere der Kammer ist zunächst mit (nahezu) gesättigtem Dampf und einem Trägergas gefüllt. Durch eine Expansion wird die Temperatur in der Kammer erniedrigt und Übersättigung tritt ein. Die Expansion kann durch Verschieben eines Kolbens in einem Zylinder (volumsdefinierte Kammer) oder durch Öffnen eines Ventiles (druckdefinierte Kammer) erfolgen. Der Vorteil der volumsdefinierten Kammer liegt in der Reversibilität des Expansionsvorganges und in der weitgehenden Unterdrückung von Turbulenzen. Ein Nachteil hingegen ist die unmittelbar nach Ende der

Expansion einsetzende Druckerhöhung im gesamten Kammer-
volumen, die durch die Erwärmung und Ausdehnung der in
der Nähe der Kammerwand befindlichen Gasschicht hervor-
gerufen wird. Dadurch wird eine Wiedererwärmung des
gesamten Inhaltes der Kammer bewirkt, noch bevor die
Wärmeleitung merkbar einsetzt.

Bei einer druckdefinierten Kammer tritt dieser Effekt
nicht auf, weshalb die Übersättigung im Vergleich zur
volumsdefinierten Kammer länger erhalten bleibt. Ein
weiterer Vorteil der druckdefinierten Kammer besteht
darin, daß der Expansionsvorgang wegen der geringeren
zu beschleunigenden Massen im allgemeinen schneller
abläuft als bei einer volumsdefinierten Kammer. Dement-
sprechend wurde trotz der Neigung zu Turbulenzen, in der
vorliegenden Arbeit eine druckdefinierte Kammer einge-
setzt.

Die möglichst genaue Kenntnis der thermodynamischen Para-
meter am Ende der Expansion ist von ausschlaggebender
Bedeutung für die Interpretation des gemessenen Tröpfchen-
wachstums. Dementsprechend muß untersucht werden, unter
welchen Voraussetzungen die während der Expansion ein-
tretende Abkühlung adiabatisch erfolgt. Zunächst muß
sichergestellt sein, daß während der Expansion der Wärme-
austausch mit den Kammerwänden vernachlässigt werden kann.
Diese Forderung kann durch geeignete Konstruktion der
Kammer und hinreichend schnelle Expansion erfüllt werden.
Außerdem muß gewährleistet sein, daß der Expansionsvorgang
beendet ist, bevor das Tröpfchenwachstum einsetzt, weil
ansonsten die bei der Kondensation freiwerdende Umwandlungs-
wärme bereits während der Expansion eine Aufheizung des
Systems bewirkt und das Erreichen der adiabatisch berech-
neten Endtemperatur verhindert. Über die Durchführbarkeit
dieser trockenadiabatischen Expansion besteht eine noch
nicht abgeschlossene Diskussion.

ISRAEL und NIX (1966 a, 1966 b) sowie NIX (1972) stellten fest, daß in der Expansionskammer eines Pollak-Zählers während der gesamten Expansion Sättigungsverhältnisse von 105 % nicht überschritten werden, während die adiabatisch berechnete Temperaturabnahme zu einem Sättigungsverhältnis von 270 % führen würde. Dieses Ergebnis wurde von SEMONIN und HAYES (1968) bestätigt. Dagegen berechneten VIETTI und SCHUSTER (1973) das Sättigungsverhältnis am Ende der Expansion aufgrund der Adiabatengleichung und erhielten gute Übereinstimmung der gemessenen Tröpfchenwachstumsgeschwindigkeiten mit verschiedenen Tröpfchenwachstumstheorien. Die Frage der trockenadiabatischen Expansion ist eng mit der Tröpfchenwachstumsgeschwindigkeit verknüpft und wird in der vorliegenden Arbeit genauer untersucht.

Im folgenden wird die Berechnung von Temperatur, Druck und Sättigungsverhältnis am Ende der Expansion für volums- und druckdefinierte Expansionskammern unter der Annahme durchgeführt, daß eine trockenadiabatische Expansion vorliegt.

In einer volumsdefinierten Expansionskammer mit Anfangsvolumen V_i befinde sich ein Gemisch aus Trägergas und Dampf mit Anfangstemperatur T_i und Anfangsgesamtdruck P_i . Der Anfangspartialdruck p_i des Dampfes sei klein gegen den Anfangsgesamtdruck. Durch Verschieben des Kolbens wird die Expansionskammer auf das Endvolumen V_e vergrößert. Das (Volums)expansionsverhältnis ist definiert durch

$$\gamma = \frac{V_e}{V_i} \quad (2.38)$$

Da das Trägergas weit entfernt ist vom Phasenübergangsbereich und der Dampf nur in geringer Dichte vorliegt, können zur Berechnung der Endtemperatur T_e und des Endgesamtdruckes P_e die Adiabatengleichungen für ideale Gase

$$T_e = T_i \left(\frac{V_i}{V_e} \right)^{\kappa-1} = T_i \gamma^{1-\kappa} \quad (2.39)$$

$$P_e = P_i \left(\frac{V_i}{V_e} \right)^{\kappa} = P_i \gamma^{-\kappa} \quad (2.40)$$

herangezogen werden, wobei $\kappa = c_p/c_v$ auf das Gasgemisch bezogen ist. Wegen der vorausgesetzten geringen Dampfdichte kann für κ in guter Näherung der auf das Trägergas bezogene Wert eingesetzt werden. Eine genauere Bestimmung von κ kann mittels der auf RICHARZ (1906) zurückgehende Näherungsformel

$$\frac{1}{\kappa-1} = \frac{\rho_T}{\rho_T - \rho_D} \frac{1}{\kappa_T - 1} + \frac{\rho_D}{\rho_D - \rho_T} \frac{1}{\kappa_D - 1}$$

erfolgen, wobei κ_T bzw. κ_D die Verhältnisse der spezifischen Wärmen und ρ_T bzw. ρ_D die Partialdichten des Trägergases bzw. des Dampfes bezeichnen. Da die Temperaturen und Volumina des Trägergases und des Dampfes stets übereinstimmen, folgen auch die Partialdrücke der Adiabatengleichung (2.40).

Insbesondere erhält man für den Endpartialdruck p_e des Dampfes den Ausdruck

$$P_e = P_i \left(\frac{V_i}{V_e} \right)^{\kappa} = P_i \gamma^{-\kappa} \quad (2.41)$$

Damit ergibt sich das Sättigungsverhältnis unmittelbar nach der Expansion zu

$$S = \frac{P_e}{p_S(T_e)} = \frac{P_i}{p_S(T_e) \gamma^K} \quad (2.42)$$

wobei $p_S(T_e)$ den Sättigungsdampfdruck bei der Temperatur T_e bezeichnet. Ist der Dampf vor Beginn der Expansion gesättigt, gilt also $p_i = p_S(T_i)$, dann erhält man aus (2.42) folgenden Ausdruck für das Sättigungsverhältnis:

$$S = \frac{p_S(T_i)}{p_S(T_e) \gamma^K} \quad (2.43)$$

Die Berechnung der thermodynamischen Parameter in einer druckdefinierten Expansionskammer verläuft ähnlich. Die Expansionskammer mit Volumen V sei zunächst durch ein geschlossenes Ventil von einem Rezipienten mit Volumen V' getrennt. In der Expansionskammer befinde sich ein Gemisch aus Trägergas und Dampf mit Anfangstemperatur T_i und Anfangsgesamtdruck P_i . Der Anfangspartialdruck p_i des Dampfes sei wieder klein gegen den Anfangsgesamtdruck. Im Rezipienten herrsche ein Anfangsdruck P_i' . Durch Öffnen des Ventiles stellt sich in der Expansionskammer und im Rezipienten ein Endgesamtdruck P_e ein. Das (Druck)expansionsverhältnis ist definiert durch

$$\beta = \frac{P_i}{P_e} \quad (2.44)$$

Bei der Berechnung von β werde der Dampfanteil gegen das Trägergas vernachlässigt. Unter der Voraussetzung, daß während des Expansionsvorganges kein Wärmeaustausch mit

der Umgebung stattfindet, bleibt gemäß erstem Hauptsatz der Thermodynamik die gesamte innere Energie des betrachteten System ungeändert. Die gesamte innere Energie ist vor der Expansion gegeben durch

$$\frac{M_T c_V}{R} (P_i V + P_i' V') \quad (2.45)$$

und beträgt nach der Expansion

$$\frac{M_T c_V}{R} (P_e V + P_e V') \quad , \quad (2.46)$$

wobei M_T das Molekulargewicht des Trägergases bezeichnet. Durch Gleichsetzen von (2.45) und (2.46) erhält man nach Umformung für das Druckexpansionsverhältnis den Ausdruck

$$\beta = \frac{\frac{V}{V'} + 1}{\frac{V}{V'} + \frac{P_i'}{P_i}} \quad (2.47)$$

Mit der Bezeichnung $\Delta P = P_i - P_i'$ für den Differenzdruck ergibt sich

$$\beta = \frac{\frac{V}{V'} + 1}{\frac{V}{V'} + 1 - \frac{\Delta P}{P_i}} \quad (2.48)$$

Für die Endtemperatur T_e in der Expansionskammer liefert die Adiabatengleichung für ideale Gase

$$T_e = T_i \left(\frac{P_e}{P_i} \right)^{\frac{\kappa-1}{\kappa}} = T_i \beta^{\frac{1-\kappa}{\kappa}} \quad , \quad (2.49)$$

wobei wieder $\kappa = c_p/c_v$ auf das Gasgemisch bezogen ist. Unter der Voraussetzung, daß während des Expansionsvorganges die Partialdichte des Dampfes stets in konstantem Verhältnis zur Gesamtdichte steht, ergibt sich wegen der Übereinstimmung der Temperaturen des Trägergases und des Dampfes auch ein konstantes Verhältnis des Partialdruckes des Dampfes zum Gesamtdruck. Dementsprechend erhält man für den Endpartialdruck p_e des Dampfes in der Expansionskammer den Ausdruck

$$p_e = p_i \frac{p_e}{p_i} = \frac{p_i}{\beta} \quad (2.50)$$

Damit ergibt sich das Sättigungsverhältnis unmittelbar nach der Expansion zu

$$S = \frac{p_e}{p_S(T_e)} = \frac{p_i}{p_S(T_e) \beta} \quad (2.51)$$

Ist der Dampf vor Beginn der Expansion gesättigt, dann erhält man aus (2.51) folgenden Ausdruck für das Sättigungsverhältnis:

$$S = \frac{p_S(T_i)}{p_S(T_e) \beta} \quad (2.52)$$

2.3) Lichtstreuung an Kugeln

In der vorliegenden Arbeit wird die Bestimmung der Größe von Kondensationströpfchen durch Bestrahlung mit einem Laserstrahl und Messung der Streulichtintensität durchgeführt. Der Vergleich von theoretischen und experimentellen Streulichtintensitäten erlaubt, wie im folgenden gezeigt wird, eine eindeutige Bestimmung des Tröpfchenradius.

Erste Berechnungen von Streulichtintensitäten gehen in das vorige Jahrhundert zurück. LORD RAYLEIGH (1871) berechnete die Streuung von elektromagnetischen Wellen an Teilchen, deren Durchmesser klein ist im Vergleich zur Wellenlänge des einfallenden Lichtes. Die Lichtstreuung an Kugeln, deren Durchmesser in der Größenordnung der Wellenlänge des einfallenden Lichtes liegt, wurde bereits von LORENZ (1880) behandelt. MIE (1908) und DEBYE (1909) gelingt eine exakte Lösung auf der Grundlage der Maxwell-Gleichungen. Die so gewonnene Streutheorie ist unter dem Namen Mie'sche Streutheorie bekannt. Im folgenden werden die wichtigsten Lösungsansätze und Ergebnisse der Mie'schen Streutheorie zusammengestellt. Ausführliche Darstellungen finden sich beispielsweise in BORN, WOLF (1959), VAN DE HULST (1957) und KERKER (1969).

2.3.1) Skizze der Mie'schen Streutheorie

In einem homogenen isotropen nichtabsorbierenden Medium mit Dielektrizitätskonstante ϵ^I und Permeabilität $\mu^I = 1$ befinde sich eine homogene isotrope Kugel mit Radius a , Dielektrizitätskonstante ϵ^{II} , Permeabilität $\mu^{II} = 1$ und elektrischer Leitfähigkeit σ^{II} .

Auf diese Kugel falle eine ebene linear polarisierte Welle mit Kreisfrequenz ω . Die Amplitude des elektrischen Feldvektors sei \vec{E}_0 .

In den beiden Medien findet eine Streuung statt, deren Ursache die durch die einfallende Welle hervorgerufene Bewegungsänderung der im Medium befindlichen Ladungen ist. Die gestreute Welle weist im allgemeinen eine Richtungs- und Frequenzänderung auf (inkohärente Streuung). Bei Frequenzerniedrigung bzw. Frequenzerhöhung spricht man von Stokes'scher bzw. antistokes'scher Streuung. Es kann jedoch auch vorkommen, daß die gestreute Welle

die gleiche Frequenz wie die einfallende Welle aufweist (kohärente Streuung). Streuungen der beschriebenen Art werden im folgenden vernachlässigt gegen die an der Kugel stattfindenden Streuung.

Ferner werde vorausgesetzt, daß sowohl der Tröpfchenradius als auch die Wellenlänge der einfallenden Welle sehr groß sind im Vergleich mit den Atomdimensionen. Damit ist sichergestellt, daß die makroskopischen Maxwell-Gleichungen für ruhende isotrope Materie anwendbar sind. Die statischen Werte für Dielektrizitätskonstante und elektrische Leitfähigkeit können jedoch nur für Frequenzen angewendet werden, die sehr klein sind im Vergleich mit den reziproken Relaxationszeiten des Polarisations- und Leitungsmechanismus. Diese Voraussetzung ist für optische Frequenzen im allgemeinen nicht mehr erfüllt und an die Stelle der statischen treten frequenzabhängige, im allgemeinen komplexe Werte für Dielektrizitätskonstante und elektrische Leitfähigkeit, d.h. die betrachteten Medien zeigen Dispersion. Die in der Nähe von Resonanzfrequenzen auftretende Absorption in dielektrischen Substanzen wird durch eine komplexe Dielektrizitätskonstante beschrieben. Bei der Berechnung des Streuvorganges werden auch absorbierende Kugeln zugelassen, in der vorliegenden Arbeit werden jedoch nur dielektrische nicht absorbierende Kugeln (Wassertröpfchen) untersucht.

Zur Ermittlung der Feldvektoren benützt man die makroskopischen Maxwellgleichungen für ruhende isotrope Materie, die nach Einsetzen der Materialgleichungen bei verschwindender Ladungsdichte folgende Form annehmen^{†)}:

$$\operatorname{div} \vec{E} = 0 \qquad \operatorname{div} \vec{H} = 0 \qquad (2.53)$$

$$\operatorname{rot} \vec{E} = -\mu \frac{\partial \vec{H}}{\partial t} \qquad \operatorname{rot} \vec{H} = \epsilon \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + \sigma \vec{E} \qquad (2.54)$$

†) Im folgenden wird das praktische Einheitensystem verwendet.

Alle Lösungen sollen die gleiche periodische Zeitabhängigkeit aufweisen. Dementsprechend werden die Ansätze

$$\vec{E} = \vec{E} e^{i\omega t} \quad (2.55)$$

$$\vec{H} = \vec{H} e^{i\omega t}$$

gemacht, wobei \vec{E} und \vec{H} als komplexe Amplituden bezeichnet werden. Durch Einsetzen von (2.55) in (2.54) erhält man für die komplexen Amplituden die Gleichungen

$$\begin{aligned} \text{rot } \vec{E} &= -k_m \vec{H} \\ \text{rot } \vec{H} &= k_e \vec{E} \end{aligned} \quad (2.56)$$

wobei

$$\begin{aligned} k_e &= i\omega \left(\epsilon - \frac{i\sigma}{\omega} \right) \\ k_m &= i\omega \mu \end{aligned} \quad (2.57)$$

Durch Divergenzbildung in (2.56) ergibt sich unmittelbar, daß die Lösungen von (2.56) auch die Gleichungen (2.53) befriedigen. Daher genügt es, Lösungen von (2.56) zu betrachten.

Ein Ansatz mit ebenen Wellen liefert durch Einsetzen in (2.56) den Ausdruck

$$k = \sqrt{-k_e k_m} = \omega \sqrt{\epsilon\mu - \frac{i\sigma\mu}{\omega}} \quad (2.58)$$

für den Absolutbetrag des Wellenzahlvektors. Definitionsgemäß erhält man damit den komplexen Brechungsindex

$$m = n(1 - i\eta) = c \frac{k}{\omega} = c \sqrt{\epsilon\mu - i \frac{\sigma\mu}{\omega}} \quad (2.59)$$

wobei n den reellen Brechungsindex und η den Absorptionsindex bezeichnet.

Im vorliegenden Fall müssen die Lösungen von (2.56) folgende Randbedingungen erfüllen:

$$\begin{aligned} \vec{E}_t^I &= \vec{E}_t^{II} \\ \vec{H}_t^I &= \vec{H}_t^{II} \end{aligned} \quad \text{auf der Kugeloberfläche.} \quad (2.60)$$

Außerdem ist vorausgesetzt, daß eine ebene, linear polarisierte Welle (Primärwelle) mit den komplexen Amplituden

$$\begin{aligned} \vec{E}^P &= \vec{E}_0 e^{-i\vec{k}^I \cdot \vec{x}} \\ \vec{H}^P &= \vec{H}_0 e^{-i\vec{k}^I \cdot \vec{x}} \end{aligned} \quad (2.61)$$

auf die Kugel einfällt.

Zur Erfüllung der Randbedingungen (2.60) ist außerhalb der Kugel neben der Primärwelle noch eine weitere Welle (gestreute Welle, Sekundärwelle) mit den komplexen Amplituden \vec{E}^S , \vec{H}^S erforderlich. Die gesamte Außenwelle ist dann durch

$$\begin{aligned} \vec{E}^I &= \vec{E}^P + \vec{E}^S \\ \vec{H}^I &= \vec{H}^P + \vec{H}^S \end{aligned} \quad (2.62)$$

bestimmt.

Die komplexen Amplituden der Innenwelle werden mit \vec{E}^{II} , \vec{H}^{II} bezeichnet.

Die Randbedingungen (2.60) können am bequemsten in räumlichen Polarkoordinaten formuliert werden. Dementsprechend werde ein räumliches Polarkoordinatensystem (r, θ, ϕ) eingeführt derart, daß der Ursprung im Kugelmittelpunkt liegt,

die Richtung $\theta = 0$ die Ausbreitungsrichtung der einfallenden Welle (Primärwelle) angibt und die Richtung $\theta = \pi/2, \phi = 0$ parallel zum elektrischen Feldvektor der Primärwelle liegt. In diesem Koordinatensystem erhalten die Randbedingungen (2.60) die Form^{†)}

$$\begin{aligned}
 E_{\theta}^P + E_{\theta}^S &= E_{\theta}^{II} \\
 H_{\theta}^P + H_{\theta}^S &= H_{\theta}^{II} \\
 E_{\phi}^P + E_{\phi}^S &= E_{\phi}^{II} \\
 H_{\phi}^P + H_{\phi}^S &= H_{\phi}^{II}
 \end{aligned}
 \quad \text{für } r = a \quad (2.63)$$

Für die elektrische Feldstärke der Primärwelle ergibt die Transformation von (2.61)

$$\begin{aligned}
 E_r^P &= E_0 e^{-ik^I r \cos\theta} \sin\theta \cos\phi \\
 E_{\theta}^P &= E_0 e^{-ik^I r \cos\theta} \cos\theta \cos\phi \\
 E_{\phi}^P &= -E_0 e^{-ik^I r \cos\theta} \sin\phi
 \end{aligned}
 \quad (2.64)$$

Analoge Ausdrücke erhält man für die magnetische Feldstärke der Primärwelle.

Zur Lösung der Gleichungen (2.56) wird ein auf DEBYE (1909) zurückgehender linearer Ansatz gemacht, der es gestattet, die sechs Komponenten $E_r, E_{\theta}, E_{\phi}, H_r, H_{\theta}, H_{\phi}$ durch zwei skalare Größen Π_e und Π_m ; die Debye-Potentiale, auszudrücken:

†) Die mit r, θ, ϕ indizierten Vektorkomponenten bedeuten physikalische Komponenten.

$$\begin{aligned}
E_r &= \frac{\partial^2 (r\Pi_e)}{\partial r^2} + k^2 r\Pi_e \\
E_\theta &= \frac{1}{r} \frac{\partial^2 (r\Pi_e)}{\partial r \partial \theta} + k_m \frac{1}{r \sin \theta} \frac{\partial (r\Pi_m)}{\partial \phi} \\
E_\phi &= \frac{1}{r \sin \theta} \frac{\partial^2 (r\Pi_e)}{\partial r \partial \phi} - k_m \frac{1}{r} \frac{\partial (r\Pi_m)}{\partial \theta} \\
H_r &= \frac{\partial^2 (r\Pi_m)}{\partial r^2} + k^2 r\Pi_m \\
H_\theta &= \frac{1}{r} \frac{\partial^2 (r\Pi_m)}{\partial r \partial \theta} - k_e \frac{1}{r \sin \theta} \frac{\partial (r\Pi_e)}{\partial \phi} \\
H_\phi &= \frac{1}{r \sin \theta} \frac{\partial^2 (r\Pi_m)}{\partial r \partial \phi} + k_e \frac{1}{r} \frac{\partial (r\Pi_e)}{\partial \theta}
\end{aligned} \tag{2.65}$$

Nach Einsetzen dieses Ansatzes in die Gleichungen (2.56) zeigt sich, daß Π_e und Π_m der Gleichung

$$\Delta \Pi + k^2 \Pi = 0 \tag{2.66}$$

genügen.

Daneben erkennt man, daß den Randbedingungen (2.63) folgende Randbedingungen für Π_e und Π_m entsprechen:

$$\begin{aligned}
k_e^I r (\Pi_e^P + \Pi_e^S) &= k_e^{II} r \Pi_e^{II} \\
k_m^I r (\Pi_m^P + \Pi_m^S) &= k_m^{II} r \Pi_m^{II} \\
\frac{\partial}{\partial r} [r(\Pi_e^P + \Pi_e^S)] &= \frac{\partial}{\partial r} (r\Pi_e^{II}) \\
\frac{\partial}{\partial r} [r(\Pi_m^P + \Pi_m^S)] &= \frac{\partial}{\partial r} (r\Pi_m^{II})
\end{aligned} \quad \text{für } r = a \tag{2.67}$$

Dabei sind $\Pi_e^I = \Pi_e^P + \Pi_e^S$, $\Pi_m^I = \Pi_m^P + \Pi_m^S$ die Debye-Potentiale der Außenwelle und Π_e^{II} , Π_m^{II} die Debye-Potentiale der Innenwelle. Durch die Einführung der Debye-Potentiale kann das vorliegende Streuproblem also auf die Lösung von (2.66) mit den Randbedingungen (2.67) zurückgeführt werden.

Für die Lösungen der Gleichung (2.66) in räumlichen Polarkoordinaten werde der Separationsansatz

$$\Pi = R(r) \cdot \Theta(\theta) \cdot \Phi(\phi)$$

verwendet. Durch Einsetzen in (2.66) erhält man nacheinander für \sqrt{kr} $R(r)$ die Differentialgleichung der Zylinderfunktionen mit halbzahliger Konstante, für $\Theta(\theta)$ die Differentialgleichung der Kugelfunktionen mit ganzen Konstanten und für $\Phi(\phi)$ die Differentialgleichung für Sinus- und Kosinusfunktion. Demgemäß ergibt sich für die Lösungen der Gleichung (2.66) in räumlichen Polarkoordinaten der Ausdruck

$$r\Pi = \sum_{\ell=0}^{\infty} \sum_{m=-\ell}^{\ell} \left[c_{\ell} S_{\ell}(kr) + d_{\ell} T_{\ell}(kr) \right] P_{\ell}^m(\cos\theta) \quad (2.68)$$

$$\left[a_m \cos(m\phi) + b_m \sin(m\phi) \right]$$

wobei a_m , b_m , c_{ℓ} , d_{ℓ} willkürliche Konstanten bezeichnen. P_{ℓ}^m sind Kugelfunktionen erster Art, S_{ℓ} und T_{ℓ} sind gegeben durch

$$S_{\ell}(kr) = \sqrt{\frac{\pi kr}{2}} J_{\ell+\frac{1}{2}}(kr)$$

$$T_{\ell}(kr) = -\sqrt{\frac{\pi kr}{2}} N_{\ell+\frac{1}{2}}(kr)$$

wobei $J_{\ell+\frac{1}{2}}$ bzw. $N_{\ell+\frac{1}{2}}$ Besselfunktionen bzw. Neumannfunktionen mit halbzahliger Konstante sind. Daneben werden im folgenden auch die Linearkombinationen

$$U_{\ell}(kr) = S_{\ell}(kr) + i T_{\ell}(kr) = \sqrt{\frac{\pi kr}{2}} H_{\ell+\frac{1}{2}}^{(2)}(kr)$$

benötigt, wobei $H_{\ell+\frac{1}{2}}^{(2)}$ Hankelfunktionen zweiter Art mit halbzahliger Konstante sind.

Um die Lösungen (2.68) an die Randbedingungen (2.67) anpassen zu können, werden auch die Debye-Potentiale Π_e^P, Π_m^P der Primärwelle (2.64) in die Form (2.68) gebracht. Es zeigt sich, daß dabei die radiale Abhängigkeit nur durch die Funktionen S_{ℓ} gegeben ist in Übereinstimmung mit der Tatsache, daß T_{ℓ} bei Annäherung an den Koordinatenursprung über alle Grenzen wächst. Für die Debye-Potentiale der Sekundärwelle und der Innenwelle werden analoge Ansätze mit unbestimmten Koeffizienten gemacht. Für die radiale Abhängigkeit der Debye-Potentiale Π_e^S, Π_m^S der Sekundärwelle kommen dabei nur U_{ℓ} in Frage, die eine von der Kugel ausgehende Welle darstellen, während die Debye-Potentiale Π_e^{II}, Π_m^{II} der Innenwelle nur die Funktionen S_{ℓ} enthalten, weil T_{ℓ} im Ursprung eine Singularität aufweist. Durch Einsetzen der Ausdrücke für Π_e^P, Π_m^P und der Ansätze mit unbestimmten Koeffizienten für $\Pi_e^S, \Pi_m^S, \Pi_e^{II}, \Pi_m^{II}$ in die Randbedingungen (2.67) erhält man 4 lineare Gleichungen, mit deren Hilfe die unbestimmten Koeffizienten ermittelt werden können. Damit können gemäß (2.65) die komplexen Amplituden der Sekundärwelle und der Innenwelle berechnet werden, womit das vorliegende Streuproblem exakt gelöst ist.

Bei der Berechnung der Streulichtintensität schließt man meistens die Streurichtungen in der unmittelbaren Umgebung der Ausbreitungsrichtung der Primärwelle aus. Dann ist die Streulichtintensität einfach durch die Intensität der Sekundärwelle gegeben. Beschränkt man sich auf große Abstände von der streuenden Kugel, dann können in den Ausdrücken für die komplexen Amplituden der Sekundärwelle asymptotische Näherungen für die auftretenden Zylinderfunktionen verwendet werden.

Außerdem verschwinden die radialen Komponenten E_r^S und H_r^S , womit die Sekundärwelle transversal und im allgemeinen elliptisch polarisiert wird. Damit erhält man für die senkrecht bzw. parallel zur Streuebene polarisierten Komponenten der Sekundärwelle die Intensitäten

$$\begin{aligned} I_{\perp} &= I_0 \frac{\lambda^2}{4\pi^2 r^2} i_{\perp}(m, \alpha, \theta) \sin^2 \phi \\ I_{\parallel} &= I_0 \frac{\lambda^2}{4\pi^2 r^2} i_{\parallel}(m, \alpha, \theta) \cos^2 \phi \end{aligned} \quad (2.69)$$

wobei I_0 die Intensität der Primärwelle, λ die Wellenlänge im umgebenden Medium, m den relativen (komplexen) Brechungsindex der Kugel und $\alpha = 2\pi a/\lambda$ den dimensionslosen Größenparameter bezeichnet. Die Intensitätsfunktionen i_{\perp} und i_{\parallel} sind gegeben durch

$$\begin{aligned} i_{\perp} &= \left| \sum_{\ell=1}^{\infty} \frac{2\ell+1}{\ell(\ell+1)} (A_{\ell} \pi_{\ell} + B_{\ell} \tau_{\ell}) \right|^2 \\ i_{\parallel} &= \left| \sum_{\ell=1}^{\infty} \frac{2\ell+1}{\ell(\ell+1)} (A_{\ell} \tau_{\ell} + B_{\ell} \pi_{\ell}) \right|^2 \end{aligned} \quad (2.70)$$

wobei

$$A_{\ell} = \frac{S_{\ell}(\alpha) S_{\ell}'(m\alpha) - m S_{\ell}(m\alpha) S_{\ell}'(\alpha)}{U_{\ell}(\alpha) S_{\ell}'(m\alpha) - m S_{\ell}(m\alpha) U_{\ell}'(\alpha)}$$

$$B_{\ell} = \frac{m S_{\ell}(\alpha) S_{\ell}'(m\alpha) - S_{\ell}(m\alpha) S_{\ell}'(\alpha)}{m U_{\ell}(\alpha) S_{\ell}'(m\alpha) - S_{\ell}(m\alpha) U_{\ell}'(\alpha)}$$

$$\pi_{\ell} = \frac{P_{\ell}^1(\cos\theta)}{\sin\theta}$$

$$\tau_{\ell} = \frac{d}{d\theta} P_{\ell}^1(\cos\theta)$$

Der Strich bedeutet Ableitung nach dem ganzen Argument.

Gemäß (2.69) erkennt man, daß die Sekundärwelle linear polarisiert ist, falls die Streuebene senkrecht ($\phi = \pi/2$) oder parallel ($\phi = 0$) zum elektrischen Feldvektor der linear polarisierten Primärwelle liegt. Falls die einfallende Welle unpolarisiert ist, erhält man die Streulichtintensität durch Mittelung über ϕ . Wegen $\langle \sin^2\phi \rangle = \langle \cos^2\phi \rangle = \frac{1}{2}$ ergibt sich,

$$I_u = I_0 \frac{\lambda^2}{8\pi^2 r^2} (i_{\perp} + i_{\parallel}). \quad (2.71)$$

Das Hauptproblem bei der numerischen Behandlung der Mie'schen Streutheorie ist die Berechnung der Intensitätsfunktionen i_{\perp} und i_{\parallel} . Für kleine Werte von m und α konvergieren die auftretenden Reihen sehr rasch. Die ersten Streukoeffizienten erhalten annähernd die Form

$$A_1 = \frac{2}{3} i \left(\frac{m^2-1}{m^2+2} \right) \alpha^3$$

$$A_2 = \frac{1}{15} i \left(\frac{m^2-1}{2m^2+3} \right) \alpha^5$$

$$B_1 = -\frac{1}{45} i (m^2-1) \alpha^5$$

Falls α^5 bereits vernachlässigt werden kann, erhält man wegen $\pi_1 = 1$, $\tau_1 = \cos \theta$ aus (2.71) die Rayleigh'sche Streuformel

$$I_u = I_0 \frac{8\pi^4 a^6}{r^2 \lambda^4} \left| \frac{m^2-1}{m^2+2} \right|^2 (1 + \cos^2 \theta), \quad (2.72)$$

die die bekannte $1/\lambda^4$ -Abhängigkeit der Streulichtintensität für kleine Kugeln enthält.

Bei wachsenden Werten für m und α gestaltet sich die Berechnung von i_{\perp} und i_{\parallel} immer langwieriger. Viele Tabellenwerke sind im Laufe der Zeit verfaßt worden. Gute Bibliographien sind in VAN DE HULST (1957) und KERKER (1969) enthalten. Dennoch sind in großen Bereichen noch keine numerischen Werte veröffentlicht. In der vorliegenden Arbeit wurde das Tabellenwerk von DENMAN, HELLER und PANGONIS (1966) verwendet.

Für $\alpha > 25$ mußte ein Computerprogramm eingesetzt werden.^{†)} Einige numerische Ergebnisse sind in 4.2) dargestellt. Allgemein zeigt sich, daß die Abhängigkeit vom Streuwinkel θ bei konstantem α durch verhältnismäßig "glatte" Kurven dargestellt wird. (Fig. 26). Bei großen α -Werten treten viele Maxima und Minima auf. Umgekehrt weist die Abhängigkeit von α bei festgehaltenem Streuwinkel θ eine gewisse Periodizität und eine Feinstruktur auf, die mit wachsendem α immer ausgeprägter wird ("Mie-Wiggles", Fig. 23, 24). Diese Feinstruktur ist

^{†)} An dieser Stelle sei Herrn Dr. H. HORVATH und Herrn HIRSCH herzlich dafür gedankt, daß sie das Programm zur Verfügung gestellt und bearbeitet haben.

jedoch nur bei nichtabsorbierenden Kugeln vorhanden und verschwindet bereits bei geringer Absorption. Bei Streuwinkeln um $\theta = \pi/2$ ist die α -Abhängigkeit außerordentlich kompliziert. Bei großen α -Werten kann der Öffnungswinkel der Lichtmeßapparatur nicht mehr vernachlässigt werden und es muß über ein passendes Winkelintervall integriert werden.

Für Kugeln, deren Radius sehr groß ist gegen die Wellenlänge des einfallenden Lichtes, ist die Anwendung der Mie'schen Streutheorie nicht mehr sinnvoll. In diesem Größenbereich kann bereits die normale genäherte Beugungstheorie und die geometrische Optik in guter Näherung angewendet werden. Einen Grenzfall stellt die Theorie des Regenbogens dar.

2.3.2) Streuung an mehreren Kugeln

Die Berechnung des Streuvorganges an mehreren Kugeln kann im allgemeinen nicht unmittelbar auf die Streuung an einer einzigen Kugel zurückgeführt werden. Strenggenommen muß berücksichtigt werden, daß eine gegenseitige Beeinflussung der Polarisationsfelder der streuenden Kugeln stattfindet, was eine Änderung der Streufunktionen zur Folge hat. Die Berechnung gestaltet sich bereits für den Fall zweier gleicher benachbarter Kugeln außerordentlich kompliziert. LEVINE und OLAOFE (1968) geben Lösungen an für zwei kleine nichtabsorbierende Kugeln, die relativ zur Primärwelle beliebig angeordnet sind. Allgemein ergibt sich, daß der gegenseitige Einfluß der Polarisationsfelder vernachlässigbar wird, falls der Abstand der streuenden Kugeln einige Kugelradien beträgt.

Außerdem muß im allgemeinen die Interferenz der von verschiedenen Streuzentren herrührenden Streuwellen berücksichtigt werden. Diese abhängige Streuung ist in den Berechnungen von LEVINE und OLAOFE automatisch enthalten, kann jedoch auch bei Kugelabständen auftreten, bei denen die gegenseitige Beeinflussung der Polarisationsfelder bereits vernachlässigbar ist. Sieht man von den Streurichtungen in der unmittelbaren Nähe der Primär- richtung ab, dann kann die abhängige Streuung vernachlässigt werden, falls die Kugeln statistisch angeordnet sind und sich während der Beobachtungszeit um einige Wellenlängen in zufälligen Richtungen verschieben. Unter diesen Voraussetzungen kann die gesamte Streuwelle als inkohärente Überlagerung der an den einzelnen Kugeln gestreute Wellen betrachtet werden und die Streuintensitäten sind additiv.

Neben den erwähnten Effekten kann jedoch auch die Mehrfachstreuung eine erhebliche Rollen spielen, die bereits von HARTEL (1940) theoretisch behandelt wurde. Die von HARTEL durchgeführte Berechnung für die Vorwärtsstreuung an gleichgroßen Kugeln wurde von WOODWARD (1964) zusammengefaßt und numerisch ausgewertet und von SMART, JACOBSEN, KERKER, KRATOHVIL und MATIJEVIC (1965) auf streuende Kugeln unterschiedlicher Größe verallgemeinert. HARTEL erhält für k-fache Streuung Streulichtfunktionen, deren Winkelabhängigkeit durch $f_k(\theta)$ und deren relative Intensität durch Q_k gegeben ist. Unter der Voraussetzung der unabhängigen Streuung liefert

$$\sum_{k=1}^{\infty} Q_k f_k(\theta)$$

die gesamte Streuintensität. Den numerischen Ergebnissen von WOODWARD kann entnommen werden, daß bei Volumskonzen-

trationen von $5 \cdot 10^{-4}$ erst ungefähr 10 % der gesamten Streuintensität von der Mehrfachstreuung herrühren. Da die in der vorliegenden Arbeit auftretenden Volumskonzentrationen wesentlich geringer sind, kann neben der gegenseitigen Beeinflussung der Polarisationsfelder und der abhängigen Streuung auch die Mehrfachstreuung vernachlässigt werden.

