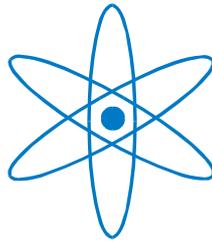


PHYSIK DEPARTMENT



**Lichtemission durch
Elektronenstrahlanregung dichter Gase
und deren Kombination mit
Hochfrequenzanregung**

Dissertation

von

Thomas Dandl



**TECHNISCHE UNIVERSITÄT
MÜNCHEN**



Technische Universität München

Physik Department

Lehrstuhl für Experimentalphysik (E12)

**Lichtemission durch
Elektronenstrahlanregung dichter Gase
und deren Kombination mit
Hochfrequenzanregung**

Thomas Dandl

Vollständiger Abdruck der von der Fakultät für Physik der Technischen Universität München zur Erlangung des akademischen Grades eines

Doktors der Naturwissenschaften (Dr.rer.nat.)

genehmigten Dissertation.

Vorsitzender: Univ.-Prof. Dr. Ulrich Gerland

Prüfer der Dissertation:

1. Priv.-Doz. Dr. Andreas Ulrich
2. Univ.-Prof. Dr. Reinhard Kienberger

Die Dissertation wurde am 18.06.2015 bei der Technischen Universität München eingereicht und durch die Fakultät für Physik am 20.07.2015 angenommen.

Zusammenfassung

Die Elektronenstrahlanregung von Edelgasen ist eine sehr effiziente Methode zur Erzeugung von Licht im vakuumultravioletten (VUV) Spektralbereich [1-3]. Gerade durch die Verwendung niederenergetischer Elektronen (12keV Teilchenenergie) kann im Gasvolumen bei Atmosphärendruck eine hohe Leistungsdichte und eine Lichtquelle von hoher Brillanz realisiert werden. Die absolut erreichbare Lichtintensität ist allerdings durch die begrenzte thermische Stabilität einer Keramikmembran, welche das evakuierte Volumen der Elektronenquelle vom Gasvolumen trennt, limitiert. Eine Möglichkeit die Lichtintensität dennoch zu steigern, ist die zusätzliche Einkopplung einer Hochfrequenzleistung in das, durch den Elektronenstrahl vorionisierte, Gasvolumen. Dieses Grundprinzip wird seit den 1970er Jahren unter dem Stichwort „electron beam sustained discharge“ überwiegend zum Pumpen von Gaslasern verwendet [4-6]. Die dort beschriebenen Lasersysteme werden mit Elektronenenergien von etwa 150 bis 250keV betrieben und arbeiten ausschließlich im Pulsbetrieb. Die vorliegende Arbeit beschreibt eine Methode, welche erstmals auch den kontinuierlichen Betrieb einer „electron beam sustained discharge“ in einem kompakten Aufbau ermöglicht.

Die vorliegende Arbeit beschreibt anhand von zwei Experimenten die Grundlagen der reinen Elektronenstrahlanregung dichter Gase. Dabei wird zunächst die Szintillation von Stickstoff und synthetischer Luft untersucht. Im Speziellen konnte eine mögliche Erklärung für die Divergenz der in unserer Arbeitsgruppe gemessenen Werte zu Literaturwerten [7, 8], bezüglich des Intensitätsverhältnisses von Stickstoffbanden in reinem Stickstoff und in synthetischer Luft, gefunden werden. Eine systematische Variation einer Sauerstoffverunreinigung in Stickstoff zeigte neben dem gewöhnlichen Stoßquenchen bei sehr kleinen Verunreinigungskonzentrationen einen weiteren Quenchprozess, welcher einer unterdrückten Elektron-Ion-Rekombination zugeordnet werden konnte.

Bei der Anregung von Edelgasen beschränkt sich diese Arbeit im Wesentlichen auf Argon, da sich die Wellenlänge von dessen Lichtemission im VUV-Bereich sehr gut zur Photoionisation von sicherheitsrelevanten Substanzen eignet [9, 10] und hier im Rahmen eines BMBF-Verbund-Vorhabens (DIVE) eine Intensitätssteigerung erreicht werden sollte. Anhand der reinen Elektronenstrahlanregung werden grundlegende Prozesse der Lichtemission in Edelgasen beschrieben. Es werden zwei Möglichkeiten zur Abschätzung der mittleren Elektronendichte n_e im angeregten Gasvolumen vorgestellt. Die beiden Zugänge über einerseits den bekannten Leistungseintrag in das Gas durch den Elektronenstrahl in Kombination mit orts aufgelösten Messungen sowie andererseits über die Modellierung des Nachleuchtens bei einer gepulsten Anregung lieferten vergleichbare Ergebnisse zur Abschätzung von n_e (z.B. $n_e \approx 10^{13} \text{cm}^{-3}$ bei einer gepulsten Anregung mit einem Strahlstrom von 300 μA). Des Weiteren wurde über die Messung der Linienbreite von Spektrallinien ein Zugang zur Bestimmung der mittleren Gastemperatur geschaffen, welcher auch für die Messungen zur Kombination mit Hochfrequenzanregung genutzt wurde.

Beim Übergang zu „electron beam sustained discharges“ wird zunächst auf eine Betriebsart eingegangen, welche im Folgenden als kombinierte Anregung bezeichnet wird. Diese Anregung beschreibt die Vorstufe zur Zündung einer Hochfrequenzentladung. Bei der kombinierten Anregung wird in einem kontinuierlichen Betrieb eine Mikrowellenleistung (2,45GHz) von einigen

Watt in das, durch den Elektronenstrahl vorionisierte, Volumen eingekoppelt. Die kombinierte Anregung ist dabei dadurch charakterisiert, dass die Entladung mit dem Abschalten des Elektronenstrahls gänzlich erlischt. Im Emissionsspektrum von Argon wurden große Veränderungen beim Übergang von reiner Elektronenstrahlanregung zur kombinierten Anregung beobachtet. Diese Veränderungen konnten auf die, sich mit der Einkopplung der Mikrowellenleistung ändernden, Plasmaparameter (Elektronen- und Gastemperatur) zurückgeführt werden. Die kombinierte Anregung bietet dabei die einmalige Gelegenheit, auf die verschiedenen Plasmaparameter weitgehend getrennt voneinander Einfluss zu nehmen. Die Elektronendichte n_e wird dabei im Wesentlichen durch den Elektronenstrahlstrom bestimmt. Elektronen- und Gastemperatur können durch die Mikrowellenleistung variiert werden. Eine breite Kontinuums-emission vom ultravioletten (UV) bis in den infraroten (IR) Bereich, welche nur im Fall der kombinierten Anregung beobachtet wurde, konnte durch verschiedene Messungen mit großer Wahrscheinlichkeit als Photorekombinationskontinuum identifiziert werden.

Durch die Vorionisierung des Gasvolumens durch den Elektronenstrahl ist auch die Zündung einer selbstständigen Mikrowellenentladung möglich. In diesem Fall wird der Elektronenstrahl nur zur Zündung der Entladung benötigt und kann im weiteren Betrieb abgeschaltet werden. Die zuvor für die kombinierte Anregung beobachteten spektralen Veränderungen treten beim Übergang zur Entladung noch deutlicher hervor. Zudem erhöht sich die gesamte Lichtintensität durch die höhere Mikrowellenleistung von bis zu 28 Watt wie auch durch eine effizientere Einkopplung dieser Leistung. Mit den zuvor erarbeiteten optischen Zugängen zur Gastemperatur T und Elektronendichte n_e konnten deren Werte zu $T \approx 2000K$ und $n_e \approx 10^{13}cm^{-3}$ abgeschätzt werden.

Da die Lichtintensität im VUV-Bereich durch die Zündung einer Mikrowellenentladung erheblich gesteigert werden konnte (um etwa einen Faktor 10 im Bereich um 126nm und einen Faktor 80 im Bereich um 115nm), wurde eine weitere Erhöhung der Hochfrequenzleistung untersucht. Hierzu wurde ein gepulstes (Pulslänge 500ns, Repetitionsrate bis zu 1kHz) Radarsignal von 25kW bei einer Frequenz von 9,4GHz verwendet. Durch die Vorionisierung mit dem Elektronenstrahl war auch in diesem Fall die Zündung einer Entladung bei Atmosphärendruck möglich. Die Emissionsspektren sind dabei im Wesentlichen unverändert zu denen der Mikrowellenentladung. Die absolute Intensität konnte jedoch weiter gesteigert werden. Im Bereich um 115nm wurden Lichtintensitäten erreicht, welche mit denen einer speziellen Hochstromelektronenquelle (bis zu 1 Ampere) vergleichbar sind. Dadurch, dass für die Radaranregung die eingangs erwähnte Keramikmembran keine Limitierung darstellt, besteht hier noch weiteres Steigerungspotential bezüglich Pulslänge und Repetitionsrate. Eine grobe Abschätzung der Elektronendichte ergab einen Wert in der Größenordnung von $n_e \approx 10^{14}cm^{-3}$.

Die grundlegende Technik lässt sich auch auf andere Edelgase sowie Gasmischungen wie beispielsweise Neon-Wasserstoff anwenden [11, 12]. Die zur Zündung benötigten Elektronen werden außerhalb des Gasvolumens erzeugt, wodurch diese Versuchsanordnung in Bezug auf die Gasfüllung sehr variabel einsetzbar ist, da die Zündbedingung auch bei hohen Gasdrücken leicht erreicht werden kann. Abschließend wird die technische Umsetzung einer solchen VUV-Lichtquelle zur Anwendung in einem Ionenmobilitätsspektrometer diskutiert. Im Rahmen eines BMBF-Verbundvorhabens (DIVE) wurde hierzu auch das Optimierungspotential der Lichtquelle in Bezug auf die Optikkomponenten sowie die Erzeugung des Elektronenstrahls mittels Feldemitterkathoden untersucht.

Abstract

Electron beam excitation of rare gases is a very efficient method for the generation of vacuum ultraviolet (VUV) light [1-3]. Low energy electrons with a particle energy of 12keV create a high power density in the gas at atmospheric pressure and lead to a high brilliance of the light source. Light intensity is limited by the thermal stability of a ceramic membrane separating the evacuated volume of the electron source from the gas target. One possibility to increase the light intensity, anyway, is to couple additional microwave power into the gas volume, which is pre-ionized by the electron beam. The principle of this excitation method is called “electron beam sustained discharge” and is known since the 1970s in the context of pumping gas lasers [4-6]. Laser systems described in these publications typically use an electron beam of 150 to 250keV particle energy and are operated in a pulsed mode. The present thesis describes a method, which enables compact “electron beam sustained discharges” in a continuous mode for the first time.

In this thesis at first two experiments are presented describing the basics of electron beam excitation of dense gases. The first one focuses on the scintillation of nitrogen and synthetic air. A possible explanation for the discrepancy of values for intensity ratios of nitrogen bands in pure nitrogen and artificial air measured by our group to values in literature [7, 8] could be found. A systematic variation of the oxygen content in nitrogen showed an additional quenching process (at low oxygen concentrations) besides the classical collisional quenching, which can be explained by a suppressed electron-ion-recombination.

Describing electron beam excitation of rare gases this thesis focuses on argon, since the light emission from argon in the VUV range is suitable for photoionization of security relevant substances [9, 10]. The goal of a BMBF project (DIVE) was to increase light intensity in the wavelength range of the main emission from argon. Basic processes of light generation in excited rare gases are described. Two possibilities are shown to estimate the mean electron density n_e of the excited gas volume. One way uses the known power deposition of the electron beam in the gas together with space resolved measurements. The other way uses the time structure of the afterglow for pulsed excitation. Both methods lead to an electron density of roughly $n_e \approx 10^{13} \text{cm}^{-3}$ at a beam current of 300 μA . The gas temperature is estimated by line width measurements which is also performed for the measurements using additional microwave excitation.

Turning towards “electron beam sustained discharges” at first an operation mode is described, which will be called combined excitation in the following. This operation mode is a precursor to the ignition of a self-sustained discharge. For combined excitation a continuous microwave power of a few Watt is coupled into the gas volume pre-ionized by the electron beam. The combined excitation is characterized by the fact, that the discharge stops completely when the electron beam is turned off. Emission spectra from argon show significant modifications for combined excitation compared to sole electron beam excitation. These modifications can be explained by varying plasma parameters (electron and gas temperature) with additional microwave power coupled into the gas. The combined excitation offers the outstanding possibility to vary different plasma parameters nearly independent from each other. Electron density n_e can be varied by the electron beam current. Electron and gas temperature can be varied by the microwave power.

Furthermore, a broad continuum emission from the ultraviolet (UV) to the infrared (IR) range, which is only observed for additional microwave excitation, could most likely be identified as a photo recombination continuum.

The pre-ionization by the electron beam enables the ignition of a self-sustained microwave discharge. In this case the electron beam is only needed for the ignition and can be switched off afterwards. The spectral modifications, already observed for combined excitation, are even enhanced for the microwave discharge. In addition the overall light intensity is increased since the microwave power is higher (max. 28W) and also the coupling is more efficient. Using the methods for estimating the plasma parameters described above leads to a gas temperature of about $T \approx 2000K$ and an electron density on the order of $n_e \approx 10^{13}cm^{-3}$.

Since the light intensity in the VUV-range could be increased drastically by igniting a microwave discharge (by roughly a factor of 10 in the range around 126nm and even a factor of 80 in the range of 115nm) a further increase of microwave power was studied. Therefore a pulsed (pulse length 500ns, repetition rate up to 1kHz) X-band radar signal of 25kW at a frequency of 9.4GHz was used for excitation. Due to the pre-ionization by the electron beam also in this case an ignition of a discharge was possible even at atmospheric pressure. The emission spectra are similar to those derived with a 2.45GHz discharge. Nevertheless the absolute intensity could again be increased. In the range around 115nm an intensity comparable to electron beam excitation with special high current electron sources (up to 1 ampere) was observed. Since the ceramic membrane mentioned above is no limitation for microwave power, there is still the possibility for further increasing pulse length and repetition rate. The mean electron density in this case was roughly estimated to be on the order of $n_e \approx 10^{14}cm^{-3}$.

The basic technique is also suitable for other rare gases and gas mixtures e.g. neon hydrogen [11, 12]. The electrons, which are needed for the ignition process, are generated outside of the gas volume. Therefore the setup is very flexible in terms of the gas filling since the ignition condition can easily be fulfilled even at a high gas pressure. The last section focuses on the technical implementation of such a VUV light source in an ion mobility spectrometer. A possible optimization of the light source was studied as part of a BMBF project (DIVE). This concerns for example the optical components of the light source as well as the generation of the electron beam via cold cathodes based on field emission.

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	iii
Abstract	v
1 Einleitung.....	1
2 Theoretische Grundlagen zur Anregung von Edelgasen und deren Lichtemission	5
3 Beschreibung des Messaufbaus	11
3.1 Elektronenquelle	11
3.2 Aufbau zur Kombination von Elektronenstrahl- und Mikrowellenanregung	13
3.3 Anpassungen des Aufbaus für weitere Messungen	18
3.3.1 Messungen in Stickstoff.....	18
3.3.2 Messungen mit Radaranregung	18
4 Elektronenstrahlanregung dichter Gase.....	21
4.1 Lichtemission von Stickstoff und Luft.....	22
4.1.1 Ansprechfunktion des Spektrometers im Bereich 300 - 400nm	22
4.1.2 Linienintensitätsverhältnisse der Stickstoffbanden in Luft	27
4.1.3 Gezielte Verunreinigung von Stickstoff mit Sauerstoff	28
4.2 Simulation der Energiedeposition in 1bar Argon	31
4.3 Druckverbreiterung atomarer Spektrallinien – Abschätzung der Gastemperatur.....	36
4.4 Temperaturabhängiges Verhalten der Excimerkontinua	40
4.5 Abschätzung der Elektronendichte mit Hilfe von räumlich aufgelösten Messungen des angeregten Volumens	43
4.6 Abschätzung der Elektronendichte mit Hilfe von zeitlich aufgelösten Messungen	47
5 Kombinierte Elektronenstrahl- und Hochfrequenzanregung dichter Gase	51
5.1 Spektrales Verhalten im Bereich des 1. und 2. Excimerkontinuums.....	53
5.2 Einfluss der Mikrowellenanregung auf das 3. Excimerkontinuum.....	55
5.3 UV-VIS-IR Kontinuum.....	57
5.4 Atomare Linienstrahlung im sichtbaren und NIR-Bereich.....	62
5.4.1 Relative Linienintensitäten	62
5.4.2 Linienbreiten.....	65

6	Mikrowellenentladung bei 2,45GHz	67
6.1	Mikrowellenentladung in Argon bei Atmosphärendruck	68
6.1.1	Wellenlängenaufgelöste Messungen.....	68
6.1.2	Zeitaufgelöste Messungen.....	76
6.1.3	Freistehende Entladung - „Entladungskerze“	80
6.2	Mikrowellenentladung in anderen Edelgasen und Mischungen	81
7	Gepulste Entladung bei 9,4GHz mit 25kW Pulsleistung	85
7.1	Zündverhalten der Entladung	86
7.2	Wellenlängenaufgelöste Messungen im VUV und VIS-IR-Bereich.....	87
7.3	Zeitaufgelöste räumliche Ausdehnung der Entladung.....	88
7.4	Zeitstruktur des 2. Kontinuums	90
8	Ausblick - Anwendung als Lichtquelle und Optimierungspotential.....	97
	Literaturverzeichnis	103
	Danksagung.....	109

1 Einleitung

Edelgase zeichnen sich durch eine sehr hohe Szintillationseffizienz im vakuumultravioletten (VUV) Spektralbereich unterhalb von 200nm aus [13]. Aufgrund der hohen Effizienz werden Edelgase in flüssiger Form häufig als Detektormedium zum Nachweis hochenergetischer Teilchen verwendet [14-16]. Im gasförmigen Zustand werden sie auch kommerziell zur Lichterzeugung genutzt [17]. Hier werden bei Elektronenstrahlanregung Effizienzen von ca. 30% (Argon) bis 40% (Krypton, Xenon) erreicht. Übersichtsspektren für verschiedene Edelgase im VUV-Bereich sind in Abbildung 1 gezeigt.

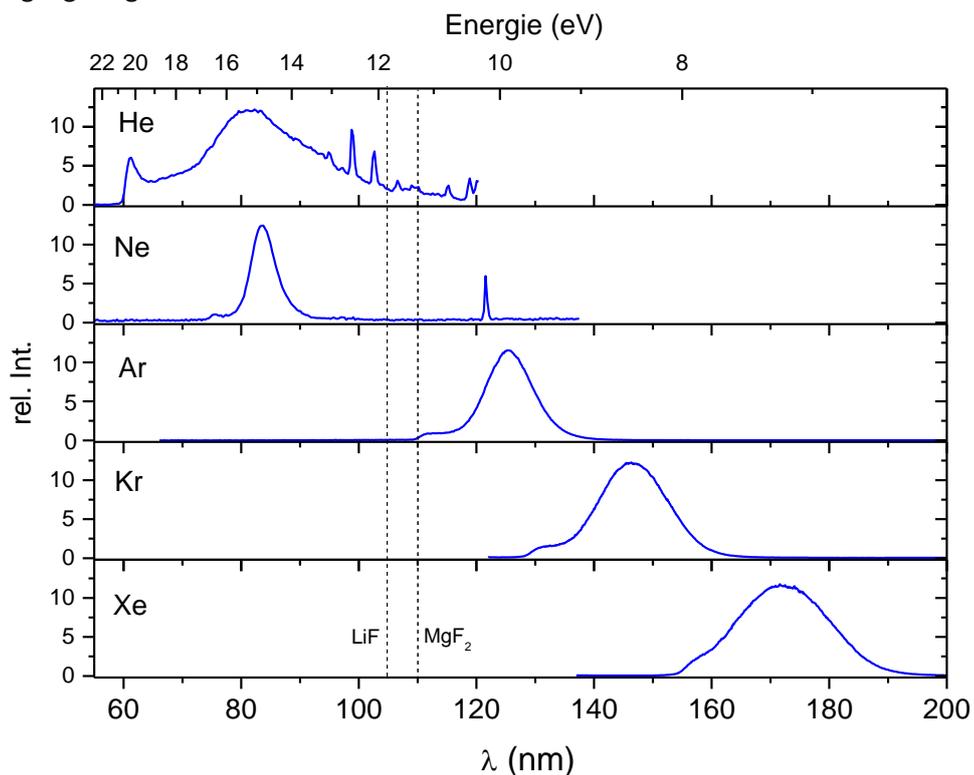


Abbildung 1 Übersicht über die Emissionsspektren der Edelgase im VUV-Bereich bei Atmosphärendruck und reiner Elektronenstrahlanregung. Die gestrichelten Linien geben die Abschneidewellenlängen von LiF bzw. MgF₂ an, welche die Festkörpermateriale mit der höchsten Transmission in diesem Wellenlängenbereich sind.