3) VERSUCHSANORDNUNG

Der apparative Aufbau für die vorliegende Arbeit wurde zum Teil von einer Meßapparatur übernommen, die RIEDIGER für Messungen im Rahmen seiner Dissertation eingesetzt hat. RIEDIGER führte Messungen des Tröpfchenwachstums durch mittels Streuung weißen unpolarisierten Lichtes und Beobachtung des Streulichtes in einem Winkelbereich von 12 Grad bis 20 Grad. Diese integrale Streulichtmessung lieferte qualitative Aussagen über den zeitlichen Verlauf des Tröpfchenradius in der Expansionskammer. Um zu quantitativen Ergebnissen zu gelangen ist es günstig, monochromatisches Licht zur Beleuchtung der Tröpfchen zu benützen, den Öffnungswinkel der Lichtmeßapparatur einzuschränken und die Möglichkeit vorzusehen, Streulichtmessungen unter verschiedenen, innerhalb eines möglichst großen Winkelbereiches einstellbaren Streuwinkeln vornehmen zu können. Zur Erfüllung dieser Forderungen waren mehrere Umbauten notwendig. Im folgenden wird die für die vorliegende Arbeit eingesetzte Versuchsanordnung beschrieben. Bei Bestandteilen, die von der ursprünglichen Apparatur ohne Änderung übernommen werden konnten, kann bezüglich eingehender Beschreibung auf RIEDIGER (1970, 1971) verwiesen werden.

3.1) Meßprinzip

Zur Untersuchung der Tröpfchenkonzentration und des Tröpfchenwachstums in übersättigten Dämpfen wird eine druckdefinierte Expansionskammer eingesetzt, deren grundsätzliche Funktionsweise in 2.2) beschrieben ist. Die Beobachtung der Tröpfchen erfolgt auf optischem Wege durch Beleuchtung mit einem Laserstrahl und Messung der Intensität des an den Tröpfchen gestreuten Lichtes unter verschiedenen fest einstellbaren Winkeln. Bei den meisten Messungen wurde kontinuierliches Licht verwendet, bei einigen Versuchen wurden jedoch kurze Lichtimpulse am Ende

eines einstellbaren Zeitintervalls nach Wachstumsbeginn benötigt. Daneben wird sowohl während der Expansion als auch während des anschließenden Tröpfchenwachstums der Druckverlauf in der Expansionskammer gemessen.

Die prinzipielle Anordnung kann der Fig. 2 entnommen werden. Von einem kontinuierlich arbeitenden Helium-Neon-Laser gelangt das Licht in eine Pockels-Zelle, die als elektrooptischer Verschluss wirkt und Lichtimpulse erzeugen kann. Anschließend gelangt der Laserstrahl in die Expansionskammer und letztlich in eine Lichtfalle. Das an den Tröpfchen in der Expansionskammer gestreute Licht wird mit Blenden ausgeblendet und gelangt in einen Photomultiplier, dessen Kathode an negativer Hochspannung liegt. Der Anodenstrom, der aus dem Photomultiplier entnommen werden kann, wird zunächst in einem Stromspannungswandler zu einer Spannung umgeformt, die dann mittels eines Linearverstärkers verstärkt, einem Zweikanal-Storage-Oszilloskop zugeführt wird. Zur Druckmessung in der Expansionskammer wird ein piezoelektrischer Druckaufnehmer verwendet, dessen Ladungssignal zunächst in einem ladungsabhängigen Verstärker zu einer Spannung umgewandelt und anschließend ebenfalls dem Zweikanal-Storage-Oszilloskop zugeführt wird. Am Schirm des Oszilloskops kann dementsprechend gleichzeitig der zeitliche Verlauf der Streulichtintensität und des Druckes in der Expansionskammer für einen einmalig ablaufenden Expansionsvorgang festgehalten werden.

Um die Messungen möglichst reproduzierbar zu gestalten, mußte der Meßvorgang automatisiert werden. Die Beschreibung des automatischen Meßzyklus erfolgt an Hand der Figur 3. Ein Zeitplan für den Meßvorgang ist in Figur 4 dargestellt. Zunächst ist das Einlaßventil und das Expansionsventil geschlossen, das Drucksteuerventil jedoch geöffnet (Fig. 4, Punkt A). Durch die Pumpe wird ein ständiges

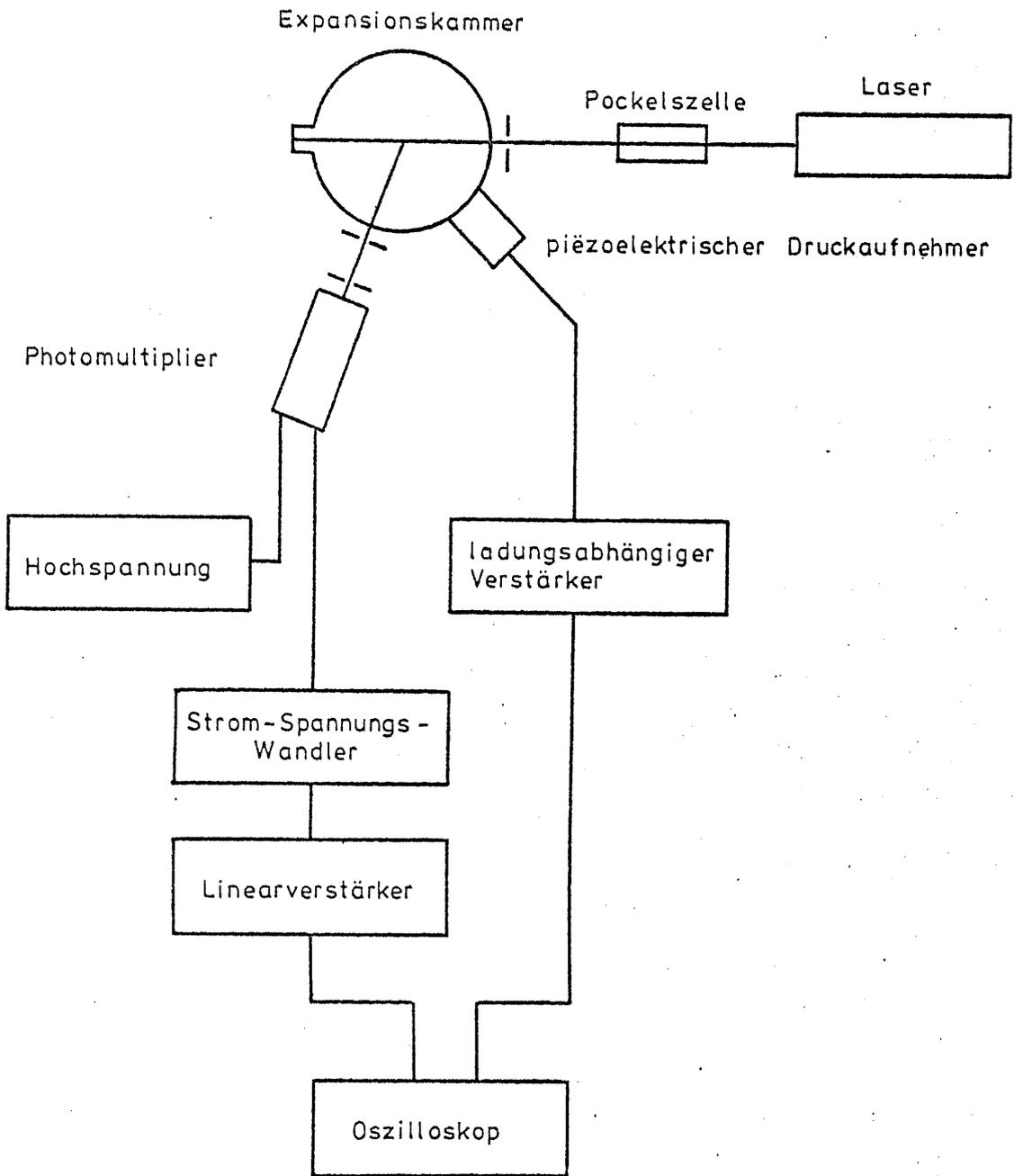


Fig. 2 Blockdiagramm der Versuchsanordnung

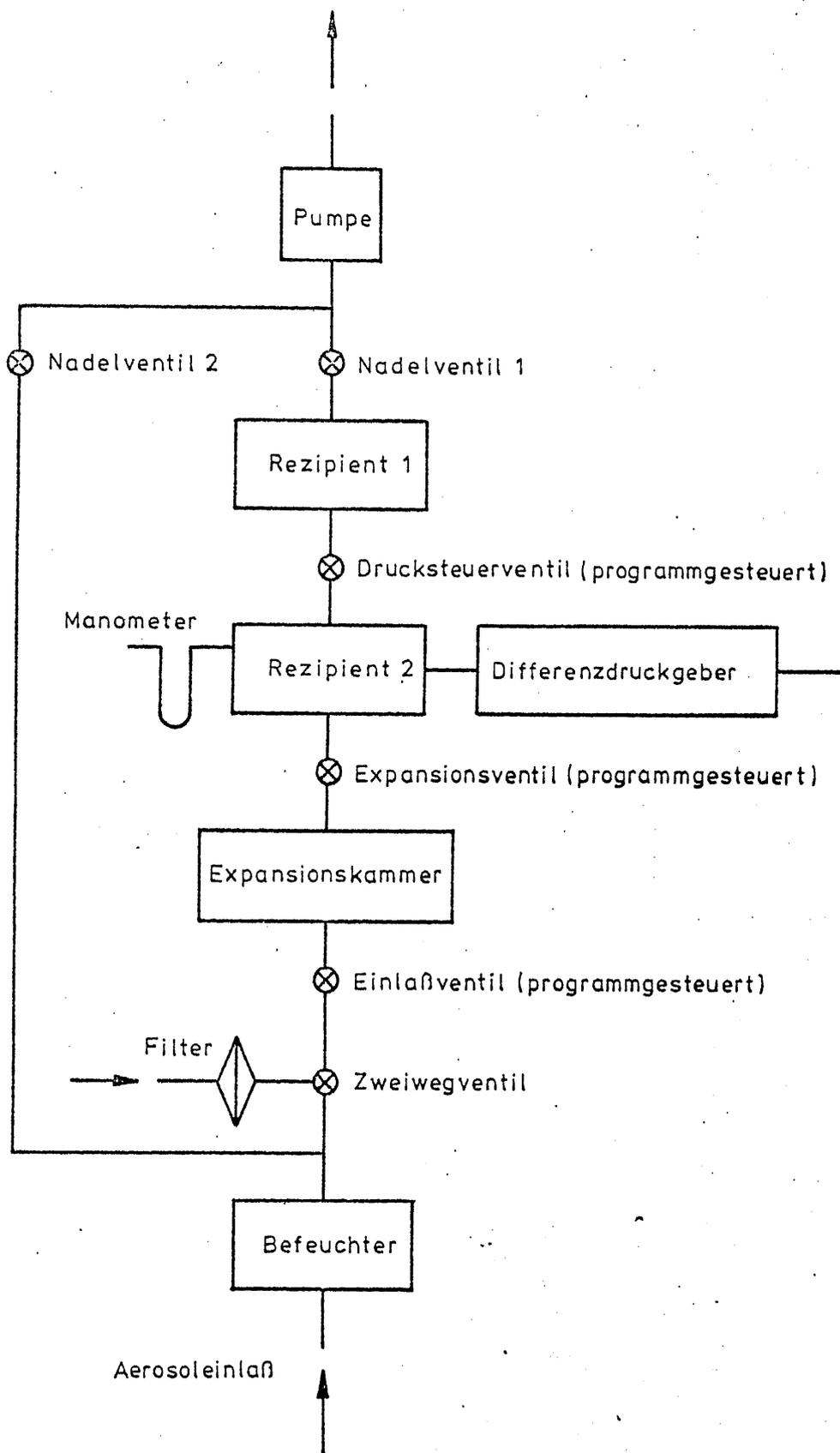


Fig. 3 Blockdiagramm der automatisierten Anlage zur Steuerung des Expansionszyklus

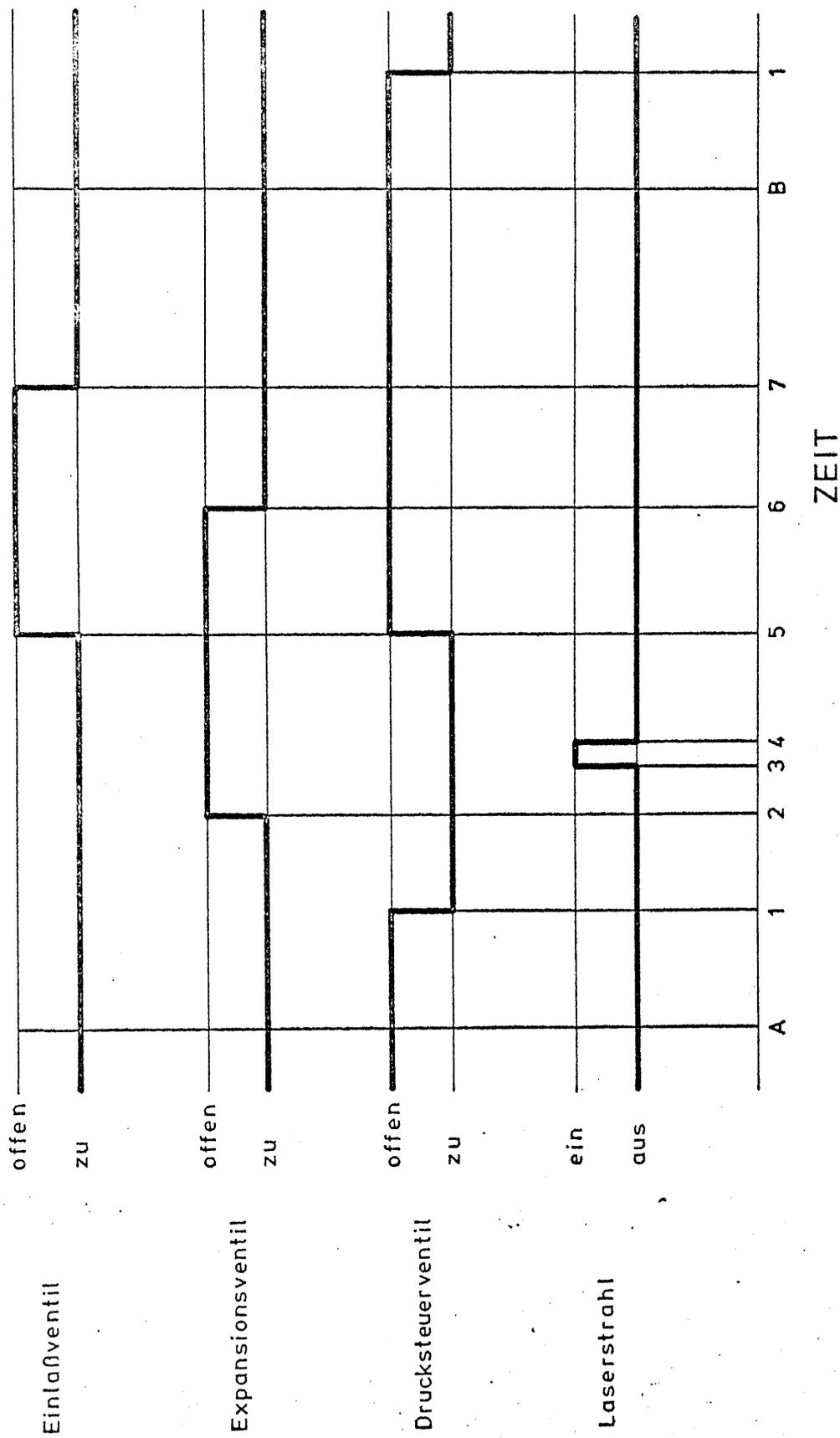


Fig. 4 Zeitplan des automatischen Meßzyklus

Absinken des Druckes im Rezipienten 2 bewirkt, bis bei einem bestimmten einstellbaren Druck mittels des Differenzdruckgebers die Steuerelektronik ausgelöst wird und das Drucksteuerventil schließt (Fig. 4, Punkt 1). Ca. 0,5 sec später (Fig. 4, Punkt 2), öffnet das Expansionsventil und der Inhalt der Expansionskammer expandiert in den Rezipienten 2. Bei Messungen mit gepulstem Laserlicht wird nun eine einstellbare Zeit nach Expansionsbeginn ein Lichtimpuls in die Expansionskammer gesendet (Fig. 4, Punkt 3,4). Ungefähr 1 sec später werden außerdem das Einlaßventil und das Drucksteuerventil geöffnet (Fig. 4, Punkt 5), sodaß alle Ventile offen sind und die Expansionskammer mit neuem befeuchtetem Kondensationskernaerosol gespült wird. Nach ungefähr 0,5 sec schließt das Expansionsventil (Fig. 4, Punkt 6), wodurch der Spülvorgang beendet wird. Etwa 1 sec später, nach erfolgtem Druckausgleich zwischen Befeuchter und Expansionskammer, schließt auch das Einlaßventil (Fig. 4, Punkt 7). Damit bleibt nurmehr das Drucksteuerventil geöffnet, wodurch ein erneutes Auspumpen des Rezipienten 2 bewirkt wird. Damit ist ein Zyklus abgeschlossen und ein neuer Zyklus kann beginnen (Fig. 4, Punkt B). Die Geschwindigkeit der Zyklenabfolge kann durch Einstellung des Nadelventiles 1 gesteuert werden. Wird die Pumpleistung durch dieses Nadelventil gedrosselt, dann erfolgt die Druckerniedrigung im Rezipienten 2 langsam und der einstellbare Auslösedruck, der die Elektronik aktiviert, wird erst nach einer verhältnismäßig längeren Zeit erreicht. Der Rezipient 1 dient als Puffervolumen. Mit dem Nadelventil 2 kann ein zusätzlicher dauernder Durchsatz durch den Befeuchter eingestellt werden. Damit können die Verweilzeiten des Kondensationskernaerosols im Befeuchter herabgesetzt werden. Um eine Reinigung der Expansionskammer mit gefilterter Luft durchführen zu können, wurde ein Zweiwegventil eingebaut.

In Fig. 5 ist die gesamte Versuchsanordnung abgebildet. Im folgenden werden die einzelnen Teile der Versuchsanordnung näher beschrieben.

3.2) Mechanischer Aufbau

3.2.1) Befeuchter

Das Befeuchtungssystem konnte aus der Apparatur von RIEDIGER unverändert übernommen werden. Der Befeuchter besteht aus einer Wanne, die von einem Thermostatisiermantel umgeben ist. In dieser Wanne steht ein Gestell aus Metallstreben, das zick-zack-förmig mit Leinen bespannt ist. Der Boden der Wanne ist mit destilliertem Wasser bedeckt, der Wasserstand kann an einem Schaurauchrohr außen abgelesen werden. Das Fassungsvermögen des Befeuchters beträgt ca. 2 l, im Inneren des Befeuchters befindet sich eine feuchte Oberfläche von ungefähr 2900 cm^2 . 1 cm^3 Luft wird dementsprechend von einer Oberfläche von $1,45 \text{ cm}^2$ befeuchtet.

Das im Befeuchter herrschende Wasserdampfsättigungsverhältnis wird stark vom Durchsatz und von der Befeuchtertemperatur beeinflusst. RIEDIGER (1970) führte Messungen der Befeuchtercharakteristik durch, die zeigen, daß bei einer Befeuchtertemperatur von 28°C für Durchsätze bis 3 l/min eine 100 %ige Sättigung der Luft im Befeuchter erfolgt. Bei darüberhinausgehenden Durchsätzen sinkt das Sättigungsverhältnis im Befeuchter unter 100 %. Der Einfluß des Sättigungsverhältnisses im Befeuchter auf die Meßergebnisse wird im folgenden noch untersucht werden.

Um ein vorzeitiges Kondensieren des Wasserdampfes zu verhindern, wurde das Verbindungsrohr zur Expansionskammer mittels eines Heizbandes erwärmt. Mit Hilfe zweier Thermoelemente wurde kontrolliert, daß die Rohrtemperatur stets höher war als die Befeuchtertemperatur.

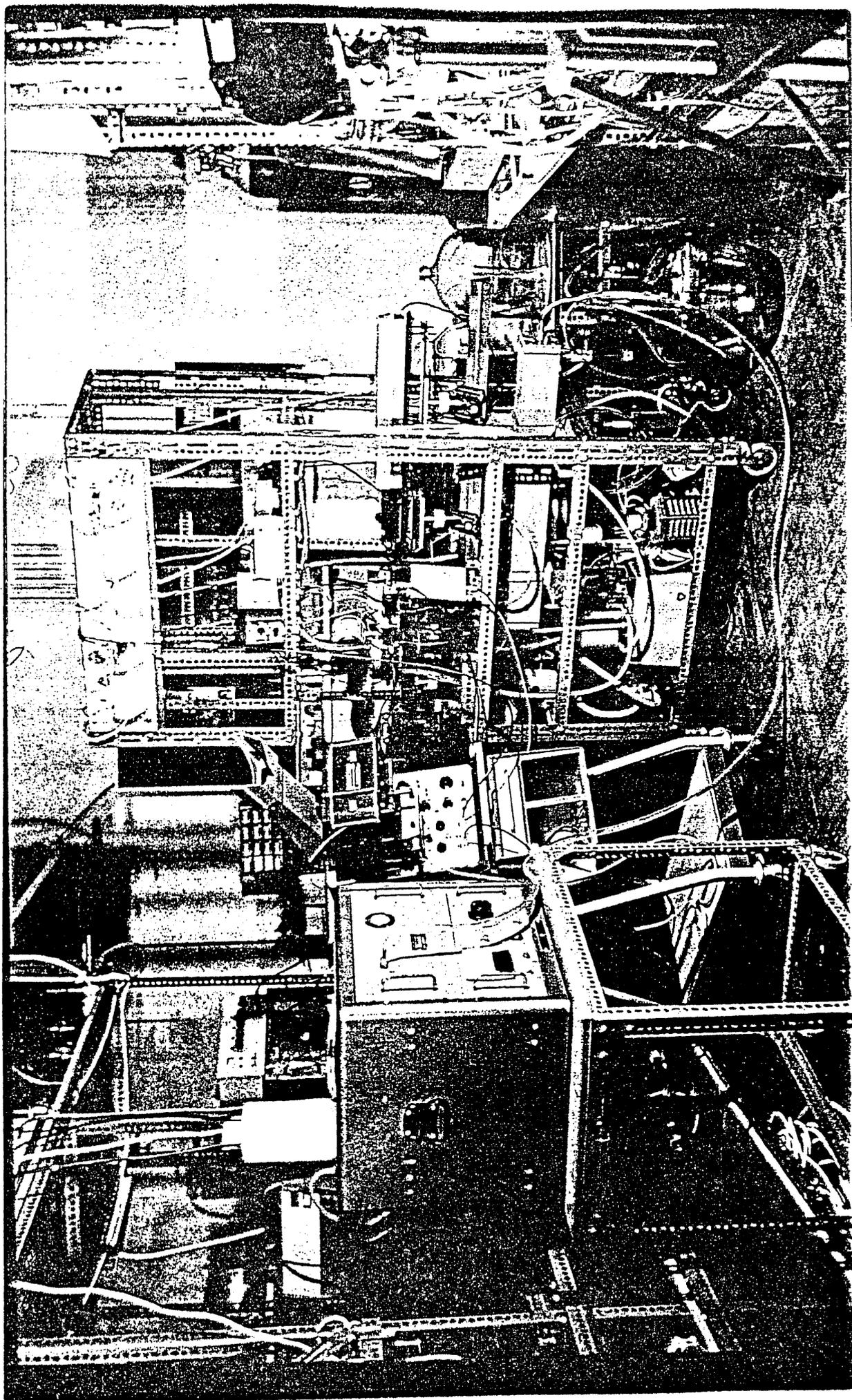


Fig. 5 Abbildung der gesamten Versuchsanordnung

3.2.2) Expansionskammer

Für die Konstruktion der Expansionskammer waren unter anderem folgende Richtlinien maßgebend:

- 1) Konstanthaltung der thermischen Bedingungen
- 2) Einhaltung eines möglichst adiabatisch verlaufenden Expansionsvorganges
- 3) Gute Abdichtung der Kammer
- 4) Großer Winkelbereich für die Streulichtmessung
- 5) Kleiner Öffnungswinkel der Lichtmeßapparatur
- 6) Exakte Zentrierung der Lichtmeßapparatur
- 7) Unterdrückung von Lichtreflexen in der Expansionskammer
- 8) Verhinderung des Eintrittes von Primärlicht in die Lichtmeßapparatur auch bei kleinen Streuwinkeln.

Zur Erfüllung dieser Forderungen war die Entwicklung einer neuen Expansionskammer notwendig. Figur 6 zeigt etwas verkleinert den Grundriß, wobei ein Schnitt in der Höhe des Laserstrahles durchgeführt wurde, in Figur 7 ist der Aufriß in natürlicher Größe dargestellt.

Die Kammer ruht auf einem Tisch T, der mittels zweier Reiter auf einer optischen Bank montiert ist. Die Kammer ist aus einem Unterteil U, einem Mittelstück M, einem Oberteil O und einer Deckplatte D zusammengesetzt, die durch Schrauben miteinander verbunden sind. U, M und O sind mit Löchern L und Kanälen versehen, durch die ein Thermostatisierwasserstrom fließt. Die Abdichtung der Expansionskammer einerseits und des Thermostatisierwasserkanals andererseits stellte wegen der Vielzahl abzudichtender Stellen ein Problem dar, das erst nach mehreren Versuchen zufriedenstellend gelöst werden konnte. Zwischen T, U, M, O und D wurde die flüssige Silikonkautschukmasse DEVCON Silite 100 eingebracht, die nach etwa 24 Stunden aushärtet. Die Oberflächen von T, M und D wurden vor dem Zusammen-

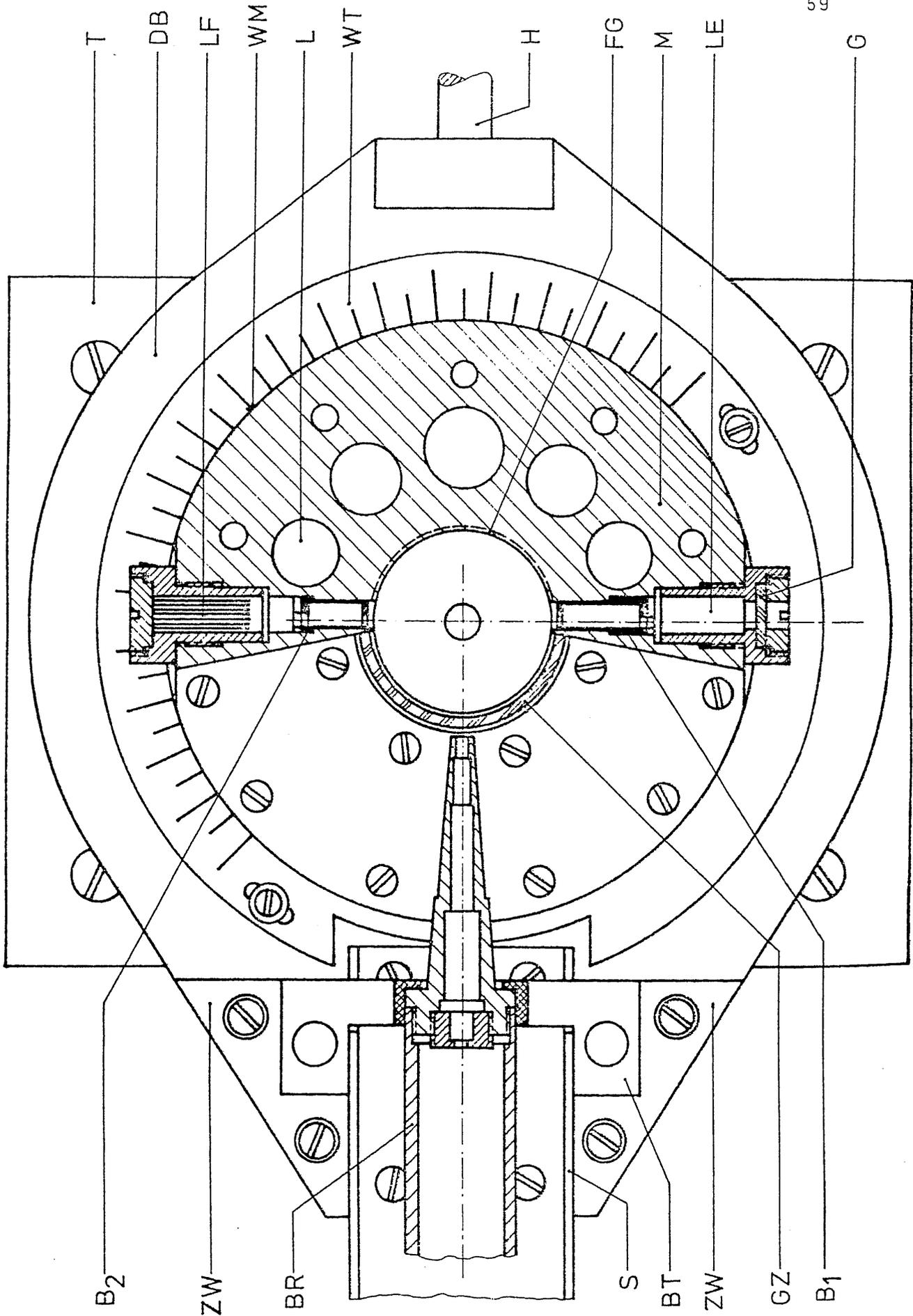


Fig. 6 Grundriß der Expansionskammer

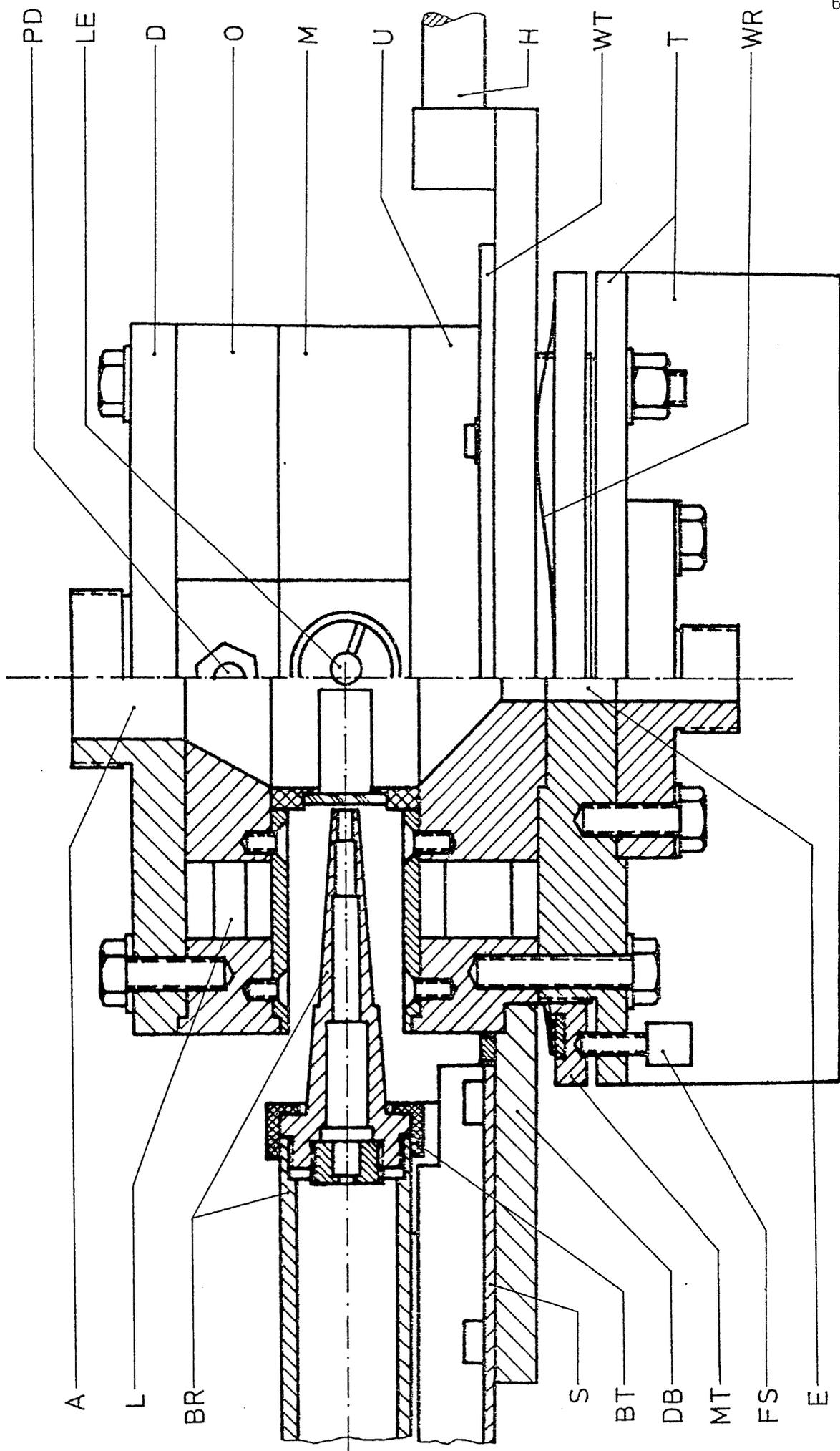


Fig. 7 Aufriß der Expansionskammer

setzen eingefettet, so daß die Silikongummischicht nur an U und O haften bleibt und die Expansionskammer stets wieder auseinandergenommen werden kann.

In der Mitte des Tisches T befindet sich eine Bohrung E, die als Eintrittsöffnung in die Meßkammer dient, mit einem Gewindeansatz zum Anschluß des Einlaßventiles. Außerdem trägt T noch eine weitere Bohrung (in Figur 6, 7 nicht eingezeichnet) als Eintrittsöffnung für das Thermostatisierwasser.

Entsprechend ist in der Deckplatte D eine Bohrung A als Austrittsöffnung aus der Meßkammer mit einem Gewindeansatz zum Anschluß des Expansionsventiles, und eine Austrittsöffnung für das Thermostatisierwasser vorgesehen.

Der Unterteil U bildet die Lagerung für die Drehbühne DB, die mittels eines Wellenringes WR gegen U gedrückt wird. Der Wellenring liegt auf einer Mutter MT, die auf dem Tisch T aufgeschraubt ist und gegen Verdrehung durch eine Feststellschraube FS gesichert werden kann. Die Drehbühne DB ist mit einer justierbaren Winkelteilung WT versehen. Der eingestellte Winkel kann an der Winkelmarke WM abgelesen werden. An gegenüberliegenden Punkten ist ein Handgriff H und eine U-Schiene S angebracht, die durch die dreieckigen Zwickel in ihrer Lage fixiert wird. Die U-Schiene S trägt gemeinsam mit dem Blendenträger BT das vorne konisch sich verjüngende Blendenrohr BR und den nicht eingezeichneten Photomultiplier. Die Länge des Blendenrohres gewährleistet, daß der Öffnungswinkel der Lichtmeßapparatur hinreichend eingeschränkt wird.

Das Mittelstück M trägt eine zylindrische Bohrung mit 40 mm Durchmesser, die den Innenraum der Kammer bildet. Das Meßvolumen befindet sich im Mittelpunkt des Kammerinnenraumes,

sodaß ein Wärmeaustausch mit den Kammerwänden während der Expansion weitgehend unterdrückt wird. Aus M ist ein Sektor herausgeschnitten, wie aus Fig. 6 entnommen werden kann, sodaß der Kammerinhalt in einem Winkelbereich von 15° bis 165° beobachtet werden kann. In die entstehende Öffnung wurde ein Glaszylinder eingeklebt. Die verbleibende Kammerwand ist mit einem Feingewinde FG versehen und mattschwarz lackiert zur Ausschaltung von Lichtreflexen. Außerdem ist eine Lichteintrittsöffnung LE und eine Lichtfalle LF vorgesehen, die als Nadelbett ausgeführt ist. Zur Ausblendung eines Großteils des in dem Glasplättchen G gestreuten Laserlichtes und des von dem Nadelbett zurückgestreuten Lichtes sind die Blenden B1 und B2 angebracht, deren asymmetrisch angeordnete Blendenöffnungen durch Verdrehung justiert werden können.

In dem Oberteil O ist der piezoelektrische Druckgeber PD eingebaut.

In Figur 8 ist die in der Institutswerkstätte gefertigte Expansionskammer abgebildet.^{†)}

3.3) Optischer Aufbau

Als Lichtquelle dient ein Helium-Neon-Laser Modell 120 der Firma SPECTRA PHYSICS. Die Wellenlänge der erzeugten Strahlung beträgt 632,8 nm, die Strahlungsleistung liegt bei 5 mW. Die volle Strahlungsleistung wird etwa 30 Minuten nach dem Einschalten des Lasers erreicht. Der Resonator läßt nur Schwingungen in der transversalen Mode TEM_{00} zu. Bei der Austrittsöffnung hat der Laserstrahl einen Durchmesser von 0,65 mm, bezogen auf diejenigen Punkte des Laserquerschnittes, bei denen die Intensität um den Faktor $1/e^2$ geringer ist als die Maximalintensität.

†) An dieser Stelle sei Herrn FHL Stanislaus Cejka herzlich für die gute Zusammenarbeit und die Diskussion von Detailproblemen gedankt.