Für die Anwendung in portablen Lichtquellen eignen sich nur Argon, Krypton und Xenon, da es für den Bereich unterhalb von 105nm keine optisch transparenten Festkörpermateriale gibt. Der VUV-Bereich oberhalb der Abschneidewellenlänge von MgF₂ bei ca. 110nm kann durch die

Lichtemission der Edelgase sehr gut abgedeckt werden, jedoch ist die Intensität nahe der Abschneidewellenlänge vergleichsweise gering. Gerade in diesem Bereich besteht das Bestreben, eine Intensitätssteigerung zu erreichen. Dies gilt besonders für die Massenspektrometrie als mögliches Anwendungsfeld solcher Lichtquellen. Hier wird das VUV-Licht zur Photoionisation der Analytsubstanzen genutzt, um diese anschließend in einem Massenspektrometer oder einem Ionenmobilitätsspektrometer zu analysieren. Dieses Verfahren wird bereits erfolgreich angewendet [9, 10]. Besonders für die Detektion von sicherheitsrelevanten Substanzen wie Drogen und Sprengstoffen ist die Photoionisation als fragmentierungsfreie Ionisationsmethode sehr gut geeignet. Die Ionisierungsenergien zahlreicher Substanzen liegen dabei im Bereich von 10 - 11eV (z.B. TNT 10,6eV [18]). Wie Abbildung 1 zeigt, ist für diesen Fall Argon besonders gut geeignet. Um möglichst kleine Konzentrationen der Analytsubstanzen nachweisen zu können, ist eine hohe Lichtintensität notwendig. Bei der Elektronenstrahlanregung ist die Intensität einerseits durch den spektralen Verlauf limitiert (die Intensität im Bereich von 11eV ist deutlich niedriger verglichen mit dem Maximum bei ca. 10eV), andererseits kann auch der Elektronenstrahlstrom nicht beliebig erhöht werden. Das Vakuum der Elektronenquelle muss durch eine Trennmembran vom Gasvolumen der Lichterzeugung abgetrennt werden. Durch die Energiedeposition der Elektronen in der Membran wird diese erhitzt. Für die hier verwendeten Elektronen mit einer Teilchenenergie von 12keV liegt die Belastungsgrenze der Membran bei einem Strahlstrom von etwa 10 μ A. Bei höheren Strömen würde zu viel Energie in der Membran deponiert und diese zerstört werden¹.

Da die mögliche Leistungseinkopplung durch den Elektronenstrahl limitiert ist, wurde versucht die Lichtintensität zu erhöhen, indem dem Gas auf einem zweiten Weg Leistung zugeführt wurde. Die Vorionisierung des Gasvolumens durch den Elektronenstrahl ermöglicht die Einkopplung einer zusätzlichen Hochfrequenzleistung. Durch diese Einkopplung eines Mikrowellensignals und später eines Radarsignals konnte zum einen eine Intensitätsverschiebung hin zur Abschneidewellenlänge von MgF₂ (also in den Bereich um 11eV) erreicht werden, zum anderen konnte auch die absolute Intensität deutlich gesteigert werden. Die vorliegende Arbeit beschreibt dabei die Technik der verschiedenen Anregungsmethoden, wie auch deren Auswirkungen auf das spektrale Verhalten der Edelgase. Dies wird im Wesentlichen für Argon beschrieben. Die beobachteten Effekte werden dabei hinsichtlich der Plasmaparameter Elektronendichte sowie Elektronen- und Gastemperatur interpretiert.

Nach der Beschreibung der grundlegenden Physik zur Lichtemission in Edelgasen und einer Beschreibung der experimentellen Aufbauten wird die reine Elektronenstrahlanregung anhand von zwei Experimenten vorgestellt. Es wird dabei zunächst auf die Lichtemission von Stickstoff und synthetischer Luft eingegangen. Dieser Abschnitt orientiert sich an Messungen aus der Literatur im Rahmen des sog. Airfly Projekts [8], welches die Szintillation der Atmosphäre untersucht. Anschließend folgt die Beschreibung der Elektronenstrahlanregung von Argon, was die Grundlage der daran anschließenden Kapitel bildet. Es folgen drei verschiedene Anregungsformen bezüglich der Einkopplung einer zusätzlichen Hochfrequenzleistung: eine kombinierte Anregung durch Elektronenstrahl und Mikrowelle (2,45GHz), eine elektronenstrahlgezündete Mikrowellenentladung (2,45GHz) sowie eine elektronenstrahlgezündete Radarentladung (9,4GHz). Im

¹ Dieser Wert gilt für den kontinuierlichen Betrieb. Im gepulsten Betrieb sind entsprechend höhere Strahlströme möglich, da die Membran zwischen den Pulsen wieder abkühlen kann.

abschließenden Kapitel zur Anwendung als Lichtquelle wird kurz auf mögliches Optimierungspotential der Lichtquelle eingegangen, welches im Rahmen eines BMBF-Verbundprojekts (DIVE) untersucht wurde. Dies betrifft sowohl die verwendete Gasfüllung wie auch die Optikkomponenten, als auch Versuche zu einer alternativen Elektronenquelle basierend auf dem Prinzip der Feldemission.

2 Theoretische Grundlagen zur Anregung von Edelgasen und deren Lichtemission

In diesem Kapitel sollen einige Grundlagen zur Anregung und zur Lichtemission von Edelgasen gegeben werden. Der Schwerpunkt liegt hierbei auf der Beschreibung der Elektronenstrahl-anregung. Die Effekte einer zusätzlichen Hochfrequenzanregung werden überwiegend anhand der Versuchsergebnisse in den darauffolgenden Kapiteln beschrieben. Es soll dabei jeweils mehr auf die Lichtemission und die daran beteiligten Prozesse eingegangen werden als auf eine Beschreibung der grundlegenden Entladungsphysik. Eine detaillierte Beschreibung einzelner Effekte wird an den entsprechenden Stellen bei der Diskussion der Messergebnisse gegeben. Wie auch der Großteil der gesamten Arbeit beschränkt sich dieser Abschnitt auf das Edelgas Argon. Viele der beschriebenen Prozesse sind für die anderen Edelgase analog. Große Teile dieses Abschnitts sind Referenz [19] entnommen. Es werden deshalb im Folgenden nur Referenzen angegeben, die auf andere Veröffentlichungen zurückgehen.

Abbildung 2 zeigt anhand eines schematischen Potentialdiagramms von Argon die wichtigsten Prozesse, welche für die Interpretation der in dieser Arbeit gewonnenen Ergebnisse von Bedeutung sind. Es sei besonders betont, dass die Energieachse in Abbildung 2 als gebrochene Achse dargestellt ist. Dies bedeutet, dass die erste Anregungsstufe in die 4s-Niveaus (Racah Notation²) einen vergleichsweise hohen Energieunterschied aufweist. Umgekehrt zeigt dies, dass auch die optischen Übergänge aus den ersten angeregten Niveaus in den Grundzustand sehr hochenergetisch sind, wodurch ein Großteil der Lichtemission von Argon (und auch der anderen Edelgase) im vakuumultravioletten (VUV) Bereich auftritt, also unterhalb von etwa 200nm. Ein beispielhaftes Übersichtsspektrum für elektronenstrahlangerregtes Argon bei Atmosphärendruck ist in Abbildung 3 gezeigt, um die spektrale Lage der verschiedenen Komponenten darzustellen.

² Es wird in dieser Arbeit konsequent die Racah Notation [20] verwendet.

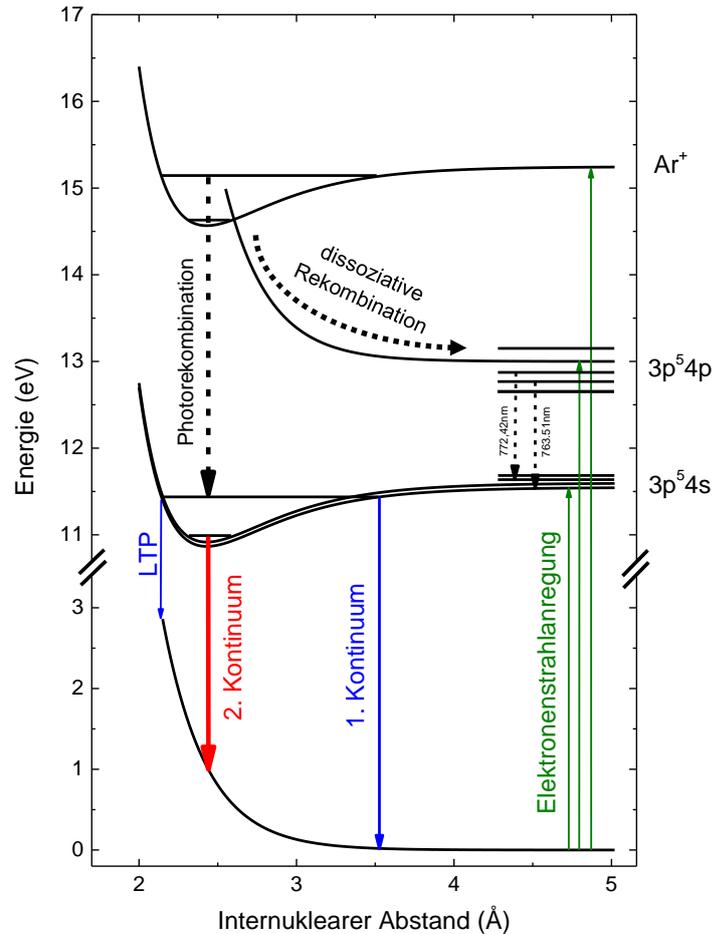


Abbildung 2 Schematische Darstellung des Potentialdiagramms zweier Argonatome in Abhängigkeit des internuklearen Abstands. Es zeigt die wichtigsten Prozesse, welche zum Verständnis der in dieser Arbeit gewonnenen Ergebnisse notwendig sind. Durch die **Elektronenstrahlanregung** werden aus dem atomaren Grundzustand diverse Energieniveaus der Argonatome besetzt. Im angeregten Zustand können sich auch in Edelgasen Moleküle bilden (Minima in den Potentialkurven). Freie Elektronen können über zwei Pfade mit Ionen rekombinieren (**dissoziative Rekombination** bzw. **Photorekombination**). Die Excimere können aus verschiedenen Vibrationsniveaus in den Grundzustand übergehen, wodurch Licht unterschiedlicher Wellenlänge im **2. Kontinuum**, **1. Kontinuum** bzw. beim „klassischen linken Umkehrpunkt“ („left turning point, **LTP**) emittiert wird. Für eine detaillierte Beschreibung siehe Text. Es sei betont, dass die Energieachse als gebrochene Achse dargestellt ist.

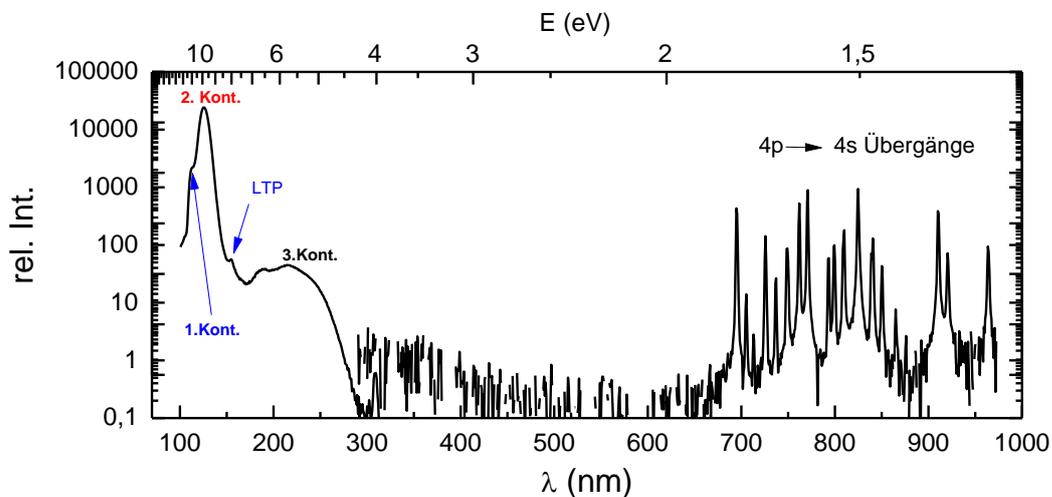
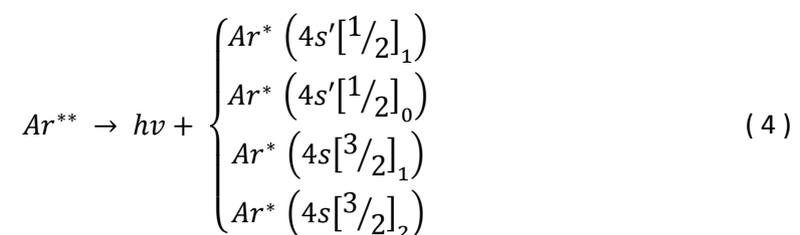


Abbildung 3 Beispielhaftes Emissionsspektrum von 1bar Argon. Die dominanten Strukturen sind den entsprechenden Übergängen in Abbildung 2 zugeordnet. Das 3. Kontinuum entspricht dem 2. Kontinuum ähnlichen Übergängen in einfach und doppelt ionisierten Molekülen und ist deshalb im Potentialdiagramm in Abbildung 2 nicht dargestellt.

Die Elektronen eines in das Gas eingeschossenen Elektronenstrahls wechselwirken bevorzugt mit den äußeren Elektronen der Hülle der Argonatome³. Bei diesem sogenannten „electronic stopping“ werden Argonatome durch inelastische Stöße angeregt bzw. ionisiert. Überwiegend führt dieser Prozess zu einer einfachen Ionisierung der Atome. Eine Mehrfachionisierung ist jedoch durchaus möglich und zeigt sich in den Emissionsspektren im sogenannten 3. Excimerkontinuum (vgl. Abbildung 3 und Abschnitt 5.2). Die charakteristische Größe welche die Ionisierungseffizienz von Stößen der Atome mit verschiedenen Teilchen angibt, ist der sogenannte W-Wert. Für Elektronenstöße mit Argon beträgt dieser W-Wert 26,4eV [21]. Das bedeutet, dass durch den Elektronenstrahl pro erzeugtem Elektron-Ion-Paar eine Energie von 26,4eV aufgewendet werden muss (wohingegen die eigentliche Ionisierungsenergie lediglich 15,7eV beträgt.). Bei der hier verwendeten Elektronenstrahlanregung besitzen die Elektronen bei Eintritt in das Gasvolumen eine mittlere Energie von ca. 10keV (vgl. Abschnitt 4.2). Ein Strahlelektron kann somit knapp 400 Elektron-Ion-Paare erzeugen. Aus den erzeugten Argonatomen bilden sich im dichten, kalten Gas rasch Molekülionen, welche überwiegend dissoziativ rekombinieren (vgl. Abbildung 2):



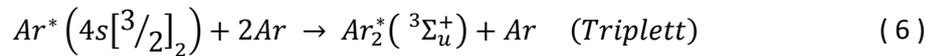
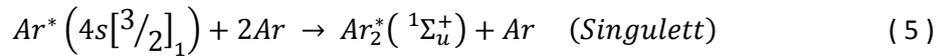
Die Photorekombination spielt bei der reinen Elektronenstrahlanregung keine wesentliche Rolle, führt jedoch bei der Kombination mit zusätzlicher Hochfrequenzleistung zu einer weiteren Kontinuumsemission, wie in Abschnitt 5.3 gezeigt wird. Die dissoziative Rekombination bevölkert in Argon vor allem die 4p-Zustände. Die hochangeregten Argonatome wiederum gelangen überwiegend durch optische Übergänge in die vier 4s-Niveaus⁴. Die Übergänge von den 4p in die 4s-Niveaus führen dabei zu der charakteristischen atomaren Linienstrahlung im sichtbaren und nahen Infrarotbereich (vgl. Abbildung 3):



³ Im Grundzustand liegen die Edelgase in atomarer Form vor. Dies zeigt sich im (bis auf ein schwaches van-der Waals-Minimum, hier nicht gezeigt) repulsiven Grundzustand im Potentialdiagramm in Abbildung 2.

⁴ Eine Alternative hierzu führt wiederum über eine zwischenzeitliche Molekülbildung und anschließende Dissoziation: $\text{Ar}^{**} + 2\text{Ar} \rightarrow \text{Ar}_2^{**} + \text{Ar}$ und $\text{Ar}_2^{**} + (\text{Ar}) \rightarrow \text{Ar}^* + \text{Ar} + (\text{Ar})$

Alternativ werden diese Zustände durch Elektronenstöße auch direkt aus dem Grundzustand heraus besetzt. Aus den beiden energetisch niedrigeren Niveaus können sich über einen Dreikörperstoß die angeregten Excimermoleküle⁵ bilden:



Beim optischen Übergang der Excimere in den repulsiven Grundzustand⁶ werden das charakteristische 1. und 2. Excimerkontinuum im VUV-Bereich emittiert. Die dominante Struktur ist dabei das 2. Kontinuum, welches den Übergängen von Excimeren zuzuordnen ist, welche bereits in energetisch niedrige Vibrationsniveaus relaxiert sind (vgl. Abbildung 2). Das 1. Kontinuum entstammt Excimeren aus energetisch höherliegenden Vibrationsniveaus und formt aufgrund der größeren Energiedifferenz zwischen angeregtem und Grundzustand im Spektrum eine Schulter auf der kurzwelligen Seite des 2. Kontinuums. Da diese Übergänge im schwachen Van-der-Waals-Minimum des Grundzustandes [22] enden, ist hier die Übergangswahrscheinlichkeit etwas erhöht. Durch die erhöhte Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Atomkerne in einem Abstand entsprechend der linken Flanke der Potentialkurve („left turning point“ LTP, siehe Abbildung 2) sind auch hier optische Übergänge etwas wahrscheinlicher und es zeigt sich eine entsprechend schwache Struktur im Spektrum auf der rechten Seite des 2. Kontinuums.

Die beiden verschiedenen Zustände der Argonexcimere haben sehr unterschiedliche Lebensdauern. Der Übergang aus dem Singulettzustand ist ein erlaubter Dipolübergang und hat somit eine kurze Lebensdauer von 4,2ns. Der verbotene Triplett-Übergang hat eine entsprechend lange Lebensdauer von 2,8µs [23]. Eine hohe Elektronendichte im angeregten Gas führt zu einem starken Mischen dieser beiden Zustände durch Elektronenstöße. Bei geringer Elektronendichte wie etwa lange nach einem Anregungspuls verschwindet dieses Mischen und die Excimerzustände werden im Verhältnis 3:1 (Triplett zu Singulett) gebildet. Dies bildet die Grundlage für die in den Kapiteln 4.6, 6.1.2 und 7.4 gezeigten numerischen Modellrechnungen bezüglich der zeitabhängigen Lichtemission im 2. Kontinuum bei einer gepulsten Anregung.