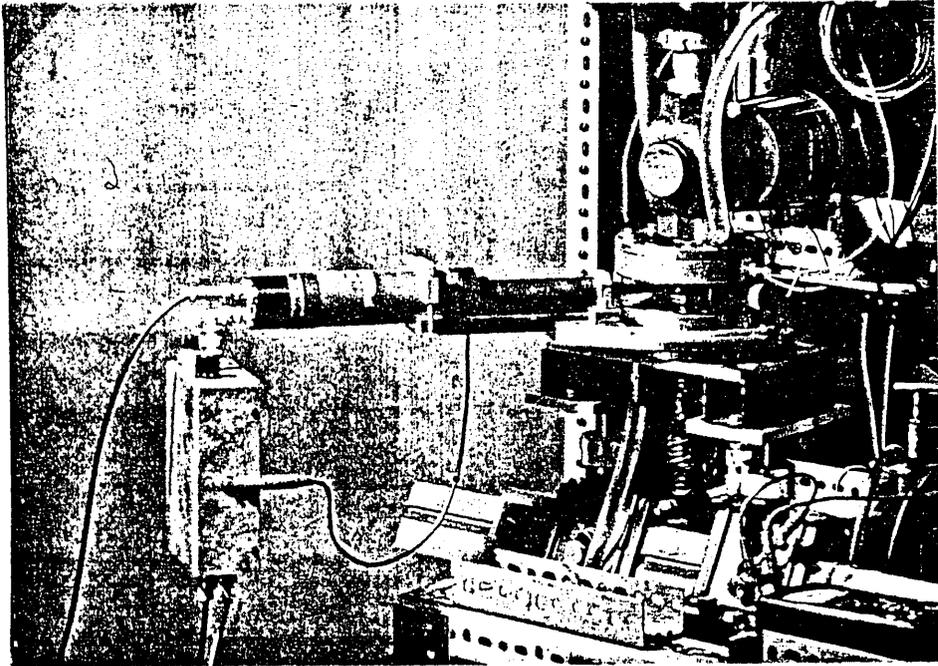


Fig. 8 Abbildung der Expansionskammer
mit Photomultiplier

Die Strahldivergenz beträgt $1,7 \text{ mrad}$. Für die Anwendung in der vorliegenden Arbeit ist es vor allem notwendig, daß der Laserstrahl zu einem hohen Grad linear polarisiert ist und eine möglichst konstante Ausgangsleistung aufweist. Bei dem verwendeten Laser-Modell wird durch Brewsterfenster eine lineare Polarisation des Laserstrahles im Verhältnis $1 : 1000$ gewährleistet. Für die Langzeitschwankungen der Ausgangsleistung wird in der Spezifikation ein maximaler Bereich von 5% angegeben. Die vor und nach jeder Streulichtmeßserie durchgeführten Kontrollmessungen der Primärleistung des Laserstrahls ergaben jedoch nur Langzeitschwankungen innerhalb eines Bereiches von 2% .

Um aus dem kontinuierlichen Laserlicht die für einige Versuche notwendigen Lichtimpulse zu gewinnen, war der Einsatz eines Verschlusses notwendig. Weil die Länge der Lichtimpulse klein sein muß im Vergleich zu den typischen Tröpfchenwachstumszeiten, darf die Verschlußöffnungszeit höchstens 1 ms betragen. Derartige Verschlußöffnungszeiten sind mit mechanischen Verschlüssen praktisch nicht erreichbar. Daher mußte auf einen elektrooptischen Verschluß zurückgegriffen werden.

Zunächst wurden Versuche mit einer Kerr-Zelle durchgeführt. Es stand eine Kerr-Zelle mit Polarisationsprisma und Ansteuerelektronik zur Verfügung, die ursprünglich zur Erzeugung von Riesenimpulsen in einem Rubinlaser eingesetzt wurde. Die zum Betrieb der Kerr-Zelle erforderliche Spannung von etwa 7000 V konnte jedoch mit den zur Verfügung stehenden Mitteln nicht schnell genug geschaltet werden. Außerdem stellte die Isolation ein schwieriges Problem dar.

Eine andere Methode zur elektrooptischen Lichtmodulation beruht auf dem Pockels-Effekt, der von POCKELS (1893) erstmals beschrieben wurde. Der Pockels-Effekt besteht darin, daß ein nahezu nicht doppelbrechender Kristall durch Anlegen einer Spannung doppelbrechend wird. Für diese Anwendung besonders geeignet sind Kristalle aus Kaliumdideuteriumphosphat (KD_2PO_4). Je nachdem, ob das Licht parallel oder senkrecht zum elektrischen Feld einfällt, spricht man von longitudinalem oder transversalem Pockels-Effekt. Es zeigt sich, daß die Phasendifferenz zwischen ordentlichem und außerordentlichem Strahl beim longitudinalen Pockels-Effekt unabhängig von der Länge des Kristalls ist. Beim transversalen Pockels-Effekt hingegen wächst die Phasendifferenz linear mit der Länge des Kristalls. Bei entsprechender Kristalllänge können transversale Pockels-Zellen daher bereits bei verhältnismäßig geringen Spannungen

betrieben werden. Die Schaltung solcher Spannungen kann mit Transistoren hinreichend schnell erfolgen. Dementsprechend wurde eine transversale Pockels-Zelle Modell EOM-3078 der Firma LASERMETRICS als elektrooptischer Verschluss eingesetzt, die bereits bei einer Spannung von 275 V betrieben werden kann. In Fig. 9 ist die Pockels-Zelle und der dazugehörige Polarisator abgebildet. Der Öffnungsdurchmesser dieser Pockels-Zelle beträgt 2,25 mm, die maximale Durchlässigkeit liegt bei ca. 90 %. Für die Anwendung als elektrooptischer Verschluss ist das Auslöschungsverhältnis besonders wichtig. In der Spezifikation wird ein Auslöschungsverhältnis von mindestens 100 : 1 angegeben. Die Größe des Auslöschungsverhältnisses ist weitgehend von der Lichtquelle abhängig. Maßgebend sind vor allem die Monochromasie, der Polarisationszustand, die Divergenz und der Durchmesser des Lichtstrahles. Bei dem verwendeten Laser konnte nach sorgfältigem Justieren ein Auslöschungsverhältnis von etwa 500 : 1 erreicht werden. Der zeitliche Verlauf der an die Pockels-Zelle angelegten Steuerspannung sowie der zeitliche Verlauf der Intensität des durch die Pockels-Zelle hindurchtretenden Laserlichtes ist in Fig. 10 dargestellt.

Zur Messung des an den Tröpfchen gestreuten Laserlichtes wird ein Photomultiplier mit vorgesezierter Zerstreulinse und einem Blendensystem verwendet. Die Geometrie der Meßanordnung ist in Fig. 11 nicht maßstabsgetreu dargestellt. Das Streuvolumen wird durch Laserstrahl und Beobachtungsstrahl bestimmt. Der Durchmesser des Laserstrahles ergibt sich aus dem Durchmesser unmittelbar an der Austrittsöffnung und aus der Strahldivergenz zu 1,1 mm. Der Durchmesser der kreisförmigen Blendenöffnungen wurde mit 3 mm wesentlich größer als der Durchmesser des Laserstrahles gewählt. Entsprechend dem Streuwinkelbereich zwischen 15° und 165° ergeben sich

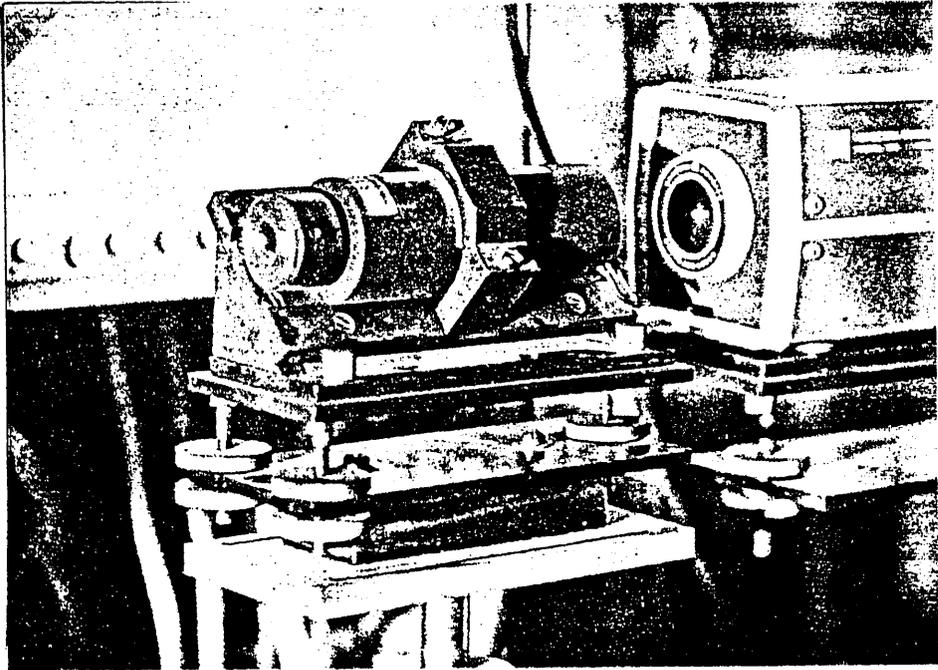


Fig. 9 Abbildung der Pockelszelle
mit Polarisator

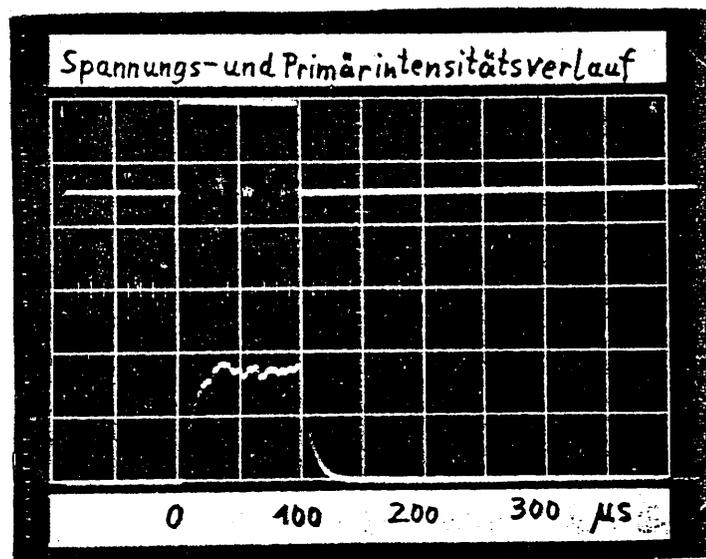


Fig. 10 Spannungs- und Intensitätsverlauf
an der Pockelszelle

Streuvolumina etwa zwischen 3 und 12 mm³. Durch den Abstand $r = 194$ mm der hinteren Blende vom Streuvolumen wird festgelegt, daß das von einem Tröpfchen gestreute Licht in einem Winkelbereich von nur 15,5 mrad gemessen wird. Der Abstand der vorderen Blende vom Streuvolumen wurde so klein wie möglich gewählt. Durch den Abstand der beiden Blendenöffnungen von 170 mm wird ein maximaler Öffnungswinkel der Lichtmeßapparatur von 35,3 mrad bzw. $2^{\circ}1'$ bestimmt.

Zur Berechnung des gesamten Streulichtflusses durch die Blendenöffnung muß die Geometrie der Meßanordnung und die Anzahl der streuenden Tröpfchen im Streuvolumen berücksichtigt werden. Die bei der Streuung an mehreren Streuzentren auftretenden zusätzlichen Effekte, insbesondere die Mehrfachstreuung, können bei den verwendeten Tröpfchenkonzentrationen gemäß 2.3.2) vernachlässigt werden. Die verwendeten Bezeichnungen sind in Fig. 11 enthalten.

Die kreisförmige Blendenöffnung der Lichtmeßapparatur habe eine Fläche $F = d^2 \pi / 4$ und sei zentriert im Streuwinkel θ . Ihr Abstand vom Streuvolumen sei r . Dann ist der Streulichtfluß durch die Blendenöffnung, herrührend von einem Tröpfchen mit Radius a , das sich im Abstand q von der Achse des Laserstrahls befindet, gegeben durch

$$\phi_q = \int_F I r^2 \sin\theta \, d\theta d\phi, \quad (3.1)$$

wobei gemäß (2.69)

$$I = I_0(q) \frac{\lambda^2}{4\pi^2 r^2} [i_{\perp}(a, \theta) \sin^2 \phi + i_{\parallel}(a, \theta) \cos^2 \phi] \quad (3.2)$$

die Intensität der Sekundärwelle bedeutet. Wegen des kleinen Öffnungswinkels der Lichtmeßapparatur ist im betrachteten Streuwinkelbereich $\sin^2 \phi \approx 1$, $\cos^2 \phi$ vernachlässigbar und $i_{\perp}(a, \theta) \approx i_{\parallel}(a, \theta)$. Dementsprechend erhält man aus (3.1), (3.2)

$$\Phi_q = I_0(q) \frac{\lambda^2}{4\pi^2 r^2} i_{\perp}(a, \theta) F. \quad (3.3)$$

Durch Integration über das ganze Streuvolumen erhält man für den gesamten Streulichtfluß durch die Blendenöffnung den Ausdruck

$$\Phi = \int \Phi_q C q dq d\phi dz, \quad (3.4)$$

wobei C die Tröpfchenkonzentration bezeichnet und die z -Achse mit der Achse des Laserstrahls zusammenfällt. Weil der Durchmesser des Laserstrahls erheblich kleiner ist als der Durchmesser d des Beobachtungsstrahles, kann das Streuvolumen durch einen Zylinder der Länge

$$Z(\theta) = \frac{d}{\sin \theta} \quad (3.5)$$

mit senkrechten Begrenzungsebenen angenähert werden. Damit erhält man aus (3.4), (3.3)

$$\begin{aligned} \Phi &= \frac{\lambda^2}{4\pi^2 r^2} i_{\perp}(a, \theta) F C Z(\theta) \int I_0(q) q dq d\phi = \\ &= \frac{\lambda^2}{4\pi^2 r^2} i_{\perp}(a, \theta) F C Z(\theta) \Phi_0, \end{aligned} \quad (3.6)$$

wobei Φ_0 den gesamten einfallenden Fluß des Laserstrahls bedeutet. Das Verhältnis des gesamten Streulichtflusses durch die Blendenöffnung zum einfallenden Fluß ergibt sich also zu

$$\begin{aligned} \frac{\Phi}{\Phi_0} &= \frac{\lambda^2}{4\pi^2 r^2} F Z(\theta) C i_{\perp}(a, \theta) = \\ &= \frac{\lambda^2}{16\pi r^2} d^3 C \frac{i_{\perp}(a, \theta)}{\sin \theta}. \end{aligned} \quad (3.7)$$

Man erkennt, daß in die Berechnung des gesamten Streulichtflusses Φ der Durchmesser des Laserstrahls und die Verteilung der Lichtintensität I_0 über den Strahlquerschnitt nicht eingeht, solange der Laserstrahldurchmesser wesentlich kleiner ist als der Durchmesser des Beobachtungsstrahles.

Der Laser, die Pockels-Zelle und die Expansionskammer sind mittels optischer Reiter auf einer optischen Bank befestigt. Um eine Justierung der gesamten optischen Anordnung zu ermöglichen, sind der Laser und die Pockels-Zelle verstellbar auf den Reitern angeordnet. Die Expansionskammer ist entsprechend ihrem Gewicht und den Ventilanschlüssen auf zwei optischen Reitern starr aufgebaut. Zunächst wurde der Laserstrahl relativ zur Blendenanordnung justiert. Zu diesem Zweck wurde das Blendenrohr und der Photomultiplier entfernt und im Blendenträger und auf der U-Schiene abwechselnd je eine Platte montiert, die an der Stelle des Blendenmittelpunktes eine Markierung aufweist. Dann wurde der Laserstrahl und die justierbare Winkelteilung derart eingestellt, daß sowohl bei einer Winklereinstellung von 0° als auch bei 180° jeweils beide Markierungen im Zentrum des Laserstrahls lagen. Damit wurde gleichzeitig sichergestellt, daß die Achse des Blendensystems tatsächlich durch den Rotationsmittelpunkt der Drehbühne hindurchgeht.

Anschließend wurde die Justierung der Pockels-Zelle vorgenommen. Ohne angelegte Spannung wurden Pockels-Zelle und Polarisator vorerst auf maximale Helligkeit des Laserstrahls justiert. Dann wurde die Betriebsspannung eingeschaltet und Pockels-Zelle, Polarisator und Betriebsspannung auf maximale Auslöschung eingestellt. Diese Einstellung ist kritisch, weil es durch die Kleinheit der Lichteintrittsöffnungen bedingt leicht zu einer Ausblendung

des Laserstrahls kommen kann. Die Größe des Auslöschungsverhältnisses der Pockels-Zelle ist in hohem Maße von dieser Justierung abhängig.

3.4) Steuerung des Meßzyklus

Fig. 3 zeigt schematisch die Analge zur Steuerung des Expansionszyklus. Die Pumpe mußte so ausgewählt werden, daß sie gegen feuchte Luft unempfindlich ist. Für diese Anwendung eignet sich die Minnipumpe der Firma LEYBOLD, die bei einer Betriebstemperatur von etwa 80°C arbeitet. Die Rezipienten sind als Stahlzylinder mit quadratischen Abschlußplatten ausgeführt. Das Volumen jedes Rezipienten beträgt 3150 cm^3 . Die programmgesteuerten Ventile sind Magnetventile der Firma HERION, die mit einer Gleichspannung von 24 V betrieben werden. Im Ruhezustand sind die Ventile geschlossen. Das Einlaß- und das Drucksteuerventil haben eine Nennweite von 8 mm und eine Leistungsaufnahme von 15 W. Das Expansionsventil wurde zur Erreichung einer möglichst schnellen Expansion größer gewählt, die Nennweite beträgt 22 mm, die Leistungsaufnahme 25 W.

Die elektronische Schaltung zur Steuerung des Meßzyklus wird an Hand der Fig. 12 beschrieben. Als Differenzdruckgeber dp wird der Typ PR 9356 ED/50 HM der Firma PHILIPS verwendet. Bei diesem Gerät sind 4 Dehnungsmeßstreifen zu einer Meßbrücke zusammengeschaltet, an die maximal eine Spannung von 12 V angelegt werden darf. Bei verschwindendem Differenzdruck ist die Brücke im Gleichgewicht. Beim Auftreten eines Differenzdruckes erhält man eine Ausgangsspannung an der Brücke, die bis zu $\pm 5000\text{ mm H}_2\text{O}$ linear vom Druck abhängt mit einer Genauigkeit von 1,5 % des Meßbereiches. Die bei Druckänderungen eintretenden Volumsänderungen der Meßkammer sind vernachlässigbar. Als Meßverstärker V wurde ein volltransistorisierter Chopper-Verstärker Type Mv der Firma KNICK gewählt. Die Verstärkung kann durch externe

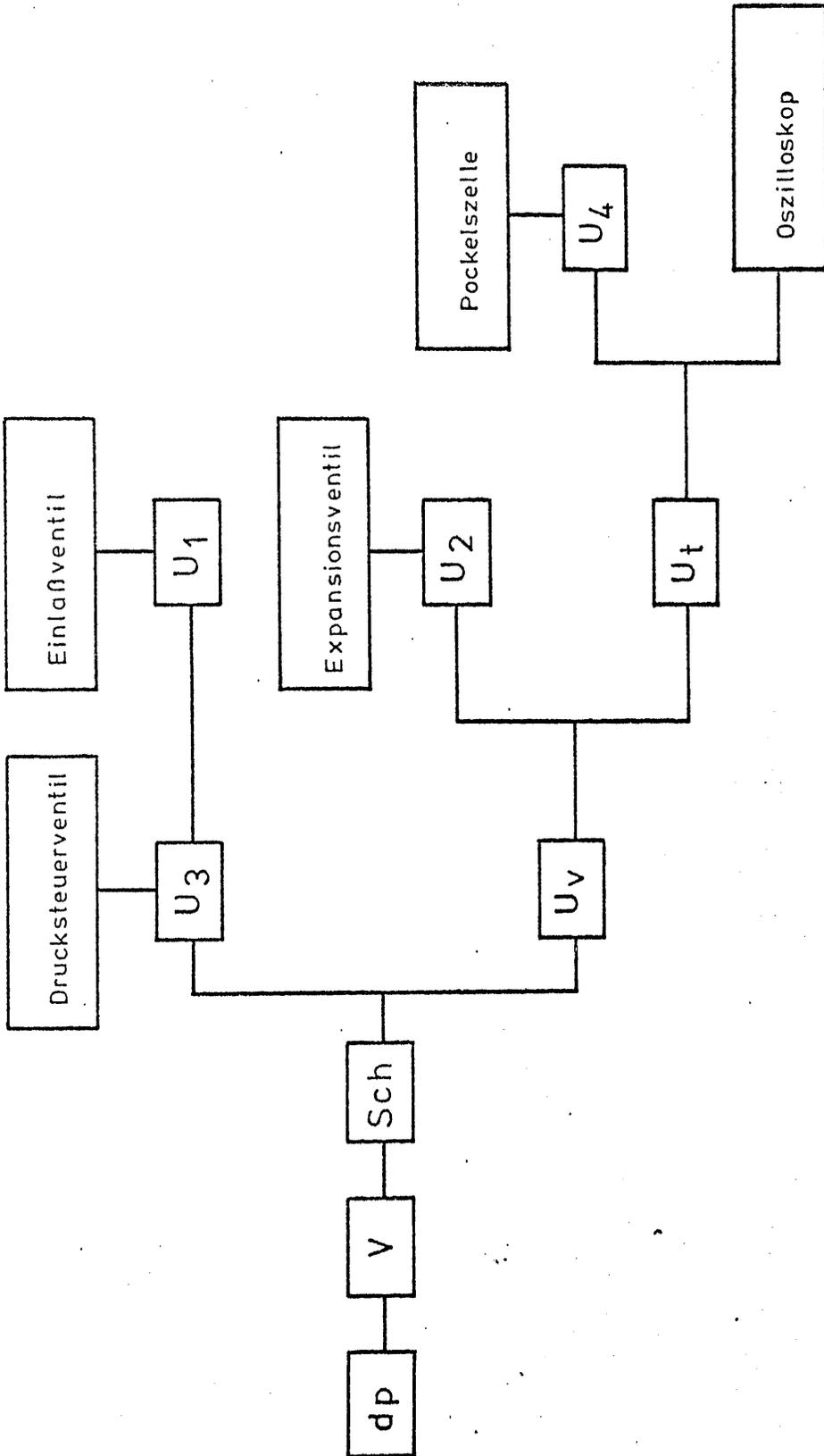


Fig. 12 Blockschaubild der Steuerelektronik

Widerstände zwischen 50 und 1000 auf $\pm 0,2\%$ genau eingestellt werden. Der Schmitt-Trigger Sch und die Uni-Vibratoren U_1 , U_2 , U_3 , U_4 , U_V , U_t sind aus Transistoren diskret aufgebaut und konnten zum Teil von der bestehenden Anlage übernommen werden. Die Schaltung der Ventile erfolgt mittels Leistungstransistoren, die Pockels-Zelle wird über den schnellen Hochspannungstransistor Type MPS-U 60 der Firma MOTOROLA angesteuert.

Der zeitliche Ablauf der Schaltvorgänge kann an Hand der Fig. 12 und des in Fig. 4 dargestellten Zeitplanes verfolgt werden. Zunächst sind Einlaßventil und Expansionsventil geschlossen, das Drucksteuerventil ist geöffnet. Alle Univibratoren sind in Ruhestellung. Entsprechend dem sinkenden Druck im Rezipienten steigt die Spannung am Differenzdruckgeber. Bei einem bestimmten Differenzdruck wird die Triggerschwelle des Schmitt-Triggers Sch überschritten und dieser bringt U_3 und U_V in Arbeitsstellung, sodaß das Drucksteuerventil geschlossen und damit ein weiteres Absinken des Druckes im Rezipienten unterbunden wird. Die Höhe des Auslösedruckes kann innerhalb weiter Grenzen durch Veränderung der Anlegenspannung an den Differenzdruckgeber dp und der Verstärkung des Verstärkers V bei konstanter Trigger-Schwelle des Schmitt-Triggers variiert werden. Nach etwa 0,5 Sekunden fällt U_V wieder in den Ruhezustand zurück und aktiviert U_2 und U_t , sodaß das Expansionsventil geöffnet wird und der Expansionsvorgang einsetzt. Nach einer zwischen 10 und 500 ms einstellbaren Verzögerungszeit fällt U_t wieder in die Ruhelage zurück, wodurch U_4 über den Hochspannungstransistor die Pockels-Zelle für 100 μs kurz schließt und damit während des Tröpfchenwachstums einen Lichtimpuls bewirkt. Gleichzeitig wird mittels externer Triggerung die Zeitablenkung des Storage-Oszilloskops ausgelöst. Falls mit kontinuierlichem Laserlicht ohne Pockelszelle gemessen wird, kann durch entsprechende Wahl der Verzögerungszeit die Triggerung

des Oszilloskops unmittelbar vor Expansionsbeginn erfolgen, weil das Expansionsventil eine Ansprechverzögerung von etwa 100 ms aufweist. Nach etwa 1 Sekunde fällt der noch immer aktive Univibrator U_3 in seine Ruhelage zurück, wodurch U_1 aktiviert wird und sowohl das Drucksteuerventil als auch das Einlaßventil geöffnet werden. Für ca. 0,5 Sekunden sind nun alle 3 Ventile geöffnet und die Expansionskammer wird mit frischem Aerosol gespült. Anschließend kippt der ebenfalls noch aktive Univibrator U_2 zurück, wodurch das Expansionsventil geschlossen und damit die Kammerspülung beendet wird. Nun ist nurmehr U_1 aktiv und fällt nach etwa 1 Sekunde zurück, sodaß nach dem Druckausgleich zwischen Befeuchter und Expansionskammer das Einlaßventil wieder geschlossen wird. Jetzt ist wieder der Ausgangszustand erreicht und ein neuer Zyklus kann beginnen. Für den einwandfreien Ablauf des Meßzyklus ist notwendig, daß die Pumpleistung mittels des vorgesehenen Nadelventiles entsprechend gedrosselt wird, weil ansonsten der Auslösedruck erreicht wird, bevor der vorhergehende Zyklus abgeschlossen ist. Umgekehrt bewirkt eine zu starke Drosselung der Pumpleistung eine unnötige Verlängerung des Meßzyklus. Bei günstiger Regulierung des Nadelventiles können Zykluszeiten von etwa 5 Sekunden erreicht werden.

3.5) Meßeinrichtungen

Die Meßanordnung für Streulicht und Druck ist in Fig. 2 schematisch dargestellt. Als Photomultiplier wurde der Typ 9698 QB der Firma EMI gewählt, der mit einer S-20-Kathode versehen ist. Wegen seiner Rotempfindlichkeit ist dieser Photomultiplier besonders zur Messung der Intensität des roten Helium-Neon-Laserlichts geeignet. Die kreisrunde lichtempfindliche Kathode hat einen Durchmesser von etwa 23 mm und befindet sich hinter einem Quarzfenster. Die

maximal zulässige Spannung zwischen Kathode und Anode beträgt 1800 V, der maximale Anodenstrom 100 μA . Der Photomultiplier befindet sich in einem Gehäuse, das die Abschirmung störender elektrischer und magnetischer Felder bewirkt. Die Kathode und die neun Dynoden liegen über einen Spannungsteiler an negativer Hochspannung von etwa 1500 V, die von einem Hochspannungsnetzgerät Type 246 der Firma KEITHLEY geliefert wird. Zur Umwandlung des Anodenstromes in eine proportionale Spannung wurde ein aktiver Stromspannungswandler gebaut, dessen Schaltbild in Fig. 13 dargestellt ist. Die Verwendung eines aktiven Stromspannungswandlers hat den Vorteil, daß die Anode des Photomultipliers stets annähernd auf Massepotential gehalten wird, wodurch eine gute Linearität erreicht wird. Der Stromspannungswandler ist als gegengekoppelter Operationsverstärker ausgeführt. Der Gegenkoppelwiderstand bestimmt den Konversionsfaktor, der mittels des Stufenschalters S_2 zwischen 10 und 500 mV/ μA in 6 Stufen variiert werden kann. Der Umschalter S_1 erlaubt die Parallelschaltung eines Kondensators derart, daß unabhängig vom eingestellten Konversionsfaktor eine bestimmte Integrationszeitkonstante auftritt. Diese Zeitkonstante beträgt in der Stellung 1 (lang) 500 μsec , m(mittels) 100 μsec und k(kurz) ca. 5 μsec . Durch passende Wahl der Integrationszeitkonstanten kann das hochfrequente Rauschen des Photomultipliers weitgehend unterdrückt werden ohne Beeinträchtigung der Meßgenauigkeit. Der Operationsverstärker ist durch 2 Dioden vor Überspannungen geschützt. Der Eingang des Stromspannungswandlers ist über einen Schutzwiderstand von 470 Ω mit dem invertierenden Eingang des Operationsverstärkers verbunden. Zwischen 1 und 5 liegt ein 10 k Ω -Potentiometer zur Kompensation der Offset-Spannung. Zu Testzwecken ist ein Testeingang vorgesehen, über den der Stromspannungswandler als normaler Spannungsverstärker betrieben werden kann. Das Spannungssignal am Ausgang des Stromspannungswandlers wird anschließend

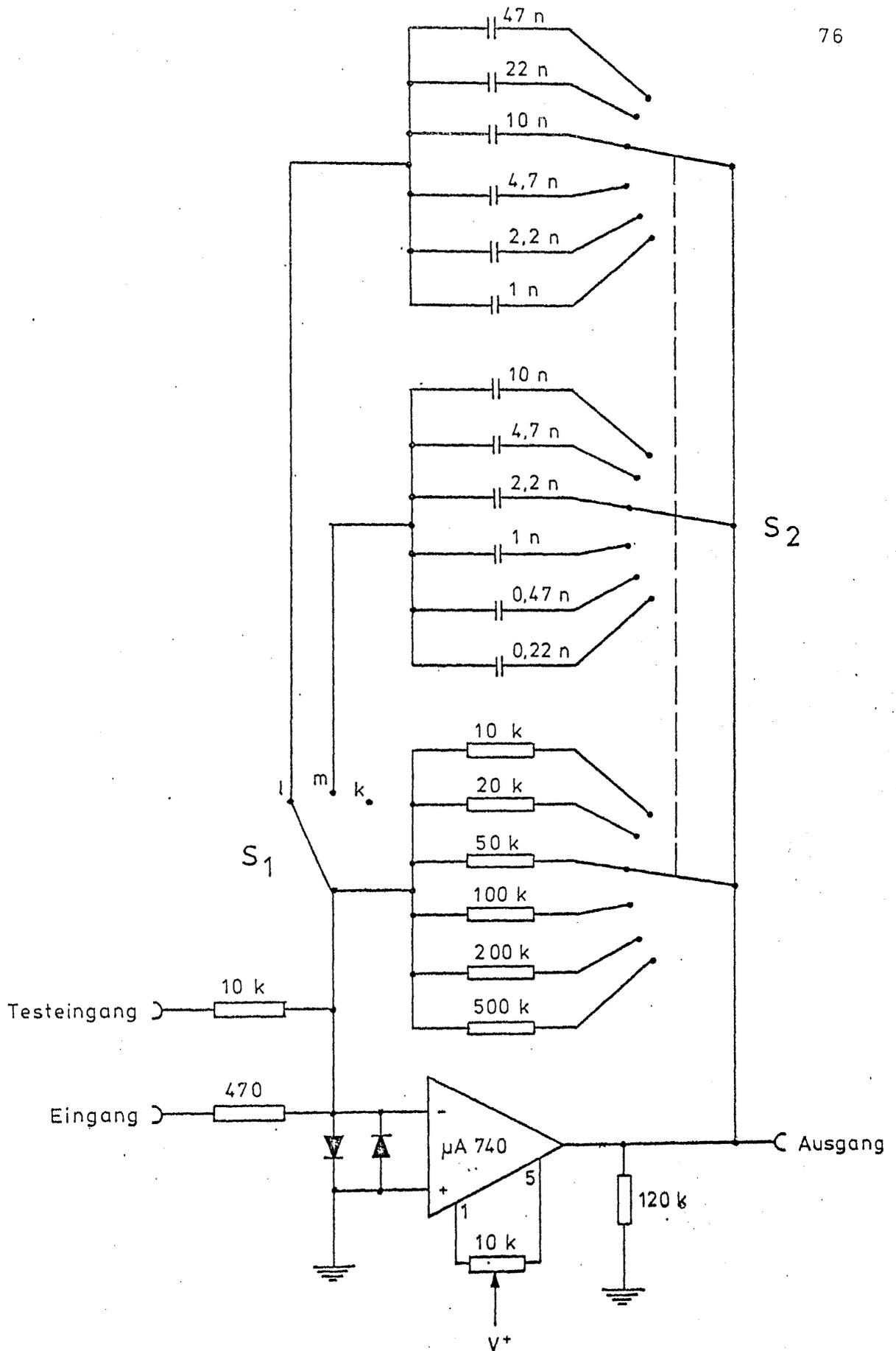


Fig. 13 Schaltbild des Strom-Spannungs-Wandlers

mittels eines Linearverstärkers Typ N-LV-211 der Firma WENZEL verstärkt. Dieser Verstärker ist gleichspannungsgekoppelt, also auch für statische Messungen geeignet und hat eine typische Anstiegszeit von 60 nsec. Die Verstärkung kann zwischen 8 und 2048 mittels eines Stufenschalters eingestellt werden.

Zur Druckmessung wurde ein beschleunigungskompensierter piezoelektrischer Druckaufnehmer Typ 7031 der Firma KISTLER mittels eines speziellen Steckernippels in die Wand der Expansionskammer eingebaut. Der Meßbereich erstreckt sich von 0 bis 2,5 at, die Linearität beträgt $\pm 1 \%$, die Ansprechschwelle liegt bei 5×10^{-4} at. Die Anstiegszeit von 5 μ sec liegt etwa 3 Größenordnungen unter den auftretenden Druckabfallzeiten in der Expansionskammer. Der Isolationswiderstand von 10^{14} Ohm ermöglicht neben den dynamischen auch quasistatische Messungen. Das am Ausgang des Druckaufnehmers auftretende Ladungssignal wird mittels eines ladungsabhängigen Verstärkers Typ 5001 der Firma KISTLER in eine proportionale Spannung umgeformt. Der Verstärker hat 12 geeichte Meßbereiche, der Frequenzbereich beträgt 0 bis 180 kHz.

Die Spannungssignale von Linearverstärker und ladungsabhängigem Verstärker werden an je einen Eingang des Storageoszilloskops Typ 549 mit 2-Kanaleinschub Typ 1A1 der Firma TEKTRONIX gelegt. Die Storageeinrichtung dieses Gerätes erlaubt die Aufzeichnung einmaliger Spannungsverläufe, wie sie bei den Streulicht- und Druckmessungen auftreten. Zur Auswertung der Meßkurven können auch photographische Aufnahmen mittels der Oszillographenkamera Typ C-12 der Firma TEKTRONIX gemacht werden. Dabei können verschiedene Raster in die Oszillographenschirmebene eingespiegelt werden.

Als Referenzinstrument zur Messung der Kondensationskernkonzentration des Primäraerosols wurde ein Kondensationskernzähler nach RICH verwendet, dessen Funktionsweise dem in der vorliegenden Arbeit verwendeten Meßprinzip ähnlich ist. Figur 14 zeigt ein Blockdiagramm des Rich-Kondensationskernzählers. Durch einen Befeuchter tritt das Kernaerosol in die Expansionskammer ein, die von einer Dunkelfeldanordnung beleuchtet wird. Das Drehventil mit Antriebsmotor bewirkt gemeinsam mit dem Druckregler und der Pumpe eine zyklische Aufeinanderfolge von Expansions- und Spülvorgängen in der Expansionskammer. Das Expansionsverhältnis beträgt 1,37. Das an den in der Expansionskammer befindlichen Kondensationströpfchen gestreute Licht wird mittels eines Photomultipliers gemessen. Die maximale Streulichtintensität während eines Expansionsvorganges wird von einem Spitzenanzeigergerät festgehalten und ist ein Maß für die Kernkonzentration. Die Eichung des Kondensationskernzählers nach RICH erfolgte mit einem Pollakzähler, der wieder mittels eines Scholzzählers absolut geeicht wurde. Der Aerosoldurchsatz liegt bei $100 \text{ cm}^3/\text{sec}$ entsprechend einer Zyklenfrequenz von 5 Zyklen pro Sekunde. Die Ansprechzeit von etwa 2 Sekunden wird hauptsächlich durch die Verweilzeit im Befeuchter bedingt. Der Meßbereich erstreckt sich bei frisch gereinigter Optik etwa von 50 Kernen/ccm bis 10^7 Kerne/ccm.

3.6) Aerosolquellen

Für die Messung wurden 3 Arten von Kondensationskernen verwendet: Kochsalzteilchen, Rußteilchen aus einer Benzolflamme und Polystyrol-Latex-Teilchen. Zur Erzeugung der Kochsalzteilchen wurde in einer Intensivwaschflasche gefilterte Luft durch eine 1 %ige wäßrige NaCl-Lösung hindurchgeleitet. Beim Zerplatzen der aufsteigenden Luftbläschen werden kleine Lösungströpfchen gebildet,

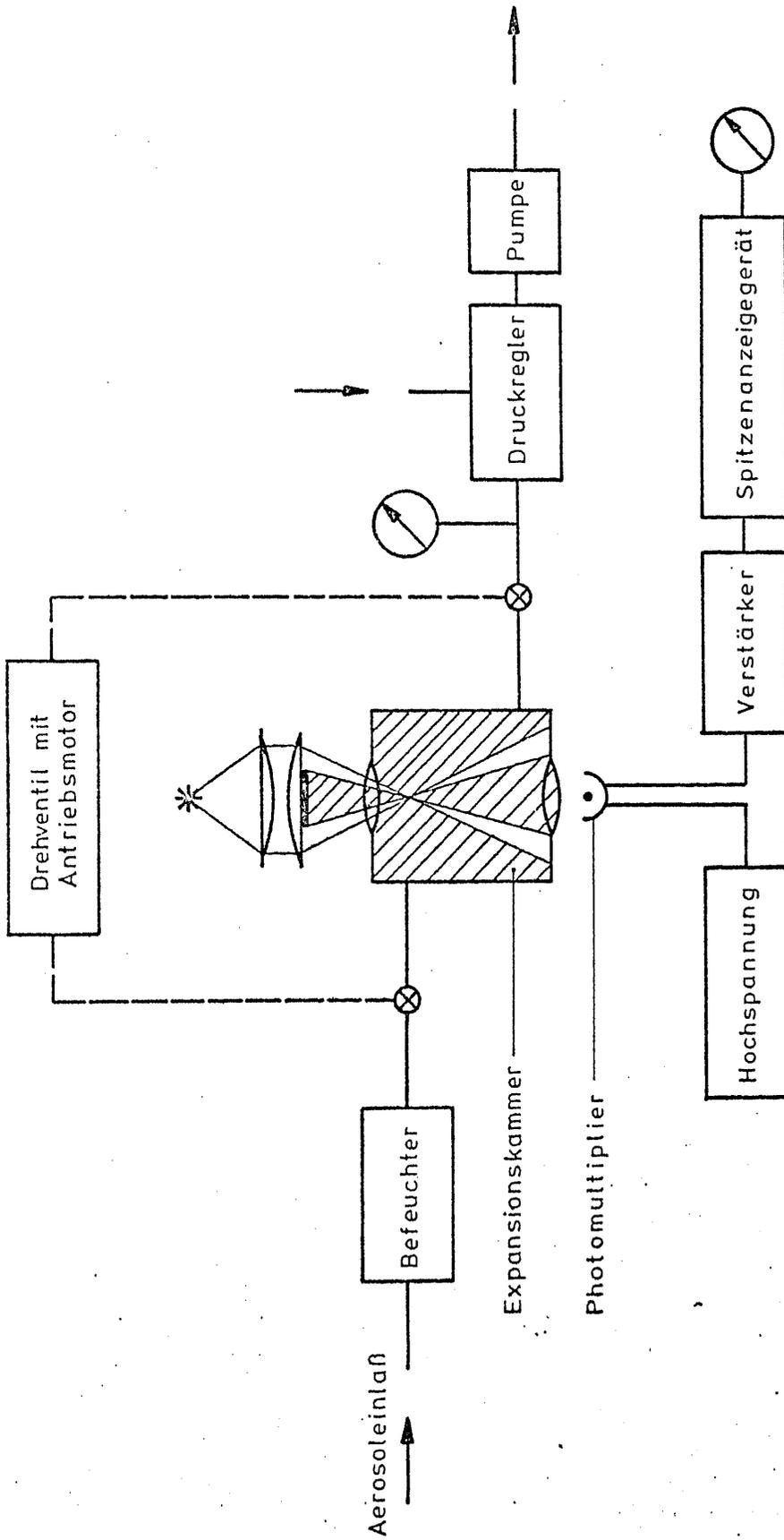


Fig. 14 Blockdiagramm des Kondensationskernzählers nach RICH

die in einem 10-Liter-Mischgefäß unter turbulenter Beimischung trockener, gefilterter Luft verdampfen. Die Konzentration der entstehenden Kochsalzteilchen kann durch Veränderung der Luftbeimischung und des Durchsatzes durch die Intensivwaschflasche in weiten Grenzen variiert werden.

Der Aufbau des Aerosolgenerators zur Erzeugung von Rußteilchen aus einer Benzolflamme ist in Fig. 15 dargestellt. Durch eine mit Benzol gefüllte Intensivwaschflasche wird gefilterte Preßluft hindurchgeleitet. Der Durchsatz kann mittels der Ventile N_3 und N_4 reguliert und über mehrere Stunden konstant gehalten werden. Beim Durchperlen durch das flüssige Benzol wird die Luft mit Benzoldampf gesättigt, der beim Austritt aus einer Düse entzündet werden kann. Zur Herstellung reproduzierbarer Verhältnisse erwies es sich als notwendig, in einem Schlot einen Reinluftstrom an der Flamme vorbeizuführen, der mittels des Nadelventiles N_1 auf 4 bis 6 l/min eingestellt und mittels des Rotameters R_1 kontrolliert wurde. Durch diese Anordnung wird das feinteilige Benzolruß-Aerosol unmittelbar nach der Entstehung in definierter Weise verdünnt, wodurch die Koagulationsverluste stark herabgesetzt werden. In einer Vakuumlöcke wird anschließend durch turbulente Zumischung von Reinluft die gewünschte Aerosolkonzentration hergestellt. Der Durchsatz wurde mittels N_2 und R_2 auf 20 bis 40 l/min eingestellt.

Die Polystyrol-Latex-Teilchen werden von der Firma DOW in Form eines Hydrosols geliefert. Für die vorliegende Arbeit wurden Teilchen mit einem Durchmesser von $0,1 \mu\text{m}$ und einer Standardabweichung von $0,003 \mu\text{m}$ verwendet. Die Hydrosolkonzentration beträgt etwa 10^{14} Teilchen/ml.

Um die Teilchen in den luftgetragenen Zustand überzuführen, wurde die in Fig. 16 gezeigte Anordnung verwendet. In einem medizinischen Zerstäuber wird das etwa im Verhältnis 1 : 10 verdünnte Latexhydrosol mittels eines einstellbaren Reinluftstromes in Tröpfchenform übergeführt. Anschließend wird dieses Tröpfchenaerosol in einem einstellbaren Verdünnungsluftstrom getrocknet. Dabei entstehen Einfach- oder Mehrfachteilchen entsprechend der Anzahl der Latexteilchen in einem Tröpfchen. In einem 10-Liter-Mischgefäß wird anschließend durch turbulente Zumischung von gefilterter Luft die gewünschte Aerosolkonzentration hergestellt.

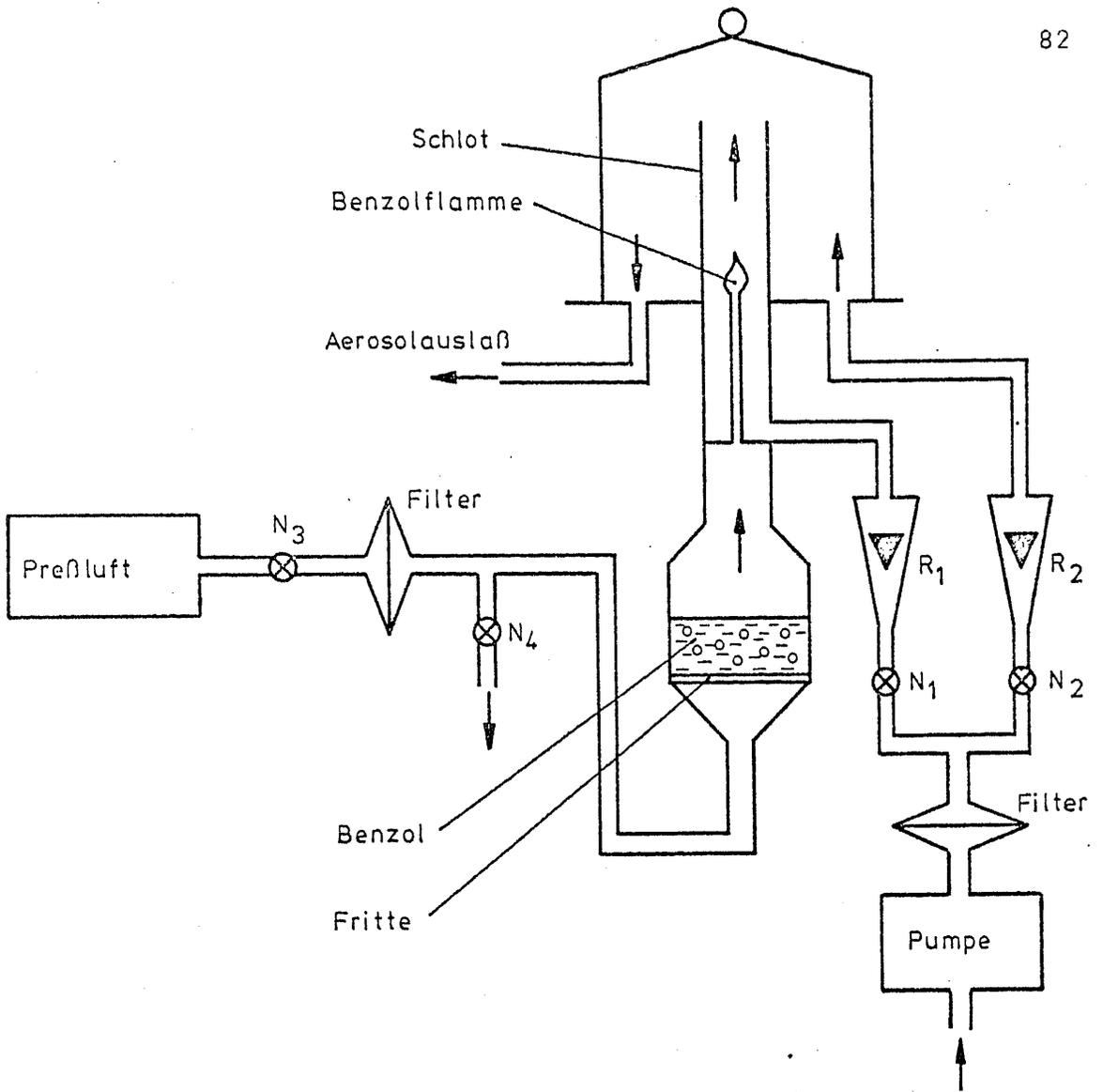


Fig. 15 Prinzipieller Aufbau des Benzolruß-Aerosolgenerators

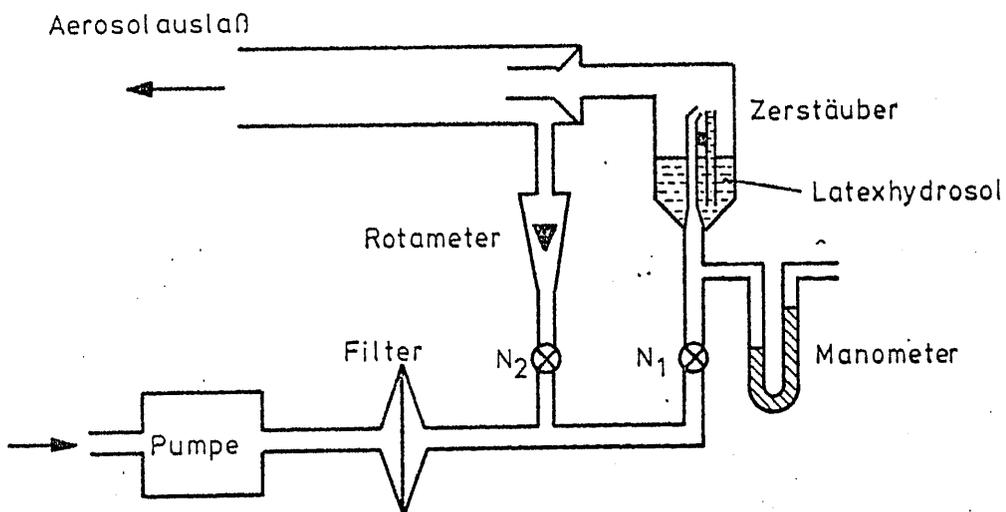


Fig. 16 Prinzipieller Aufbau des Latex-Aerosolgenerators

4) MESSUNGEN UND DISKUSSION

4.1) Messung des Primärlichtflusses

Damit ein quantitativer Vergleich der Streulichtmessungen mit der Mie'schen Streutheorie ermöglicht wird, muß neben dem Streulichtfluß auch der Primärlichtfluß gemessen werden. Um mit dem für die Streulichtmessungen vorgesehenen Photomultiplier auch den Primärlichtfluß messen zu können, wurde der konische Teil des Blendenrohres und die Lichtfalle entfernt. Anschließend wurde die Drehbühne in die Stellung 0° gebracht, sodaß der Laserstrahl unmittelbar in die Lichtmeßapparatur einfiel.

Weil die Laserintensität weit oberhalb des Meßbereiches eines Photomultipliers liegt, mußten abschwächende Graufilter in den Strahlengang gebracht werden. Es wurden drei Gelatine-Graufilter Wratten N.D. 2.00 der Firma KODAK verwendet, die gemäß Spezifikation eine Abschwächung im Verhältnis 100 : 1 bewirken. Die Messung der Abschwächung mittels des Photomultipliers ergab für die drei ausgewählten Graufilter auf 2 % genau die Werte 110,5 : 1, 110,5 : 1, 108 : 1. Die drei Graufilter wurden zwischen zwei Glasplättchen eingelegt, die die gleiche Dicke wie der in die Expansionskammer eingeklebte Glaszylinder aufweisen. Die Messung der Absorption eines Glasplättchens ergab auf 1 % genau den Wert 1,10 : 1. Damit erhält man eine Abschwächung des Laserstrahls im Verhältnis $(1,60 \cdot 10^6) : 1$. Im Glaszylinder erfolgt eine Absorption des Streulichtes im Verhältnis 1,10 : 1. Die zusätzliche Abschwächung des Laserstrahls ergibt sich damit zu $(1,45 \cdot 10^6) : 1$ mit einem relativen Fehler von 7 %.

Die Messung des Primärlichtflusses wurde etwa 30 Minuten nach dem Einschalten des Lasers durchgeführt. Damit ist gewährleistet, daß der Laser bereits die volle Strahlungsleistung erreicht hat. Während der Messung wurde die Feineinstellung der an der Photomultiplierkathode liegenden

Hochspannung von etwa 1500 V vorgenommen derart, daß bei einem Strom-Spannungskonversionsfaktor von 800 mV/ μ A eine Spannung von 2 V als Meßresultat auftrat. Entsprechend der Abschwächung des Laserstrahls erhält man bei dieser Einstellung für den Primärlichtfluß in Einheiten des Anodenstromes den Wert $3,63 \cdot 10^6 \mu\text{A}$ mit einem relativen Fehler von 7 %.

4.2) Messung des Streulichtverlaufes unter verschiedenen Streuwinkeln und Messung des Druckverlaufes.

Etwa 2 Stunden vor Beginn einer Meßserie wurden das Heizband und die Thermostate für Expansionskammer und Befeuchter in Betrieb gesetzt. Der Befeuchter wurde auf einer Temperatur von 28°C , die Expansionskammer auf einer Temperatur von 30°C gehalten. Ungefähr 30 Minuten vor Meßbeginn wurden der Laser, das Hochspannungsnetzgerät für den Photomultiplier und der RICh-Kondensationskernzähler eingeschaltet. Außerdem wurde die jeweils eingesetzte Aerosolquelle ins Gleichgewicht gebracht, wobei die Konstanz der Teilchenkonzentration mittels des RICh-Kondensationskernzählers kontrolliert wurde. Unmittelbar vor Beginn der Messungen wurde die in 4.1) beschriebene Feineinstellung der Hochspannung vorgenommen. Anschließend wurde der automatische Meßzyklus in Betrieb gesetzt. Am Ende jeder Meßserie wurde die Konstanz der Laserintensität überprüft. Die Abweichungen lagen stets innerhalb eines Bereiches von 2 %.

Fig. 17 bis Fig. 22 zeigen Oszillogramme des Druck- und Streulichtverlaufes bei einem Expansionsverhältnis von 1,17 und verschiedenen Streuwinkeln. Bei Vorwärtsstreuung unter einem Winkel von 15 Grad weist die Streulichtkurve wenige Extrema auf bei hoher Streulichtintensität (Fig. 17). Mit zunehmendem Streuwinkel steigt die Anzahl der Extrema, während die Streulichtintensität geringer wird (Fig. 18, 19, 20).

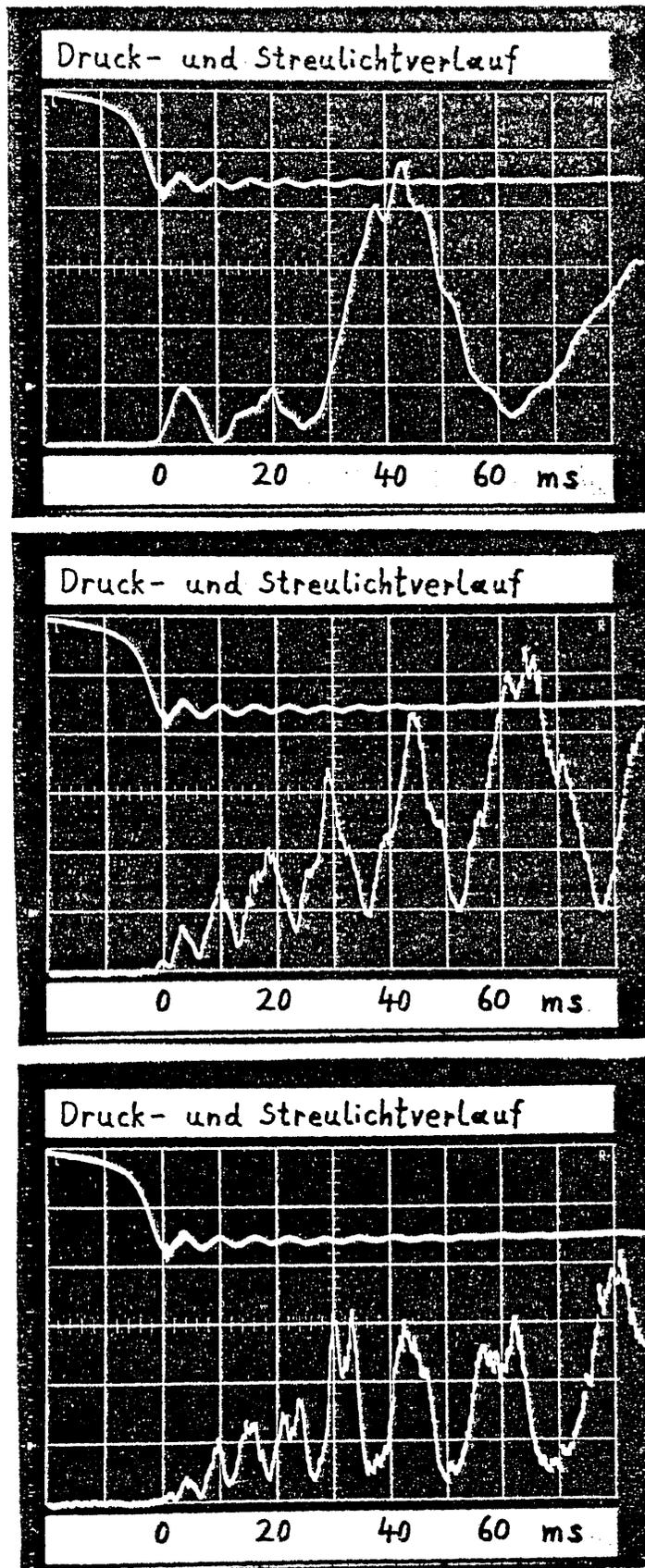


Fig. 17,18,19 Gemessener Druck- und Streulichtverlauf, Streuwinkel $15^\circ, 45^\circ, 65^\circ$

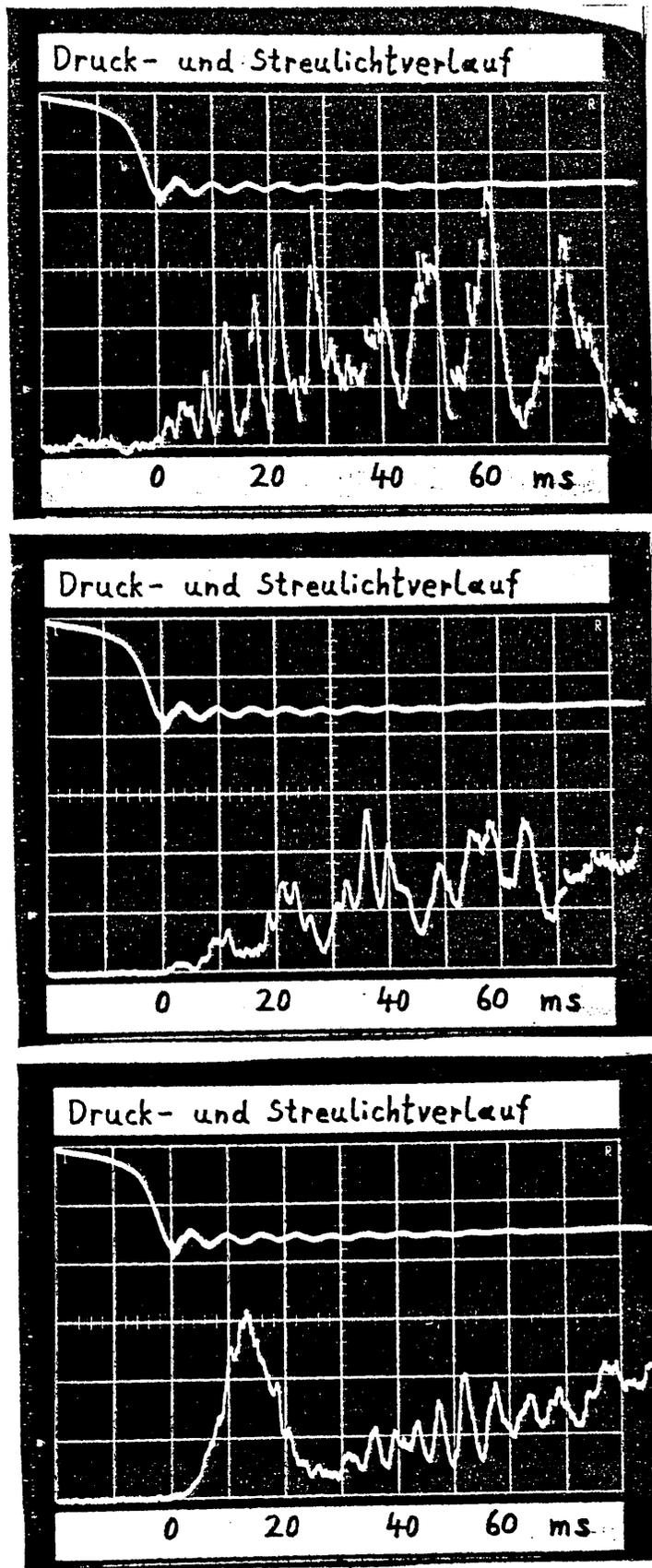


Fig. 20,21,22 Gemessener Druck- und Streulichtverlauf, Streuwinkel 90° , 145° , 165°

Die Rückwärtsstreuung ergibt bei einem Streuwinkel von 145° eher unübersichtliche Streulichtkurven (Fig. 21), bei 165° tritt nach einem charakteristischen Maximum eine Folge nahe beisammenliegender Extrema auf (Fig. 22).

Die gemäß der Mie'schen Streutheorie berechneten Streulichtkurven für Streuwinkel von 15° und 45° sind in Fig. 23, 24 dargestellt. Der Vergleich von Fig. 17, 18 mit Fig. 23, 24 zeigt gute Übereinstimmung von theoretischen und experimentellen Kurven. Dementsprechend kann auf eine hohe Monodispersität des Tröpfchenaerosols geschlossen werden. Außerdem ist sichergestellt, daß Mehrfachstreuung und ähnliche Effekte bei den vorliegenden Versuchsbedingungen vernachlässigt werden können.

Um zu einer umkehrbar eindeutigen Zuordnung der Extrema der theoretischen und experimentellen Kurven zu gelangen, können mehrere Verfahren angewendet werden.

- 1) Durch entsprechende Verstärkung des Meßsignals kann das erste Maximum beobachtet werden, wodurch die Zuordnung zu den folgenden Extrema festgelegt ist. Eine sichere Identifizierung des ersten Maximums ist nur bei hinreichender Streulichtintensität gewährleistet. Bei einem Streuwinkel von 15° ist das erste Maximum deutlich erkennbar (Fig. 17), während die Streulichtkurve bei 90° eine eindeutige Festlegung des ersten Maximums nicht zuläßt (Fig. 20).
- 2) Die umkehrbar eindeutige Zuordnung zwischen theoretischen und experimentellen Kurven kann auch durch Messung unter verschiedenen Streuwinkeln und Vergleich der verschiedenen Streulichtkurven erfolgen. In der vorliegenden Arbeit

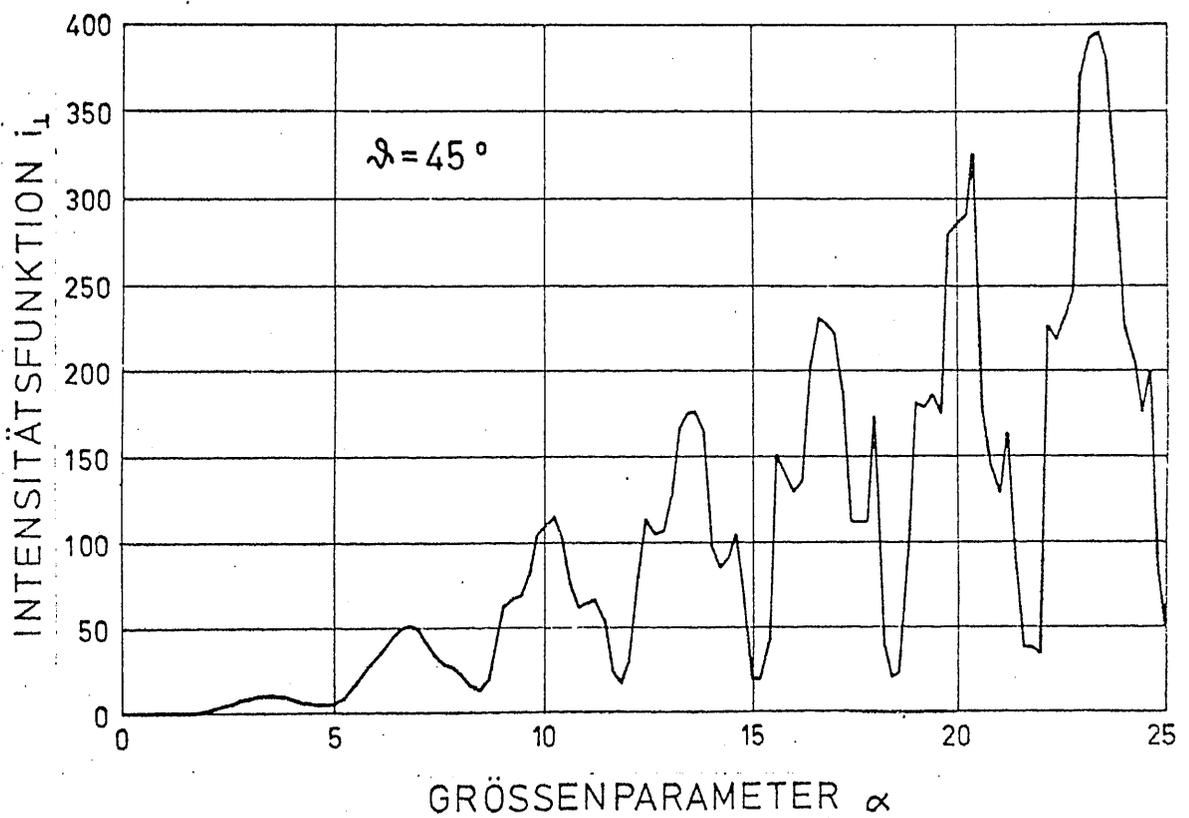
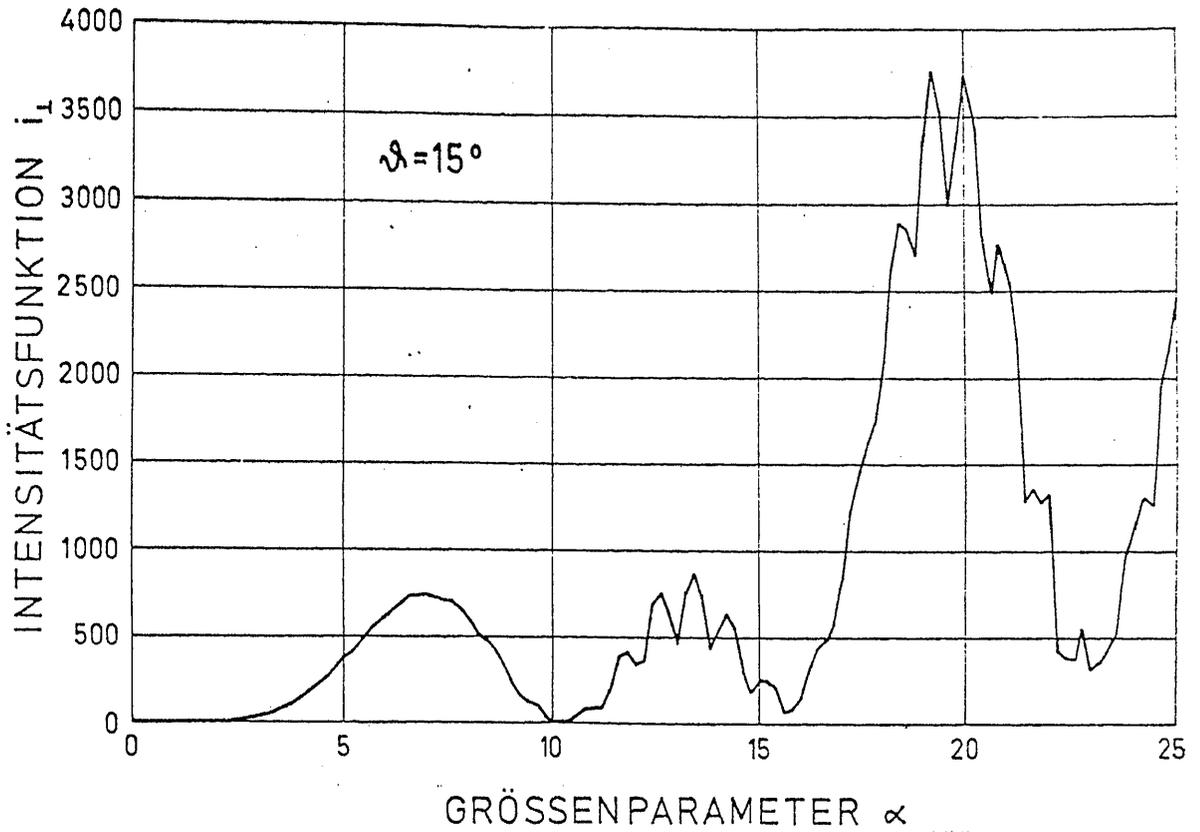


Fig. 23,24 Intensitätsfunktion $i_1(m, \alpha, \theta)$ als Funktion von α bei $m=1,33$ und $\theta=15^\circ$ bzw. 45°

wurden zu diesem Zweck die Streuwinkel von 15° und 45° ausgewählt (Fig. 17, 18, 23, 24).

- 3) Um jeden Zweifel zu beseitigen, kann ein weiteres Verfahren angewendet werden, bei dem statt kontinuierlichen Laserlichtes gepulstes Licht eingesetzt wird. Nach der Expansion am Ende eines fest einstellbaren Zeitintervalls wird ein Lichtimpuls in die Expansionskammer geschickt. Die Verzögerungszeit wird so bemessen, daß sie dem Auftreten eines bestimmten Extremums einer Streulichtkurve entspricht. Der Streulichtimpuls wird bei mehreren Expansionszyklen unter verschiedenen Winkeln gemessen. In der vorliegenden Arbeit wurde die Verzögerungszeit entsprechend dem ersten Maximum der 15° -Streulichtkurve ausgewählt, das einem Größenparameter $\alpha = 6,8$ entspricht (Fig. 23). Die Winkelabhängigkeit der gemessenen Streulichtintensität ist in Fig. 25 dargestellt, wobei die Winkelabhängigkeit des Streuvolumens berücksichtigt wurde (s. 3.3)). Fig. 26 zeigt die berechnete Intensitätsfunktion i_{\perp} als Funktion des Streuwinkels für den Größenparameter $\alpha = 6,8$. Der Vergleich von Fig. 25 mit Fig. 26 beweist, daß das 1. Maximum in Fig. 17 tatsächlich dem Größenparameter $\alpha = 6,8$ entspricht.

Nach Herstellung dieser umkehrbar eindeutigen Zuordnung sind unabhängig voneinander zwei verschiedene Aussagen aufgrund der erhaltenen experimentellen Kurven möglich. Einerseits kann aus der Höhe der Streulichtmaxima durch Vergleich mit der Mie'schen Theorie die Konzentration der gebildeten Tröpfchen ermittelt und andererseits aus der Lage der Extrema der experimentellen Kurven die Größe der Kondensationströpfchen zu bestimmten Zeitpunkten abgelesen werden.