Im Falle einer zusätzlichen Einkopplung von Hochfrequenzleistung zeigt sich in den Spektren eine weitere Kontinuumsemission über einen weiten Wellenlängenbereich vom Ultraviolett- bis in den Infrarot-Bereich (UV-VIS-IR Kontinuum). Eine solche Emission ist auf das Wechselwirken von freien Elektronen mit Atomen bzw. Ionen zurückzuführen. Im Wesentlichen können in diesem Fall zwei Prozesse dazu beitragen [24]:

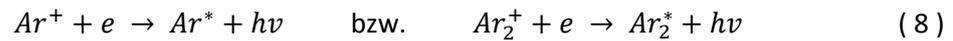
⁵ Excimer bezeichnet ein Molekül, welches ausschließlich im angeregten Zustand gebunden ist. Es ist ein terminus technicus und ist aus dem Englischen übernommen als Kurzform für „excited dimer“.

⁶ Es existiert lediglich ein schwaches Van-der-Waals Minimum bei einem Atomabstand von 3,75Å mit einer Tiefe von etwa 12 meV [22].

- Bremsstrahlung an Atomen⁷ (frei-frei; die Elektronen verlieren einen Teil ihrer kinetischen Energie durch die Wechselwirkung mit Atomen)



- Photorekombination mit Atom- oder Molekülionen (frei-gebunden; Einfang von Elektronen durch Ionen mit anschließendem Übergang in einen gebundenen Zustand)



Seit den frühen 1960er Jahren bis heute gibt es intensive Studien (theoretisch wie experimentell), um den Ursprung dieses Kontinuums zu erklären (siehe z.B. [24-30]). In der Theorie wird das Kontinuum dabei häufig durch den wellenlängenabhängigen Bibermann Faktor beschrieben. Die Aufteilung dieses Faktors in einen „frei-frei“ und einen „frei-gebunden“ Anteil, also die Beurteilung ob das Kontinuum durch Bremsstrahlung oder Photorekombination dominiert ist, ist vielfach nicht vollständig geklärt. Zusätzlich erschwert wird die zuverlässige Beurteilung dieses Kontinuums dadurch, dass in der Literatur Photorekombinationsquerschnitte zwar für atomare Ionen, nicht aber für Molekülionen zu finden sind. In Atmosphärendruckplasmen mit moderaten Plasmametern liegt allerdings ein Großteil der Ionen in Molekülform vor [24]. In der hier beschriebenen Arbeit werden in den Ergebnissen einige Hinweise vorgestellt, welche für die gezeigten Anregungsformen einen zugrundeliegenden Photorekombinationsprozess nahelegen.

Ein wichtiges Charakteristikum verschiedener Anregungsformen ist die Energieverteilung der Elektronen (EEDF, electron energy distribution function) im Plasma. In Abbildung 4 ist der qualitative Verlauf der EEDF für die drei wesentlichen, in dieser Arbeit beschriebenen, Entladungsformen dargestellt. Bei der Elektronenstrahlanregung treffen die Elektronen mit einer Energie von etwa 10keV auf das Gas. Dort geben sie ihre Energie über Stöße sehr schnell ab und kühlen zu niedrigen Energien hin ab. Nach Modellrechnungen für Krypton [31] stellt sich eine mittlere Elektronentemperatur von etwa 0,5eV ein. Für Argon sollte die Größenordnung ähnlich sein. Die EEDF weist daher ein Maximum bei sehr niedrigen Energien auf. Durch die zusätzliche Einkopplung von Mikrowellenleistung wird den Elektronen im Gas erneut Energie zugeführt. Das Maximum der EEDF schiebt daher etwas zu höheren Energien. Wird durch den Elektronenstrahl eine Mikrowellenentladung gezündet, so erhöht sich die Elektronentemperatur nochmals deutlich und das Maximum schiebt noch weiter zu hohen Energien. Zudem ist auch die Elektronendichte erhöht, was sich in der Erhöhung des Integrals der EEDF widerspiegelt. Nach Zündung der Entladung kann diese selbstständig weiterbetrieben werden. Der Elektronenstrahl kann dann abgeschaltet werden. In diesem Fall verschwindet der hochenergetische Anteil der EEDF.

⁷ Die Bremsstrahlung an Ionen kann nach [24] vernachlässigt werden.

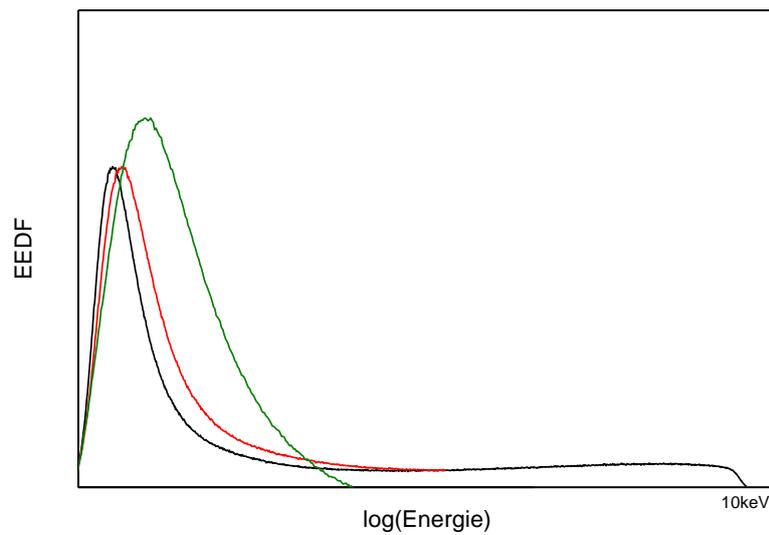


Abbildung 4 Qualitative Darstellung der Elektronenenergieverteilung EEDF für die drei in dieser Arbeit beschriebenen Anregungsformen. Bei der reinen Elektronenstrahlanregung (**schwarze Kurve**) besitzt die EEDF ein Maximum bei vergleichsweise niedriger Energie. Aufgrund der Einschussenergie der Elektronen in das Gas von etwa 10keV weist die EEDF einen langen Schwanz zu hohen Energien auf. Eine Kombination der Elektronenstrahlanregung mit Mikrowellenanregung (**rote Kurve**) führt zu einer Erhöhung der mittleren Energie der Elektronen, schiebt also das Maximum nach rechts. Der hochenergetische Schwanz der Elektronenanregung bleibt erhalten. Bei der Mikrowellenentladung (**grüne Kurve**) ist sowohl die Elektronentemperatur erhöht (Maximum weiter rechts) wie auch die Elektronendichte höher (Integral größer). Wird nach der Zündung der Entladung der Elektronenstrahl abgestellt, so verschwindet auch der hochenergetische Anteil der EEDF (siehe grüne Kurve).

3 Beschreibung des Messaufbaus

Die grundlegende Technik zur Elektronenstrahlanregung mit niederenergetischen Elektronenstrahlen wurde bereits vielfach beschrieben [1-3]. Diese Art der Anregung ist Stand der Technik in vielen Laborexperimenten aber auch in kommerziell erhältlichen VUV-Lichtquellen [17]. In diesem Kapitel wird kurz auf die verschiedenen Komponenten der experimentellen Aufbauten eingegangen.

3.1 Elektronenquelle

Die Erzeugung des Elektronenstrahls geschieht in einer kommerziell erhältlichen Kathodenstrahlröhre (Richardson Electronics). An einer indirekt geheizten Bariumoxid-Kathode werden die Elektronen erzeugt und auf eine Teilchenenergie von 12keV beschleunigt. Eine schematische Skizze der Elektronenquelle ist in Abbildung 5 links gezeigt. Für einen langlebigen Betrieb der Kathode sowie als Schutz gegen elektrische Überschläge ist in der Röhre ein Vakuum mindestens im niedrigen 10^{-7} mbar-Bereich zu gewährleisten. Für die kommerzielle Anwendung der Elektronenröhren in portablen VUV-Lichtquellen [17] wird die Röhre in einem aufwändigen Verfahren so aufbereitet, dass das Volumen abgeschlossen werden kann. In den in dieser Arbeit beschriebenen Laborexperimenten wird die Elektronenröhre durchgehend über einen Turbomolekularpumpstand (Pfeiffer Vacuum HiCube 80 Eco) bepumpt. Auf die diversen in Abbildung 5 links gezeigten Steuerspannungen für einen stabilen Betrieb der Elektronenquelle soll hier nicht eingegangen werden. Eine detailliertere Beschreibung ist in [32] gegeben. Die jeweiligen Spannungen können über ein computergesteuertes Netzteil (Firma excitech [17]) eingestellt werden. Es ist sowohl ein kontinuierlicher Betrieb wie auch ein gepulster Betrieb der Elektronenquelle möglich.

Angedeutet ist im Schema ebenso eines der beiden Spulenpaare, durch deren variables Magnetfeld die Strahlrichtung justiert werden kann. Abbildung 5 rechts zeigt ein Foto der Elektronenröhre inklusive der Spulenpaare. Eine Schlüsselposition im gesamten Aufbau nimmt die Keramikmembran (orange in Abbildung 5 links) ein, welche das evakuierte Volumen der Elektronenröhre vom Gasvolumen trennt. Hier kommt eine 300nm dünne $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{SiO}_2$ -Membran [3] zum Einsatz, welche einerseits eine sehr hohe Transmission für niederenergetische Elektronen, andererseits auch eine hohe Druckstabilität von bis zu 10bar aufweist (bei einer Membrangröße

von $0,7 \times 0,7 \text{ mm}^2$ [33]). Der Großteil dieser Membran besteht aus Siliziumnitrid, weshalb die Membran im Folgenden meist als Siliziumnitridmembran bezeichnet wird. Als Träger dieser Membran dient eine Siliziumwafer (siehe Abbildung 6 links). In der Abbildung ist ein gesamter Siliziumwafer mit zahlreichen Membrangeometrien dargestellt. Im hier beschriebenen Aufbau werden quadratische Membranen mit einer Kantenlänge von $0,7 \text{ mm}$ verwendet, welche einen ebenfalls quadratischen Siliziumrahmen der Kantenlänge 5 mm besitzen. Die Fertigung der Membranwafer erfolgte an der Fraunhofer-Einrichtung für Mikrosysteme und Festkörper-Technologien EMFT in München.

Die Membranen weisen verglichen mit anderen Trennfolien auch bei niedrigen Elektronenenergien eine hohe Transmission auf, wie Abbildung 6 rechts zeigt. Zum Vergleich sind auch die Transmissionskurven für zwei weitere Trennmaterialien gezeigt: Das klassische „Lenard-Fenster“, welches seit 1894 die grundlegende Technik der Auskopplung von Elektronenstrahlen aus einer Vakuumkammer begründet [34] sowie eine Titanfolie, wie sie typischerweise in Beschleunigerexperimenten mit Schwerionenstrahlen verwendet wird.

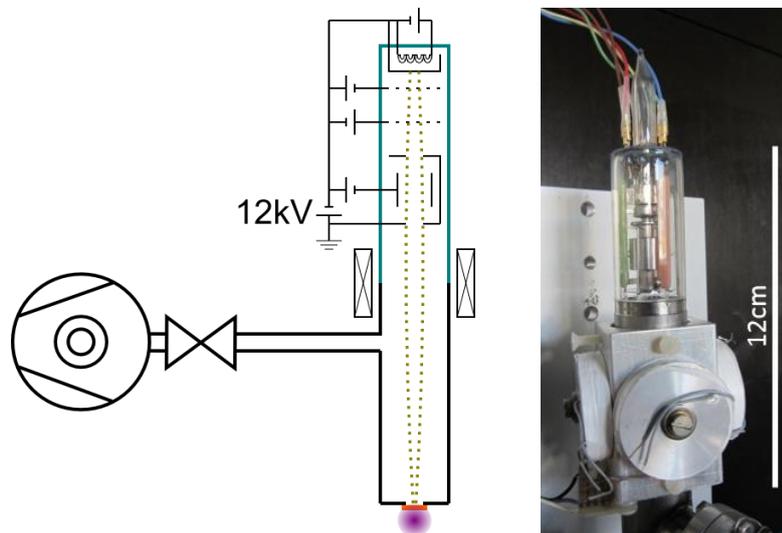


Abbildung 5 Links: Schematische Skizze der Elektronenquelle. Der Elektronenstrahl tritt durch eine **Keramikmembran** aus dem evakuierten Volumens in das **Gasvolumen** ein. Rechts: Eine Foto der Röhre mit den beiden Spulenpaaren zur Strahljustierung. Der Pumpanschluss befindet sich am unteren rechten Bildrand.

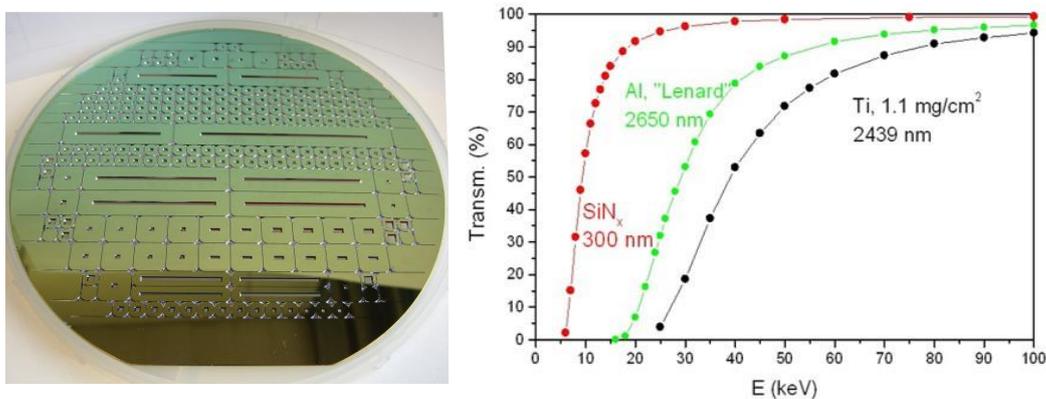


Abbildung 6 Links: Foto eine Siliziumwafer mit einer 300 nm dünnen $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{SiO}_2$ -Schicht. Das Siliziumträgermaterial wurde in verschiedenen Geometrien weggeätzt, so dass freistehende $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{SiO}_2$ -Membranen entstehen. Rechts: Transmissionseffizienz dieser Membranen im Vergleich zum „Lenard-Fenster“ und einer Titanfolie in Abhängigkeit der Elektronenenergie.

Die Verwendung niederenergetischer Elektronen zur Anregung dichter Gase bringt im Wesentlichen zwei Vorteile mit sich. Zum einen werden Teilchen niedriger Energie in Materie schnell gestoppt (vgl. Bethe-Bloch-Formel), wodurch sehr hohe Leistungsdichten im Targetmaterial erreicht werden können (siehe Simulation in Abschnitt 4.2). Zum anderen kann dadurch die Emission harter Röntgenstrahlung vermieden werden, was gerade für das Ziel einer Kommerzialisierung der Technik notwendig ist, um auf Abschirmungen verzichten zu können.

Durch die Energiedeposition der Elektronen in der Membran ist diese allerdings auch der limitierende Faktor bezüglich einer Maximierung der eingekoppelten Leistung und somit der Lichtintensität. Im kontinuierlichen Betrieb ist der Elektronenstrahlstrom auf maximal $10\mu\text{A}$ zu begrenzen, um eine Überhitzung und Zerstörung der Membran zu vermeiden. Zusammen mit der Transmission der Membran entspricht dies einem Leistungseintrag ins Gasvolumen von $0,1\text{W}$. In einem gepulsten Betrieb ist kurzzeitig ein deutlich höherer Strahlstrom möglich, da die Membran zwischen den Pulsen wieder abkühlen kann. Hier ist das erreichbare Maximum durch die Kathodenstrahlröhre gegeben, welche bis zu 1mA Pulsstrom liefern kann⁸.

3.2 Aufbau zur Kombination von Elektronenstrahl- und Mikrowellenanregung

Der Großteil dieser Arbeit befasst sich mit der Elektronenstrahlanregung bzw. deren Kombination mit Mikrowellenanregung von Argon. Deshalb wird im Folgenden der Messaufbau für diese Experimente detailliert beschrieben. Modifikationen für die ebenfalls beschriebenen Stickstoff- sowie Radarexperimente werden in Abschnitt 3.3 gesondert behandelt.

Ein Schema des Aufbaus ist in Abbildung 7 dargestellt. Im Zentrum der Anordnung befindet sich die im vorigen Kapitel beschriebene Elektronenquelle. Durch die Siliziumnitridmembran gelangen die, zuvor auf 12keV beschleunigten, Elektronen in das Gasvolumen. Die Messzelle besteht aus einem CF40-Doppelkreuzstück, an welches diverse Komponenten angeschlossen werden können. Besonders wichtig bei der Spektroskopie von Edelgasen ist die Gasreinheit. Ein Vergleich zweier Spektren von Argon, einmal mit und einmal ohne Gasreinigung ist in Abbildung 8 gezeigt. Durch eine hohe Gasreinheit, lassen sich Emissionslinien von Verunreinigungen im Spektrum nahezu vollständig unterdrücken. Zudem nimmt die Intensität der Kontinuumsstrahlung der Edelgase mit steigender Gasreinheit deutlich zu. Aus diesem Grund befindet sich das Gas während einer Messung stets im Durchfluss durch einen Edelgasreiniger (SAES Getters, MonoTorr Phase II, PS-MT3). Vor den Messungen wurde das Systems jeweils mehrfach evakuiert und mit dem zu untersuchenden Gas gespült. Gerade beim Wechsel von schweren auf leichtere Edelgase ist vielfaches Spülen notwendig, da sonst das jeweils schwerere Edelgas als Verunreinigung zu unsauberem Spektren führt.

⁸ Spezielle Elektronenquellen der Firma Litton in Pierce-Geometrie [35] liefern Pulsströme von bis zu einigen Ampere, wurden allerdings in diesem Versuchsaufbau nicht verwendet.