Die ersten derartigen Messungen gehen auf COHEN (1969) zurück. COHEN konnte jedoch die eindeutige Zuordnung

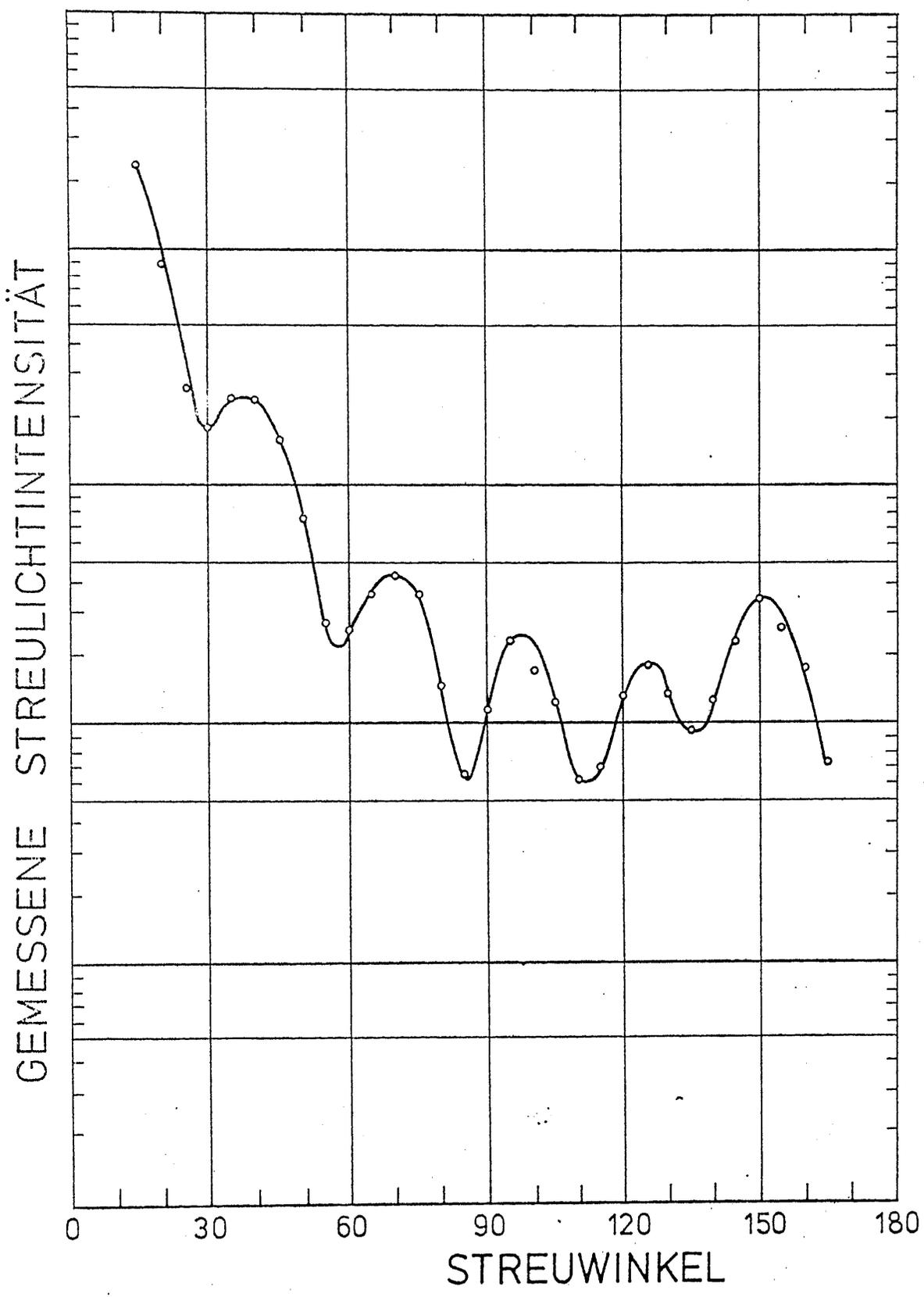


Fig. 25 Gemessene Streulichtintensität als Funktion des Streuwinkels bei einer festen Verzögerungszeit

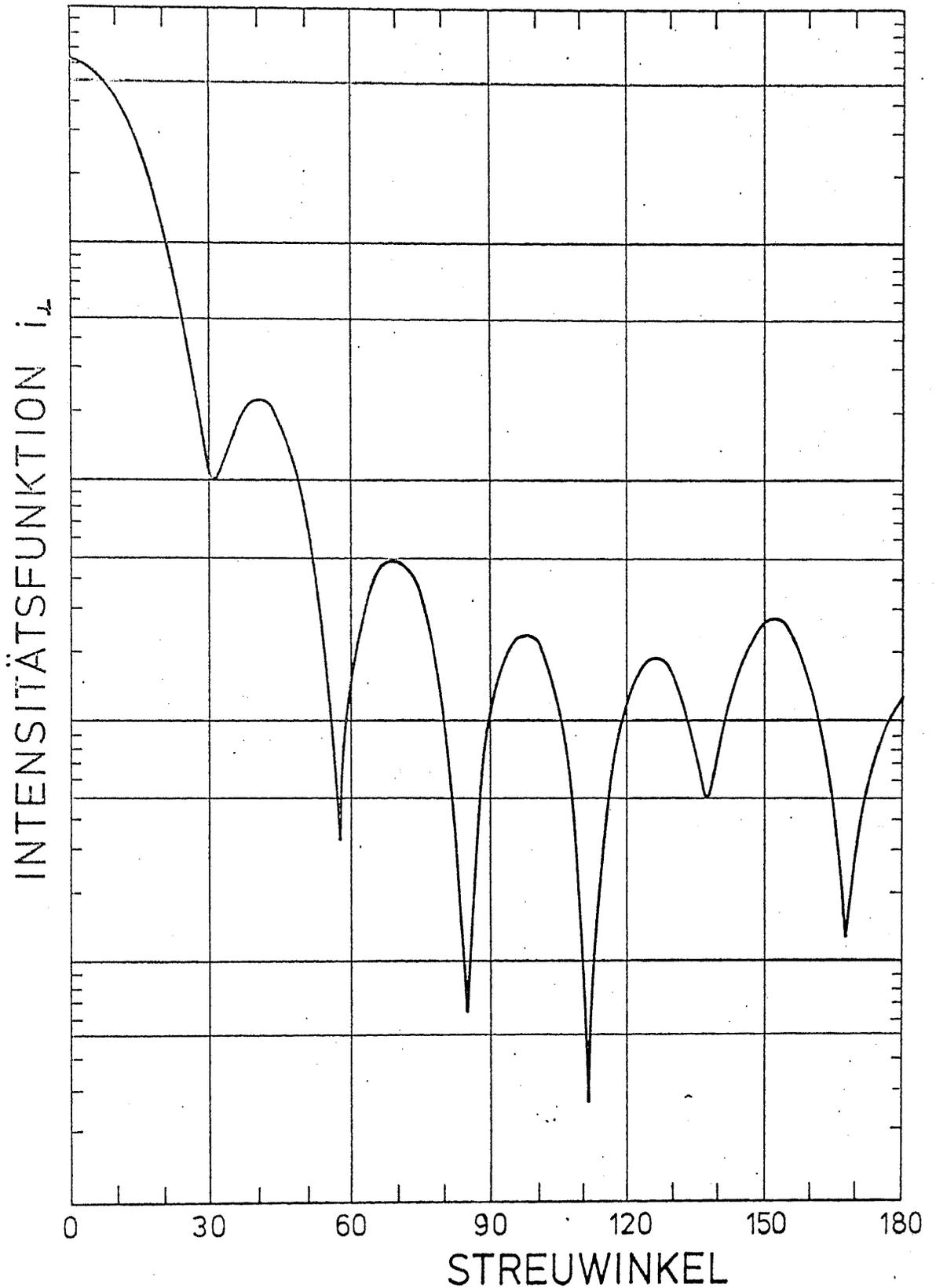
GRÖSSENPARAMETER $\alpha = 6.8$ 

Fig. 26 Intensitätsfunktion $i_1(m, \alpha, \theta)$ als Funktion von θ
bei $m=1,33$ und $\alpha=6,8$

zwischen experimentellen und theoretischen Kurven nicht herstellen, weshalb er zu keinen Tröpfchenwachstumskurven gelangte. VIETTI und SCHUSTER (1973) identifizierten bei einem Streuwinkel von 30° das erste Maximum der Streulichtkurve und ermittelten Tröpfchenwachstumskurven bei verschiedenen Expansionsverhältnissen und extrem niedrigen Tröpfchenkonzentrationen. Im folgenden werden die Ergebnisse der in der vorliegenden Arbeit durchgeführten Tröpfchenkonzentrationsmessungen und Tröpfchengrößenbestimmungen dargestellt. Der Einfluß der Tröpfchenkonzentration auf das Tröpfchenwachstum wird untersucht. Zur Berechnung der Übersättigung in der Expansionskammer wird eine trockenadiabatische Expansion (siehe 2.2)) vorausgesetzt. Die Rechtfertigung für diese Annahme kann an Hand der Oszillogramme in Fig. 17 bis Fig. 22 gegeben werden. Der Druckverlauf zeigt, daß die Expansion abgeschlossen ist, bevor das Tröpfchenwachstum merkbar einsetzt. Damit ist, abgesehen von extrem hohen Kernkonzentrationen, sichergestellt, daß während der Expansion weder der Wasserdampfverbrauch durch kondensierende Tröpfchen noch die freigesetzte Kondensationswärme zu größeren Abweichungen von der trockenadiabatisch berechneten Übersättigung führen können (siehe auch 4.4.2)).

4.3) Konzentrationsbestimmung aus der Höhe der Streulichtmaxima

4.3.1) Eichung des Rich-Kondensationskernzählers

Die Bestimmung der Konzentration der Kondensationströpfchen kann dadurch erfolgen, daß neben dem Primärlichtfluß ϕ_0 auch der Streulichtfluß ϕ bei einem bestimmten Maximum einer Streulichtkurve quantitativ gemessen wird. Damit kann gemäß (3.7) die Tröpfchenkonzentration C ermittelt werden. Wegen der großen Streulichtintensität wurde der Streuwinkel 15° für die Konzentrationsmessungen herangezogen.

Bei der Bestimmung der Tröpfchenkonzentration muß strenggenommen berücksichtigt werden, daß das Licht auf dem Weg durch die Expansionskammer durch den gebildeten Nebel geschwächt wird. Die Größe dieser Lichtextinktion kann durch Messung des durch die Expansionskammer hindurchtretenden Primärlichtflusses während des Tröpfchenwachstums ermittelt werden. Fig. 27, 28, 29 zeigen den zeitlichen Verlauf von Druck und Primärlichtfluß bei den am RICH-Kondensationskernzähler abgelesenen Konzentrationen von 20 k, 100 k und 500 k und einem Expansionsverhältnis von 1,41.

Erwartungsgemäß zeigt sich ein Ansteigen der Extinktion mit wachsender Tröpfchenkonzentration. Eine exakte Berücksichtigung der Lichtextinktion ist nur möglich, wenn während des Tröpfchenwachstums neben dem Streulichtfluß gleichzeitig auch der durch die Expansionskammer hindurchtretende Primärlichtfluß gemessen und das Verhältnis gebildet wird. In der vorliegenden Arbeit wurde die Wirkung der Lichtextinktion dadurch weitgehend ausgeschaltet, daß bei größeren Konzentrationen stets das unmittelbar nach Ende der Expansion auftretende erste Maximum der 15° -Streulichtkurve zur Konzentrationsbestimmung herangezogen wurde. Aus Fig. 29 erkennt man, daß unmittelbar nach Ende der Expansion auch bei hohen Tröpfchenkonzentrationen erst eine verhältnismäßig geringe Lichtextinktion auftritt.

Will man von der gemessenen Tröpfchenkonzentration in der Expansionskammer zurückschließen auf die Konzentration der Kondensationskerne, dann muß berücksichtigt werden, daß unter Umständen ein Teil der Kondensationskerne bereits im Befeuchter durch Diffusion oder Koagulation verlorengeht. Diese Effekte treten vor allem bei sehr kleinen Kondensationskernen auf. Eine Verringerung der Verluste von Kondensationskernen kann dadurch erzielt werden, daß die

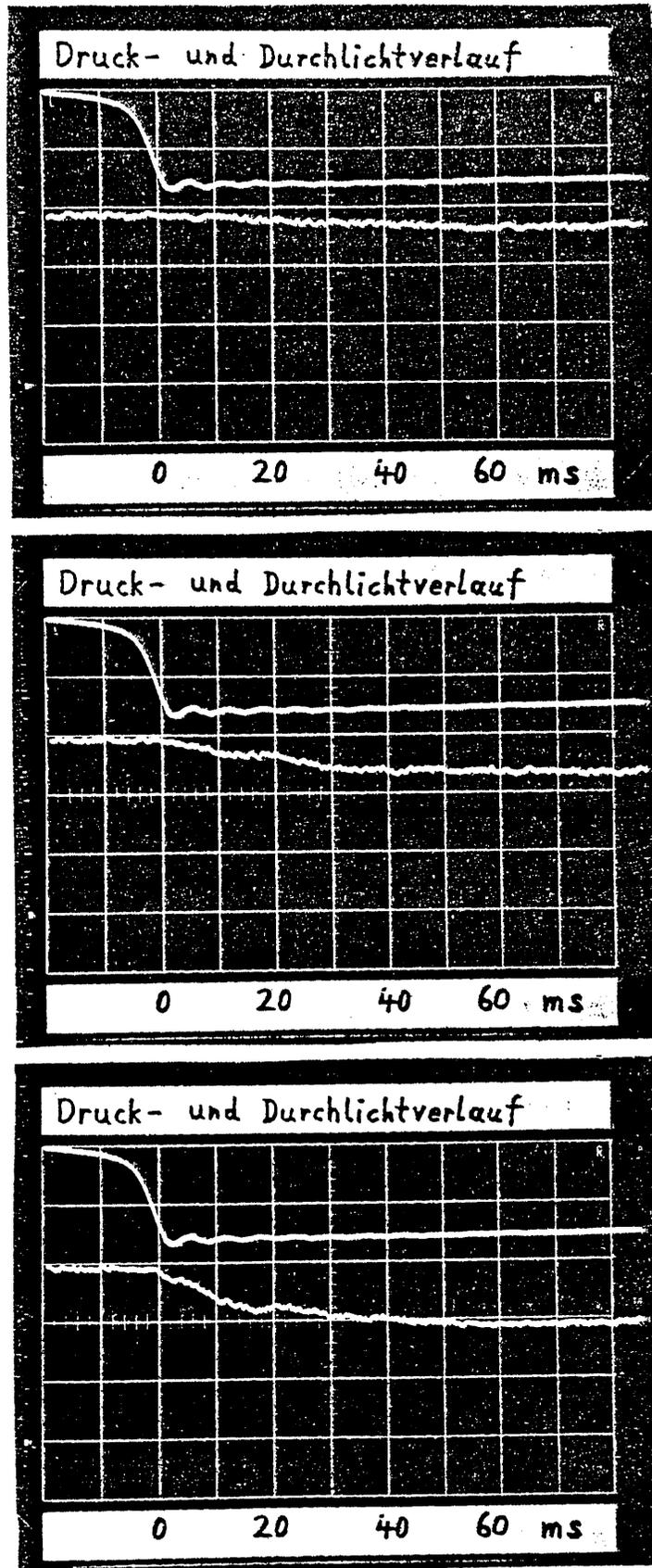


Fig. 27,28,29 Einfluß der Lichtextinktion in der Expansionskammer bei verschiedenen Tröpfchenkonzentrationen

Verweilzeit des Kernaerosols im Befeuchter durch einen zusätzlichen Spülluftdurchsatz reduziert wird. Fig. 30 zeigt das Ansteigen der Tröpfchenkonzentration bei wachsendem Spülluftdurchsatz und sonst konstanten Bedingungen für Latexkerne. Die Erhöhung des Durchsatzes durch den Befeuchter bewirkt jedoch andererseits eine Verschlechterung des Befeuchtungsgrades.

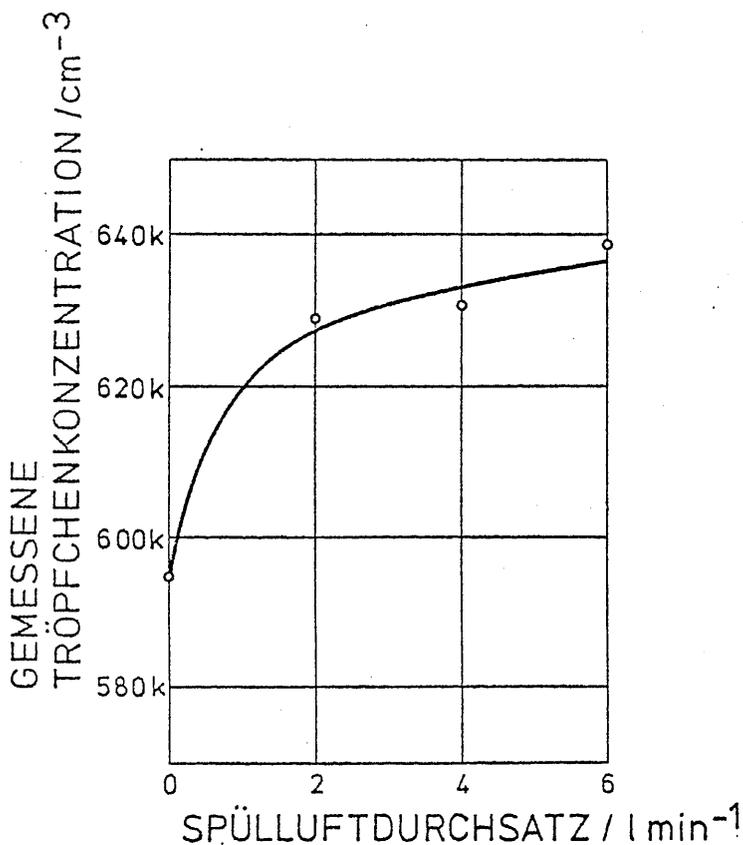


Fig. 30 Einfluß von Diffusion und Koagulation im Befeuchter.

Durch gleichzeitige Konzentrationsmessung mittels des RICH-Kondensationskernzählers wurde eine Eichung vorgenommen. Als Kondensationskerne wurden nacheinander Latex-Teilchen und Benzolrußteilchen verwendet. In Fig. 31 entspricht die untere Kurve der Eichung mittels Latexteilchen, die obere Kurve wurde für Benzolrußkerne aufgenommen. Für jeden Meßpunkt wurden mindestens 12 Einzelmessungen durchgeführt. Die gemessenen Tröpfchenkonzentrationen wurden entsprechend der durch die Expansion hervorgerufene Verdünnung der Luft in der Expansionskammer korrigiert. Die beiden soeben beschriebenen Effekte kommen in den Eichkurven zum Ausdruck: sowohl für die obere, als auch für die untere Kurve zeigt sich, daß die gemessenen Konzentrationen im Verhältnis zu den vom Rich-Kondensationskernzähler angezeigten Konzentrationen im oberen Konzentrationsbereich zurückgehen. Außerdem erkennt man, daß dieser Effekt bei Benzolrußkernen noch stärker ausgeprägt ist als bei Latexkernen, was wahrscheinlich auf die Kleinheit des Benzolrußes und die dadurch verstärkten Diffusions- und Koagulationsverluste im Befeuchter zurückzuführen ist. Im unteren Konzentrationsbereich besteht für Latexteilchen zwischen den gemessenen Konzentrationen und der Rich-Anzeige relativ gute Übereinstimmung. Dagegen ist die gemessene Tröpfchenkonzentration für Benzolrußkerne bedeutend höher als die Anzeige des Rich-Kondensationskernzählers.

4.3.2) Konzentrationsmessungen bei verschiedenen Expansionsverhältnissen

Die erwähnten Abweichungen zwischen den gemessenen Tröpfchenkonzentrationen und der Anzeige des Rich-Kondensationskernzählers gaben Anlaß zur Untersuchung der Abhängigkeit der Tröpfchenkonzentration in der Expansionskammer vom eingestellten Expansionsverhältnis bei konstant gehaltener Kern-

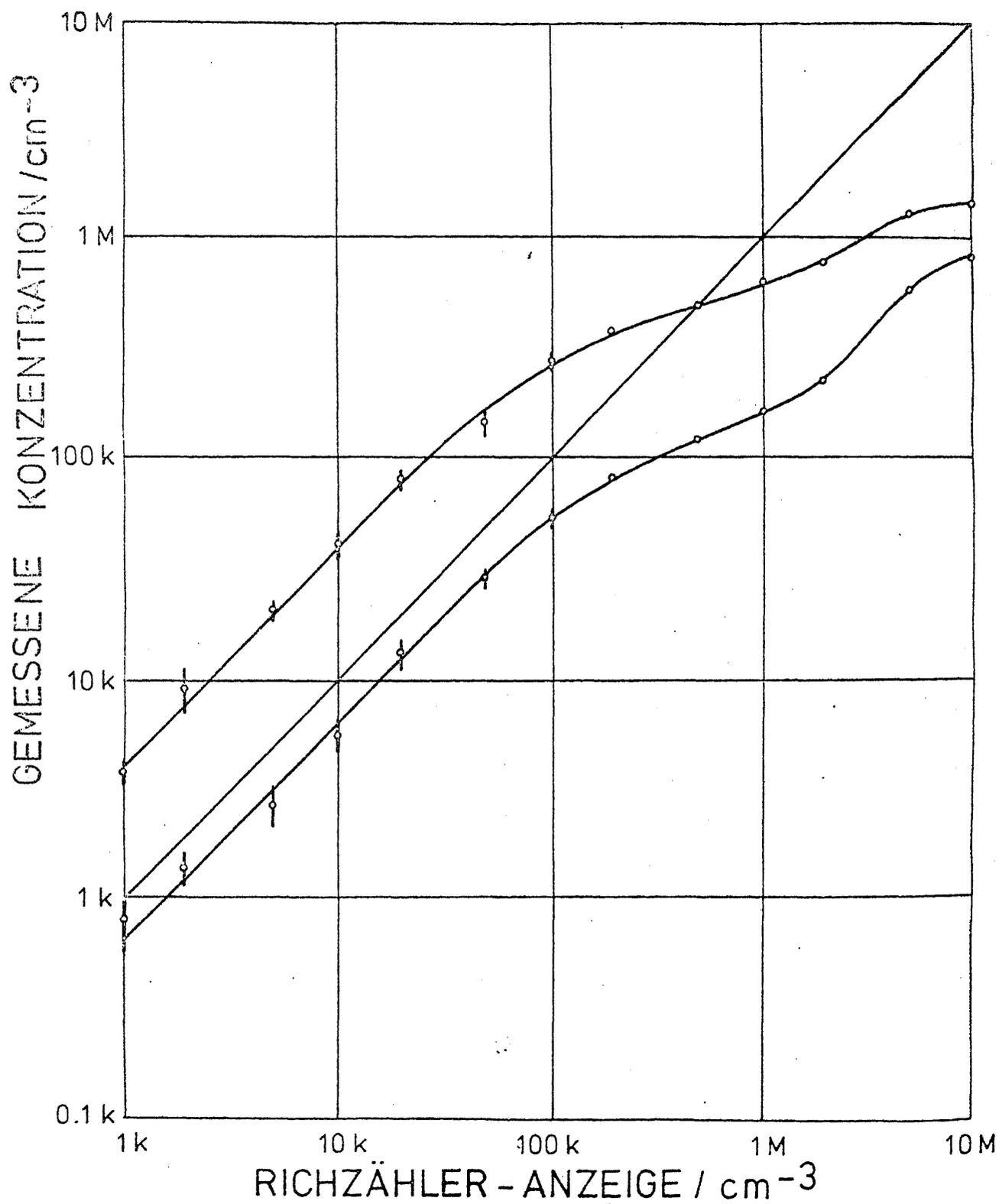


Fig. 31 Eichkurven des Kondensationskernzählers nach RICH
 obere Kurve: Benzolruß-Kerne, untere Kurve: Latex-Kerne

konzentration. Diese Untersuchungen wurden für Kochsalzkerne, Latexkerne und Benzolrußkerne durchgeführt. Bei der Messung mit Kochsalzkernen bzw. Latexkernen wurde die Primärkonzentration derart eingestellt, daß der Rich-Zähler konstant 50 k bzw. 100 k anzeigte. Unter diesen Voraussetzungen wurden Tröpfchenkonzentrationsmessungen bei Expansionsverhältnissen zwischen 1,05 und 1,53 durchgeführt. Unter dem Expansionsverhältnis 1,05 konnte kein Tröpfchenwachstum beobachtet werden. Die Ergebnisse dieser Messungen sind in Fig. 32, 33 dargestellt. Es ergab sich ein leichter Abfall der gemessenen Tröpfchenkonzentration mit wachsendem Expansionsverhältnis (Fig. 32, 33, untere Kurve). Nach Korrektur der Meßwerte entsprechend der während der Expansion erfolgenden Verdünnung der Luft in der Expansionskammer zeigt sich jedoch, daß die Tröpfchenkonzentration bis zu einem Expansionsverhältnis von etwa 1,35 konstant bleibt (Fig. 32, 33, obere Kurve). Der bei höheren Expansionsverhältnissen erkennbare Abfall der Tröpfchenkonzentration ist vielleicht auf Impaktionseffekte im Einlaßventil während des ruckartig einsetzenden Spülvorganges zurückzuführen.

Die Messung der Abhängigkeit der Tröpfchenkonzentration vom eingestellten Expansionsverhältnis für Benzolrußkerne wurde bei einer vom Rich-Zähler angezeigten Kernkonzentration von 100 k durchgeführt. Die korrigierten Meßwerte sind in Fig. 34 dargestellt. Im Gegensatz zu den Ergebnissen für Kochsalzteilchen und Latexteilchen zeigte sich bei den Benzolrußkernen ein starkes Ansteigen der Tröpfchenkonzentration mit dem eingestellten Expansionsverhältnis. Eine Erklärung hierfür ist, daß im Benzolruß äußerst kleine Teilchen vorhanden sind, die erst bei höheren Expansionsverhältnissen als Kondensationskerne aktiviert werden können.

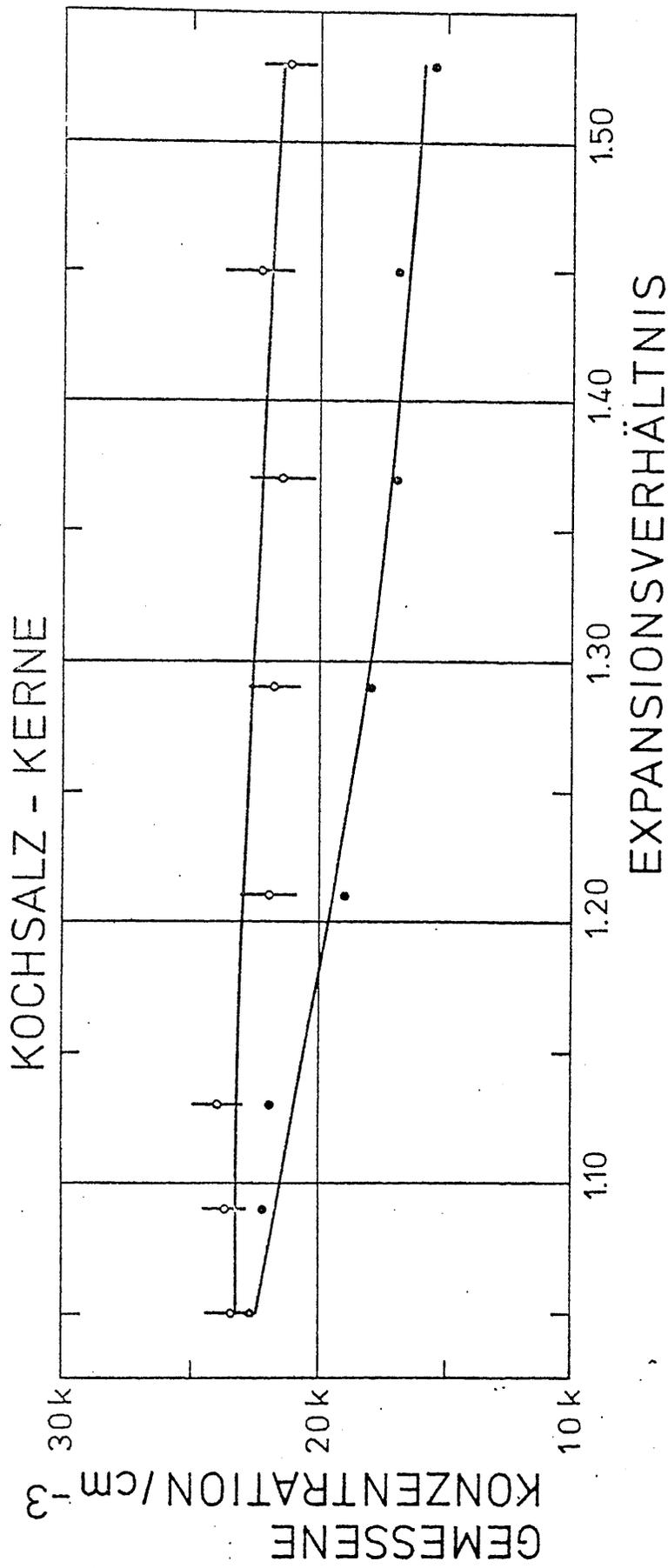


Fig. 32

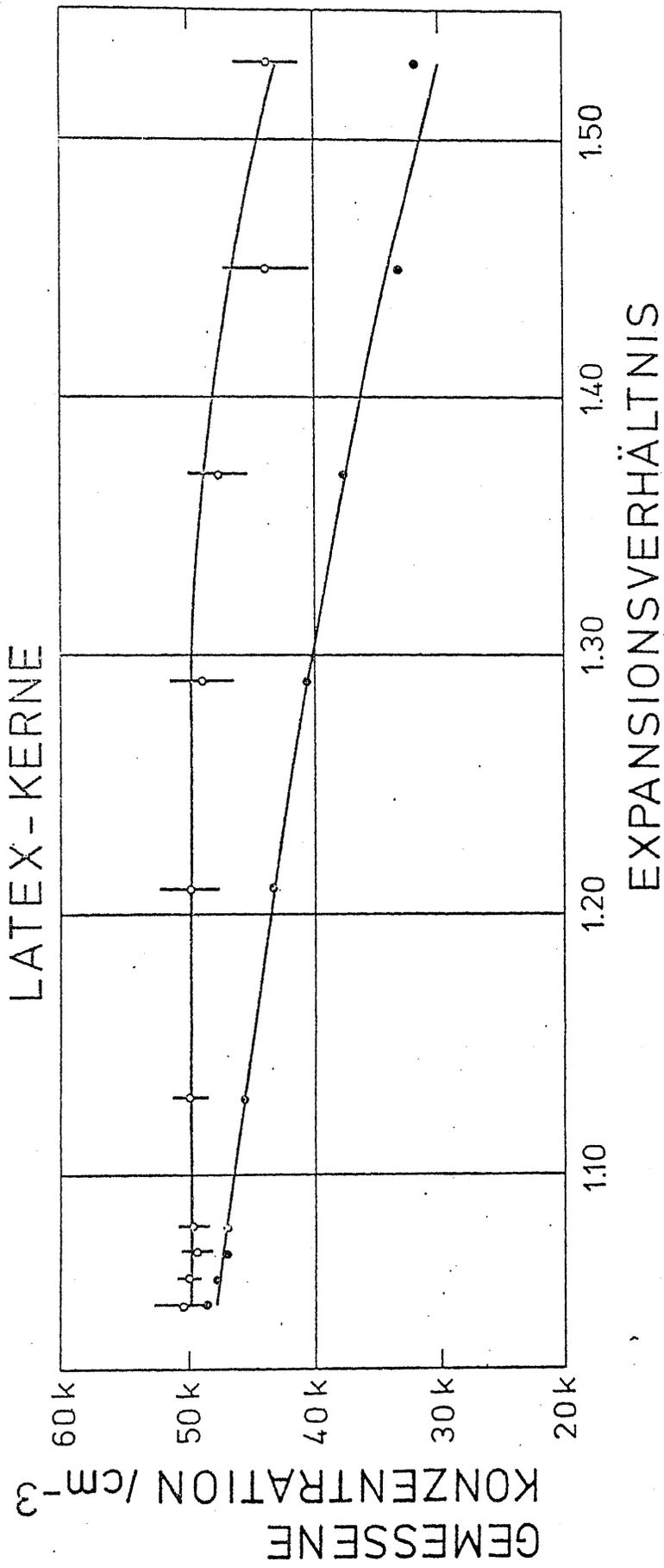


Fig. 33

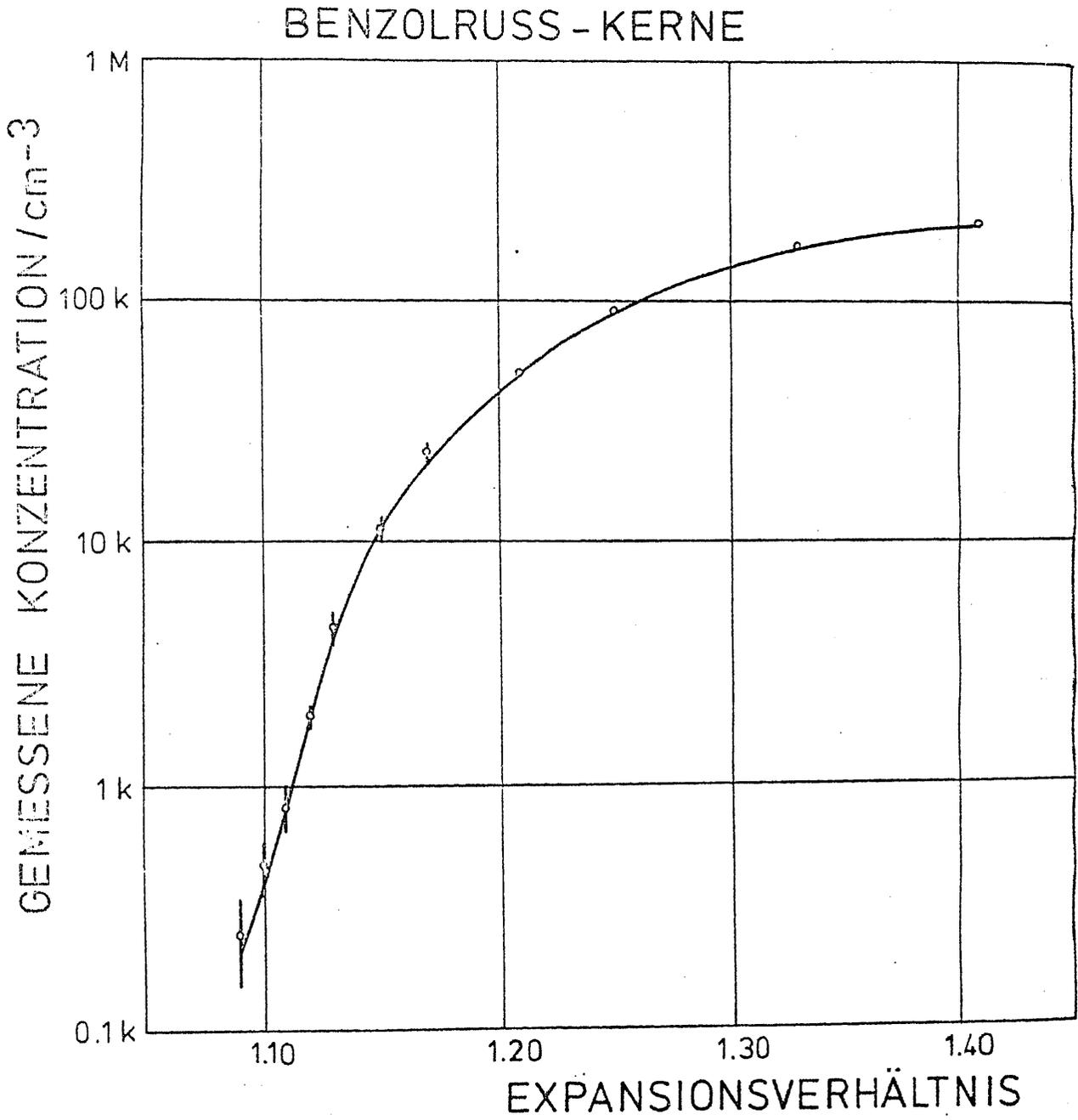


Fig. 34

Mit diesem Meßergebnis ist es möglich, die starke Abweichung zwischen den gemessenen Tröpfchenkonzentrationen und der Anzeige des Rich-Kondensationskernzählers für Benzolrußkerne zu interpretieren. Die Eichmessungen wurden bei einem Expansionsverhältnis von 1,41 durchgeführt. Das Sättigungsverhältnis in der Expansionskammer betrug dementsprechend ca. 390 % in Übereinstimmung mit dem in der Spezifikation für den Rich-Kondensationskernzähler angegebenen Wert. Folglich müßten sowohl in der Expansionskammer der Versuchsanordnung als auch in der Meßkammer des Rich-Kondensationskernzählers gleich viele Benzolrußteilchen als Kondensationskerne aktiviert werden. Aus der großen Differenz der Anzeigewerte muß geschlossen werden, daß das Sättigungsverhältnis im Rich-Kondensationskernzähler unter dem in der Spezifikation angegebenen Wert liegt. Diese Tatsache kann dadurch erklärt werden, daß durch die hohe Zyklenzahl (5 Zyklen pro Sekunde) bedingt eine vollständige Befeuchtung in dem, der Meßkammer des Rich-Kondensationskernzählers vorgelagerten Befeuchter nicht stattfindet.

Aufgrund der Kelvin-Gibbs-Gleichung (2.9) für den Dampfdruck über einer gekrümmten Flüssigkeitsoberfläche wurde die Abhängigkeit des unteren Grenzdiameter aktivierbarer Kondensationskerne vom Expansionsverhältnis für die gegebenen thermischen Bedingungen berechnet und in Fig. 35 dargestellt. Dabei wurde der Einfluß des Kontaktwinkels auf die Aktivierbarkeit der Kondensationskerne nicht berücksichtigt. TWOMEY (1959) zeigt, daß eine Berücksichtigung des Kontaktwinkels zu größeren Werten für den unteren Grenzdiameter führen kann. Durch Kombination von Fig. 34 und Fig. 35 kann die gemessene Tröpfchenkonzentration in der Expansionskammer als Funktion des unteren Grenzdiameter in Form einer in Fig. 36 gezeigten kumulativen

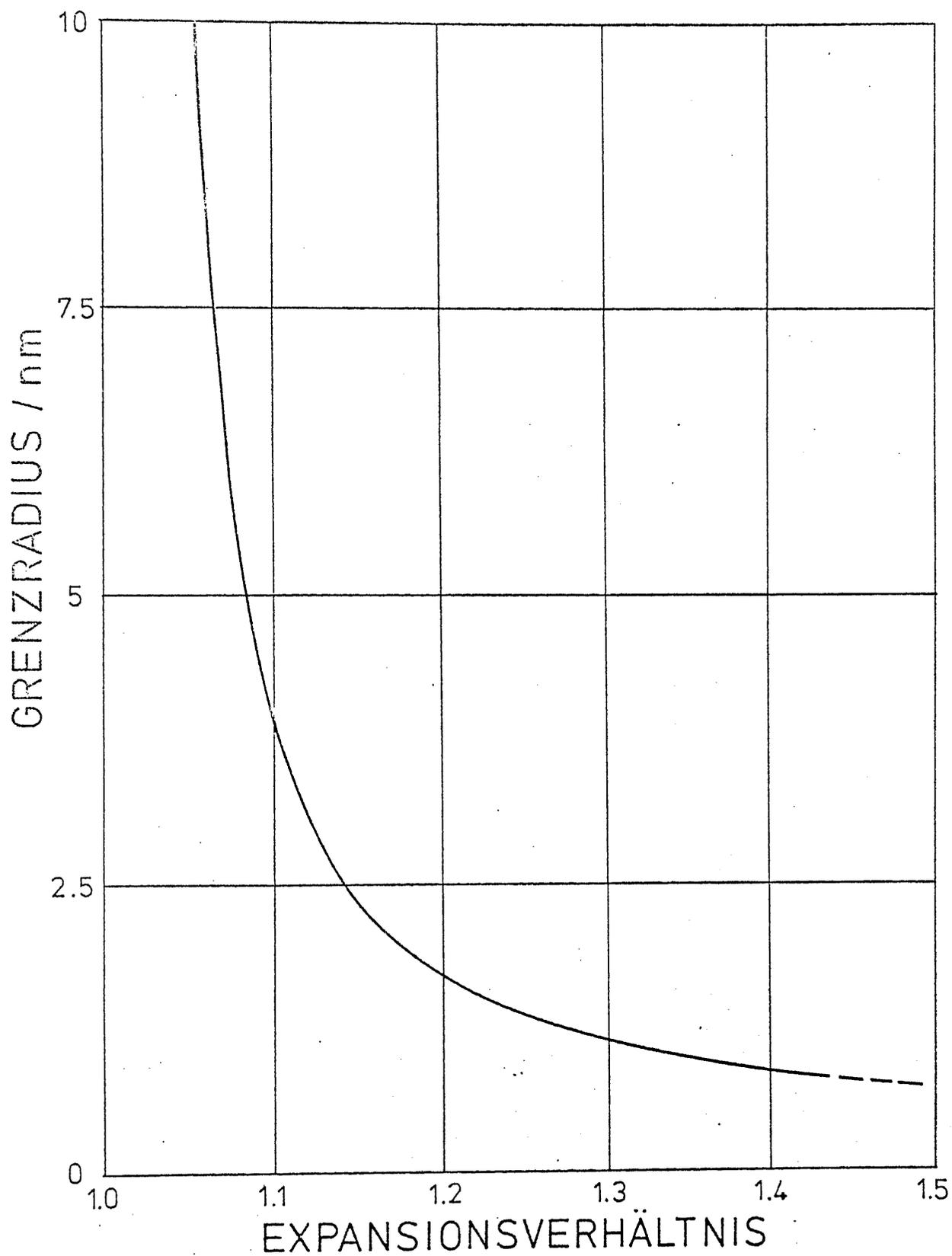


Fig. 35

BENZOLRUSS - KERNE

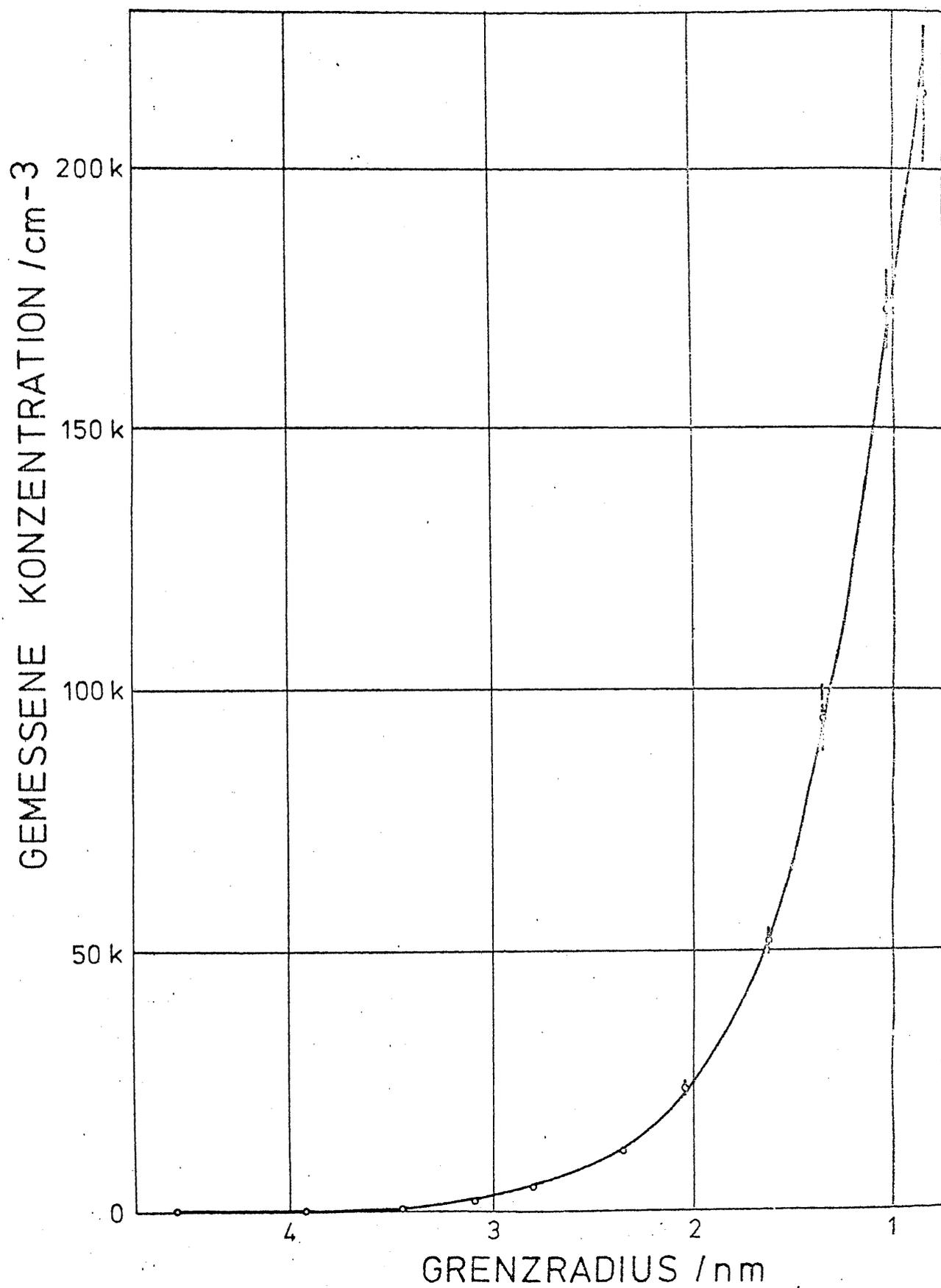


Fig. 36

Häufigkeitsverteilung aufgetragen werden. Es zeigt sich, daß die Häufigkeit des Auftretens von Benzolrußkernen zunimmt mit kleiner werdender Kerngröße.

4.4) Größenbestimmung aus der Lage der Streulichtextrema.

4.4.1) Tröpfchenwachstum bei verschiedenen Tröpfchenkonzentrationen und Expansionsverhältnissen

Nach Herstellung einer umkehrbar eindeutigen Zuordnung zwischen den Extrema der theoretischen und experimentellen Streulichtkurven (siehe 4.2)) kann aus der Lage der Streulichtextrema eindeutig auf den zeitlichen Verlauf des Tröpfchenradius geschlossen werden. In der vorliegenden Arbeit wurden die Streulichtkurven bei den Streuwinkeln 15° und 45° zur Größenbestimmung verwendet. Große Tröpfchenradien wurden mittels der 15° -Streulichtkurve gemessen, die entsprechend der geringen Anzahl von Extrema bei allen auftretenden Teilchenradien eine eindeutige Identifizierung jedes Extremums erlaubt. Zur genauen Messung der Anfangsphasen des Kondensationsvorganges wurde die 45° -Streulichtkurve verwendet, die bereits bei einem Tröpfchenradius von $0,35 \mu\text{m}$ das erste Maximum aufweist.

Zunächst wurde untersucht, ob der Laserstrahl das Tröpfchenwachstum beeinflusst. Zu diesem Zweck wurde bei einem Expansionsverhältnis von 1,37 und einer gemessenen Tröpfchenkonzentration von 5 k, die 15° -Streulichtkurve zweimal aufgenommen. Eine Aufnahme erfolgte mittels gepulsten Laserlichtes derart, daß bei mehreren Expansionszyklen jeweils nach der Expansion am Ende einer einstellbaren Verzögerungszeit ein Lichtimpuls in die Expansionskammer geschickt und der Streulichtimpuls gemessen wurde. Durch die geringe Impulslänge von $100 \mu\text{s}$ (s. Fig. 10) ist

gewährleistet, daß kein Einfluß auf das Tröpfchenwachstum erfolgt. Durch systematische Veränderung der Verzögerungszeit konnte auf diese Weise die 15° -Streulichtkurve aufgenommen werden. Das Ergebnis dieser Messungen ist in Fig. 37 dargestellt. Die zweite Messung der 15° Streulichtkurve erfolgte bei sonst gleichen Versuchsbedingungen mittels kontinuierlichen Laserlichtes. Fig. 38 zeigt das Oszillogramm dieser Streulichtkurve. Durch Vergleich von Fig. 37 und Fig. 38 erkennt man, daß ein Einfluß des Laserstrahles auf das Tröpfchenwachstum nicht feststellbar ist. Dieses Ergebnis war aufgrund der geringen Absorption der Wassertröpfchen zu erwarten.

Weiters wurde der Einfluß der Beschaffenheit wasserunlöslicher Kondensationskerne auf das Tröpfchenwachstum untersucht. Fig. 39 zeigt die Anfangsphasen der Kondensation bei einem Expansionsverhältnis von 1,17 für Latex- und Benzolrußkerne. Der Nullpunkt der Zeitskala entspricht dem Ende der Expansion. Es zeigt sich, daß das Wachstum bei Latexteilchen früher einsetzt als bei Benzolrußteilchen. Das ist wahrscheinlich darauf zurückzuführen, daß die Latexteilchen größer sind als die Benzolrußteilchen und dementsprechend während der Expansion bereits bei geringerer Übersättigung aktiviert werden. Die ersten Extrema der Streulichtkurve für Benzolrußteilchen konnten nicht mit Sicherheit lokalisiert werden, was wohl auf die Polydispersität der Benzolrußteilchen zurückzuführen ist, die bei kleinen Tröpfchenradien auch eine Polydispersität der Tröpfchen bewirken kann. Sobald sich Kondensationströpfchen gebildet haben, zeigt Fig. 39 für beide Kernarten ein völlig gleichartiges Tröpfchenwachstum. Unter Berücksichtigung der Kleinheit der Kondensationskerne ist verständlich, daß diese den Kondensationsvorgang nur unmittelbar bei Wachstumsbeginn beeinflussen können.

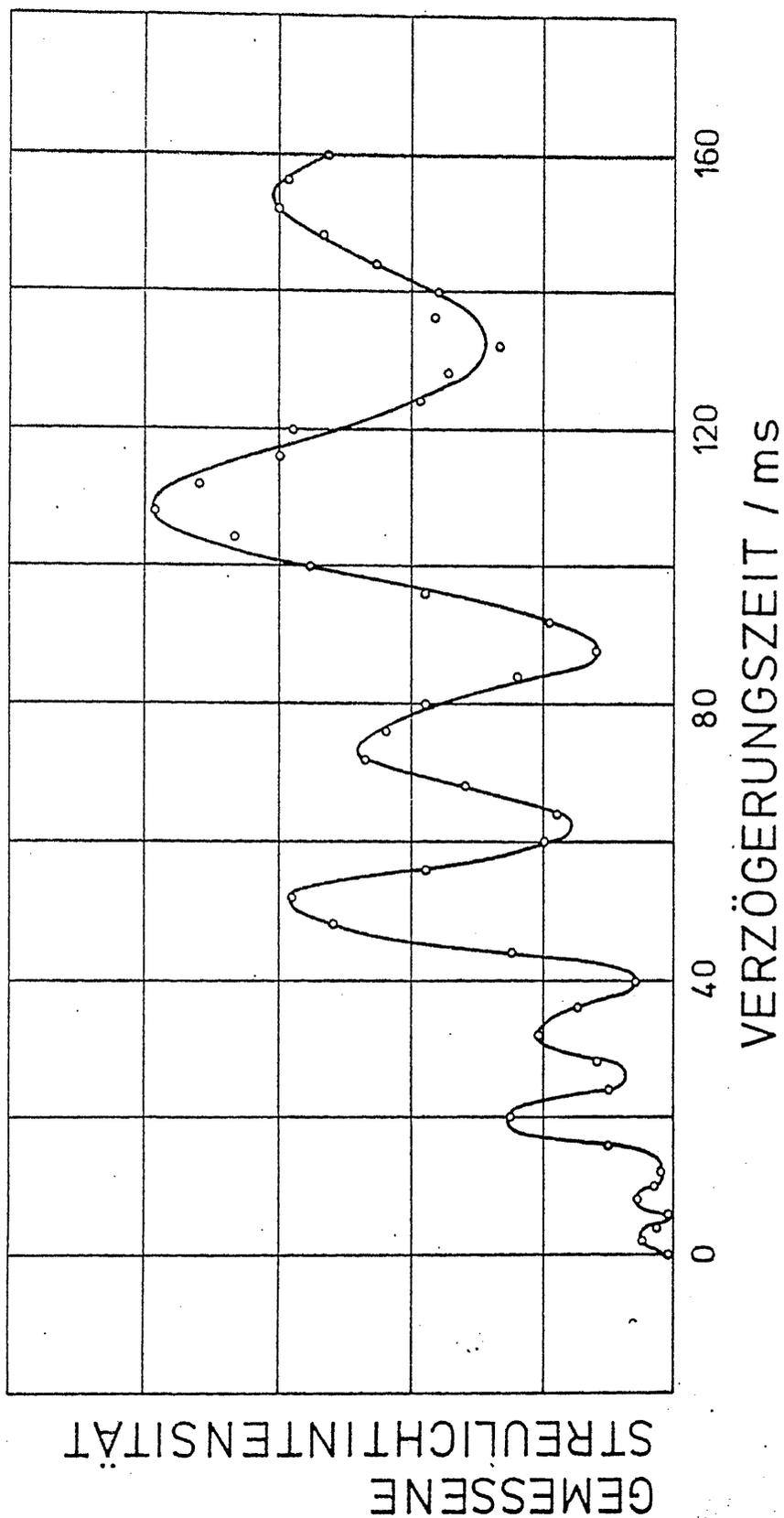


Fig. 37 Mittels gepulsten Lichtes gemessener Streulichtverlauf

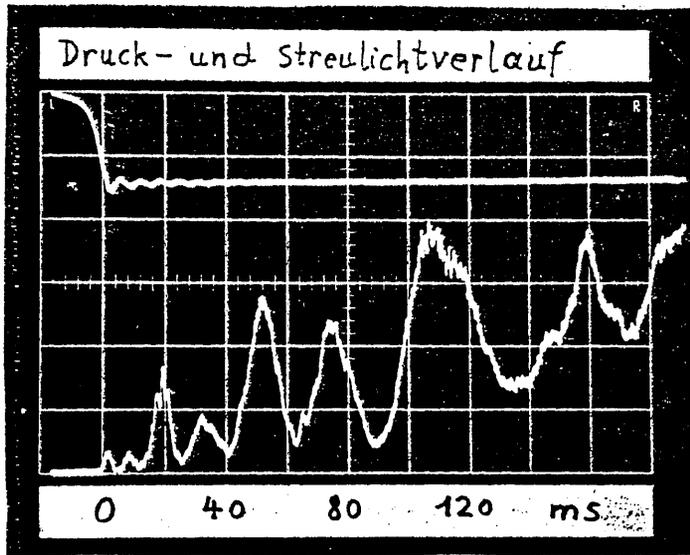


Fig. 38 Mittels kontinuierlichen Lichtes gemessener Streulichtverlauf

- LATEXTEILCHEN
- BENZOLRUSSTEILCHEN

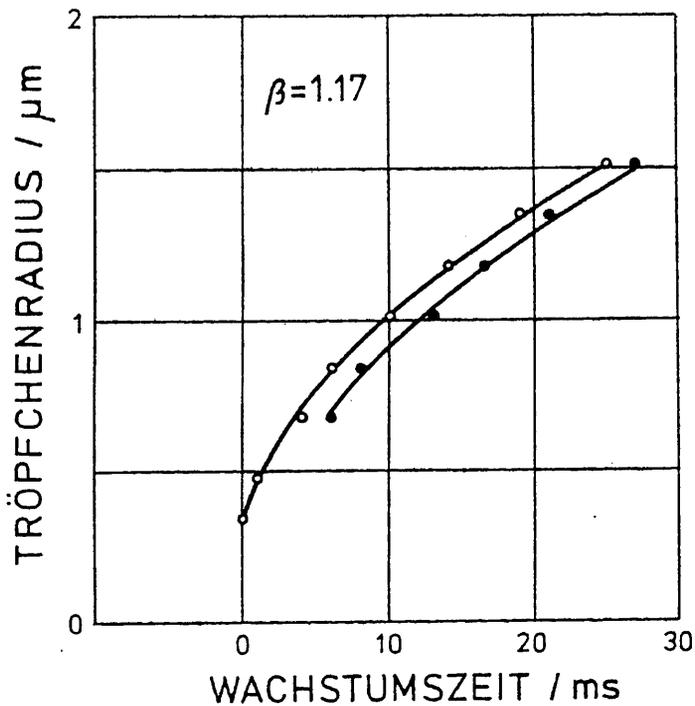


Fig. 39 Einfluß der Beschaffenheit wasserunlöslicher Kondensationskerne auf das Tröpfchenwachstum

Durch die bisher beschriebenen Tröpfchenwachstumsmessungen wurde ausgeschlossen, daß der Laserstrahl oder die Beschaffenheit wasserunlöslicher Kondensationskerne einen meßbaren Einfluß auf den Tröpfchenwachstumsprozeß haben. Im Anschluß an diese Untersuchungen wurde der zeitliche Verlauf des Tröpfchenradius bei den Expansionsverhältnissen 1,17 und 1,37 für verschiedene Tröpfchenkonzentrationen gemessen. Die Meßergebnisse sind in Fig. 40, 41 dargestellt, wobei der Nullpunkt der Zeitskala mit dem Ende der Expansion zusammenfällt. Man erkennt, daß das Tröpfchenwachstum maßgeblich von der Tröpfchenkonzentration beeinflusst wird: Das Tröpfchenwachstum kommt bei hohen Konzentrationen früher zum Stillstand als bei niedrigen Konzentrationen. Diese Tatsache ist von großer Bedeutung für die Interpretation der Meßresultate von Kondensationskernzählern: Bei geringen Kernkonzentrationen wächst die integrale Streulichtintensität und damit die Anzeige eines Kondensationskernzählers etwa linear mit der Konzentration. Bei hohen Kernkonzentrationen hingegen tritt entsprechend der Kleinheit der gebildeten Tröpfchen nur eine verhältnismäßig geringere integrale Streulichtintensität auf. Dadurch wird eine Nichtlinearität der Konzentrationsanzeige bewirkt, die bei extrem hohen Kernkonzentrationen unter Umständen sinnvolle Messungen unmöglich machen kann. Bei den in der vorliegenden Arbeit durchgeführten Konzentrationsmessungen tritt diese Schwierigkeit nicht auf, weil Tröpfchenkonzentration und Tröpfchengröße unabhängig voneinander gemessen werden können.

Die in Fig. 40, 41 gezeigten Wachstumskurven stehen im Widerspruch zu den von BERG und GEORGE (1968) angegebenen Wachstumszeiten. BERG und GEORGE verwendeten eine Hochgeschwindigkeitsfilmkamera zur Beobachtung des Tröpfchenwachstums in einer volumsdefinierten Expansionskammer.

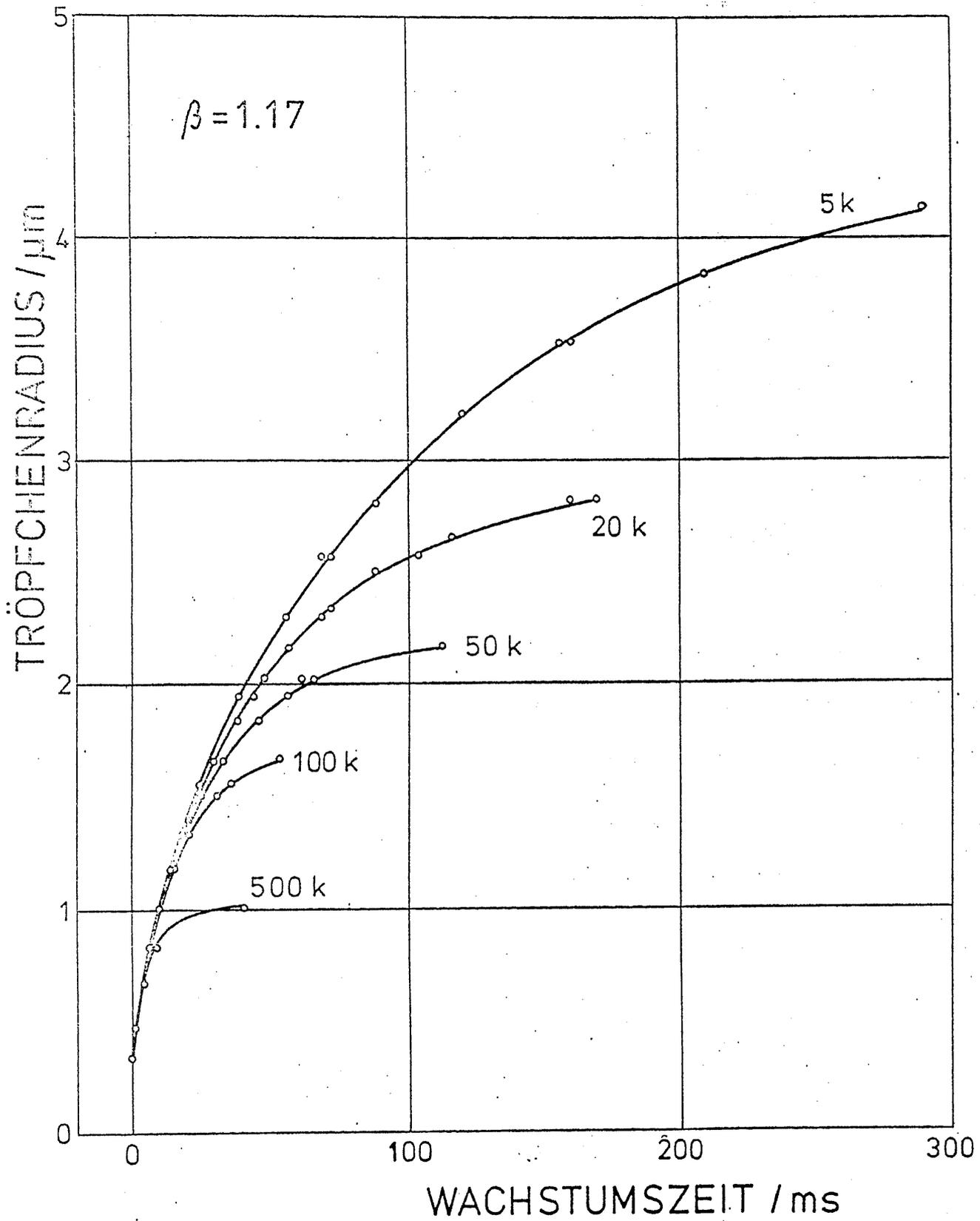


Fig. 40

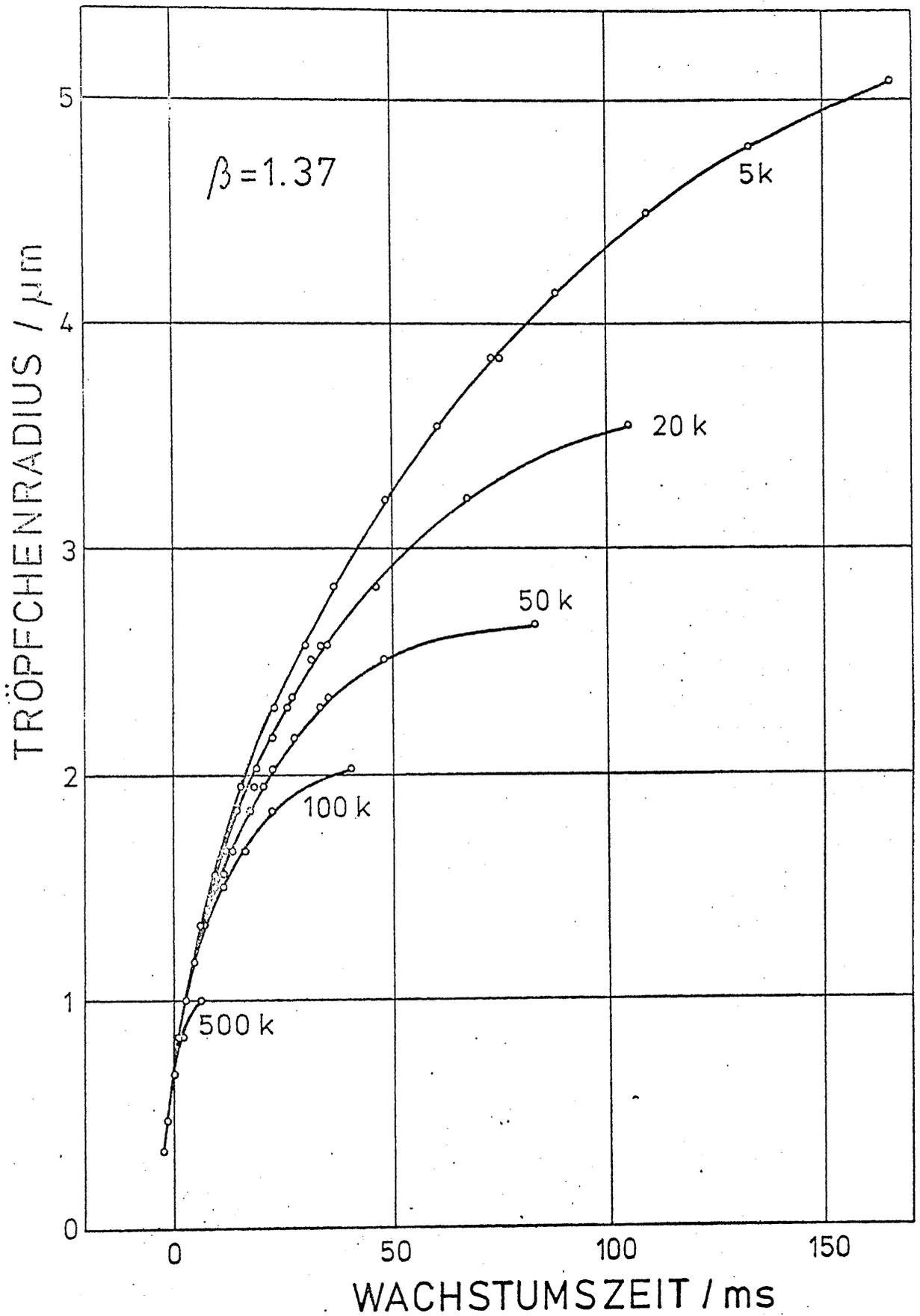


Fig. 41

Während der etwa 100 msec andauernden Expansion wurde stets ein monodisperses Tröpfchenaerosol beobachtet, dessen Konzentration zuzunehmen schien. Daraus folgerten BERG und GEORGE, daß das Anwachsen der plötzlich neu hinzugekommenen Tröpfchen mit der Hochgeschwindigkeitsfilmkamera nicht aufgelöst werden konnte und die Wachstumszeiten daher unter 50 μ sec lagen. KASSNER et al. (1968a) weist jedoch darauf hin, daß derartige Wachstumszeiten sehr unwahrscheinlich sind und durch keine bekannte Theorie erklärt werden können. SCHUSTER, CARSTENS und KASSNER (1969) nehmen als mögliche Erklärung an, daß entsprechend der Kleinheit des Meßvolumens große statistische Schwankungen der Tröpfchenkonzentration auftreten und einen Konzentrationsanstieg vortäuschen können.

Zum Einfluß der Tröpfchenkonzentration auf das Tröpfchenwachstum berichtet NIX (1968), daß bis zu 50 k keine Beeinträchtigung des Tröpfchenwachstums festgestellt werden konnte und erst bei 1 M die Tröpfchen etwa die Hälfte ihrer maximalen Größe einbüßten. Dazu ist zu bemerken, daß NIX das Tröpfchenwachstum nur etwa während der ersten 30 msec bei geringen Expansionsverhältnissen beobachtet. Aus Fig. 40 ist zu entnehmen, daß in diesem Zeitraum für Konzentrationen bis etwa 50 k tatsächlich nur eine geringe Beeinträchtigung des Tröpfchenwachstums erfolgt.

4.4.2) Vergleich mit der Tröpfchenwachstumstheorie.

Um die in der vorliegenden Arbeit durchgeführte näherungsweise Berechnung des gleichzeitigen Wachstum mehrerer Tröpfchen mit den erhaltenen experimentellen Ergebnissen vergleichen zu können, wurde das Integral (2.37) mittels einer digitalen Rechenanlage numerisch ausgewertet. Wie im Anschluß an (2.37) beschrieben, wurde damit der zeitliche Verlauf des Tröpfchenradius, der Temperatur und

des Sättigungsverhältnisses in der Expansionskammer berechnet. Zum Vergleich wurde der zeitliche Verlauf des Tröpfchenradius auch ohne Berücksichtigung der gegenseitigen Beeinflussung der Tröpfchen gemäß (2.28) ermittelt. Die Resultate konnten auf einem Bildschirm sichtbar gemacht und photographiert werden. Für die auftretenden Konstanten wurden folgende Werte eingesetzt:

$$\rho_T = 1,0054 \text{ kg m}^{-3}$$

$$\rho_F = 10^3 \text{ kg m}^{-3}$$

$$\frac{R}{M} = 0,461528 \cdot 10^3 \text{ J kg}^{-1} \text{ } ^\circ\text{K}^{-1}$$

$$c_p = 1,0048 \cdot 10^3 \text{ J kg}^{-1} \text{ } ^\circ\text{K}^{-1}$$

$$L = 2,470 \cdot 10^6 \text{ J kg}^{-1}$$

$$K = 25 \cdot 10^{-3} \text{ W m}^{-1} \text{ } ^\circ\text{K}^{-1}$$

$$D = 23,95 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2 \text{ sec}^{-1}$$

Zur Berechnung des Sättigungsdampfdruckes $p_S(T)$ wurde die in WUKALOWITSCH (1958) enthaltene empirische Formel von GERRY verwendet. Ein Ausdruck des verwendeten Programmes befindet sich im Anhang. †)

Zunächst wurden Wachstumskurven berechnet für eine Kernkonzentration von 5 k und die Expansionsverhältnisse 1,17 und 1,37. Aus Fig. 42, 43 sind die erhaltenen Wachstumskurven und die experimentellen Werte ersichtlich.

†) An dieser Stelle sei Herrn Pohl herzlich gedankt, der an der Entwicklung des Programmes entscheidenden Anteil hatte.

AAAA 5

TROEPFCHENRADIUS ALS FUNKTION DER ZEIT

TR= 0.28000D+02 C= 0.50000D+10 ALPHA= 0.10000D+01
 TK= 0.30000D+02 BETA= 0.11700D+01 BEF= 0.10000D+01

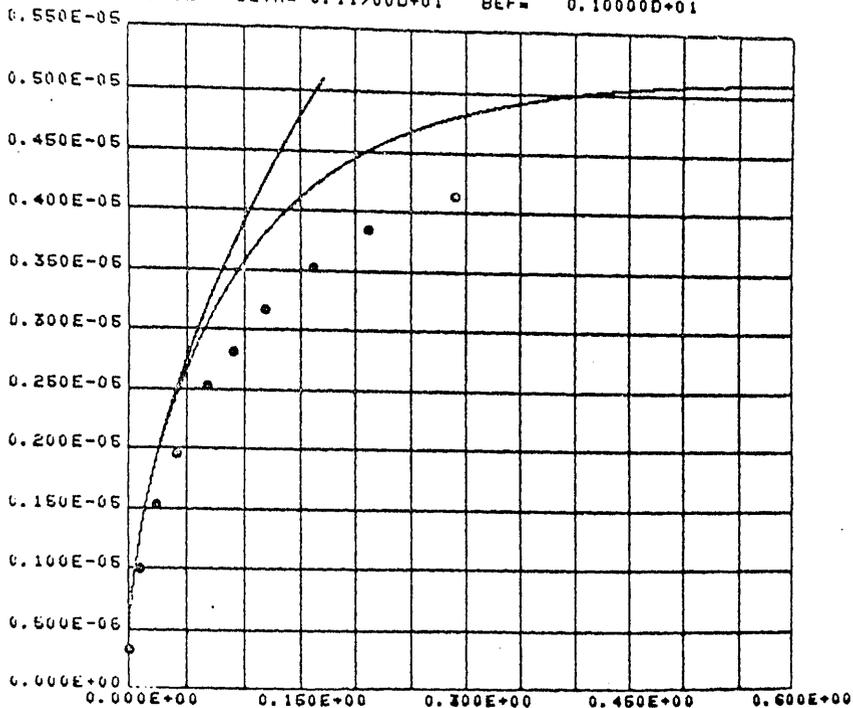


Fig. 42

AAAA 6

TROEPFCHENRADIUS ALS FUNKTION DER ZEIT

TR= 0.28000D+02 C= 0.50000D+10 ALPHA= 0.10000D+01
 TK= 0.30000D+02 BETA= 0.13700D+01 BEF= 0.10000D+01

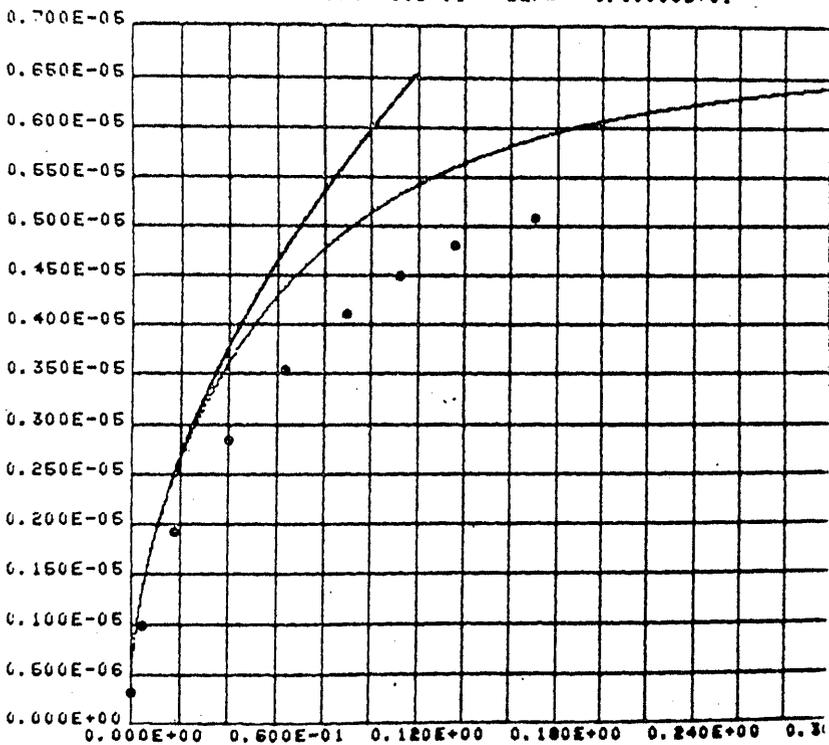


Fig. 43

Die untere Kurve entspricht dem gleichzeitigen Wachstum mehrerer Tröpfchen und nähert sich erwartungsgemäß asymptotisch einem maximalen Wert. Bei der oberen Kurve wurde die gegenseitige Beeinflussung der Tröpfchen vernachlässigt. Man erkennt, daß die experimentellen Werte deutlich unter den theoretischen Kurven liegen. Diese Tatsache kann dadurch erklärt werden, daß entsprechend dem während des Spülvorganges auftretenden verhältnismäßig hohen Durchsatz, im Befeuchter keine volle Wasserdampfsättigung herrscht. Die von RIEDIGER (1970) aufgenommene Befeuchtercharakteristik zeigt, daß bei der verwendeten Befeuchtertemperatur nur bei geringen Durchsätzen volle Wasserdampfsättigung gewährleistet ist (siehe 3.2.1)). Die während eines Expansionszyklus auftretenden Durchsätze konnte wegen des ruckartigen Einsetzens und der kurzen Dauer des Spülvorganges nicht quantitativ gemessen werden. Es kann jedoch abgeschätzt werden, daß bei wachsenden Expansionsverhältnissen und entsprechend steigenden Differenzdrücken auch der Spülluftdurchsatz zunimmt und damit das Sättigungsverhältnis im Befeuchter zurückgeht.