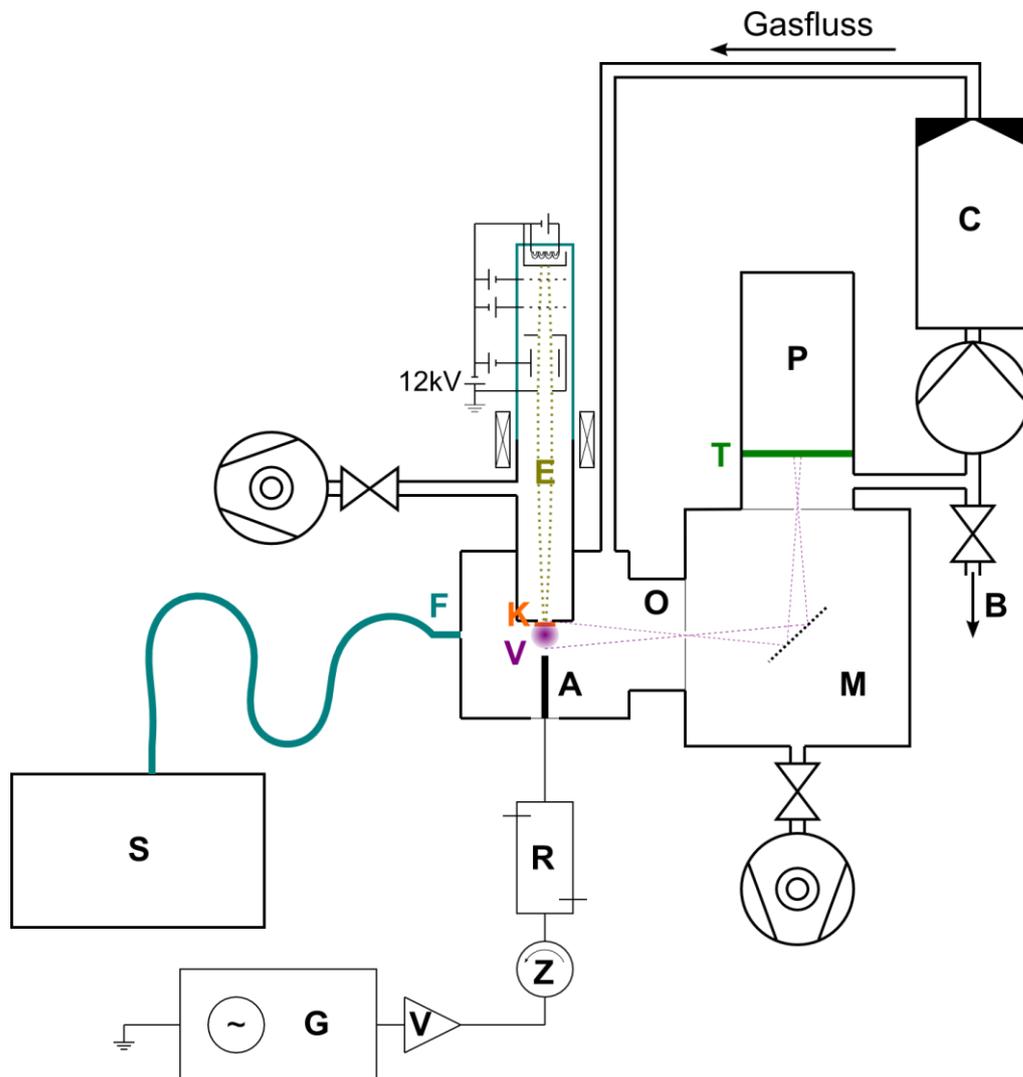


Abbildung 7 Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus zur Elektronenstrahlanregung sowie deren Kombination mit Mikrowellenanregung von Argon (und anderen Edelgasen). Die im vorigen Kapitel beschriebene, evakuierte Elektronenquelle schießt einen Elektronenstrahl **E** durch eine Keramikmembran **K** ($\text{Si}_3\text{N}_4/\text{SiO}_2$) in das Gasvolumen ein und erzeugt ein angeregtes, leuchtendes Volumen **V**. Die Lichtemission dieses Volumens im UV-VIS-IR-Bereich wird durch ein optisches Fenster **F** mittels einer Glasfaser (ggf. mit Linseneinkopplung) von einem Spektrometer **S** detektiert. Dies ist entweder ein kompaktes Gitterspektrometer für die Aufnahme von Übersichtsspektren oder ein Echellespektrometer für hochauflösende Messungen von Linienbreiten. Im VUV-Bereich wird die Lichtemission über einen Monochromator **M** von einem Photomultiplier (PMT) **P** detektiert. Damit auch sehr kurzwelliges Licht detektiert werden kann, ist der Monochromator in das Gassystem integriert, so dass sich in diesem Weg kein optisches Fenster befindet. Da der PMT **P** für sehr kurzwelliges VUV-Licht nicht sensitiv ist, befindet sich an dessen Eingang ein Szintillator Tetraphenyl-Butadien **T**. Für ortsauflösende Messungen kann am Übergang von Messzelle zu Monochromator eine Spiegeloptik **O** [36] hinzugefügt werden. Das Gassystem wird über den Einlass **B** evakuiert und befüllt. Während den Messungen mit Edelgasen befindet sich das Gas stets in einer Zirkulation durch einen Gasreiniger **C**, um die nötige Gasreinheit zu gewährleisten. Im Fall der kombinierten Anregung mit Mikrowellenleistung wird ein 2,45GHz-Signal von einem Generator **G** bereitgestellt und in einem Verstärker **V** verstärkt. Ein Zirkulator **Z** schützt das Generatorsystem vor reflektierter Leistung. Über einen Richtkoppler **R** kann die Leistung in Vorwärtsrichtung, wie auch die reflektierte Leistung gemessen werden. Die Mikrowellenleistung wird über eine antennenartige Elektrode **A** in das Gasvolumen eingekoppelt.

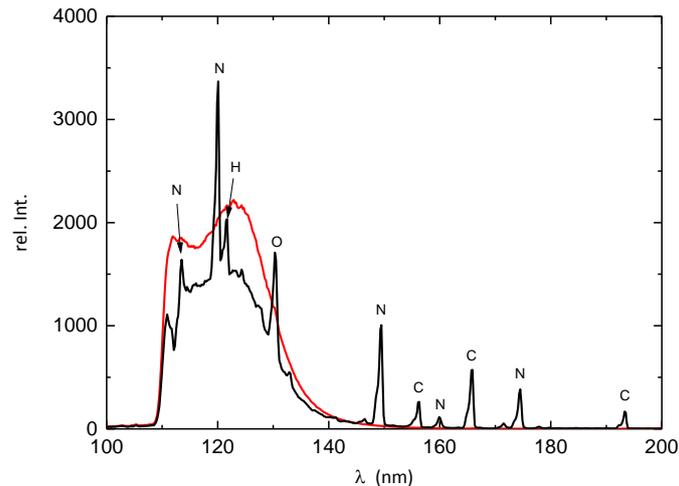


Abbildung 8 Vergleich zweier Emissionsspektren von Argon im VUV-Bereich einmal **mit** und einmal **ohne Gasreinigung**. Die Spektren wurden mit der in Kapitel 6 beschriebenen Mikrowellenentladung aufgenommen. Durch die höheren Temperaturen in der Entladung und die damit verbundenen effizienteren Energietransfers sind viele Verunreinigungslinien in der Entladung stärker zu beobachten als bei der reinen Elektronenstrahlanregung. Durch den Edelgasreiner werden typische Verunreinigungen wie Wasserstoff (H), Sauerstoff (O), Stickstoff (N) und Kohlenstoff (C) zuverlässig aus dem Gas entfernt. Die Intensität der Kontinuumsstrahlung von Argon nimmt mit verbesserter Gasreinheit deutlich zu.

Durch ein optisches Fenster kann das angeregte Volumen mit dem Auge beobachtet und fotografiert werden. Alternativ wird das Licht durch dieses Fenster direkt oder mittels einer Linse in eine Glasfaser (600µm Durchmesser) eingekoppelt. Die Faser kann an ein kompaktes Gitterspektrometer (OceanOptics 65000) angeschlossen werden, um Übersichtsspektren im Bereich von etwa 250-950nm aufzunehmen. Die Auflösung des Spektrometers beträgt in etwa 1nm. Der Lichtverlauf in diesem Spektrometer ist in Abbildung 9 links dargestellt. Das Spektrometer ist computergesteuert und kann durch den CCD-Detektor das gesamte Spektrum in einer Integrationszeit aufnehmen. Alternativ kann die Glasfaser an einen Echellespektrometer (LTB Lasertechnik Berlin, ELIAS) mit einem Auflösungsvermögen von $\lambda/\Delta\lambda \approx 2,5 \cdot 10^6$ angeschlossen werden. Dieses Spektrometer ist eigentlich für die Spektroskopie von Laserlinien im UV-Bereich optimiert, kann aber auch zur Messung von Linienbreiten im sichtbaren Spektralbereich verwendet werden.

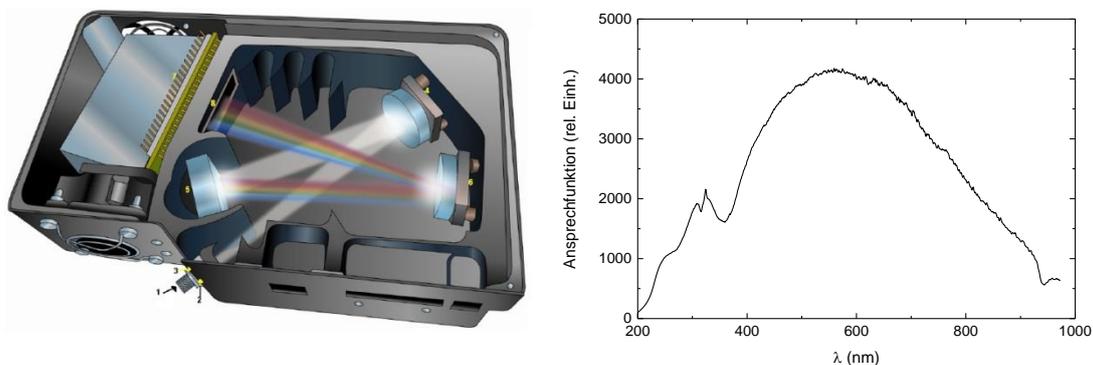


Abbildung 9 **Links:** Schema des Lichtverlaufs im Inneren des kompakten Gitterspektrometers OceanOptics 65000 entnommen aus dem Datenblatt des Herstellers. **Rechts:** Gemessene Ansprechfunktion des Spektrometers. Für den Bereich 300-400nm wird in Abschnitt 4.1.1 eine gesonderte, sehr präzise Ansprechfunktion ermittelt.

Um das sehr kurzwellige 1. Kontinuum von Argon möglichst ungestört beobachten zu können, wurde zwischen der Messzelle und dem VUV-Monochromator auf ein optisches Fenster verzichtet. Die Materialien mit der höchsten Transparenz in diesem Bereich sind LiF bzw. MgF₂ mit Abschneidewellenlängen von etwa 105 bzw. 110nm. Abhängig von der Güte der Fenster ist aber auch die Transmission hin zu längeren Wellenlängen nicht sehr hoch. Zudem bilden sich in diesen Fenstern im Betrieb mit der Zeit Farbzentren, welche zu einer weiteren Verschlechterung der Transparenz führen. Ein Verzicht auf ein solches Fenster umgeht dieses Problem und lässt zudem auch die spektrale Untersuchung der Kontinuumsstrahlung von Neon und Helium im selben Aufbau zu. Der bei sonstigen Messungen evakuierte Monochromator wird hierzu in das Gassystem integriert. Da reine Edelgase bis hinab zu ihren Resonanzlinien transparent sind (dies gilt sogar für die flüssige Phase [37]) führt die Edelgasfüllung des Monochromators zu keinen Intensitätsverlusten. Damit der Photomultiplier (PMT) auch das kurzwellige Licht detektieren kann, ist vor dessen Eintrittsfenster ein Szintillator angebracht. In diesem Aufbau wurde hierfür Tetraphenyl-Butadien gewählt, dessen optische Charakterisierung in Referenz [38] gegeben ist. Der Lichtverlauf im Monochromator sowie die Ansprechfunktion des Gesamtsystems im VUV-Bereich ist in Abbildung 10 dargestellt. Der PMT wird für die Aufnahme von Wellenlängenspektren als Einzelphotonenzähler verwendet. Die Signale des PMTs gelangen durch einen Constant-Fraction-Discriminator zu einem Zähler. Der Zähler wird von einem Computer gesteuert, welcher ebenso den Schrittmotor des Monochromators steuert und die Zählraten den entsprechenden Wellenlängen zuordnet. Die Wellenlängenauflösung des Systems ist abhängig von den Spaltbreiten von Eintritts- und Austrittsspalt am Monochromator und ist gegeben durch die Dispersion von 4nm/mm (Auflösung pro Spaltbreite) des osmiumbedampften Beugungsgitters des Monochromators mit 1200 Linien/mm.

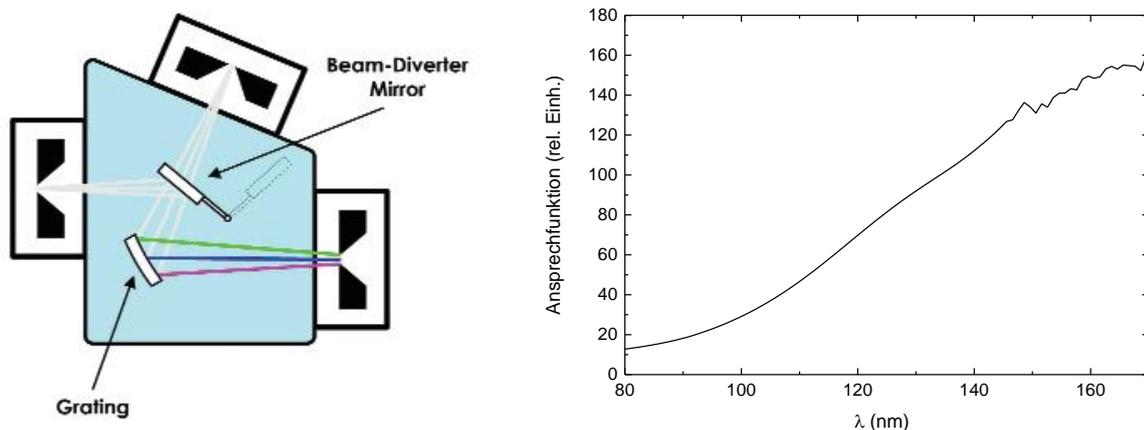


Abbildung 10 Links: Lichtverlauf im Monochromator (Acton VM-502) entnommen aus dem Datenblatt des Herstellers Rechts: Gemessene Ansprechfunktion des gesamten VUV-Systems im Bereich von 80-170nm.

Die Schrittweite am System wurde jeweils so gewählt, dass eine Struktur, welche gerade noch aufgelöst werden kann, durch 4 bis 5 Datenpunkte dargestellt wird. Eine häufig verwendete Spaltbreite am Monochromator von 200µm resultiert beispielsweise in einer Auflösung von 0,8nm und die entsprechenden Spektren wurden mit einer Schrittweite von 0,2nm aufgenommen. Da in den hier beschriebenen Experimenten im VUV-Bereich überwiegend Kontinuumsstrahlung untersucht wird, war eine höhere Auflösung nur selten notwendig. Für die Aufnahme von

Zeitspektren bei einer gepulsten Anregung wurde dem PMT so viel Licht zugeführt, dass eine Pulsformanalyse möglich war (Betrieb im sog. „Strommode“). In diesem Fall wurde das Signal des PMTs durch ein digitales Oszilloskop (LeCroy, Waverunner 6050) aufgenommen. Hierbei wurde zumeist über ca. 10.000 bis 100.000 Messungen gemittelt, um das Untergrundrauschen zu minimieren.

Das Mikrowellensignal mit einer Frequenz von 2,45GHz und einer Leistung von maximal 28W wird von einem S-Band Generator (Kuhne Electronics, KU SG 2.45 – 30A) generiert. Das Gerät besitzt intern einen Verstärker sowie einen Zirkulator. Durch den Zirkulator wird der Generator vor reflektierter Leistung geschützt, da diese Leistung an einem Ausgang des Zirkulators, welcher mit 50 Ohm abgeschlossen ist, absorbiert wird. Ein in Reihe geschalteter Richtkoppler ermöglicht die getrennte Messung der Leistung in Vorwärtsrichtung und der reflektierten Leistung. Die meisten Angaben in dieser Arbeit beziehen sich allerdings auf die Generatorleistung, um wiederzugeben, welche Leistung zu Verfügung gestellt werden muss. Das Hauptaugenmerk dieser Arbeit liegt nicht auf einer Optimierung der Einkopplung der Mikrowellenleistung, sondern auf dem Studium der spektralen Effekte dieser zusätzlichen Leistung. Aus diesem Grund werden Einkoppelverluste aufgrund des Fehlens eines dedizierten Anpassnetzwerkes bewusst in Kauf genommen.

Die Einkopplung der Mikrowellenleistung in das Gas erfolgte über eine, an einer elektrischen Vakuumdurchführung angebrachte, antennenartige Elektrode mit einer Länge von etwa $\frac{1}{2} \lambda$. Diese Länge ist im Wesentlichen durch die Abmessungen des CF40-Doppelkreuzstücks vorgegeben und würde grundsätzlich nahelegen, dass an der Spitze des Stabes ein Wellenknoten liegt, wodurch sehr wenig Leistung in das Gasvolumen eingekoppelt würde. Allerdings ist die Geometrie durch das umgebende CF40-Doppelkreuzstück weit entfernt von einer ungestörten Antenne und ist mehr als ein Koaxialkabel von sehr großem Durchmesser anzusehen. Durch die nahe Gegenüberstellung von Mikrowellenelektrode und geerdeter Elektrode (Spitze der Elektronenröhre, welche durch die Membran zudem durch ein Dielektrikum abgeschirmt wird, vgl. dielektrisch behinderte Entladungen, DBDs) ist ohnehin mehr von einer kapazitiven Einkopplung in das Gasvolumen auszugehen. Der Durchmesser der Mikrowellenelektrode ist variabel. Für die kombinierte Anregung in Kapitel 5 wurde meist ein Durchmesser von 1-2cm verwendet, für die Mikrowellenentladung hingegen ein Durchmesser von 3mm. Der Abstand der Elektroden voneinander war ebenfalls variabel einstellbar. Eine schematische Darstellung des Prinzips der elektronenstrahlunterstützten kapazitiven Einkopplung sowie eine maßstabsgetreue Skizze der technischen Umsetzung ist in Abbildung 11 dargestellt.

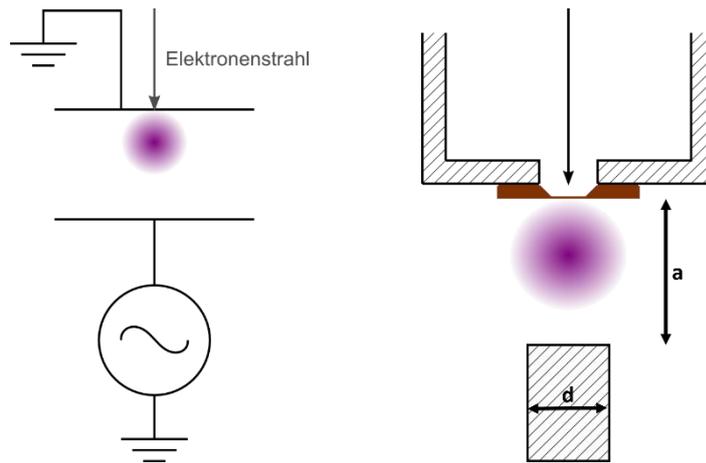


Abbildung 11 Schematische Darstellung der Einkopplung der Mikrowelle. **Links:** Prinzip einer kapazitiven Leistungseinkopplung, wobei das Volumen zwischen den Kondensatorplatten durch den Elektronenstrahl vorionisiert werden kann. **Rechts:** Maßstabsgetreue Skizze der technischen Umsetzung. Die Form der unteren Elektrode ist variabel, ebenso wie der Abstand zwischen den Elektroden (in dem hier gezeigten Fall beträgt der untere Elektrodendurchmesser $d=3\text{mm}$ und der Abstand $a=5\text{mm}$). Die geerdete (obere) Elektrode wird durch das Gehäuse der Elektronenquelle gebildet. Der Elektronenstrahl gelangt durch die Siliziumnitridmembran direkt in das Volumen zwischen den Elektroden.

3.3 Anpassungen des Aufbaus für weitere Messungen

Im vorigen Kapitel wurde der Aufbau vorgestellt, welcher für die meisten in dieser Arbeit beschriebenen Experimente verwendet wurde. Für einige Messungen musste der Aufbau jedoch etwas abgeändert werden, was in diesem Abschnitt kurz erläutert werden soll.

3.3.1 Messungen in Stickstoff

Zu Beginn des Ergebnisteils werden Messungen in reinem sowie gezielt verunreinigtem Stickstoff vorgestellt. In diesem Fall konnte der Edelgasreiniger nicht verwendet werden, da Stickstoff für diesen eine Verunreinigung darstellt. Für diese Messungen wurde die Messzelle direkt an die Gasflaschen (Stickstoff, Sauerstoff und synthetische Luft) angeschlossen. Eine Pumpe am Gasauslass der Zelle sorgte für einen konstanten Gasfluss durch die Zelle. Vor den Messungen wurde das System jeweils mit einer Turbomolekularpumpe in den niedrigen 10^{-7}mbar -Bereich abgepumpt.

3.3.2 Messungen mit Radaranregung

Für die abschließenden Messungen mit Radaranregung wurde ein X-Band Radar, welches in großer Stückzahl im Schiffsbau zu finden ist, verwendet. Ein Magnetron generiert eine Pulsleistung von 25kW bei einer Frequenz von $9,4\text{GHz}$. Das Magnetron kann mit einer Repetitionsrate von bis zu 1kHz und mit einer festen Pulslänge von 500ns betrieben werden (limitiert durch die Steuerelektronik). Für den möglichst verlustfreien Transport solch hoher Frequenzen sind Koaxialkabel nicht sinnvoll. Anstelle eines Kabels kam hier ein Hohlleiter zum Einsatz, welcher auch als Entladungsvolumen genutzt werden kann. Hierzu ist ein Teil des Hohlleiters generatorseitig durch eine Kaptonfolie und spektrometerseitig durch ein MgF_2 -Fenster verschlossen, um dieses

Entladungsvolumen in das Gassystem inklusive Gasreiniger integrieren zu können. Das Radarsignal kann die dünne Kaptonfolie nahezu verlustfrei passieren. Im Entladungsvolumen ist im 90° Winkel zur Ausbreitungsrichtung des Radarsignals die Elektronenquelle in die Wand des Hohlleiters integriert, so dass auch hier eine Vorionisierung durch den Elektronenstrahl direkt im Entladungsvolumen erreicht werden kann. Eine schematische Darstellung dieser Anordnung aus Referenz [39] ist in Abbildung 12 links gezeigt. Die rechte Seite dieser Abbildung zeigt die Abmessungen des Hohlleiters anhand eines Fotos.

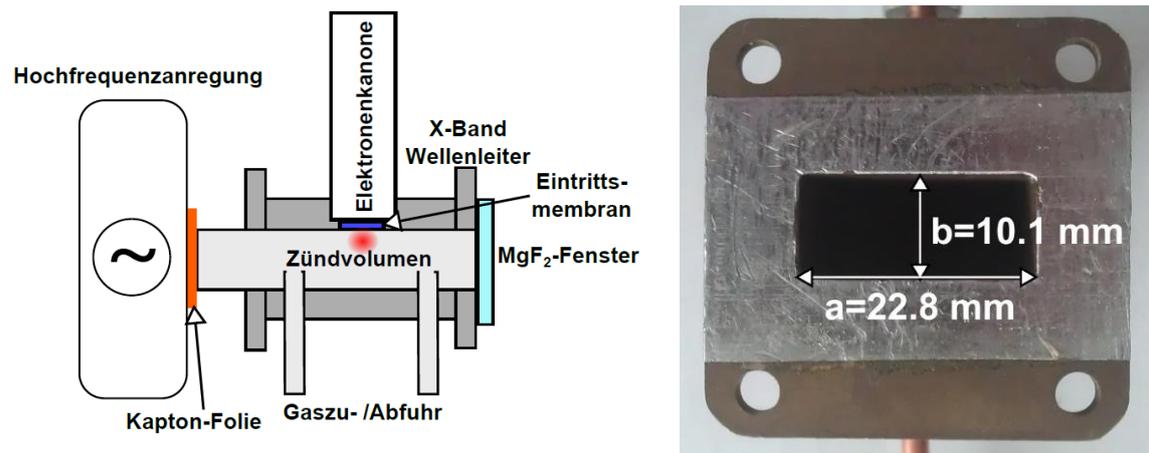


Abbildung 12 Übernommen aus [39]. **Links:** Schematische Darstellung der Messanordnung für die Experimente mit Radaranregung. **Rechts:** Foto eines X-Band-Hohlleiters im Querschnitt.

Über das MgF₂-Fenster am Ende des Hohlleiters kann die Zelle an die bereits beschriebenen Spektrometer angekoppelt werden. Für die Aufnahme von Fotos der Entladung in kurzen Zeitabständen von 10ns wurde die Entladung mit einem Linsensystem auf eine schnelle Multi-Channel-Plate (MCP) abgebildet. Deren Bild auf einem Szintillatorschirm wurde mit einer Kamera (Firma EG&G) fotografiert.

4 Elektronenstrahlanregung dichter Gase

In diesem Kapitel soll zunächst nur auf die reine Elektronenstrahlanregung eingegangen werden. Die Kombination der Anregung mit der zusätzlichen Einkopplung von Hochfrequenzleistung wird in den darauffolgenden Kapiteln beschrieben. Die Elektronenstrahlanregung ist ein hervorragendes Werkzeug zum Studium der Lichtemission dichter Gase, da sie positive Eigenschaften anderer Anregungsmethoden kombiniert. Vergleichbar zur Anregung mit einer radioaktiven Quelle, erlaubt die Elektronenstrahlanregung einen konstanten und definierten Energieeintrag in das zu untersuchende Medium, unabhängig beispielsweise von Druck und Gaszusammensetzung. Dies ermöglicht das Studium von weiten Parameterbereichen unter sonst sehr ähnlichen Bedingungen. Ein Vorteil von Gasentladungen gegenüber radioaktiven Quellen ist die deutlich höhere erreichbare Leistungsdichte. Die hohe Lichtintensität ermöglicht auch das Studium von schwachen Effekten und die Aufnahme von Zeitspektren. Dieser Aspekt kann ebenso durch die Elektronenstrahlanregung abgedeckt werden, da durch den variablen Strahlstrom (im hier verwendeten Aufbau bis zu $10\mu\text{A}$ im kontinuierlichen Betrieb und 1mA im gepulsten Betrieb) verglichen mit radioaktiven Quellen sehr viel höhere Teilchenflüsse erreicht werden können. Zudem werden die Elektronen aufgrund ihrer relativ geringen Teilchenenergie⁹ von 10keV in einem sehr kleinen Volumen gestoppt (ca. 40mm^3 in 1bar Argon, vgl. Abschnitt 4.5). Direkt hinter der Eintrittsmembran werden dabei sehr hohe Leistungsdichten der Größenordnung von bis zu einigen $100\text{W}/\text{cm}^3$ im kontinuierlichen Betrieb bzw. einigen $10\text{kW}/\text{cm}^3$ im gepulsten Betrieb erreicht (vgl. Abschnitt 4.2).

Im Folgenden wird die Elektronenstrahlanregung dichter Gase anhand von zwei Beispielen beschrieben. Abschnitt 4.1 beschreibt die Lichtemission von Stickstoff im Wellenlängenbereich von ca. $300\text{-}400\text{nm}$. Dies ist von besonderem Interesse im Zusammenhang mit sogenannten „Extended Airshower“, Leuchterscheinungen in der Atmosphäre ausgelöst durch kosmische Teilchen höchster Energie ($>10^{19}\text{eV}$), welche vom Pierre Auger Observatorium [40] untersucht werden.

Die Abschnitte 4.2 bis 4.6 befassen sich mit der Elektronenstrahlanregung von Argon. Diese Abschnitte legen die Grundlagen für die weiteren Kapitel zur Kombination der Elektronenstrahlanregung mit der Einkopplung zusätzlicher Hochfrequenzleistung. Wenngleich das Hauptaugenmerk dieser Arbeit letztlich auf der Lichtemission im VUV-Bereich liegt, so wird in

⁹ Zunächst werden die Elektronen auf 12keV beschleunigt. Der hier angegebene Wert berücksichtigt bereits die Verluste in der Membran (vgl. Abschnitt 4.2).

Abschnitt 4.3 auch das große Potential der Elektronenstrahlanregung zur präzisen Messung von Druckverbreiterungskoeffizienten von Spektrallinien vorgestellt.

4.1 Lichtemission von Stickstoff und Luft

Für den Nachweis von hochenergetischen, kosmischen Teilchen kann die Erdatmosphäre als riesiger Teilchendetektor genutzt werden. Die hochenergetischen Teilchen führen in der Atmosphäre zu „Extended Airshower“, deren Lichtemission z.B. im Pierre Auger Observatorium in Argentinien detektiert wird [40]. Der Hauptanteil dieser Lichtemission stammt von molekularem Stickstoff und liegt im Wellenlängenbereich zwischen 300 und 400nm. Um aus der Intensität der Lichtemission auf die Energie des ursprünglichen kosmischen Teilchens rückschließen zu können, ist die Konversionseffizienz von deponierter Energie zu Lichtausbeute notwendig. Diese wird meist für die stärkste Stickstofflinie bei 337nm angegeben. Sollen auch die weiteren Stickstofflinien betrachtet werden, ist dementsprechend eine genaue Kenntnis über die relativen Intensitätsverhältnisse zwischen den Linien notwendig. Im Rahmen des AIRFLY-Projekts [8] wird die Lichtemission der Atmosphäre genau untersucht. Häufig wird hierfür zunächst der Wert für reinen Stickstoff bestimmt. Dieser muss dann für die Anwendung auf die Atmosphäre entsprechend korrigiert werden. Zum einen verliert die 337nm Linie an Intensität sobald nicht in einer reinen Stickstoffumgebung (wie im Laborversuch) gearbeitet wird, sondern in Luft. Weitere Veränderungen treten auf in Abhängigkeit von Temperatur, Wasserdampfkonzentration der Luft sowie bei unterschiedlichem Druck. All diese Effekte werden im Rahmen des AIRFLY-Projekts untersucht. Auch an der TU München wurden Referenzmessungen hierzu durchgeführt. In Referenz [41] wurde die Konversionseffizienz der 337nm Linie bei reiner Elektronenstrahlanregung und 800mbar zu $(8,3 \pm 0,8)$ Photonen/MeV bestimmt. Dieses Ergebnis geht auf frühere Messungen in unserer Arbeitsgruppe an der TU München zurück. Die hier beschriebenen Messungen beschränken sich auf die jüngeren, in Referenz [41] gezeigten, Ergebnisse. Zunächst soll hierbei auf die Messung eines Referenzspektrums von 300 – 400nm eingegangen werden, für das eine möglichst präzise Ansprechfunktion des Systems bestimmt wurde. Neben dem Referenzspektrum in reinem Stickstoff wurde auch der Einfluss von Verunreinigungen detailliert untersucht. Die Messungen zeigen die große Herausforderung, welche die Bestimmung der oben genannten Konversionseffizienz darstellt.

4.1.1 Ansprechfunktion des Spektrometers im Bereich 300 - 400nm

Eine große Hürde bei der präzisen Untersuchung von Stickstoffspektren ist die Ermittlung der Ansprechfunktion im Wellenlängenbereich von 300 - 400nm. In diesem Bereich haben alle zu Verfügung stehenden Referenzlichtquellen eine nur sehr schwache Intensität. Beispielhaft ist dies in Abbildung 13 gezeigt, in der die Spektren der vier in dieser Arbeit verwendeten Referenzlichtquellen verglichen werden. Die Referenzlichtquellen sind zwei kalibrierte Wolframbandlampen (Osram Wi17/G), eine Halogenlampe (Osram W41/G kalibriert von Heraeus) sowie eine Deuteriumlampe [42] (Cathodeon V03, Emissionsspektrum bekannt gemäß PTB). Da die Referenzlichtquellen in anderen Wellenlängenbereichen eine deutlich höhere Intensität

aufweisen, ist gerade bei den langwellig emittierenden Lichtquellen (Halogen- und Wolframbandlampen) besonders auf eine gute Streulichtunterdrückung zu achten. Zudem haben Spektrometer häufig in diesem Bereich eine relativ schlechte Empfindlichkeit und auch die in diesem Wellenlängenbereich relativ ausgeprägten optischen Effekte, wie chromatische Aberration, führen dazu, dass das Ziel einer Kalibrierung auf einem 5% Niveau¹⁰ eine große Herausforderung darstellt. Um dieses Niveau zu erreichen, wurde sehr viel Aufwand in eine möglichst zuverlässige Kalibrierung des Spektrometers (OceanOptics 65000) gesteckt. Es wurde das Spektrometer mit niedriger Auflösung (verglichen mit dem Monochromator-Photomultiplier-System) gewählt, da hier eine größere Flexibilität im Versuchsaufbau möglich ist. Dies erleichterte den Vergleich der verschiedenen Referenzlichtquellen. Von der Beschreibung einer noch aufwändigeren Absolutkalibrierung des Spektrometers wurde in dieser Arbeit abgesehen. In Referenz [41] wird dies anhand von früheren Messungen unserer Arbeitsgruppe, im Rahmen der Bestimmung der Konversionseffizienz zur 337nm Linie, beschrieben. In dieser Arbeit soll nur eine relative Kalibrierung erfolgen. Mit der Konversionseffizienz aus [41] könnten somit auch die Absolutwerte nachträglich bestimmt werden.

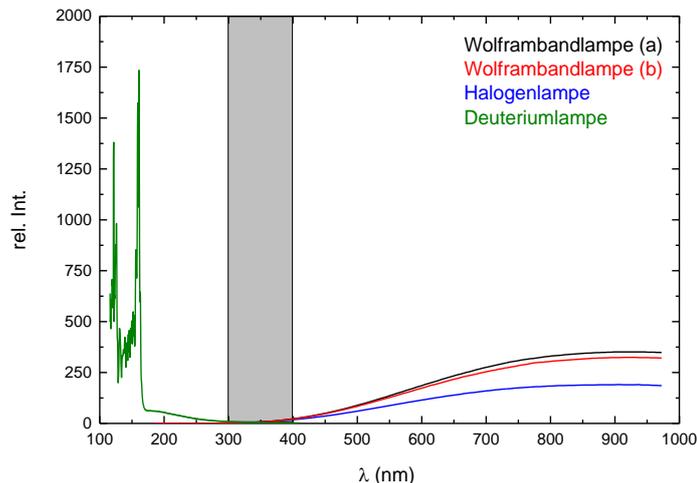


Abbildung 13 Spektren der für die Kalibrierung verwendeten Referenzlichtquellen, entnommen aus den Datenblättern. Um den relativen Intensitätsverlauf zu vergleichen, wurden die Spektren bei 337nm aufeinander skaliert. Verwendet wurden eine **Deuteriumlampe** (Cathodeon, V03), eine **Halogenlampe** (Osram Wi/41G) sowie zwei Wolframbandlampen (Osram Wi17/G, **a** bzw. **b**). Der für die hier beschriebenen Messungen interessante Wellenlängenbereich von 300 - 400nm ist grau hinterlegt. Diese Form der Darstellung verdeutlicht die schwache Intensität aller Referenzlichtquellen in diesem Bereich.

Bei den Kalibrationsmessungen spielt auch die Umgebung des eigentlichen Versuchsaufbaus eine wichtige Rolle. Es ist darauf zu achten, dass möglichst wenig Licht von umliegenden Gegenständen oder Wänden auf den Detektor reflektiert wird. Um die Größenordnung dieses Effekts zu veranschaulichen, sind in Abbildung 14 drei Extremfälle gezeigt. Die gemessenen Ansprechfunktionen mit den drei langwellig emittierenden Referenzlichtquellen sind bei 337nm aufeinander skaliert. Jede Referenzmessung wurde einmal mit und einmal ohne Abschirmung der Umgebung des Versuchsaufbaus mit einem lichtabsorbierenden Vlies aufgenommen. Von der Umgebung reflektiertes Licht führt hier zu einer deutlichen Überschätzung der langwelligeren

¹⁰ Dies entspricht dem angestrebten Fehlerlevel im Rahmen des AIRFLY-Projekts [8].

Anteile um bis zu fast einem Faktor 3. Selbst in dem vergleichsweise schmalen Ausschnitt von 300 - 400nm führen Reflexionen an der Umgebung bereits zu relativ großen Fehlern in der Ansprechfunktion.

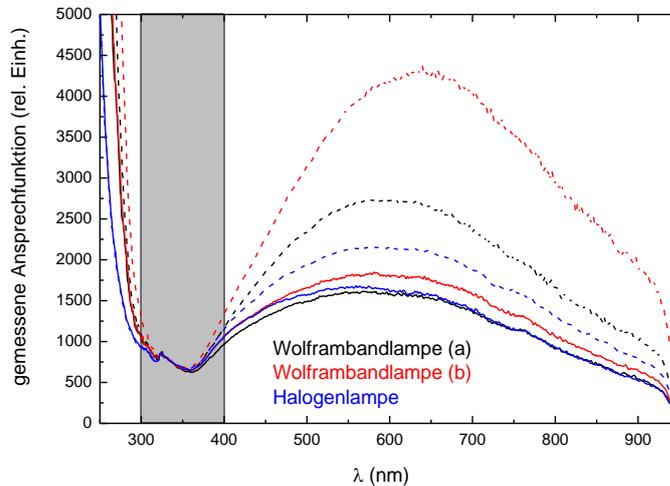


Abbildung 14 Einfluss der Umgebung des Aufbaus auf die ermittelte Ansprechfunktion. Für jede Lichtquelle wurden jeweils zwei Referenzmessungen aufgenommen: einmal mit (**durchgezogene Linien**) und einmal ohne (**gestrichelte Linien**) Abschirmung der Umgebung des Versuchsaufbaus mit einem lichtabsorbierenden Vlies. Die Kurven sind bei 337nm aufeinander skaliert. Der für die hier beschriebenen Messungen interessante Wellenlängenbereich von 300 – 400nm ist grau hinterlegt.

Die korrekte Ansprechfunktion muss unabhängig von der verwendeten Lichtquelle sein. Deshalb soll als Kriterium für die Qualität der ermittelten Ansprechfunktion gelten, wie gut sie sich für verschiedene Referenzlichtquellen reproduzieren lässt. Wenn dies für langwellig emittierende Lichtquellen (Wolframband- und Halogenlampe) wie auch für die kurzwellige Deuteriumlampe (vgl. Abbildung 13) gelingt, soll die Ansprechfunktion als gültig angenommen werden.

Das hier verwendete Spektrometer (OceanOptics 65000) wird mit einer Fasereinkopplung betrieben. Dies führt zu einer zusätzlichen Fehlerquelle bei der Kalibrierung, da eine Fehljustierung der Faser zu Änderungen im beobachteten Spektrum führen kann. Wird die Faser gegenüber der Lichtquelle verkippt, so ändert sich mit dem Einfallswinkel des Lichts in die Faser auch der Ausfallwinkel und somit die Form des Lichtstrahls. Ein Extremfall hierzu ist in Abbildung 15 dargestellt. Die Fotos in dieser Abbildung zeigen das Bild des Lichtstrahls nach Durchgang durch die Faser auf einem Schirm. Eine Verkipfung der Faser bezüglich der Lichtquelle um 10° führt zu einer Veränderung des Bildes des Lichtstrahls von einem homogen ausgefüllten Kreis zu einem Ring. Da dieses Bild im Spektrometer letztlich einen 2D-Detektor beleuchtet, legt diese Beobachtung nahe, dass eine Verkipfung der Faser auch einen Einfluss auf die Ansprechfunktion haben kann.

Aus diesem Grund wurden mehrere Ansprechfunktionen bei kleinen Winkeländerungen der Faser bestimmt. Diese sind in Abbildung 16 gezeigt. Schon eine kleine Fehljustierung kann zu einer Änderung der Ansprechfunktion führen. Für eine korrekte Messung ist es also unabdingbar, dass die zu untersuchende Lichtemission sich an exakt der gleichen Position (im besten Fall unter einem Winkel von 0°) bezüglich der Faser befindet. Nach der Kalibrierung sollte das gesamte System möglichst nicht mehr bewegt werden.