Fig. 44, 45, 46, 47 zeigen die theoretischen Wachstumskurven für das Expansionsverhältnis 1,17 unter der Annahme eines Sättigungsverhältnisses im Befeuchter von 87 %. In Fig. 48, 49, 50, 51 sind die theoretischen Wachstumskurven für das Expansionsverhältnis 1,37 und ein Sättigungsverhältnis im Befeuchter von 75 % dargestellt. Die Tröpfchenkonzentration wurde mit 5 k, 20 k, 50 k, 100 k festgesetzt. Zusätzlich wurden die entsprechenden experimentellen Werte eingezeichnet. Man erkennt, daß die Abweichung der experimentellen Werte von den theoretischen Kurven höchstens 5 % beträgt, meist jedoch geringer ist. Damit ist nachgewiesen, daß die in der vorliegenden Arbeit durchgeführte näherungsweise Berechnung des gleichzeitigen Wachstum mehrerer Tröpfchen die gegenseitige Beeinflussung der kondensierenden

AAAA 2

TROEPFCHENRADIUS ALS FUNKTION DER ZEIT

$TR = 0.28000D+02$ $C = 0.50000D+10$ $ALPHA = 0.10000D+01$
 $TK = 0.30000D+02$ $BETA = 0.11700D+01$ $BEF = 0.87000D+00$
 $0.500E-05$

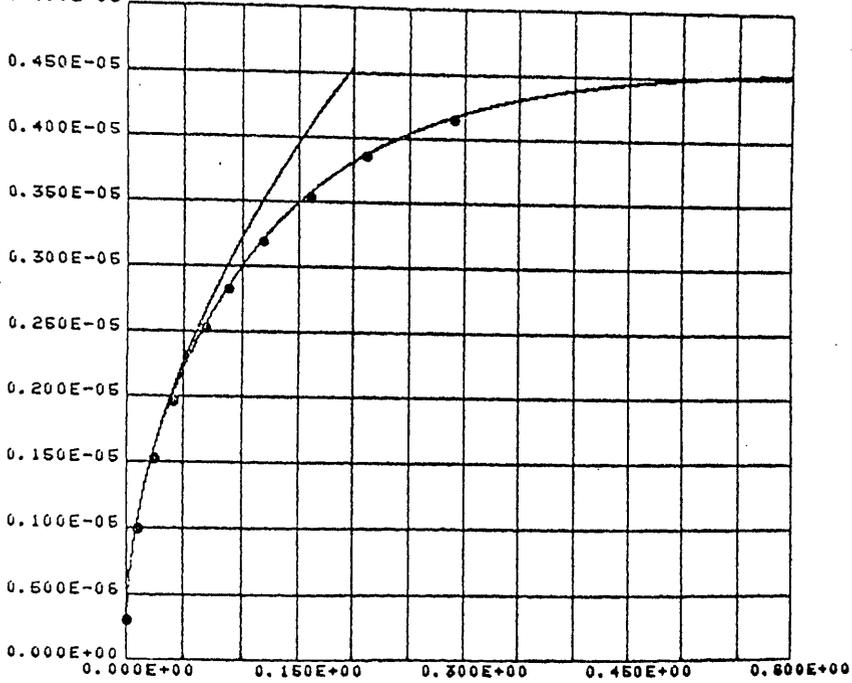


Fig. 44

AAAA 4

TROEPFCHENRADIUS ALS FUNKTION DER ZEIT

$TR = 0.28000D+02$ $C = 0.20000D+11$ $ALPHA = 0.10000D+01$
 $TK = 0.30000D+02$ $BETA = 0.11700D+01$ $BEF = 0.87000D+00$

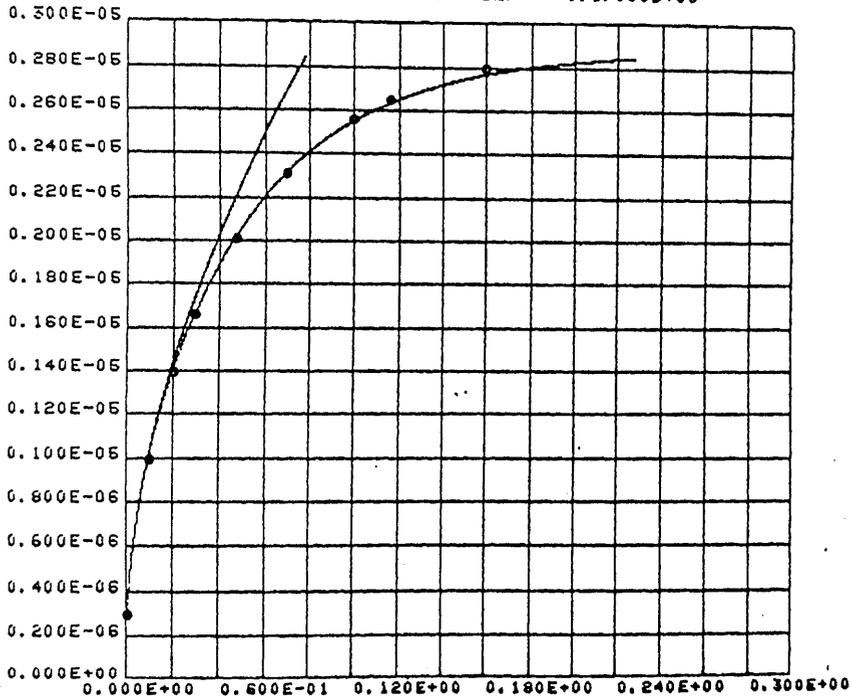


Fig. 45

RRAAA 5

TROEPFCHENRADIUS ALS FUNKTION DER ZEIT

$TB = 0.280000 \times 10^2$ $C = 0.500000 \times 10^{11}$ $ALPHA = 0.100000 \times 10^1$,
 $TK = 0.300000 \times 10^2$ $BETA = 0.117000 \times 10^1$ $BEF = 0.870000 \times 10^0$
 $0.240E-05$

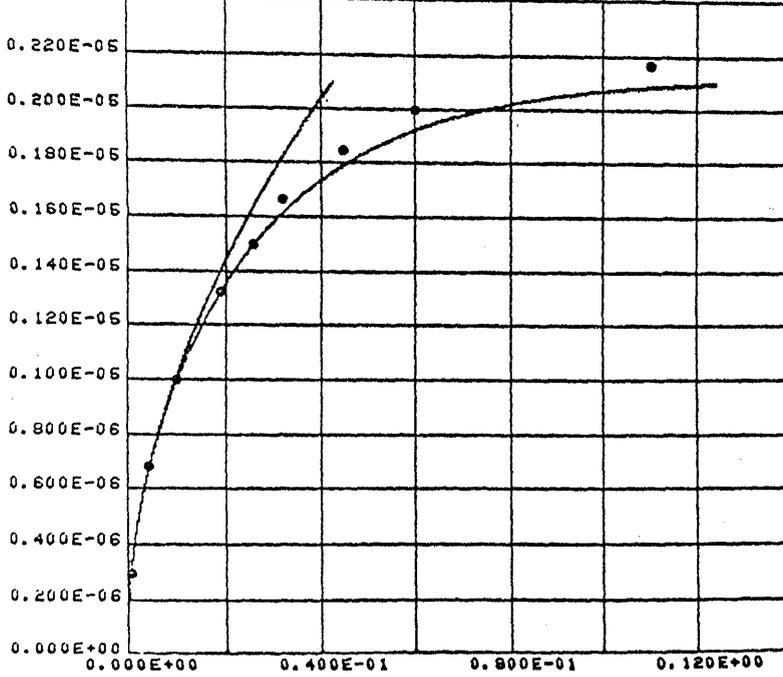


Fig. 46

RRAAA 6

TROEPFCHENRADIUS ALS FUNKTION DER ZEIT

$TB = 0.280000 \times 10^2$ $C = 0.100000 \times 10^{12}$ $ALPHA = 0.100000 \times 10^1$
 $TK = 0.300000 \times 10^2$ $BETA = 0.117000 \times 10^1$ $BEF = 0.870000 \times 10^0$
 $0.180E-05$

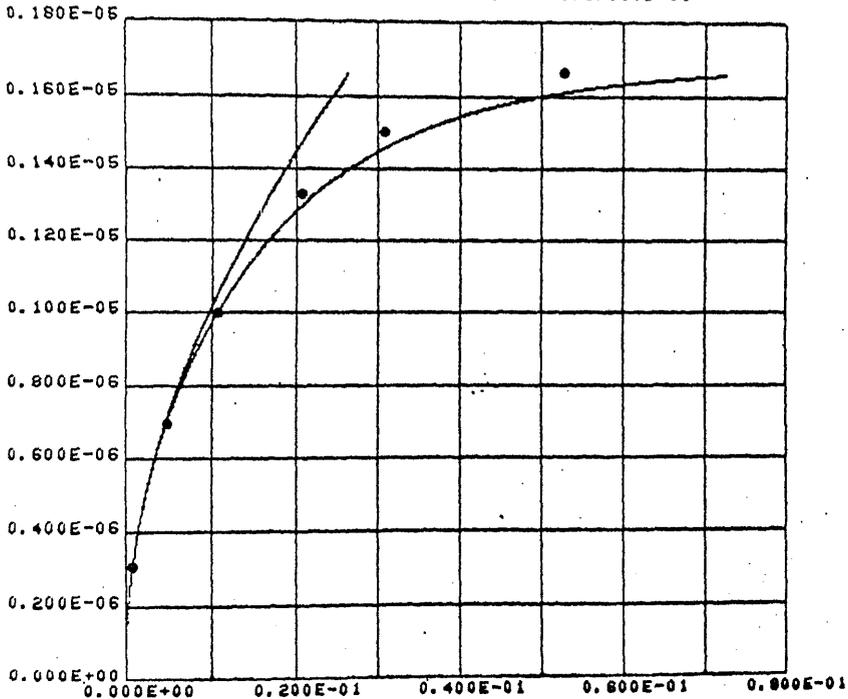


Fig. 47

AAAAE 1

TROEPFCHENRADIUS ALS FUNKTION DER ZEIT

TR= 0.28000D+02 C= 0.50000D+10 ALPHA= 0.10000D+01
 TK= 0.30000D+02 BETA= 0.13700D+01 BEF= 0.75000D+00

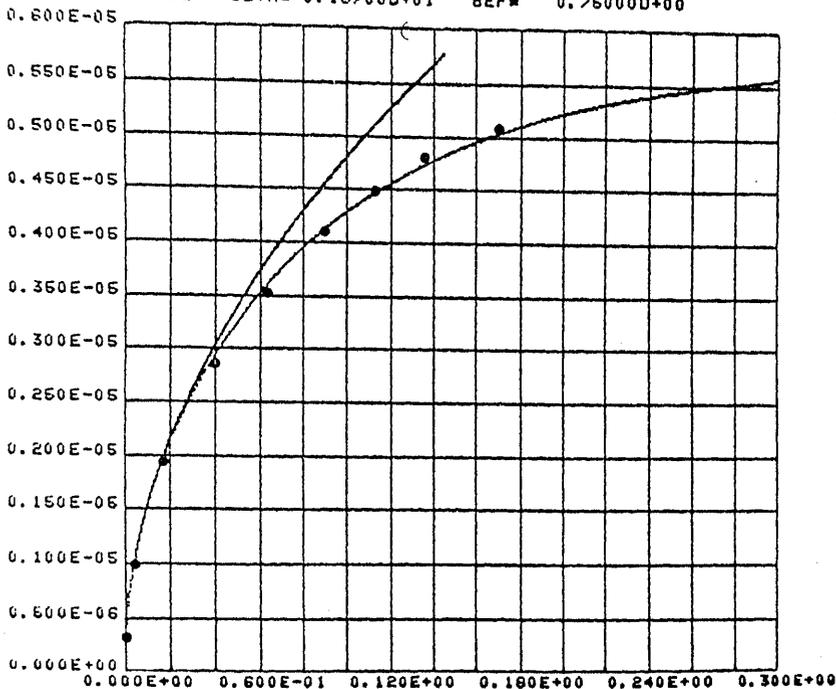


Fig. 48

AAAAE 2

TROEPFCHENRADIUS ALS FUNKTION DER ZEIT

TR= 0.28000D+02 C= 0.20000D+11 ALPHA= 0.10000D+01
 TK= 0.30000D+02 BETA= 0.13700D+01 BEF= 0.75000D+00



Fig. 49

AAAAE 2

TROEPFCHENRADIUS ALS FUNKTION DER ZEIT

TR= 0.28000D+02 C= 0.50000D+11 ALPHA= 0.10000D+01
 TN= 0.30000D+02 BETA= 0.13700D+01 BEF= 0.75000D+00

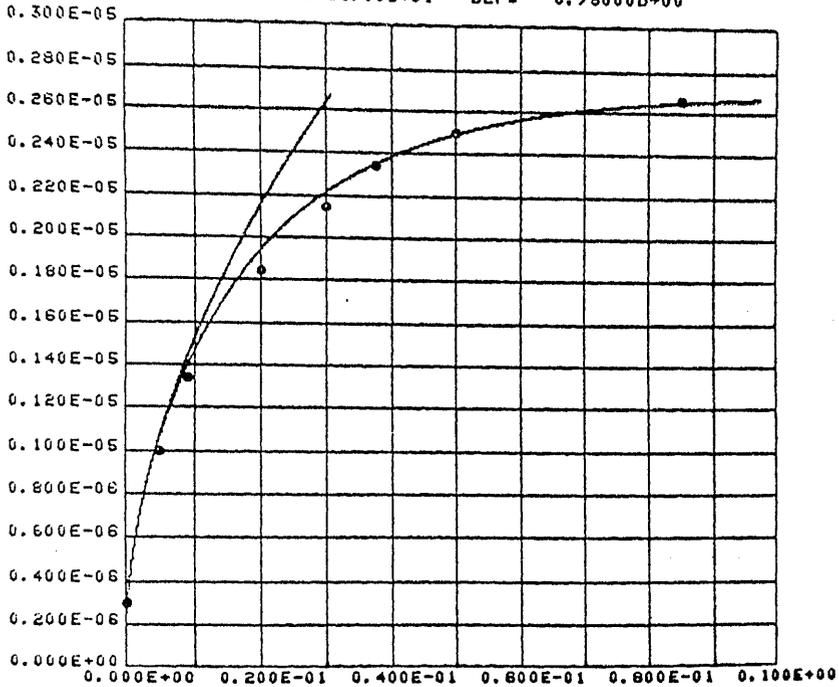


Fig. 50

AAAAE 4

TROEPFCHENRADIUS ALS FUNKTION DER ZEIT

TR= 0.28000D+02 C= 0.10000D+12 ALPHA= 0.10000D+01
 TN= 0.30000D+02 BETA= 0.13700D+01 BEF= 0.75000D+00

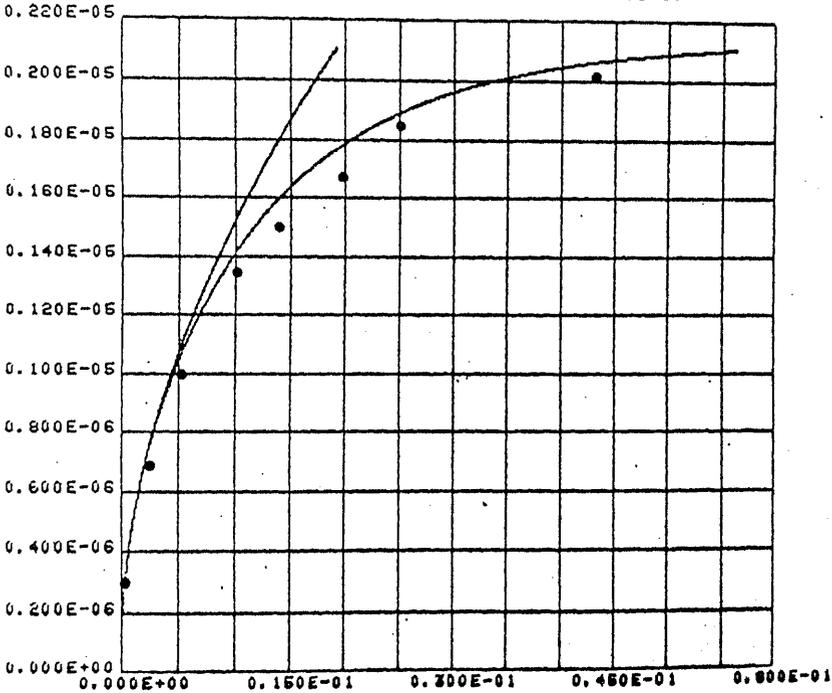


Fig. 51

Tröpfchen in einem großen Konzentrationsbereich grundsätzlich richtig beschreibt.

Aufgrund der guten Übereinstimmung zwischen experimentellen und theoretischen Wachstumskurven kann angenommen werden, daß auch der berechnete zeitliche Verlauf von Temperatur und Wasserdampfsättigungsverhältnis die tatsächlichen Verhältnisse in der Expansionskammer richtig wiedergibt. Fig. 52, 53, 54, 55 zeigen den Temperatur- und Sättigungsverlauf bei einem Expansionsverhältnis von 1,37 und den Tröpfchenkonzentrationen 5 k und 100 k. Sowohl die Temperatur, als auch das Sättigungsverhältnis eines übersättigten Dampfes sind experimentell außerordentlich schwer zugängliche Größen. Dementsprechend sind keine Messungen bekannt, die eine unmittelbare experimentelle Prüfung der erhaltenen Kurven erlauben würden. Fig. 52, 54 zeigen, daß während des Tröpfchenwachstum ein Temperaturanstieg in der Expansionskammer stattfindet. Dieser Temperaturanstieg ist auf die während des Kondensationsvorganges freigesetzte Kondensationswärme zurückzuführen und wird von vielen Autoren vernachlässigt. Die Temperaturzunahme erfolgt bei kleinen Tröpfchenkonzentrationen langsamer als bei großen, die nach Beendigung des Tröpfchenwachstum erreichte Endtemperatur ist jedoch konzentrationsunabhängig und liegt bei den vorliegenden Versuchsbedingungen etwa $9,9^{\circ}\text{C}$ über der Anfangstemperatur. Die Unabhängigkeit der Temperaturzunahme von der Tröpfchenkonzentration wird dadurch erklärt, daß nach Beendigung des Tröpfchenwachstums insgesamt stets die gleiche Dampfmasse kondensiert ist und dementsprechend auch die gleiche Wärmemenge freigesetzt wurde. In Fig. 53, 55 ist die Abnahme des Wasserdampfsättigungsverhältnisses in der Expansionskammer während des Tröpfchenwachstums dargestellt. Dieser Rückgang des Wasserdampfsättigungsverhältnisses ist auf den während der Kondensation auftretenden Wasserdampfverbrauch und auf die durch die freiwerdende Kondensationswärme hervorgerufene

AAAAE 1

TEMPERATUR ALS FUNKTION DER ZEIT

TR= 0.28000D+02 C= 0.50000D+10 ALPHA= 0.10000D+01
 TL= 0.30000D+02 BETA= 0.13700D+01 BEF= 0.75000D+00

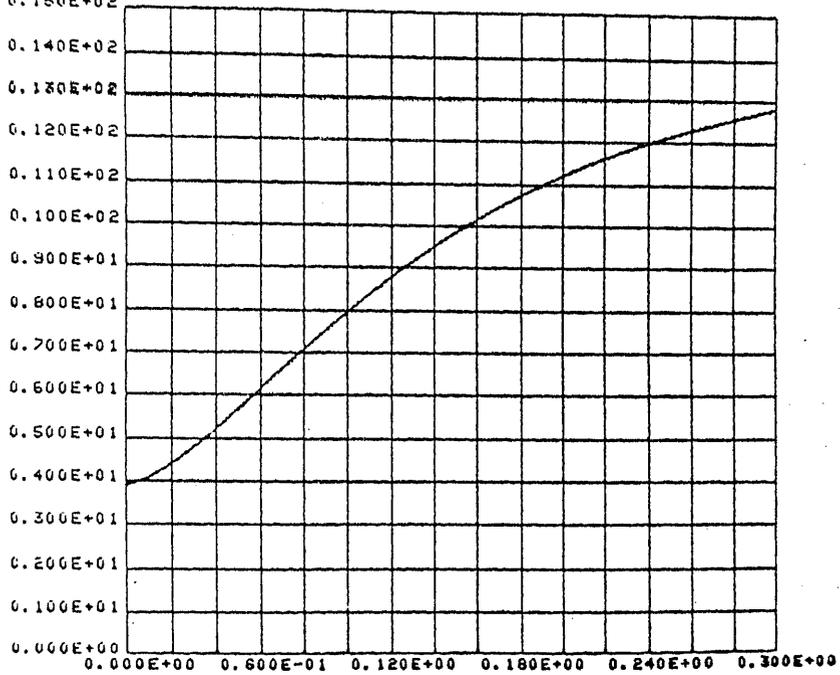


Fig. 52

AAAAE 1

WASSERDAMPFSAETTIGUNG ALS FUNKTION DER ZEIT

TR= 0.28000D+02 C= 0.50000D+10 ALPHA= 0.10000D+01
 TL= 0.30000D+02 BETA= 0.13700D+01 BEF= 0.75000D+00

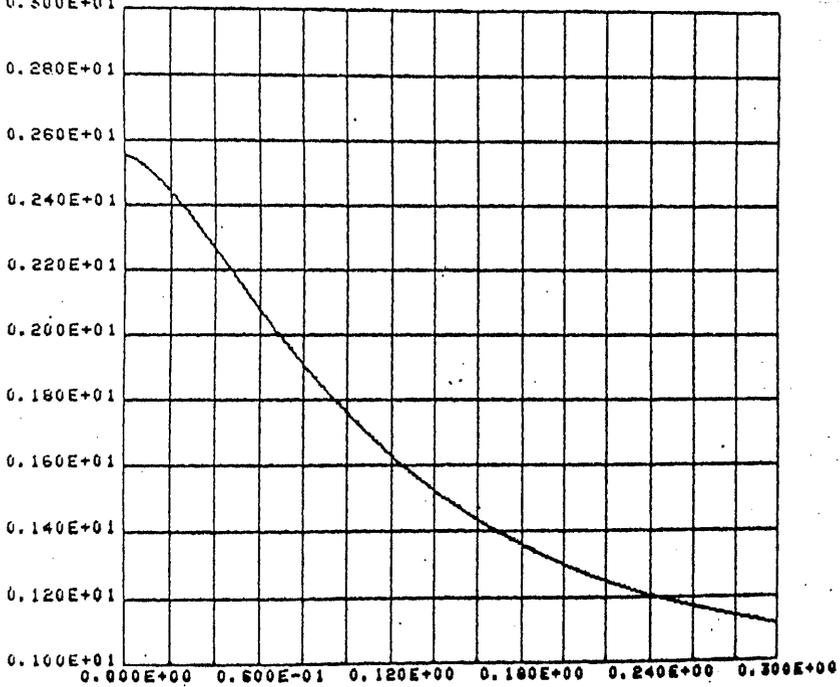


Fig. 53

999AE 4

TEMPERATUR ALS FUNKTION DER ZEIT

TR= 0.28000D+02 C= 0.10000D+12 ALPHA= 0.10000D+01
 TK= 0.30000D+02 BETA= 0.13700D+01 BEF= 0.75000D+00

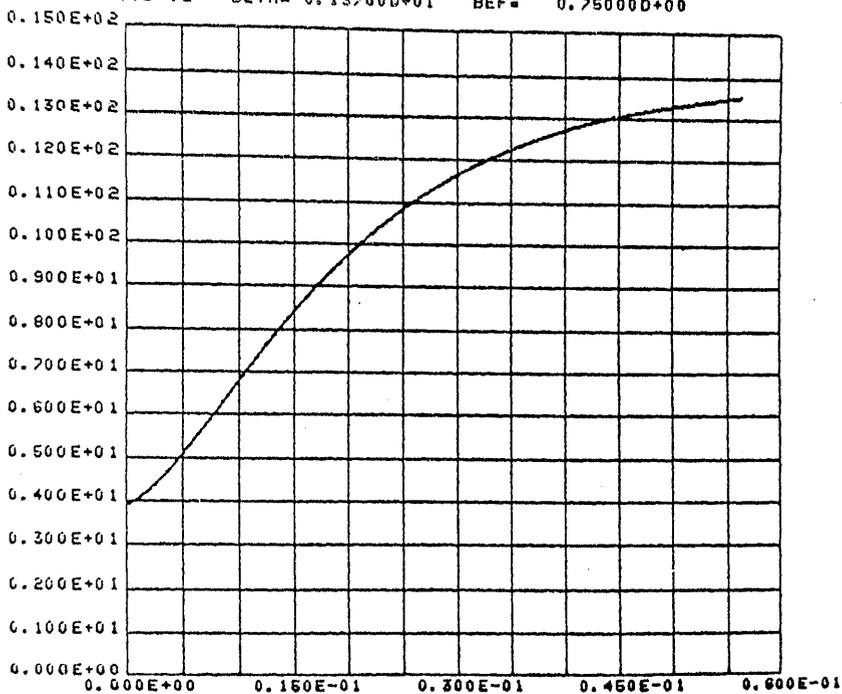


Fig. 54

999AE 4

WASSERDAMPFSAETTIGUNG ALS FUNKTION DER ZEIT

TR= 0.28000D+02 C= 0.10000D+12 ALPHA= 0.10000D+01
 TK= 0.30000D+02 BETA= 0.13700D+01 BEF= 0.75000D+00

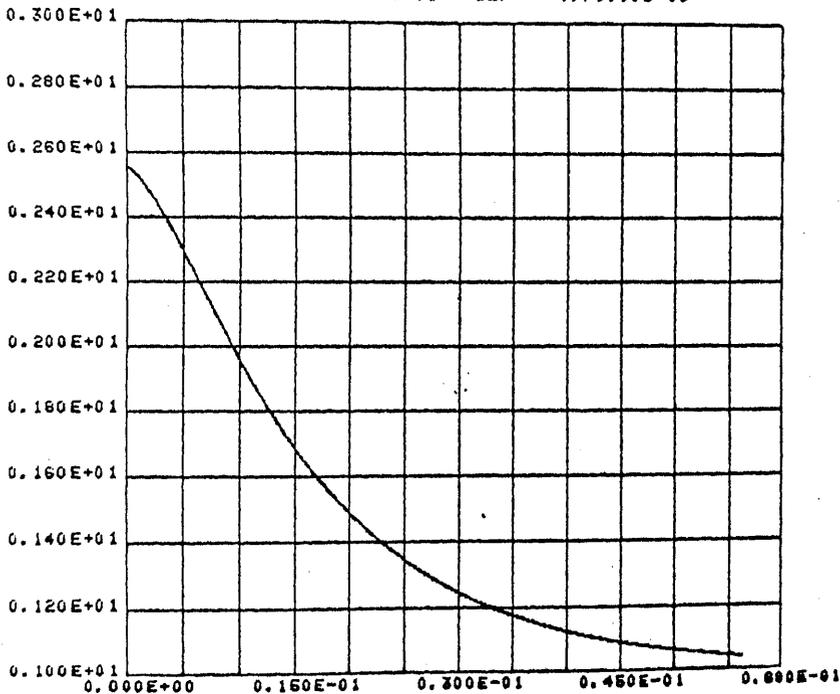


Fig. 55

Temperaturzunahme zurückzuführen. Das Tröpfchenwachstum kommt dann zum Stillstand, wenn das Sättigungsverhältnis den Wert 100 % erreicht hat.

Die ersten 20 msec des Kondensationsvorganges bei einem Expansionsverhältnis von 1,37 und den Tröpfchenkonzentrationen 5 k und 100 k sind in Fig. 56, 57, 58, 59, 60, 61 dargestellt. Fig. 56, 58, 60 zeigen, daß bei einer Tröpfchenkonzentration von 5 k in den Anfangsphasen der Kondensation fast keine gegenseitige Beeinflussung der Tröpfchen stattfindet. Dagegen kann Fig. 57, 59, 61 entnommen werden, daß bei einer Tröpfchenkonzentration von 100 k in den Anfangsphasen der Kondensation bereits eine deutliche Abweichung vom Kondensationsvorgang eines einzelnen Tröpfchens feststellbar ist. Während der ersten 5 msec des Kondensationsvorganges zeigt sich zwar nur eine sehr geringe Abweichung der Wachstumskurve (Fig. 57), jedoch geht das Sättigungsverhältnis in diesem Zeitraum bereits merkbar zurück (Fig. 61).

Aufgrund der gewonnenen Ergebnisse kann die Frage der trockenadiabatischen Expansion (siehe 2.2) diskutiert werden. Maßgebend für die Einhaltung der trockenadiabatischen Expansion sind die Dauer der Expansion, das Expansionsverhältnis und die Tröpfchenkonzentration. Je höher das Expansionsverhältnis und die Tröpfchenkonzentration sind, desto schneller muß die Expansion durchgeführt werden, damit trockenadiabatische Verhältnisse vorliegen. ISRAEL und NIX (1966a, 1966b) verwendeten die verhältnismäßig lange Expansionszeit von etwa 100 msec und stellten nur während der Expansion ein Tröpfchenwachstum fest. Über die Tröpfchenkonzentration wurde leider keine Aussage gemacht. VIETTI und SCHUSTER (1973) verwendeten ebenfalls Expansionszeiten von etwa 100 msec, die Tröpfchenkonzentration betrug jedoch nur ungefähr $10 \text{ Tröpfchen/cm}^3$, weshalb die Expansion in guter Näherung trockenadiabatisch erfolgte.

AAAA: 3

TROEPFCHENRADIUS ALS FUNKTION DER ZEIT

TR= 0.28000D+02 C= 0.50000D+10 ALPHA= 0.10000D+01
 TA= 0.30000D+02 BETA= 0.13700D+01 BEF= 0.75000D+00

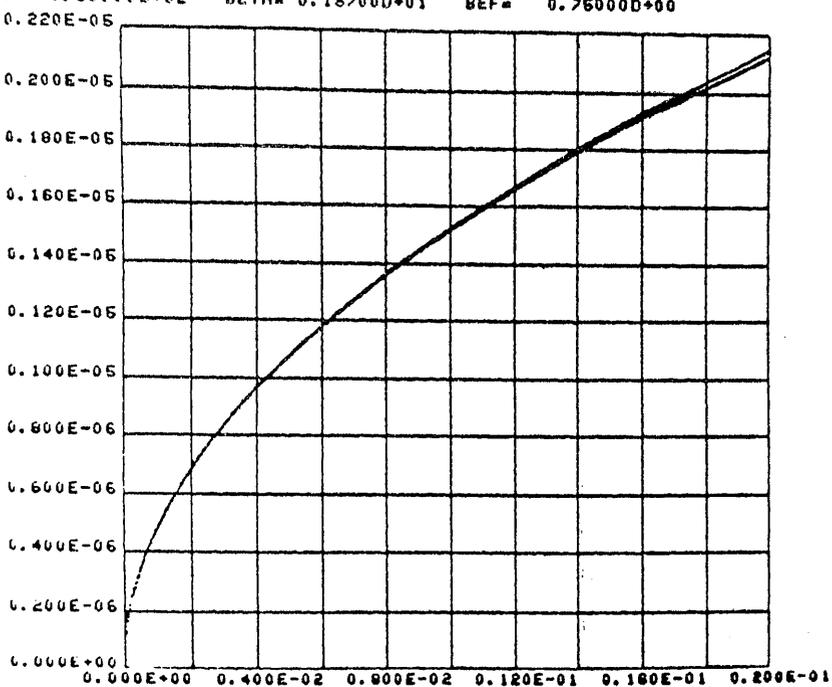


Fig. 56

AAAA: 4

TROEPFCHENRADIUS ALS FUNKTION DER ZEIT

TR= 0.28000D+02 C= 0.10000D+12 ALPHA= 0.10000D+01
 TA= 0.30000D+02 BETA= 0.13700D+01 BEF= 0.75000D+00

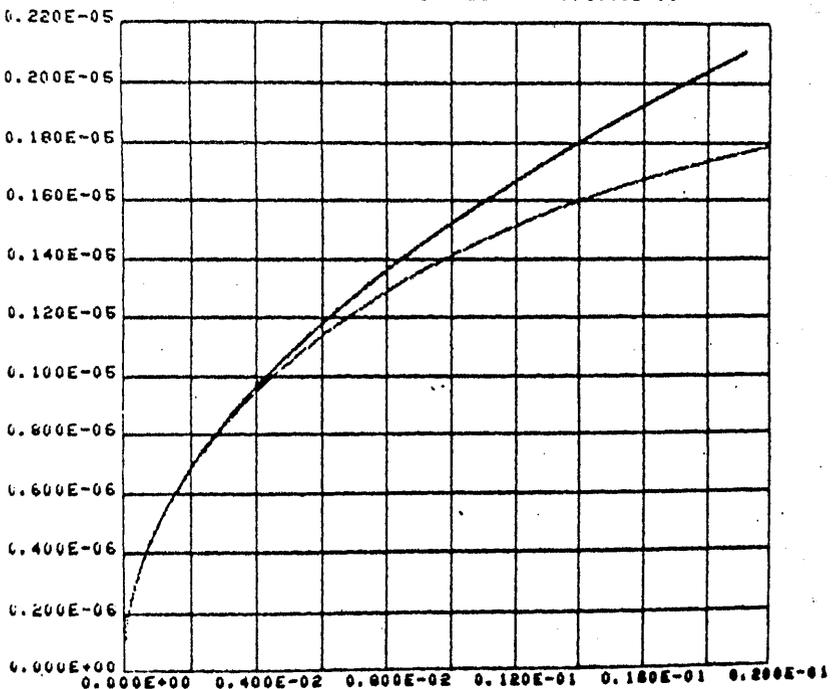


Fig. 57

9999 3

TEMPERATUR ALS FUNKTION DER ZEIT

TF= 0.280000+02 C= 0.500000+10 ALPHA= 0.100000+01
 TN= 0.300000+02 BETA= 0.137000+01 BEF= 0.750000+00
 0.100E+02

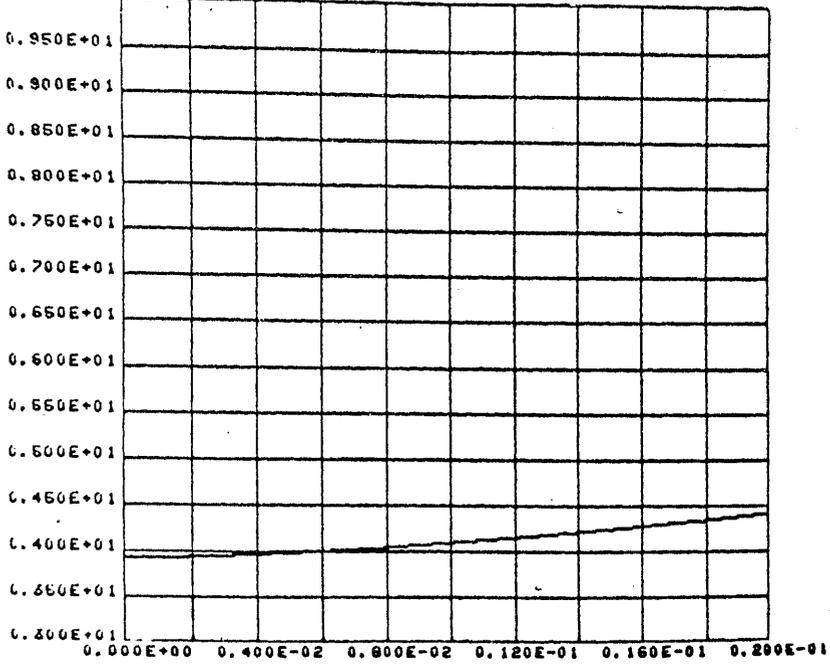


Fig. 58

9999 4

TEMPERATUR ALS FUNKTION DER ZEIT

TF= 0.280000+02 C= 0.100000+12 ALPHA= 0.100000+01
 TN= 0.300000+02 BETA= 0.137000+01 BEF= 0.750000+00
 0.100E+02

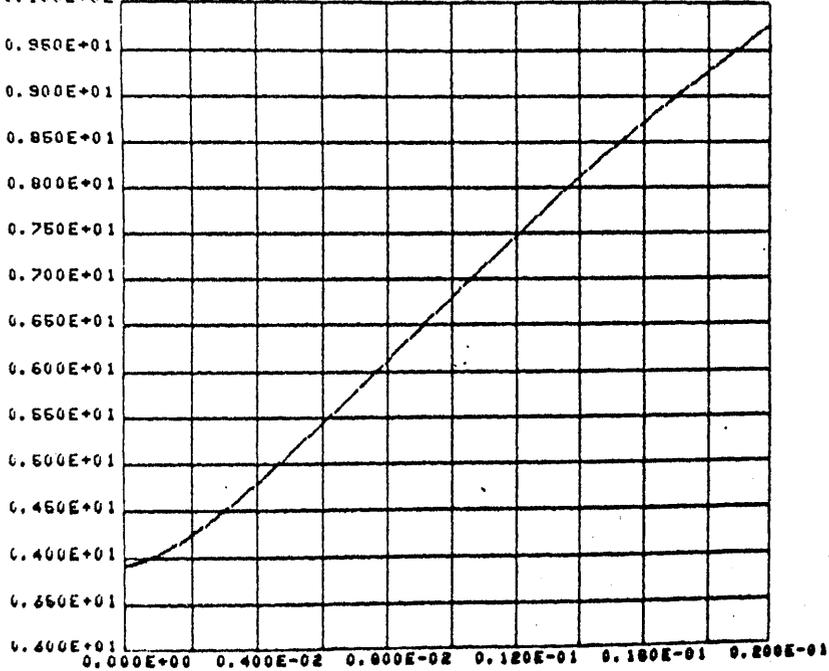


Fig. 59

AAAA 3

WASSERDAMPFSAETTIGUNG ALS FUNKTION DER ZEIT

$T_R = 0.28000D+02$ $C = 0.50000D+10$ $ALPHA = 0.10000D+01$
 $T_A = 0.30000D+02$ $BETA = 0.13700D+01$ $BEF = 0.75000D+00$

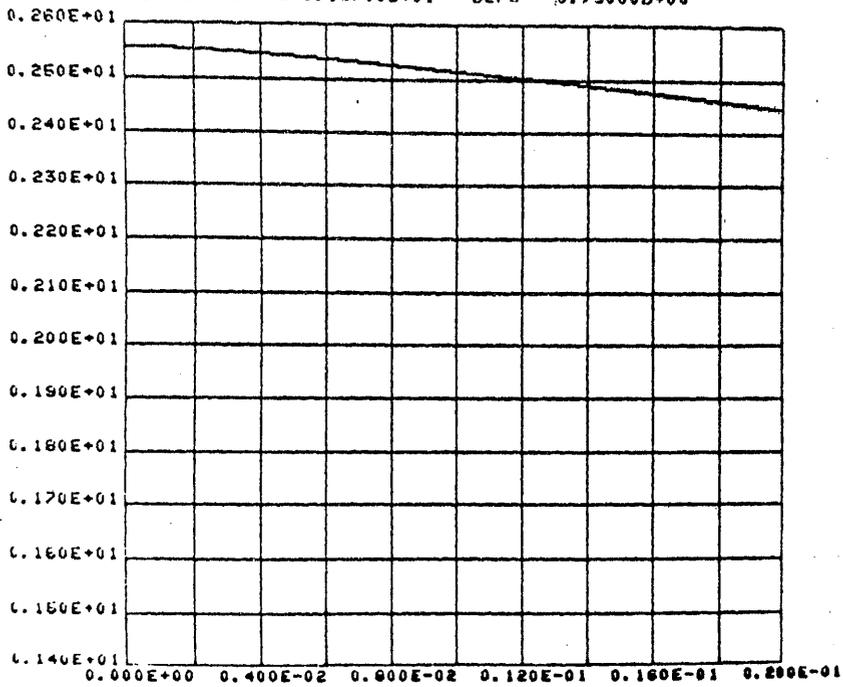


Fig. 60

AAAA 4

WASSERDAMPFSAETTIGUNG ALS FUNKTION DER ZEIT

$T_R = 0.28000D+02$ $C = 0.10000D+12$ $ALPHA = 0.10000D+01$
 $T_A = 0.30000D+02$ $BETA = 0.13700D+01$ $BEF = 0.75000D+00$

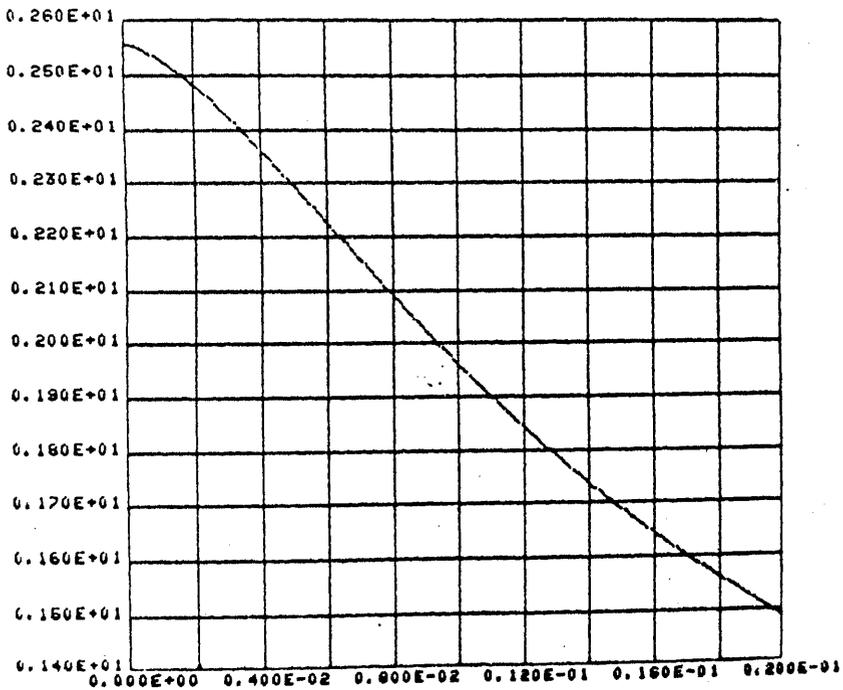


Fig. 61

Bei Kondensationskernzählern werden hohe Expansionsverhältnisse gewählt, sodaß möglichst alle Kerne aktiviert und damit gezählt werden können. Dementsprechend wird bei hohen Kernkonzentrationen jedoch das adiabatisch berechnete Sättigungsverhältnis bei den herkömmlichen Kondensationskernzählern nicht vollständig erreicht und die kleinsten Kondensationskerne werden nicht mehr aktiviert und entgehen der Zählung. KASSNER et al. (1968a, 1968b) schlägt zur Beseitigung dieser Schwierigkeit vor, bei hohen Konzentrationen entweder eine Folge von Expansionen mit wachsendem Expansionsverhältnis durchzuführen oder das Kernaerosol definiert zu verdünnen. Beide Verfahren sind jedoch kompliziert und beinhalten zusätzliche Fehlerquellen. Die Ergebnisse der vorliegenden Arbeit zeigen, daß die Zählverluste bei hohen Kernkonzentrationen auch dadurch vermieden werden können, daß eine kurze Expansionszeit gewählt wird. Die in der verwendeten Versuchsanordnung auftretende Expansionszeit von etwa 5 msec dürfte ausreichen, um eine hinreichende Unterdrückung der Zählverluste auch bei Kernkonzentrationen über 100 k zu bewirken.