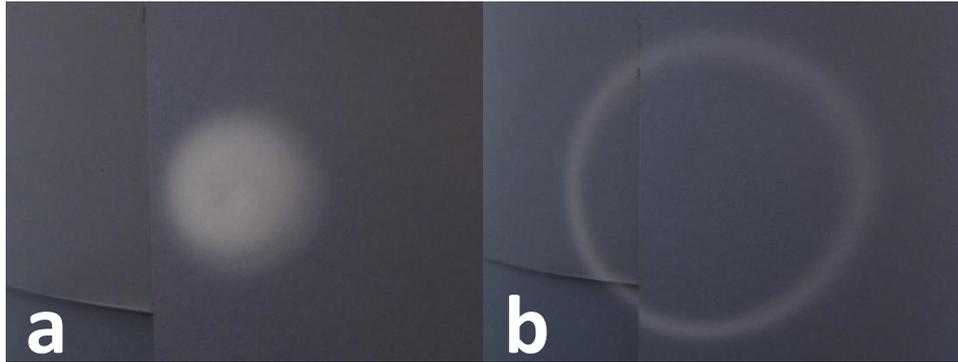


Abbildung 15 Bild des Lichtstrahls nach dem Durchgang durch die Faser für zwei unterschiedliche Winkel (**a: 0° - b: 10°**) unter denen der Fasereingang die Lichtquelle betrachtet. Bei einer Veränderung des Einfallswinkels des Lichts in die Faser verändert sich ebenso der Ausfallswinkel und aus dem Bild des Lichtstrahls nach der Faser wird aus einem homogen ausgeleuchteten Kreis ein Ring.

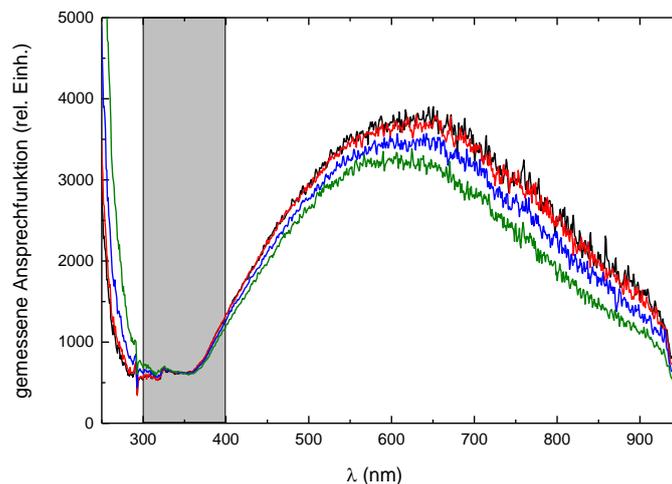


Abbildung 16 Einfluss des Lichteinfalls in den Fasereingang auf die ermittelte Ansprechfunktion. Die Faser wurde schrittweise bezüglich der Lichtquelle verkippt. Die gezeigten Kurven entsprechen den Einfallswinkeln **0°, 1°, 2° und 3°**. Schon eine kleine Fehljustierung der Faser kann zu einer Änderung der Ansprechfunktion führen. Der für die hier beschriebenen Messungen interessante Wellenlängenbereich von 300 – 400nm ist grau hinterlegt.

Gerade bei den Lichtquellen, die im langwelligen Bereich eine hohe Lichtintensität aufweisen, kann Streulicht im Spektrometer zu größeren Fehlern führen. Um die Streulichteffekte möglichst gering zu halten, wurde im Weiteren für die Messungen ein DUG11X-Filter verwendet, der nur für Licht im Wellenlängenbereich von Interesse transparent ist. Die Transmission ist in Abbildung 17 gezeigt. Um bei der Transmissionsmessung selbst wiederum die Streulichteffekte zu minimieren, wurde die „echte“ Filtertransmission mit einer kurzwellig emittierenden Deuteriumlampe vermessen. Zum Vergleich sind in Abbildung 17 auch Messungen mit zwei, im langwelligen Bereich emittierenden, Lichtquellen gezeigt. Insbesondere diese beiden Kurven verdeutlichen den großen Effekt des Streulichts sowie die Notwendigkeit der Verwendung des optischen Filters.

Eine Übersicht aller Messungen mit den verschiedenen Referenzlichtquellen über den für die Stickstoffmessungen interessanten Wellenlängenbereich ist in Abbildung 18 gezeigt. Ebenso sind

Messungen mit bzw. ohne DUG11X-Filter gezeigt. Alle Kurven sind bei 337nm aufeinander normiert. Das graue Band markiert den $\pm 5\%$ -Bereich um die letztlich verwendete Ansprechfunktion. Abbildung 18 verdeutlicht, dass die Ansprechfunktion im Bereich zwischen 300 und 400nm selbst mit größter Sorgfalt kaum bis auf ein 5%-Niveau zu bestimmen ist. Die letztlich verwendete Ansprechfunktion stellt eine Kombination aus den durch die verschiedenen Referenzmessungen gewonnenen Ergebnissen dar. Dabei ist zu beachten, dass die Messungen mit Halogen- und Wolframbandlampen aufgrund der hohen Streulichtintensität bei den Messungen ohne Filter unterhalb von etwa 320nm deutlich von den anderen Messwerten abweichen. Die Messungen mit Filter liefern aufgrund der Transmission des Filters nur in einem Bereich von etwa 290-385nm sinnvolle Ergebnisse.

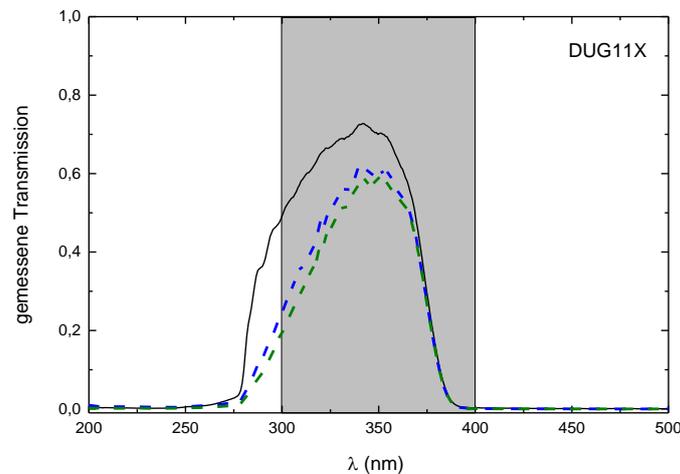


Abbildung 17 Transmission des zur Kalibrierung verwendeten DUG11X-Filters vermessen mit verschiedenen Referenzlichtquellen. Die Messung mit der kurzwelligen Deuteriumlampe (**schwarz**) kann als gültig angenommen werden. Die beiden Messungen mit den langwelligen Lichtquellen (**Halogen-** und **Wolframbandlampe**) sind durch den hohen Streulichtanteil stark verfälscht. Der für die hier beschriebenen Messungen interessante Wellenlängenbereich von 300 – 400nm ist grau hinterlegt.

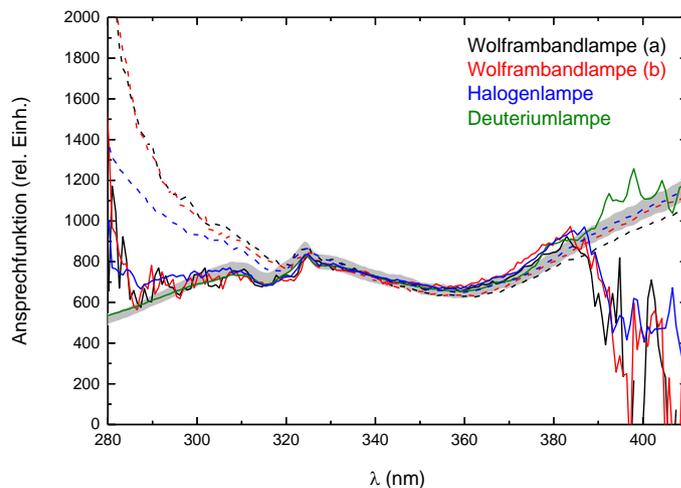


Abbildung 18 Übersicht über die jeweils besten Messungen der Ansprechfunktion mit den verschiedenen Referenzlichtquellen. Gezeigt sind Messungen mit der kurzwelligen **Deuteriumlampe** (Cathodeon V03) sowie mit den langwelligen Lichtquellen (**Wolframbandlampe (a) und (b)**, Osram Wi17/G, bzw. **Halogenlampe**, Osram Wi41/G) jeweils mit (**durchgezogene Kurven**) bzw. ohne (**gestrichelte Kurven**) DUG11X-Filter. Das graue Band markiert den 5%-Fehlerbereich um die letztlich verwendete Ansprechfunktion herum.

4.1.2 Linienintensitätsverhältnisse der Stickstoffbanden in Luft

Wie eingangs dieses Kapitels erwähnt, sind für die Untersuchung sogenannter „Extended Airshower“ die relativen Linienintensitäten der Stickstoffbanden zwischen 300 und 400nm von Interesse¹¹. Abbildung 19 vergleicht hierzu zwei zunächst unkalibrierte Übersichtsspektren über einen weiteren Wellenlängenbereich von 200 – 600nm. Gezeigt ist ein Spektrum in reinem Stickstoff sowie eines in synthetischer Luft. Neben dem absoluten Intensitätsunterschied (zu beachten sind die unterschiedlichen y-Achsen) sind auch leichte Verschiebungen in den Intensitätsverhältnissen zu beobachten. Die NO-Banden zwischen 200 und 300nm weisen in beiden Fällen eine ähnliche relative Intensität bzgl. der 337nm Linie auf. Stickoxid wird schon bei sehr kleinen Konzentrationen von Sauerstoff im Stickstoff gebildet und die Emissionsbanden zwischen 200 und 300nm sind auch im nominell „reinen“ Stickstoff kaum zu verhindern¹². Da es sich bei den zugehörigen Übergängen um Resonanzübergänge handelt, führt eine sehr hohe Sauerstoffkonzentration (wie bei synthetischer Luft) verstärkt zur Selbstabsorption dieser Linien, weshalb die Intensität der NO-Banden auch im rechten Spektrum in Abbildung 19 vergleichsweise niedrig ist. Im reinen Stickstoff taucht zudem das sog. Gaydon-Hermann-Green-Band bei ca. 550nm im Spektrum auf. Diese Struktur ist ein Indikator für eine sehr hohe Gasreinheit [43]. Dennoch zeigen gerade die NO-Linien, dass auch sehr kleine Verunreinigungskonzentrationen einen Einfluss auf die Emissionsspektren haben. Deshalb wird im nachfolgenden Unterkapitel eine genaue Analyse der 337nm-Linie in Abhängigkeit von der Konzentration von beigemischem Sauerstoff untersucht.

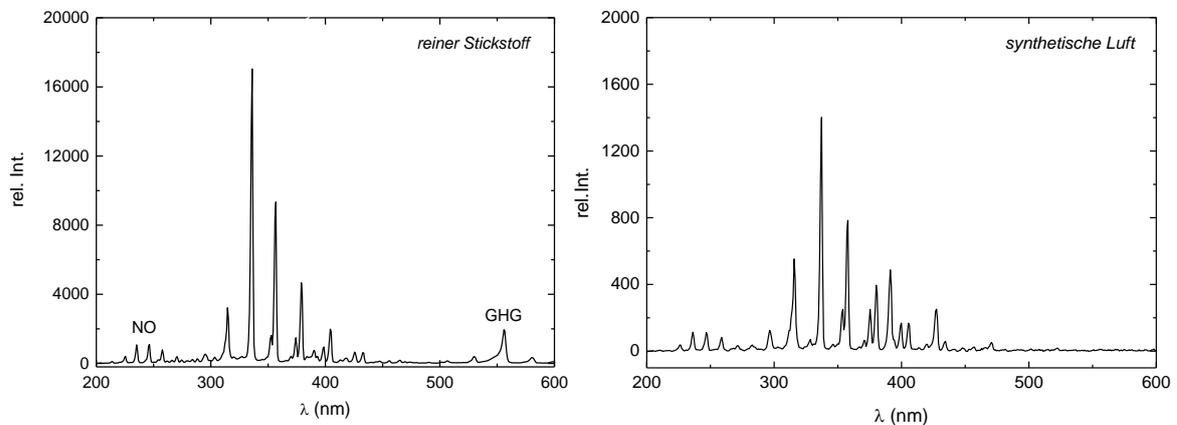


Abbildung 19 Spektren im Bereich von 200 – 600nm bei Elektronenstrahlanregung von reinem Stickstoff (**links**) bzw. synthetischer Luft (**rechts**) jeweils im Durchfluss bei 800mbar. Neben den charakteristischen Stickstoffbanden in etwa zwischen 300 und 400nm tauchen auch Stickoxid-Banden (NO) zwischen 200 und 300nm. Im reinen Stickstoff lässt sich zudem das Gaydon-Herman-Green-Band (GHG) bei etwa 550nm beobachten, welches sehr sensitiv auf Verunreinigungen reagiert [43].

¹¹ Im Piere Auger Observatorium [40] wird die Lichtemission durch einen UV-Filter beobachtet. Durch eine Absolutkalibrierung der 337nm Linie und eine Relativkalibrierung der restlichen Stickstofflinien kann aus der integralen Messung auf die Energie des primären Teilchens zurückgeschlossen werden.

¹² Die Messung erfolgt im Durchfluss direkt aus der Gasflasche mit reinem Stickstoff einer Reinheit von 99,999%.

Eine Auswertung der Linienintensitäten der Stickstofflinien zwischen 300 und 400nm unter Berücksichtigung der in Abschnitt 4.1.1 ermittelten Ansprechfunktion liefert die in Tabelle 1 dargestellten Werte für synthetische Luft. Die Daten zeigen eine gute Übereinstimmung mit den Werten aus einer früheren Messung an der TU-München mit einem hochauflösenderen Spektrometer [41], sowie mit Literaturwerten von Ave et al. [8].

λ [nm]	λ interval [nm]	I[%]:	Ave et al.		TU München		diese Arbeit
296.2	292.5 - 297.0		5.16	± 0.29	7.21		
297.7	297.0 - 299.6		2.77	± 0.13	4.01		
302.0	301.5 - 303.3		0.41	± 0.06	0.46		
308.0	306.8 - 309.3		1.44	± 0.1	1.31		
311.7	309.3 - 312.3		7.24	± 0.27	7.80	}	61.4
313.6	312.3 - 314.1		11.05	± 0.41	12.03		
315.9	314.1 - 316.7		39.3	± 1.4	40.30		
317.6	317.0 - 318.4		0.46	± 0.06	1.23		
326.8	325.6 - 327.1		0.8	± 0.08	0.83	}	5.45
328.5	327.1 - 329.0		3.8	± 0.14	3.19		
330.9	329.0 - 331.3		2.15	± 0.12	1.43		
333.9	331.3 - 334.3		4.02	± 0.18	4.15		
337.1	334.3 - 338.4		100		100		100
346.3	344.2 - 347.2		1.74	± 0.11	1.61		1.95
350.0	347.2 - 350.6		2.79	± 0.11	2.31	}	22.5
353.7	350.6 - 354.4		21.35	± 0.76	20.19		
357.7	354.4 - 359.9		67.4	± 2.4	68.48		66.47
366.1	363.2 - 366.4		1.13	± 0.08	0.87	}	1.32
367.2	366.4 - 367.5		0.54	± 0.04	0.45		
371.1	367.6 - 371.7		4.97	± 0.22	3.84		4.75
375.6	371.7 - 376.3		17.87	± 0.63	15.44		16.95
380.5	376.3 - 381.4		27.2	± 1	23.66		25.46
385.8	383.0 - 386.0		0.5	± 0.08	0.40		
387.7	386.0 - 388.0		1.17	± 0.06	0.94	}	28.9
388.5	388.0 - 388.7		0.83	± 0.4	0.92		
391.4	388.7 - 392.1		28	± 1	27.04		
394.3	392.1 - 394.9		3.36	± 0.15	3.36		2.15
399.8	394.9 - 400.5		8.38	± 0.29	7.60		7.87
405.0	400.5 - 406.6		8.07	± 0.29	7.36		7.82
414.1	412.5 - 414.4		0.49	± 0.07	0.46		
420.0	416.6 - 420.6		1.75	± 0.1	1.57		
423.6	420.7 - 424.0		1.04	± 0.11	0.98		
427.0	424.0 - 427.4		7.08	± 0.28	6.91		
427.8	427.4 - 428.6		4.94	± 0.19	4.43		

Tabelle 1 Relative Intensitätsverhältnisse der Stickstofflinien bezogen auf die 337nm Linie bei reiner Elektronenstrahl-anregung von 800mbar synthetischer Luft mit dem kompakten Gitterspektrometer niedriger Auflösung (**diese Arbeit**) sowie Daten einer früheren Messung mit einem hochauflösenderen Spektrometer (**TU München**). Die Daten sind verglichen mit Literaturwerten (**Ave et al.**) [8]. Diese Tabelle ist ebenfalls in [41] zu finden.

4.1.3 Gezielte Verunreinigung von Stickstoff mit Sauerstoff

Bereits der vorige Abschnitt zeigte den großen Einfluss von Verunreinigungen auf die Emissionsspektren von Stickstoff (vgl. Abbildung 19). Insbesondere für eine Bestimmung der absoluten Konversionseffizienz (wie in Referenz [41] und Referenzen darin) ist eine hohe Reinheit des Stickstoffs notwendig. In den Messungen an der TU München wurde stets mit einem Gasfluss von frischem Stickstoff aus der Gasflasche durch die Messzelle gearbeitet. Bereits das Abschalten dieses Flusses führt zu einer deutlichen Abnahme der Lichtintensität, da sich verbliebene Verunreinigungen von den Wänden lösen und in das Gasvolumen mischen. Die Intensitätsabnahme mit der Zeit bei einer Messung ohne Gasfluss ist in Abbildung 20 gezeigt.

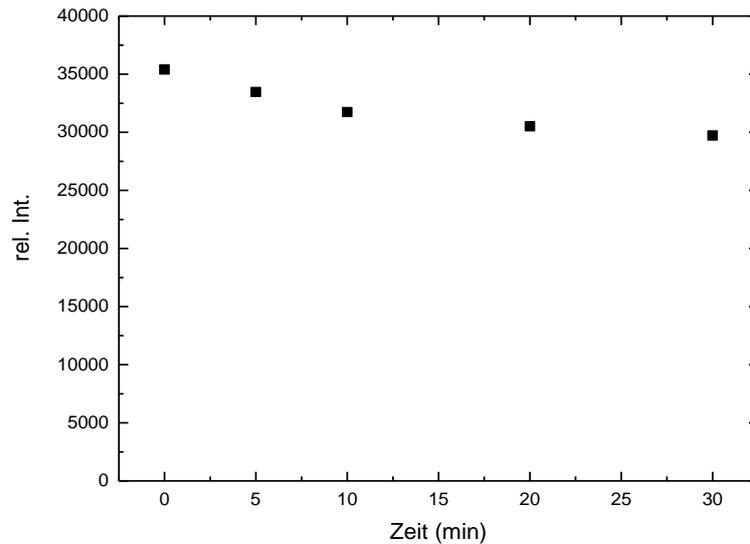


Abbildung 20 Intensitätsabnahme der 337nm Linie in Stickstoff mit der Zeit bei ausgeschaltetem Gasdurchfluss. Zum Zeitpunkt 0 wurde die zuvor evakuierte Zelle mit frischem Stickstoff befüllt. Die Intensität nimmt über die erst halbe Stunde um rund 14% ab.

Auch bei der Bestimmung des Intensitätsverhältnisses von Stickstofflinien einer Messung in reinem Stickstoff zu einer Messung in synthetischer Luft spielt die Gasreinheit eine große Rolle. Abbildung 21 zeigt dieses Verhältnis für die 337nm Linie zusammen mit Literaturwerten. Es tritt eine Diskrepanz von etwa einem Faktor 2 zwischen den in dieser Arbeit gemessenen Werten und den Literaturwerten auf. Eine mögliche Erklärung für die Diskrepanz wäre eine unterschiedliche Qualität der Gasreinheit in den verschiedenen Experimenten.

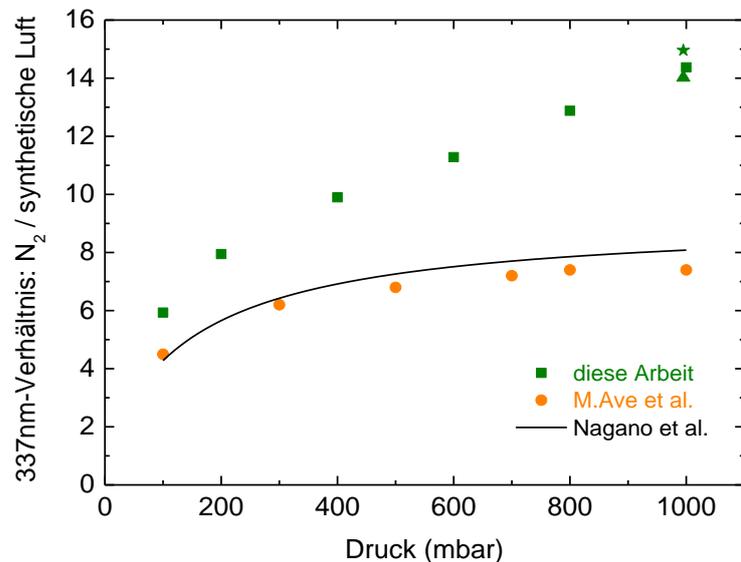


Abbildung 21 Druckabhängigkeit des Intensitätsverhältnisses der 337nm Linie von reinem Stickstoff zu synthetischer Luft. Die in dieser Arbeit ermittelten Daten (grüne Quadrate) wurden bei Elektronenstrahlanregung mit $1\mu\text{A}$ Strahlstrom aufgenommen. Bei 1000mbar sind zwei weitere Messwerte aus unserer Arbeitsgruppe gezeigt, die mit einem anderen Messaufbau am Tandembeschleuniger an der TU München mit einem 120MeV Schwefelstrahl (Stern) und ebenfalls mit einem 12keV Elektronenstrahl (Dreieck) gemessen wurden. Zum Vergleich sind Literaturwerte aus [8] (orange Kreise) sowie eine nach Werten aus [7] berechnete Kurve (schwarz) gezeigt. Für mögliche Erklärungen der Diskrepanz siehe Text.

Um den Effekt einer Sauerstoffverunreinigung auf die Stickstoffemission zu analysieren, wurde die Intensität der 337nm Linie in Abhängigkeit von verschiedenen Sauerstoffkonzentrationen in Stickstoff vermessen. Eine Messreihe von reinem Stickstoff bis hin zu einem Sauerstoffanteil von 20 % (synthetische Luft) bei Atmosphärendruck ist in Abbildung 22 gezeigt. Die Intensität der 337nm Linie ist in reinem Stickstoff etwa um einen Faktor 14 höher als in synthetischer Luft. Im Bereich der schwarzen Kurve in Abbildung 22 lässt sich die Intensitätsabnahme der 337nm Linie mit steigender Sauerstoffkonzentration durch Stoßquenchen erklären, also einen stoßbedingten Energietransfer von Stickstoff zu Sauerstoff. Die schwarze Kurve stellt den zugehörigen Fit dar und liefert einen p' -Wert¹³ für das Sauerstoffquenchen von $4,5 \pm 0,2$ mbar. Das eingefügte Diagramm in Abbildung 22 zeigt, dass diese Stoßquenchenmodell für sehr kleine Verunreinigungs-konzentrationen versagt. Auch frühere Messungen [44] hatten gezeigt, dass bei kleinen Konzentrationen ein weiterer Quenchprozess einsetzt.

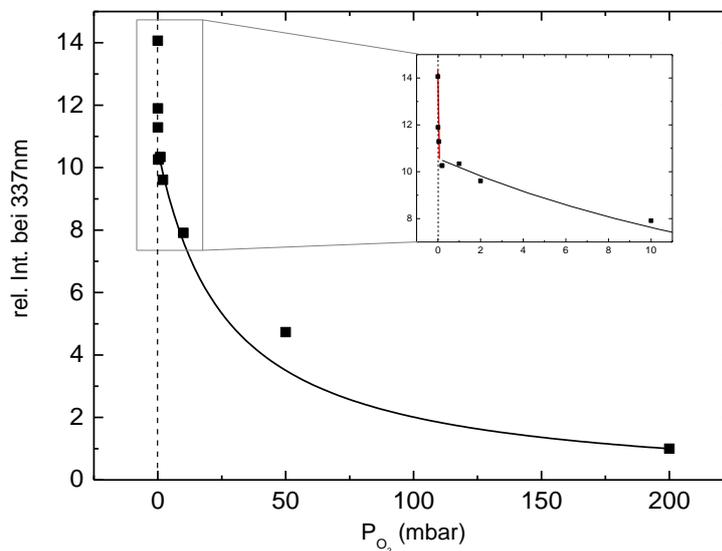


Abbildung 22 Relative Intensität der 337nm Stickstofflinie bei einem Gasdruck von 1000mbar in Abhängigkeit vom Sauerstoffgehalt. Die Intensität für synthetische Luft ist auf 1 skaliert. Die **schwarze Kurve** zeigt einen Fit nach dem p' -Modell (siehe Text und [41]). Die Einfügung zeigt einen vergrößerten Ausschnitt des Bereichs bei kleinen Sauerstoffkonzentrationen. Der deutlich steilere Verlauf bei sehr kleinen Konzentrationen (**rote Kurve**) deutet einen zweiten Quenchprozess an (Details siehe Text).

In diesem Fall wird die Lichtintensität der 337nm Linie dadurch verringert, dass die kleine Beimengung von Sauerstoff die Rekombination von freien Elektronen mit Stickstoffionen verhindert, da sich die Elektronen an den Sauerstoff anlagern. Abbildung 23 zeigt diesen Effekt anhand einer zeitaufgelösten Messung der Lichtemission bei gepulster Anregung. Im reinen Stickstoff ist nach Ende des Anregungspulses noch ein sehr langes Nachleuchten¹⁴ zu erkennen, welches auf die Rekombination von freien Elektronen mit Stickstoffionen zurückzuführen ist. In synthetischer Luft ist dieses Rekombinations-leuchten nahezu gänzlich unterdrückt. Die Messungen in Abbildung 23 sind wellenlängenintegral im Bereich von 280-380nm (DUG11X-Filter)

¹³ Der p' -Wert entspricht dem Partialdruck eines Gases, bei dem die Lichtintensität durch Quenching auf die Hälfte abgefallen ist. In den Fit in Abbildung 22 geht auch der Wert für das Selbstquenchen von Stickstoff von 208mbar ein. Für eine detailliertere Beschreibung des p' -Modells sei auf [41] verwiesen.

¹⁴ Zu beachten ist die logarithmische Zeitskala.

aufgenommen, um eine ausreichende Intensität für die Aufnahme der Zeitspektren zu erhalten. Da aber ausschließlich die Stickstoffbanden zu der Lichtemission in diesem Bereich beitragen, und die 337nm Linie die stärkste Linie im Stickstoffspektrum ist, sollte dieser zeitliche Verlauf auch für die 337nm Linie gelten. Eine Integration über die verschiedenen Anteile der Lichtemission (während dem Anregungspuls und nach dem Anregungspuls) führt zu dem Ergebnis, dass in reinem Stickstoff etwa 30% der Lichtintensität aus dem Rekombinationsleuchten stammen. Unter der Annahme, dass eine Sauerstoffverunreinigung diesen Rekombinationsprozess unterbindet, erklärt dies sehr gut den relativen Intensitätsabfall in Abbildung 22 bei kleinen Sauerstoffkonzentrationen von ca. 14 auf 10. Für eine präzise Messung der Konversionseffizienz von reinem Stickstoff ist also einerseits sehr reines Gas notwendig, andererseits muss das Licht auch ausreichend lange detektiert werden, um das Rekombinationsleuchten nicht zu verwerfen.

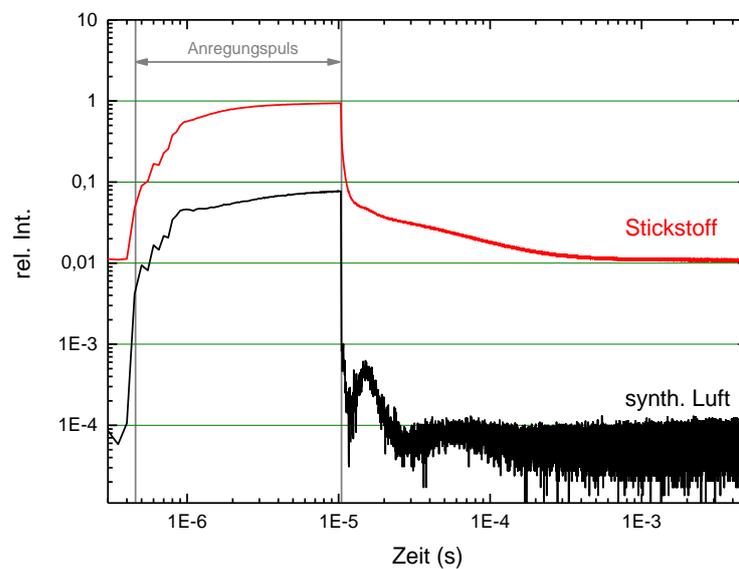


Abbildung 23 Zeitspektren bei gepulster Anregung mit einer Pulslänge von $10\mu\text{s}$ in **reinem Stickstoff** und in **synthetischer Luft**. Neben der höheren Gesamtintensität in reinem Stickstoff ist zudem ein ausgeprägtes Rekombinationsleuchten zu beobachten (logarithmischen Achsen).

4.2 Simulation der Energiedeposition in 1bar Argon

Im vorangegangenen Kapitel wurde mit dem Studium der Lichtemission von Stickstoff eine gut geeignete und sehr grundlagenorientierte Nutzung der Elektronenstrahlanregung dichter Gase vorgestellt. Die restliche Arbeit zielt mit der Optimierung einer VUV-Lichtquelle auf ein mehr anwendungsorientiertes Thema ab. Hierzu wird die Lichtemission von Edelgasen, im Speziellen Argon, detailliert untersucht. Vorbereitend auf die folgenden Kapitel soll in diesem Abschnitt zunächst auf Computersimulationen der Energiedeposition durch den Elektronenstrahl im Gastarget eingegangen werden. Die hier gezeigten Simulationsdaten gelten für Elektronenstrahlanregung von Argon bei Atmosphärendruck.

In der Elektronenquelle werden die Elektronen auf eine Energie von 12keV beschleunigt. Diese Energie wird jedoch nicht vollständig im Gas deponiert. Im Wesentlichen sind zwei Verlustmechanismen dafür verantwortlich: Zum einen deponieren die Elektronen bereits einen Teil ihrer Energie in der 300nm dünnen Eintrittsmembran, zum anderen wird ein Teil der

Elektronen, die das Gastarget erreichen, von dort wieder zurückgestreut, so dass sie nur einen Teil ihrer Energie im Gas deponieren können. In Referenz [45] wurde bereits die Transmission von Elektronen durch die $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{SiO}_2$ -Membran mit zwei verschiedenen Monte Carlo Simulationsprogrammen (Geant4 [46, 47] und CASINO [48, 49]) simuliert. Dabei zeigte sich, dass zwar die im Mittel pro Elektron transmittierte Energie in beiden Fällen vergleichbar war, allerdings ergaben sich nach dem Durchtritt durch die Membran sehr unterschiedliche Formen der Elektronenenergieverteilung (EEDF). Die mit CASINO ermittelte EEDF weist ein Maximum bei ca. 10,6keV auf und schneidet zu hohen Energien hin sehr scharf ab (vgl. Fig.4 in Referenz [45]). Die Geant4 Simulation liefert hier ein Maximum bei ca. 11.1keV und einen sanfteren Abfall bis hin zur Einschussenergie der Elektronen. Dies scheint das physikalisch sinnvollere Ergebnis, allerdings ist (wie in Referenz [45] beschrieben) die Geant4-Simulation mit deutlich mehr Aufwand verbunden verglichen mit der CASINO-Simulation. In diesem Kapitel soll unter anderem untersucht werden, inwieweit die genaue Form der EEDF in die Simulation der Energiedeposition mit einbezogen werden muss.

Auch in dieser Arbeit ergaben sich Probleme bei den CASINO-Simulationen sobald die Membran miteinbezogen wurde. Aus diesem Grund wurde die Simulation in zwei Schritte aufgeteilt. Die Simulation der Transmission der Elektronen durch die Membran wurde mit Geant4 durchgeführt. Mit der daraus gewonnenen EEDF wurde anschließend die orts aufgelöste Energiedeposition im Targetgas mit CASINO simuliert.

Die simulierte EEDF nach dem Durchgang der Elektronen durch die Eintrittsmembran ist in Abbildung 24 gezeigt. Der geringe Unterschied zu dem Ergebnis in Referenz [45] ist vermutlich auf die leicht unterschiedliche Elektronenenergie (12keV bzw. 12,12keV) sowie auf die neuere Geant4-Version (4.10.02) zurückzuführen. Mit der in Abbildung 24 gezeigten Energieverteilung treffen die Elektronen auf das Gastarget (Argon bei Atmosphärendruck). Da mit CASINO keine Simulation mit Elektronen einer bestimmten Energieverteilung möglich war, wurde der Energiebereich der EEDF von 0 bis 12keV in 30 Schritte unterteilt und zu jedem dieser Energiewerte eine Simulation durchgeführt. Die sich daraus ergebenden Energieverteilungen im Gas wurden gemäß der EEDF-Werte aus Abbildung 24 gewichtet¹⁵ und aufaddiert, um somit die orts aufgelöste Energiedeposition im Gas für einen 12keV Elektronenstrahl nach Durchtritt durch die $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{SiO}_2$ -Eintrittsmembran zu erhalten. Diese Daten sind in Abbildung 26 bis 28 jeweils verglichen mit den Simulationsergebnissen monoenergetischer Elektronen bei 10,9keV (Maximum der EEDF) sowie 10,1keV (Mittelwert der EEDF). Vorab wird dabei deutlich, dass bei der Verwendung einer festen Elektronenenergie mit dem Mittelwert der EEDF keine große Abweichung festzustellen ist verglichen mit der deutlich aufwändigeren Modellierung, welche die gesamte Form der EEDF berücksichtigt (vgl. die roten und blauen Kurven in Abbildung 26 bis 28). Das Ergebnis bei der Verwendung monoenergetischer Elektronen der Energie im Maximum der EEDF (schwarze Kurven) hingegen zeigt eine etwas größere Abweichung.

Abbildung 25 zeigt vorab ein qualitatives Ergebnis der Simulation, sowie ein 3D-Schema des angeregten Volumens. Anhand dieses Schemas werden in Abbildung 26 bis 28 die jeweils zur Auswertung berücksichtigten Bereiche veranschaulicht.

¹⁵ Zu beachten sind bei der Gewichtung auch die unterschiedlichen Schrittweiten oberhalb bzw. unterhalb von 9eV.

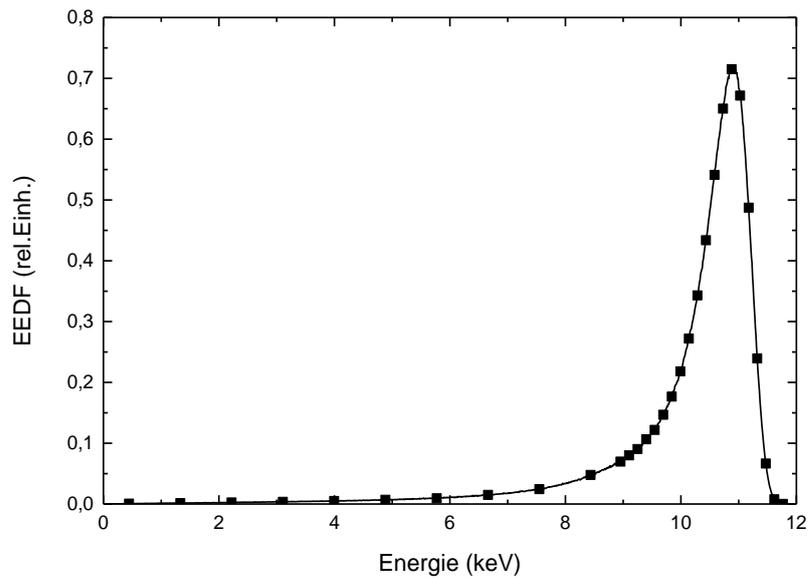


Abbildung 24 Mit Geant4 (Version 4.10.02) simulierte Elektronenenergieverteilung (EEDF) nach Durchtritt des Elektronenstrahls durch die $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{SiO}_2$ -Membran. Mit dieser Energieverteilung treffen die Elektronen auf das Gastarget. Die Quadrate geben die Energiewerte an, für welche jeweils eine CASINO-Simulation der orts aufgelösten Energiedeposition in 1bar Argon durchgeführt wurde.

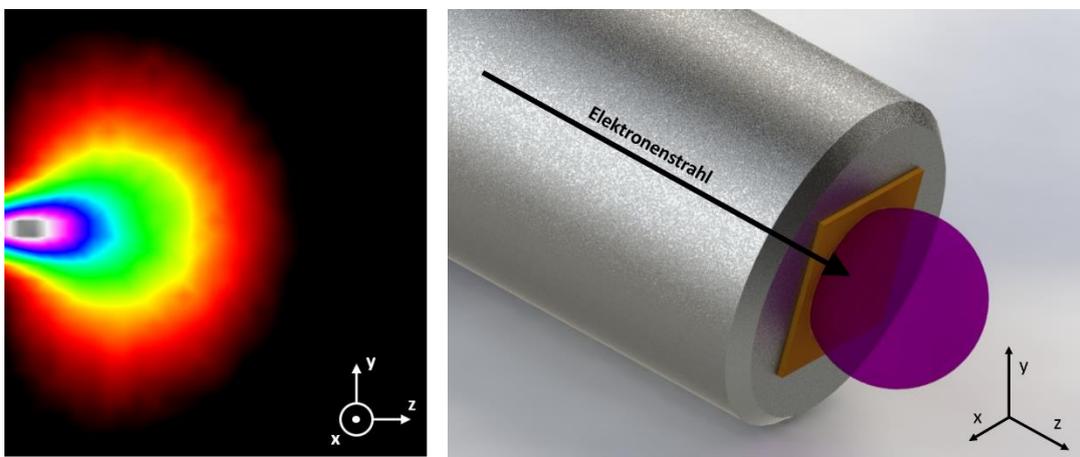


Abbildung 25 Links: Qualitatives Ergebnis einer CASINO-Simulation der Energiedeposition in 1bar Argon bei einer Elektronenstrahlanregung mit einer Teilchenenergie von 11,6 keV. Zur Darstellung der 3D-Daten (Energiedeposition pro Volumenelement) wurden die Werte hier in die yz-Ebene projiziert. Das rechte Bild zeigt eine schematische 3D-Darstellung des angeregten Volumens (violett). Angedeutet sind ebenso das Gehäuse der Elektronenquelle (grau) und die Achse des Elektronenstrahls (schwarzer Pfeil), welcher durch die Siliziumnitridmembran (braun) in das Gasvolumen eintritt. Anhand dieser schematischen Darstellung werden in den folgenden Abbildungen die jeweils zur Auswertung berücksichtigten Bereiche des angeregten Volumens veranschaulicht.