5) ZUSAMMENFASSUNG

Der Kondensationskernzähler ist ein wichtiges Hilfsmittel zur Untersuchung hochdisperser Aerosole. Der Kondensationsvorgang ist jedoch bis heute noch nicht hinreichend geklärt, sodaß die mittels eines Kondensationskernzählers gewonnenen Meßergebnisse mit einer gewissen Unsicherheit behaftet sind. Durch genauere Kenntnis der Vorgänge im Kondensationskernzähler könnte neben der Teilchenkonzentration auch zusätzliche Information über das untersuchte Aerosol erhalten werden.

Dementsprechend wurde eine Anordnung entwickelt, die es gestattet, während des Kondensationsvorganges Tröpfchenkonzentration und Tröpfchenradius unabhängig voneinander quantitativ zu bestimmen. Bei dieser Anordnung gelangt das Kondensationskernaerosol durch ein Befeuchtungssystem in eine Expansionskammer, in der durch adiabatische Unterdruckexpansion Wasserdampfübersättigung erzielt wird. Um die Messungen möglichst reproduzierbar zu gestalten, wurden Befeuchter und Expansionskammer getrennt thermostatisiert und die Steuerung des Expansionszyklus erfolgte durch elektronisch betätigte Magnetventile. Das Expansionsverhältnis und damit das Sättigungsverhältnis in der Expansionskammer kann in weiten Grenzen variiert werden. Die Beobachtung der Kondensationströpfchen erfolgt auf optischem Wege durch Beleuchtung mit einem Laserstrahl und Messung der Intensität des an den Tröpfchen gestreuten Lichtes unter verschiedenen einstellbaren Winkeln. Der Intensitätsverlauf während des Anwachsens der Tröpfchen zeigt gute Übereinstimmung mit den gemäß der Mie'schen Streutheorie berechneten Streulichtfunktionen für eine einzelne Kugel. Daraus kann auf eine hohe Monodispersität des Tröpfchenaerosols geschlossen werden. Durch Vergleich mit der Mie'schen Theorie kann aus der Höhe der Streulichtmaxima die Tröpfchenkonzentration ermittelt und aus der Lage der Extrema die Tröpfchengröße zu bestimmten Zeiten abgelesen werden.

Neben dem Streulichtverlauf wurde mittels eines piezoelektrischen Druckaufnehmers auch der Druckverlauf in der Expansionskammer gemessen. Beide Meßgrößen wurden mittels eines Zweikanal-Storage-Oszilloskops gleichzeitig registriert. Es zeigte sich, daß bei der verwendeten Versuchsanordnung ein merkbares Tröpfchenwachstum stets erst nach Ende des Expansionsvorganges einsetzt, weshalb abgesehen von sehr hohen Kernkonzentrationen die Übersättigung am Ende der Expansion in guter Näherung ohne Berücksichtigung des Kondensationsvorganges berechnet werden kann.

Mit der beschriebenen Versuchsanordnung wurden zunächst die bei Kernkonzentrationsmessungen störenden Einflüsse untersucht und soweit wie möglich berücksichtigt. Anschließend wurde ein Vergleich mit dem handelsüblichen Kondensationskernzähler nach RICH vorgenommen. Dabei ergab sich bei Verwendung von Latexteilchen als Kondensationskerne relativ gute Übereinstimmung, während bei Benzolrußkernen die Anzeige des Rich-Kondensationskernzählers wesentlich unter der gemessenen Konzentration lag. Zur Erklärung dieses Ergebnisses wurde die Abhängigkeit der Tröpfchenkonzentration vom eingestellten Expansionsverhältnis und damit vom Sättigungsverhältnis in der Expansionskammer untersucht. Es zeigte sich bei Kochsalzteilchen und bei Latexteilchen weitgehende Unabhängigkeit der Tröpfchenkonzentration vom Expansionsverhältnis. Dagegen konnte bei Benzolrußkernen ein starkes Ansteigen der Tröpfchenkonzentration mit dem Expansionsverhältnis festgestellt werden, was wahrscheinlich auf das Vorhandensein sehr kleiner Teilchen hinweist, die erst bei höheren Expansionsverhältnissen als Kondensationskerne aktiviert werden können. Durch Variation des Expansionsverhältnisses kann also ein kernspezifisches Verhalten festgestellt und damit neben der Teilchenkonzentration zusätzliche Information

über das Kernaerosol erhalten werden. Die starke Abweichung der Anzeige des Rich-Kondensationskernzählers von der gemessenen Konzentration ist wahrscheinlich darauf zurückzuführen, daß die angegebene Übersättigung im Rich-Kondensationskernzähler nicht voll erreicht wird und dementsprechend nicht alle Benzolrußkerne aktiviert werden.

Nachdem durch entsprechende Versuche sichergestellt werden konnte, daß weder der Laserstrahl noch die Beschaffenheit der verwendeten wasserunlöslichen Kondensationskerne einen feststellbaren Einfluß auf das Tröpfchenwachstum haben, wurden Tröpfchenwachstumskurven bei verschiedenen Expansionsverhältnissen und Konzentrationen aufgenommen, wobei sich ergab, daß das Tröpfchenwachstum bei höheren Konzentrationen früher zum Stillstand kommt als bei niedrigeren. Dementsprechend ist die Konzentrationsbestimmung bei hohen Kernkonzentrationen mittels herkömmlicher Kondensationskernzähler wegen der Kleinheit der Kondensationströpfchen oft problematisch. Bei der in der vorliegenden Arbeit verwendeten Versuchsanordnung tritt diese Schwierigkeit nicht auf, weil die Konzentration unabhängig von der Tröpfchengröße gemessen werden kann.

Die Beendigung des Wachstumsvorganges nach Erreichen eines maximalen Tröpfchenradius wird dadurch erklärt, daß während der Kondensation sowohl der Wasserdampfverbrauch als auch die freigesetzte Umwandlungswärme eine Senkung des Sättigungsverhältnisses in der Expansionskammer bewirken. Mittels einer neuen näherungsweise Berechnung des gleichzeitigen Wachstums mehrerer Tröpfchen wurden diese Effekte berücksichtigt. Es besteht gute Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen. Der berechnete zeitliche Verlauf des Wasserdampfsättigungsverhältnisses in der Expansionskammer während der Expansion ergibt bei hohen Tröpfchen-

konzentrationen bereits wenige Millisekunden nach Wachstumsbeginn eine merkliche Reduktion der Übersättigung. Dementsprechend wird in herkömmlichen Kondensationskernzählern bei hohen Kernkonzentrationen wegen der langen Expansionszeiten die maximale Übersättigung stark unterschritten, was zu Zählverlusten führen kann. Bei der in der verwendeten Versuchsanordnung auftretenden Expansionszeit von etwa 5 Millisekunden dürften die Zählverluste auch bei hohen Konzentrationen unbedeutend sein.

6) LITERATUR

- BERG und GEORGE (1968), "Investigation of the Kinetics of Condensation", J. Geoph. Res. 73, 3103-3112
- BHATNAGAR, GROSS und KROOK (1954), "A Model for Collision Processes in Gases. I. Small Amplitude Processes in Charged and Neutral One-Component Systems", Phys. Rev. 94, 511-525
- BORN und WOLF (1959), "Principles of Optics", Pergamon Press, Oxford
- BRADLEY (1955), "The Rate of Evaporation of Micro-Drops in the Presence of Insoluble Monolayers", J. Coll. Sci. 10, 571-575
- BROCK (1966), "Diffusion to Particles in the Near Free Molecule Regime", J. Coll. Interf. Sci. 22, 513-516
- BROCK (1967), "Highly Nonequilibrium Evaporation of Moving Particles in the Transition Region of Knudsen Number", J. Coll. Interf. Sci. 24, 344-351
- CARSTENS (1966), "Diffusional Drop Growth in a Supersaturated Atmosphere", Dissertation, University of Missouri, Rolla
- COHEN (1969), "A Method for an Experimental Determination of the Growth Process of Water Droplets", Tellus 21, 736-737
- DAVIES (1973), "Evaporation of Fine Atmospheric Particles", Faraday Symposia Chem. Soc. 7, 34-41
- DEBYE (1909), "Der Lichtdruck auf Kugeln von beliebigem Material", Ann. Physik 30, 57-136
- DENMAN, HELLER und PANGONIS (1966), "Angular Scattering Functions for Spheres", Wayne State University Press, Detroit
- FRÖSSLING (1938), "Über die Verdunstung fallender Tropfen", Gerlands Beitr. Geophys. 52, 170-216
- FUCHS (1934), "Über die Verdampfungsgeschwindigkeit kleiner Tröpfchen in einer Gasatmosphäre", Phys. Z. Sowjet. 6, 224-243
- FUCHS (1959), "Evaporation and Droplet Growth in Gaseous Media", Pergamon Press, London, Oxford, New York, Paris
- FUCHS (1969), "Recent Progress in the Theory of Transfer Processes in Aerosols at Intermediate Values of the Knudsen Number", Proceed. 7. Int. Conf. Condensation and Ice Nuclei, p. 10-16, Prague and Vienna

- FUCHS und SUTUGIN (1971), "High-Dispersed Aerosols", in "International Reviews in Aerosol Physics and Chemistry" (Hidy and Brock Eds.), Vol. 2 (Topics in Current Aerosol Research), p. 1-60, Pergamon Press, Oxford, New York, Toronto, Sydney, Braunschweig
- FUKUTA und WALTER (1970), "Kinetics of Hydrometeor Growth from a Vapor-Spherical Model", J. Atmos. Sci. 27, 1160-1172
- HARTEL (1940), Licht 10, 141
- HIRTH und POUND (1963), "Condensation and Evaporation, Nucleation and Growth Kinetics", in "Progress in Materials Science" (Chalmers Ed.), Vol. 11, Pergamon Press, Oxford, London, Paris, Frankfurt
- ISRAEL und NIX (1966 a), "Thermodynamische Vorgänge im Kondensationskernzähler", Zeitschr. Geoph. 32, 175-177
- ISRAEL und NIX (1966 b), "Thermodynamic Processes in the Condensation Nuclei Counter", J. Rech. Atm. 2, 185-187
- JER RU MAA (1967), Ind. Engng. Chem. Fund. 6, 504
- KASSNER et al. (1968 a), "The Myth Concerning the Condensation Nucleus Counters", J. Rech. Atm. 3, 25-31
- KASSNER et al. (1968 b), "Expansion Cloud Chamber Technique for Absolute Aitken Nuclei Counting", J. Rech. Atm. 3, 45 - 51
- KERKER (1969), "The Scattering of Light and Other Electromagnetic Radiation", Academic Press, New York, London
- LEVINE und OLAOFE (1968), "Scattering of Electromagnetic Waves by Two Equal Spherical Particles", J. Coll. Interf. Sci. 27, 442-457
- LORENZ (1890), Videnskab. Selskab. Skrifter 6
- MASON (1951), "Spontaneous Condensation of Water Vapour in Expansion Chamber Experiments", Proc. Phys. Soc. B, 64, 773-779
- MASON (1957), "The Physics of Clouds", Clarendon Press, Oxford
- MAXWELL (1890), "Theory of the Wet-Bulb Thermometer", Collected Scientific Papers, Cambridge, 11, 625

- MIE (1908), "Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen", Ann. Physik 25, 377-445
- NIX (1968), "Kondensation und Verdampfung an künstlichen und natürlichen Aerosolen", Dissertation, Techn. Hochschule Aachen
- NIX (1972), "Wachstumsgeschwindigkeiten von H₂O-Tropfen in Kondensationskernzählern", Arch. Met.²Geoph. Biokl. Ser. A, 21, 307-318
- OKUYAMA und ZUNG (1967), "Evaporation-Condensation Coefficient for Small Droplets", J. Chem. Phys. 46, 1580-1585
- POCKELS (1893), "Abhandl., Gesell., Wiss., Göttingen, Bd. 39, Nr. 1
- RAYLEIGH, LORD (1871), Phil. Mag. 41, 447
- REISS (1951), "The Growth of Uniform Colloidal Dispersions", J. Chem. Phys. 19, 482-487
- REISS und LA MER (1950), "Diffusional Boundary Value Problems Involving Moving Boundaries, Connected with the Growth of Colloidal Particles", J. Chem. Phys. 18, 1-12
- RICHARD (1906), "Der Wert des Verhältnisses der beiden spezifischen Wärmen für ein Gemisch zweier Gase, insbesondere für ozonhaltigen Sauerstoff", Ann. Phys. 19, 639-642
- RIEDIGER (1970), "Ein automatischer Kondensationskernzähler mit Expansionsprogramm", Dissertation, Universität Wien
- RIEDIGER (1971), "Ein automatischer Kondensationskernzähler mit Expansionsprogramm", Staub-Reinh. Luft 31, 237-243
- SAHNI (1966), "The Effect of a Black Sphere on the Flux Distribution in an Infinite Moderator", J. Nuclear Energy 20, 915-920
- SCHUSTER (1967), "Observations of Homogeneous Nucleation and Droplet Growth in a Wilson Cloud Chamber by Means of Laser Scattering", Dissertation, New Mexico State University
- SCHUSTER, CARSTENS und KASSNER (1969), "Discussion of Paper by T.G. Owe Berg and Douglas C. George, 'Investigation of the Kinetics of Condensation' ", J. Geoph. Res. 74, 3447 - 3449

- SEMONIN und HAYES (1968), "Thermodynamic Processes in a Rapidly Expanded Gas", J. Rech. Atm. 3, 287-292
- SMART, JACOBSEN, KERKER, KRATOHVIL und MATIJEVIC (1965), "Experimental Study of Multiple Light Scattering", J. Opt. Soc. Am. 55, 947-955
- SMIRNOV (1971), "The Rate of Quasi-Steady Growth and Evaporation of Small Drops in a Gaseous Medium", Pure Appl. Geophys. 86, 184-194
- TWOMEY (1959), "Experimental Test of the Volmer Theory of Heterogeneous Nucleation", J. Chem. Phys. 30, 941- 943
- VAN DE HULST (1957), "Light Scattering by Small Particles", Wiley, New York
- VIETTI und SCHUSTER (1973), "Laser Scattering Measurements of Droplet Growth in Binary Mixtures. I. H₂O and Air", J. Chem. Phys. 58, 434 - 441
- VUL'FSON und LEVIN (1965), "Studies of Clouds, Precipitation and Thunderstorm Electricity", Translated by Amer. Meteor. Soc. p. 29
- WOODWARD (1964), "Multiple Light Scattering by Spherical Dielectric Particles", J. Opt. Soc. Am. 54, 1325-1331
- WUKALOWITSCH (1958), "Thermodynamische Eigenschaften des Wassers und des Wasserdampfes", VEB Verlag Technik, Berlin.

7) ANHANG

C
C

```

DOUBLE PRECISION F(21),RT(21),ARR(15),CY(4,20),AY(56),RY(19),
1ARR2(15),TEMPB,TB,TEMPK,TK,RO,C,DP,P,ALPHA,BEF,BETA,TO,CO,
2SO,PKO,RG,RAS,TOC,XL,XU,STEP,YT,TIME,PS,PK,TKA,INT,
3FUNCR,T,RX,FRT,RST,TMAXR,TSTEP0,STEP0,STEP0,A1,A2,A3,A4,
4X11,X12,X21,X22,ZVT1,ZVT2,BL1,BN1,DBLE,TEND

```

COMMON NTX

COMMON /CB/TO,RO,C,PKO,ALPHA,RT,CY,FRT

C
C

```

EXTERNAL INT
WRITE(1,1001)
1001  FORMAT(24HIDENTIFICATION-SEQUENCE)
READ(1,1002)RIDS
1002  FORMAT(1A5)
      IDCNT=0
1003  CONTINUE
      WRITE(1,1004)
1004  FORMAT(1X,22HBEFEUCHTERTEMPERATUR-C)
READ(1,1005)TEMPB
1005  FORMAT(D10.3)
      TB=TEMPB+273.16D0
      WRITE(1,1006)
1006  FORMAT(1X,18HKAMMERTEMPORATUR-C)
READ(1,1005)TEMPK
      TK=TEMPK+273.16D0
      WRITE(1,1007)
1007  FORMAT(1X,31HRADIUS DER KONDENSATIONSKERNE-M)
READ(1,1005)RO
      WRITE(1,1008)
1008  FORMAT(1X,44HKERNKONZENTRATION PRO CBM NACH DER EXPANSION)
READ(1,1005)C
      WRITE(1,1009)
1009  FORMAT(1X,14HDRUCKDIFFERENZ)
READ(1,1005)DP
      WRITE(1,1010)
1010  FORMAT(1X,15HAUSSENLUFTDRUCK)
READ(1,1005)P
      WRITE(1,1011)
1011  FORMAT(1X,30HMASSENAKKOMODATIONSKOEFFIZIENT)
READ(1,1005)ALPHA
      WRITE(1,1012)
1012  FORMAT(1X,16HBEFEUCHTUNGSGRAD)
READ(1,1005)BEF
      WRITE(1,1013)
1013  FORMAT(1X,68HAENDERUNG DER EINGABEPARAMETER
1 ERWUENSCHT-TYPE 0 -SONST BEL.INT.ZAHL)
READ(1,1014)IKL
1014  FORMAT(I2)
      IF(IKL)1015,1003,1015
1015  BETA=1.0225D0/(1.0225D0-DP/P)
      TO=TK/(BETA** .2857D0)
      TOC=TO-273.16
      CO=(C*TO*BETA)/TK
      SO=(PS(TB)*BEF)/(PS(TO)*BETA)
      PKO=(PS(TB)*BEF)/BETA

```

```

C      .....  VORBEREITUNG DER ROMBERG INTEGRATION  .....
C
C
      ZVT1=1.D-6
      IR3=0
      BL1=R0
8001    BL1=BL1+ZVT1
        IF(INT(BL1)) 8011,8011,8001
8011    BL1=BL1-ZVT1
        ZVT2=ZVT1/2.D0
8002    BN1=BL1+ZVT2
        ZVT2=ZVT2/2.D0
        IR3=IR3+1
        IF(IR3.EQ.6) GO TO 8004
        IF(INT(BN1)) 8002,8002,8003
8003    BL1=BN1
        GO TO 8002
8004    CONTINUE
8007    WRITE(1,8008)BL1
8008    FORMAT(/,1X,26HMAXIMALER TROEPFCHENRADIUS,5X,D12.5/)
C
2000    WRITE(1,2001)
2001    FORMAT(1X,28HMAXIMALER TROEPFCHENRADIUS-M)
        READ(1,2002)RG
2002    FORMAT(D10.3)
        IF(INT(RG))2003,2003,2005
2003    WRITE(1,2004)
2004    FORMAT(1X,37HMAX TR-RAD LIEGT UEBER MOEGL.MAX WERT)
        GO TO 2000
2005    WRITE(1,2006)
2006    FORMAT(1X,34HINTEGRATIONSFEHLER IN FORMAT E12.5)
        READ(1,2707)EPS
2707    FORMAT(E12.5)
        NDIM=15
        IAS=20
        RAS=DBLE(FLOAT(IAS))
        F(1)=R0
        RT(1)=.0D0
        XL=R0
        STEP=(RG-R0)/RAS

C      BEGINN DER SCHLEIFE ZUR BERECHNUNG DER F- WERTE
C
C
C
      DO 2010 I=1,IAS
      XU=R0+STEP*DBLE(FLOAT(I))

C
C
      CALL DQATR(XL,XU,EPS,NDIM,INT,YT,IER,ARR)
      IF(IER) 2007,2009,2007
2007    WRITE(1,2008)I,IER
2008    FORMAT(1X,3HI = ,I2,5HIER= ,I2)
2009    F(I+1)=XU
        RT(I+1)=YT
2010    CONTINUE
C
C      .....  BERECHNUNG DER SPLINE-KOEFFIZIENTEN  .....

```

```

3000 DO 3001 K=1,56
      AY(K)=0.D0
3001 CONTINUE
      DO 3002 K=1,19
      RY(K)=0.D0
3002 CONTINUE
C
C
C .....AUFSETZEN DER ARRAYS A UND R .....
C

```

```

      IP=0
      IL=0
      DO 3013 I=1,19
      IF(I.EQ.1) GO TO 3010
      IP=IP+1
      AY(IP)=RT(I+1)-RT(I)
3010 IP=IP+1
      AY(IP)=2.D0*(RT(I+2)-RT(I))
      IF(I.EQ.19) GO TO 3012
      IP=IP+1
      AY(IP)=RT(I+2)-RT(I+1)
3012 CONTINUE
      IL=IL+1
      RY(IL)=6.D0*((F(I+2)-F(I+1))/(RT(I+2)-RT(I+1))-
1(F(I+1)-F(I))/(RT(I+1)-RT(I)))
3013 CONTINUE
      MI=19
      NI=1
      MUDI=1
      MLDI=1
      EPSI=1.E-6
      CALL DGELB(RY,AY,MI,NI,MUDI,MLDI,EPSI,KERR)
      IF(KERR.EQ.0) GO TO 3020
      WRITE(1,3016)KERR
3016 FORMAT(IX,32HSIEHE BEMERKUNGEN ZU DGELB IER= ,I3)
      GOTO 7000
3020 CONTINUE

```

```

C
C
C ..... SPLINE-KOEFF. IN CY(4,20) GESPEICHERT .....
C

```

```

      CY(3,1)=0.D0
      DO 3022 K=1,19
      CY(3,K+1)=RY(K)
3022 CONTINUE
      DO 3024 K=1,19
      CY(4,K)=(CY(3,K+1)-CY(3,K))/(RT(K+1)-RT(K))
3024 CONTINUE
      CY(4,20)=-CY(3,20)/(RT(21)-RT(20))
      DO 3026 K=1,20
      CY(1,K)=F(K)
3026 CONTINUE
      DO 3028 K=1,20
      CY(2,K)=(F(K+1)-CY(1,K))/(RT(K+1)-RT(K))
1-(CY(3,K)/2.D0)*(RT(K+1)-RT(K))- (CY(4,K)/6.D0)*((RT(K+1)

```



```

DO 4020 I=1,999
XC0=SNGL(TSTEP0*DBLE(FLOAT(I)))
YC0=SNGL(RX(TSTEP0*DBLE(FLOAT(I))))
CALL DISP2(XC0,YC0,NN)
4020 CONTINUE
IF(IDAPR.EQ.0) GOTO 4100
WRITE(1,4030)
4030 FORMAT(1X,44HANZAHL DER ERWUENSCHTEN F-WERTE IN FORMAT I4)
WRITE(1,4031)
4031 FORMAT(1X,4HANZ=)
READ(1,4032)IANZ
4032 FORMAT(I4)
STEP0=RT(21)/DBLE(FLOAT(IANZ))
STEP00=T(RG)/DBLE(FLOAT(IANZ))
WRITE(1,4035)RIDS,IDCNT
4035 FORMAT(1H1,62X,1A5,I5//1X,5HZEIT0,13X,2HR0,16X,5HZEITC,
113X,2HRC//)
DO 4050 I=1,IANZ
A1=STEP00*DBLE(FLOAT(I))
A3=STEP0*DBLE(FLOAT(I))
A2=RX(STEP00*DBLE(FLOAT(I)))
A4=FUNCR(STEP0*DBLE(FLOAT(I)))
WRITE(1,4040)A1,A2,A3,A4
4040 FORMAT(1X,D12.5,6X,D12.5,6X,D12.5,6X,D12.5)
4050 CONTINUE
4100 CONTINUE
WRITE(1,4051)
4051 FORMAT(2H1 )
PAUSE1

C
C
C
CALL CLOSVP
NTX=0
CALL INITVP
WRITE(8,4060)RIDS,IDCNT,TEMPB,C,ALPHA,TEMPK,BETA,BEF
4060 FORMAT(1X,1A5,I5/15X,43HWASSERDAMPFSAETTIGUNG
1ALS FUNKTION DER ZEIT//1X,5HTB= ,D12.5,3X,5HC= ,D12.5,
13X,6HALPHA=,D12.5/1X,5HTK= ,D12.5,3X,5HBETA=,D12.5,3X,
26HBEF= ,D12.5)
CALL DISP1
WRITE(1,4061)
4061 FORMAT(1X,35HDATENAUSGABE AUF TTY DAPR=1 SONST 0/1X,5H
1DAPR=)
READ(1,4062)IDAPR
4062 FORMAT(I1)
C
C
NN=1
DO 4070 I=1,999
TIME=RST*DBLE(FLOAT(I))
XVS=SNGL(TIME)
YVS=SNGL(PK(FUNCR(TIME))/PS(TKA(FUNCR(TIME))))
CALL DISP2(XVS,YVS,NN)
4070 CONTINUE
IF(IDAPR.EQ.0) GOTO 4090
WRITE(1,4071)

```

```

4071  FORMAT(1X,44HANZAHL DER ERWUENSCHTEN F-WERTE IN FORMAT I4/
11X,4HANZ=)
      READ(1,4072)IANZ
4072  FORMAT(I4)
      WRITE(1,4073)RIDS,IDCNT
4073  FORMAT(1H1,62X,1A5,I5//1X,4HZEIT,16X,10HSAETTIGUNG//)
      STEPC=RT(21)/DBLE(FLOAT(IANZ))
      DO 4075 I=1,IANZ
      X11=STPC*DBLE(FLOAT(I))
      X12=PK(FUNCR(X11))/PS(TKA(FUNCR(X11)))
      WRITE(1,4074)X11,X12
4074  FORMAT(1X,D12.5,8X,D12.5)
4075  CONTINUE
4090  CONTINUE
      WRITE(1,4091)
4091  FORMAT(2H1 )
      PAUSE2

C
C
      CALL CLOSVP
      NTX=0
      CALL INITVP
      WRITE(8,5020)RIDS,IDCNT,TEMPB,C,ALPHA,TEMPK,BETA,BEF
5020  FORMAT(1X,1A5,I5/20X,32HTEMPERATUR ALS FUNKTION
1 DER ZEIT//1X,5HTB= ,D12.5,3X,5HC= ,D12.5,3X,6HALPHA=,D12.5/
21X,5HTK= ,D12.5,3X,5HBETA=,D12.5,3X,6HBEF= ,D12.5)
      CALL DISPI
      WRITE(1,5021)
5021  FORMAT(1X,35HDATENAUSGABE AUF TTY DAPR-1 SONST 0/
11X,5HDAPR=)
      READ(1,5022)IDAPR
5022  FORMAT(I1)

C
C
      NN=1
      DO 5030 I=1,999
      TIME=RST*DBLE(FLOAT(I))
      XVT=SNGL(TIME)
      YVT=SNGL(TKA(FUNCR(TIME)))-273.16
      CALL DISP2(XVT,YVT,NN)
5030  CONTINUE
      IF(IDAPR.EQ.0) GOTO 5090
      WRITE(1,5031)
5031  FORMAT(1X,44HANZAHL DER ERWUENSCHTEN F-WERTE IN FORMAT I4
1/1X,4HANZ=)
      READ(1,5072)IANZ
5072  FORMAT(I4)
      WRITE(1,5073)RIDS,IDCNT
5073  FORMAT(1H1,62X,1A5,I5//1X,4HZEIT,16X,10HTEMPERATUR//)
      STEPC=RT(21)/DBLE(FLOAT(IANZ))
      DO 5080 I=1,IANZ
      X21=STPC*DBLE(FLOAT(I))
      X22=TKA(FUNCR(STPC*DBLE(FLOAT(I))))-273.16D+00
      WRITE(1,5074)X21,X22
5074  FORMAT(1X,D12.5,8X,D12.5)
5080  CONTINUE
5090  CONTINUE

```

```
5091 WRITE(1,5091)
      FORMAT(2H1 )
      PAUSE3
      CALL CLOSVP
      GOTO 1003
7000 STOP
```

```
C
C
```

```
END
```

C

```
DOUBLE PRECISION FUNCTION PS(T1)
DOUBLE PRECISION T1,XX,UU,VV,TO,RO,C,PKO,ALPHA,DLOG10,
1RT(21),CY(4,20),FRT
COMMON /CB/TO,RO,C,PKO,ALPHA,RT,CY,FRT
XX=(5.0057195D+0-3.142305D+0*(1.D+3/T1-1.D+3/373.16D+0))
UU=8.2D+00*DLOG10(373.16D+00/T1)-0.24804D-02*(373.16D+00-T1)
VV=XX+UU
PS=(1.0D+01)**VV
RETURN
END
```

C

```
DOUBLE PRECISION FUNCTION TKA(R1)
DOUBLE PRECISION TO,R1,RO,C,PKO,ALPHA,RT(21),CY(4,20),FRT
COMMON /CB/TO,RO,C,PKO,ALPHA,RT,CY,FRT
TKA=TO+10.241573D0*1.D6*(R1**3.D0-RO**3.D0)*C
RETURN
END
```

C
C

```
DOUBLE PRECISION FUNCTION PK(R2)
DOUBLE PRECISION R2,PKO,T0,C,RO,ALPHA,RT(21),CY(4,20),FRT
COMMON /CB/T0,RO,C,PKO,ALPHA,RT,CY,FRT
PK=PKO+(10.241573D6*PKO/T0-1.9332423D6*T0)*C*
1 (R2**3.-RO**3.)-19.799441D+12*((C*(R2**3.-
2RO**3.))**2.)
RETURN
END
```

C
C

```
DOUBLE PRECISION FUNCTION INT(R3)
DOUBLE PRECISION R3,ALPHA,PK,PS,TKA
DOUBLE PRECISION TO,RO,C,PKO,RT(21),CY(4,20),FRT
COMMON /CB/TO,RO,C,PKO,ALPHA,RT,CY,FRT
INT=(R3/(PK(R3)-PS(TKA(R3))))*(.5287566D15*(PS(TKA(R3)))/
1TKA(R3)**2.)+19.2704D+09*TKA(R3)/ALPHA)
RETURN
END
```

C
C

```
DOUBLE PRECISION FUNCTION FUNCR(TIME)
DOUBLE PRECISION TIME,RT(21),XYZ,CY(4,20),SPLINE
DOUBLE PRECISION CY1K,CY2K,CY3K,CY4K,TO,RO,C,PKO,ALPHA,FRT
COMMON /CB/TO,RO,C,PKO,ALPHA,RT,CY,FRT
K=1
4005 K=K+1
      KIL=K-1
      IF(K.EQ.21) GO TO 4006
      IF(TIME.GE.RT(K)) GOTO 4005
4006 XYZ=TIME-RT(KIL)
      CY1K=CY(1,KIL)
      CY2K=CY(2,KIL)
      CY3K=CY(3,KIL)
      CY4K=CY(4,KIL)
      FUNCR=SPLINE(CY1K,CY2K,CY3K,CY4K,XYZ)
      RETURN
      END
```

C
C

```
DOUBLE PRECISION FUNCTION SPLINE(AS,BS,CS,DS,ES)
DOUBLE PRECISION AS,BS,CS,DS,ES
SPLINE= ((DS/6.D0*ES+CS/2.D0)*ES+BS)*ES+AS
RETURN
END
```

C
C

```
DOUBLE PRECISION FUNCTION T(RI1)
DOUBLE PRECISION RI1, FRT, TO, ALPHA, PKO, RO, C, RT(21), CY(4,20), PS
COMMON /CB/TO, RO, C, PKO, ALPHA, RT, CY, FRT
FRT = (.5287566D+15*(PS(TO)/TO**2.)+19.2704D+09*
1 TO/ALPHA)/(PKO-PS(TO))
T = (RI1**2.D0-RO**2.D0)*(FRT/2.D0)
RETURN
END
```

C
C

```
DOUBLE PRECISION FUNCTION RX(T)
DOUBLE PRECISION T,FRT,RO,TO,C,PKO,ALPHA,RT(21),CY(4,20)
1,DSQRT
COMMON /CB/TO,RO,C,PKO,ALPHA,RT,CY,FRT
RX=DSQRT((T+T)/FRT+RO**2.D0)
RETURN
END
```

Herrn Prof. Dr. O. Preining, Vorstand des I. Physikalischen Instituts der Universität Wien, möchte ich herzlich dafür danken, daß er durch sein großzügiges Entgegenkommen die vorliegende Arbeit ermöglicht hat und stets zur Diskussion auftretender Probleme bereit war.

Die vorliegende Arbeit wurde von der National Air Pollution Control Administration, Consumer Protection and Environmental Health Services, U.S. Public Health Services, Grant Number 5 R01 AP 00468-06 unterstützt. Das Zweikanal-Storage-Oszilloskop mit Zubehör wurde vom Fonds zur Förderung der wissenschaftlichen Forschung, Wien, Antrag Nr. 1307 zur Verfügung gestellt. Den genannten Stellen sei für die Beiträge gedankt.

C U R R I C U L U M V I T A E

Ich, Paul Wagner, wurde als Sohn des Ing. Rudolf Wagner und seiner Ehefrau Liselotte Wagner, geb. Pujmann, am 23. August 1947 in Wien geboren.

Vom Jahre 1953 bis zum Jahr 1957 besuchte ich die allgemeine öffentliche vierklassige Volksschule in Wien IX, Galileigasse 5. Im Jahre 1957 wurde ich in die Bundesrealschule in Wien I, Schottenbastei 7-9 aufgenommen, wo ich im Juli 1965 die Reifeprüfung mit Auszeichnung ablegte. Daneben erhielt ich vom Jahre 1955 bis zum Jahr 1962 Klavierunterricht an der Musikschule der Stadt Wien, Alsergrund. Das Studium der Physik begann ich im Wintersemester des Studienjahres 1965/66 an der Philosophischen Fakultät der Universität Wien.