Bei allen in dieser Arbeit beschriebenen Messungen, wird die Lichtemission des angeregten Volumens unter einem Winkel von 90° bzgl. Der Einschussrichtung des Elektronenstrahls beobachtet. Dahingehend werden nun drei verschiedene Analysen der Simulationsdaten bezüglich der Energiedeposition vorgestellt.

In der ersten Analyse wird die Energiedeposition schlicht in Abhängigkeit vom Abstand zur Eintrittsmembran betrachtet. Dabei werden die Werte für die Energiedeposition den einzelnen Schichten im Gas mit unterschiedlichem Abstand zur Membran zugeordnet. Diese Schichten sind in Abbildung 26 rechts schematisch dargestellt. Die zugehörigen Werte sind in Abbildung 26 links gezeigt. Die Reichweite der Elektronen, wie sie mit bloßem Auge zu erkennen ist, beträgt demnach etwas über 2mm. Dies stimmt gut mit Messungen des angeregten Volumens in Abschnitt 4.5 (siehe Abbildung 35) überein. Vereinzelt Elektronen erreichen in der Simulation knapp 3mm. Deutlich zu erkennen ist auch, dass die maximale Energiedeposition erst nach ca. 0,5mm erreicht wird. Dieser Verlauf ergibt sich jedoch nur durch die Integration der Werte über die in Abbildung 26 rechts angedeuteten Bereiche. Würde man nur die innerste Spur entlang der Richtung des Elektronenstrahls betrachten, so ließe sich kein Maximum im Verlauf der Energiedeposition beobachten. Es handelt sich hierbei nicht um einen sogenannten Bragg-Peak, sondern um einen geometrischen Effekt durch die Streuung der Elektronen weg von der ursprünglichen Strahlachse.

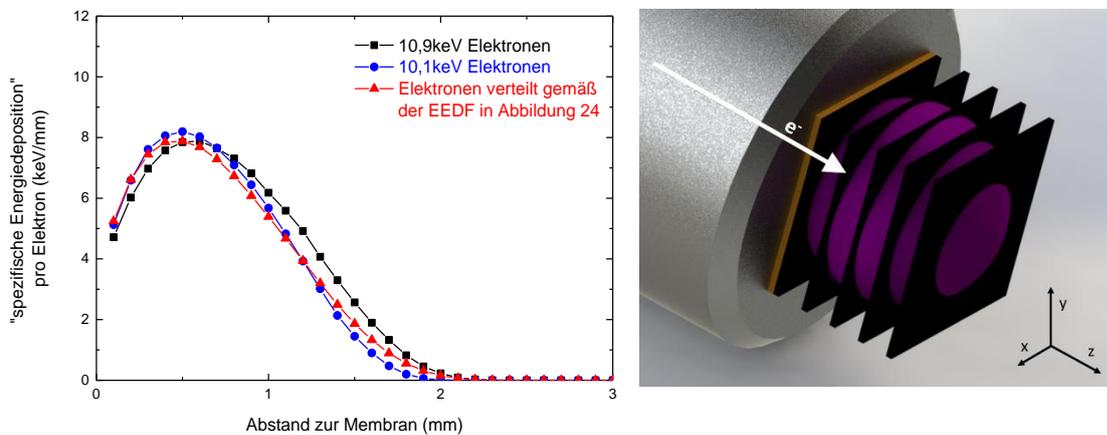


Abbildung 26 Links: CASINO-Simulation der spezifischen Energiedeposition der Elektronen in 1bar Argon in Abhängigkeit vom Abstand zur Eintrittsmembran. Gezeigt sind jeweils die Ergebnisse für Elektronen der Energie 10,9keV (Maximum der EEDF, **schwarze Quadrate**), 10,1keV (mittlere Energie der EEDF, **blaue Kreise**) und für die Summe der gewichteten Einzelwerte (gesamte Energiedeposition des Elektronenstrahls, **rote Dreiecke**). Gezeigt ist die reine Abhängigkeit vom Abstand in z-Richtung, d.h. es wurde über die **rechts** schematisch angedeuteten Bereiche (**schwarz**) in der xy-Ebene integriert (detaillierte Beschreibung des Schemas siehe Abbildung 25). Die Schrittweite in z-Richtung beträgt 0,1mm.

Abbildung 27 zeigt eine, für die in dieser Arbeit gezeigten Messungen, sinnvollere Analyse, da die Lichtemission des angeregten Volumens zumeist mittels einer optischen Abbildung vermessen wird. Daher werden in der Regel nur schmale Bereiche im Zentrum des angeregten Volumens optimal auf den Detektor abgebildet. Für die in Abbildung 27 dargestellten Ergebnisse wurden lediglich die Werte entlang der Verlängerung des Elektronenstrahls verwendet (0,5mm Höhe in y-Richtung und entlang der x-Achse integriert). Verglichen mit der vorigen Analyse erfahren nun die anfänglich langsameren Elektronen, welche in einem kleineren Volumen gestoppt werden, mehr Gewicht, da die Randbereiche des angeregten Volumens in y-Richtung nicht mehr berücksichtigt werden. Das Maximum der Energiedeposition ist nun weniger ausgeprägt und rückt etwas näher an die Membran heran. Da aber die Randbereiche in x-Richtung in die Analyse miteinfließen, liegt das Maximum immer noch etwas innerhalb des angeregten Volumens.

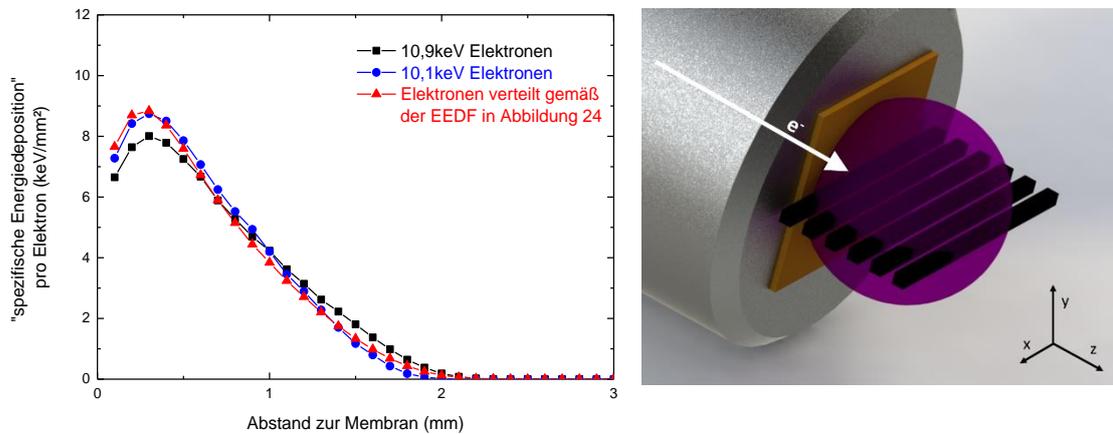


Abbildung 27 Links: CASINO-Simulation der spezifischen Energiedeposition der Elektronen in 1bar Argon in Abhängigkeit vom Abstand zur Eintrittsmembran. Gezeigt sind jeweils die Ergebnisse für Elektronen der Energie 10,9keV (Maximum der EEDF, **schwarze Quadrate**), 10,1keV (mittlere Energie der EEDF, **blaue Kreise**) und für die Summe der gewichteten Einzelwerte (gesamte Energiedeposition des Elektronenstrahls, **rote Dreiecke**). Es wurde über die **rechts** schematisch angedeuteten Bereiche (**schwarz**) entlang der x-Achse integriert (detaillierte Beschreibung des Schemas siehe Abbildung 25). Die Höhe der berücksichtigten Bereiche in y-Richtung beträgt 0,5mm. Die Schrittweite in z-Richtung beträgt 0,1mm.

Bei der dritten Analyse der Simulationsdaten wird die Energiedeposition entlang der optischen Achse eines Detektionssystems untersucht, welche wie eingangs beschrieben in einem 90° Winkel zum Elektronenstrahl orientiert ist und direkt an der Membran vorbeiläuft. Hierzu wurde die Energiedeposition entlang der x-Achse (vgl. Abbildung 28 rechts) direkt hinter der Siliziumnitridmembran untersucht. Die berücksichtigte Fläche in der yz-Ebene direkt hinter der Membran beträgt dabei jeweils 0,5x0,5mm². Die optische Achse des Detektionssystems verläuft somit durch das Maximum der zu erwartenden Lichtemission (vgl. Abbildung 27). Die Energiedeposition entlang dieser Achse konzentriert sich verglichen mit den vorigen Ergebnissen auf einen deutlich schmälere Bereich, wie in Abbildung 28 links zu sehen ist. In diesem Bereich kurz nach Eintritt der Elektronen in das Gas ist das Profil der Energiedeposition noch recht ähnlich dem eines typischen Strahlprofils wie beispielsweise bei einer Schwerionenstrahlanregung [50]. In dieser Analyse liegt das Maximum der Energiedeposition im Zentrum des Elektronenstrahls und fällt zum Rand hin rasch ab. Diese Betrachtung der Energiedeposition ist vor allem im nächsten Abschnitt im Rahmen der Temperaturbestimmung durch Linienbreitenmessungen von Bedeutung.

Die Simulationsergebnisse zeigen auch die eingangs des Kapitels erwähnte hohe Leistungsdichte im Gas bei reiner Elektronenstrahlanregung. Abbildung 28 weist direkt an der Membran eine spezifische Energiedeposition von über 15 keV/mm³ pro Elektron auf. Dies lässt sich in eine maximale Leistungsdichte direkt hinter der Membran von einigen 100W/cm³ im kontinuierlichen Betrieb bzw. einigen 10kW/cm³ im gepulsten Betrieb umrechnen.

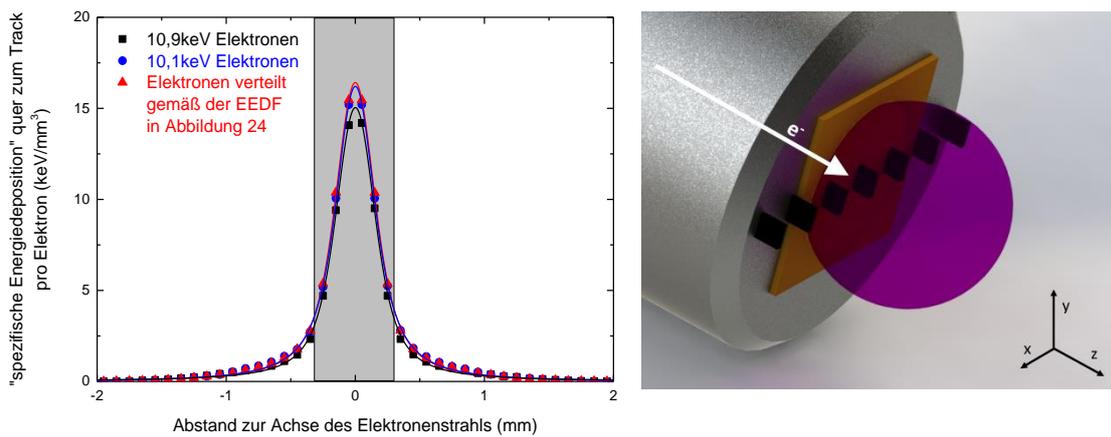


Abbildung 28 Links: CASINO-Simulation der spezifischen Energiedeposition der Elektronen in 1bar Argon in Abhängigkeit vom Abstand (in x-Richtung) zur Achse des Elektronenstrahls. Gezeigt sind jeweils die Ergebnisse für Elektronen der Energie 10,9keV (Maximum der EEDF, **schwarze Quadrate**), 10,1keV (mittlere Energie der EEDF, **blaue Kreise**) und für die Summe der gewichteten Einzelwerte (gesamte Energiedeposition des Elektronenstrahls, **rote Dreiecke**). Der grau hinterlegte Bereich deutet die Breite des Elektronenstrahls an. Die Werte wurden über die **rechts** schematisch angedeuteten Bereiche (**schwarz**) integriert (detaillierte Beschreibung des Schemas siehe Abbildung 25). Die Höhe der berücksichtigten Bereiche in y- und in z-Richtung beträgt jeweils 0,5mm. Die Schrittweite in x-Richtung beträgt 0,1mm.

4.3 Druckverbreiterung atomarer Spektrallinien – Abschätzung der Gastemperatur

Die Elektronenstrahlanregung ist eine hervorragende Methode um die Linienverbreiterung, insbesondere die Druckverbreiterung, von Spektrallinien zu untersuchen. Diese Anregungsmethode ist weitgehend unabhängig von den Parametern des zu untersuchenden Gases, insbesondere existiert keine Zündbedingung. Dadurch ist prinzipiell eine Aufnahme von Spektren über einen großen Druckbereich von sub-Millibar bis hin zu ca. 10bar (Belastungsgrenze der Eintrittsmembran) möglich. In den hier beschriebenen Messungen liegt der messbare Bereich aufgrund des Gassystems (Umwälzpumpe und Drucksensor) etwa zwischen 50mbar und 1,3bar.

Die für Linienbreitenmessungen benötigten hochaufgelösten Spektren wurden mit einem Echelle Spektrometer (LTB Lasertechnik Berlin, ELIAS) mit einem Auflösungsvermögen von $\Delta\lambda/\lambda \approx 2,5 \cdot 10^6$ aufgenommen. Eine beispielhafte Messung der 696,54nm Linie in 800mbar Argon ist in Abbildung 29 gezeigt. Die Form der Spektrallinie kann durch einen Voigt-Fit (rote Kurve in Abbildung 29) sehr gut reproduziert werden, wobei die Form stark durch den, der Druckverbreiterung zuzuordnenden, Lorentz-Anteil dominiert ist. Es kann davon ausgegangen werden, dass die Lorentzbreite vollständig auf die Druckverbreiterung (van-der-Waals-Verbreiterung) zurückzuführen ist, da weitere ebenfalls lorentzförmige Verbreiterungen wie der lineare oder quadratische Stark Effekt mit einer typischen Breite von etwa $1\text{pm}/10^{15}\text{cm}^{-3}$ [51] bei den hier auftretenden Elektronendichten von bis zu 10^{13}cm^{-3} keine Rolle spielen. Auch der gaußförmige Anteil durch die natürliche Linienbreite und die Dopplerverbreiterung spielen nur eine untergeordnete Rolle [52].

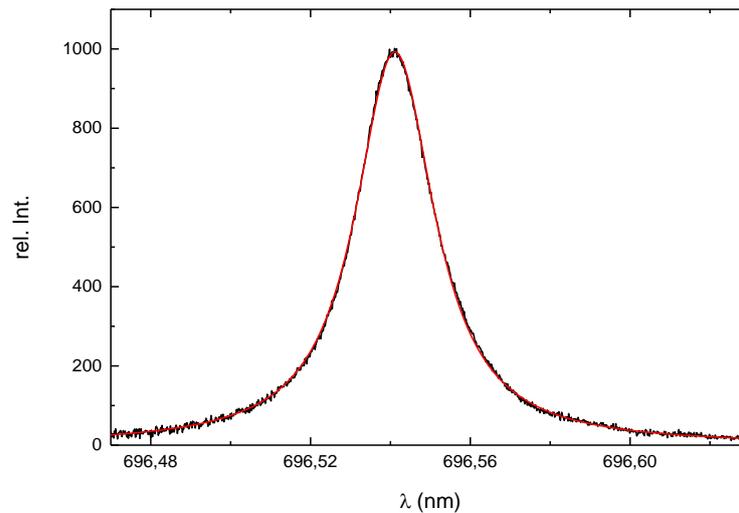


Abbildung 29 Beispielhafte Messung der atomaren Argonlinie bei 696,54nm bei 1bar und einem Strahlstrom von 4,3μA. Die rote Kurve gibt den zugehörigen Voigt-Fit an. Es dominiert der, durch die Druckverbreiterung bedingte, Lorentzanteil mit einer Breite von 23,2pm.

Mit Hilfe der Elektronenstrahlanregung kann somit die Druckverbreiterung $\Delta\lambda_{Druck}$ nahezu ungestört vermessen werden. Es ist jedoch zu beachten, dass ein Großteil der Energie des Elektronenstrahls bei schweren Gasen und hohen Dichten in einem sehr kleinen Volumen deponiert wird (vgl. Abschnitt 4.2 und 4.5). Dies kann dazu führen, dass in dem angeregten Volumen die Temperatur lokal erhöht, bzw. die Dichte verringert wird. Dieser Effekt wurde beispielsweise bei Neon (leichtes Edelgas) nur für sehr hohe Pulsströme beobachtet [53], bei Argon hingegen spielt er, wie im Folgenden gezeigt, auch bei niedrigen Strahlströmen eine Rolle. Bei konstantem Druck kann also die Veränderung der Lorentzbreite genutzt werden, um daraus eine Abschätzung der mittleren Gastemperatur (lokalisiert auf das angeregte Volumen) zu erhalten. Sofern die Linienbreite stark durch die Druckverbreiterung dominiert ist (wie hier der Fall), liefert diese Methode bei den hier beschriebenen Messungen einen zuverlässigeren Zugang zur Gastemperatur als die eigentlich stärker temperaturabhängige, gaußförmige Dopplerbreite.

Bis auf Vorfaktoren gilt für die Druckverbreiterung der Zusammenhang (siehe z.B. [54])

$$\Delta\lambda_{Druck} \sim \lambda^2 \cdot n \cdot \sigma \cdot \sqrt{\frac{2k_b T}{m}} \quad (9)$$

mit der Wellenlänge λ der beobachteten Spektrallinie, der Teilchendichte n , der Boltzmannkonstante k_b , der Gastemperatur T , der Atommasse m und einem Wirkungsquerschnitt σ . Zusammen mit der idealen Gasgleichung

$$n = \frac{N}{V} = \frac{p}{k_b T} \quad (10)$$

mit Teilchenzahl N , Volumen V und Gasdruck p ergibt sich

$$\Delta\lambda_{Druck} \sim \lambda^2 \cdot p \cdot \sigma \cdot \sqrt{\frac{2}{mk_b T}} \quad (11)$$

Gleichung 11 zeigt neben dem zu erwartenden linearen Zusammenhang der Linienbreite mit dem Druck auch eine umgekehrte Proportionalität zur Wurzel der Temperatur. Anschaulich lässt sich dieser Zusammenhang so verstehen, dass eine lokale Temperaturerhöhung bei konstantem Gesamtdruck zu einer lokalen Dichteverringering führt. Die Druckverbreiterung ist eine Stoßverbreiterung und abhängig von der Stoßrate der Atome. Eine Temperaturerhöhung führt zwar zu einer Geschwindigkeitserhöhung der Atome, wodurch diese zunächst häufiger miteinander stoßen können. Dieser Effekt geht allerdings nur mit \sqrt{T} in die Druckverbreiterung ein (siehe Gleichung 9). Dem entgegen wirkt die Dichteverringering, wodurch die Atome weiter voneinander entfernt sind und somit seltener miteinander stoßen können. Da dieser Effekt mit $1/T$ in die Druckverbreiterung eingeht (siehe Gleichung 9 und 10) führt eine Temperaturerhöhung in Summe zu einer Verschmälerung der Lorentzbreite. Dieser Effekt soll im Folgenden genutzt werden, um anhand der 696,54nm Linie in Argon die mittlere Gastemperatur abzuschätzen.

Abbildung 30 zeigt zunächst den Verlauf der Lorentzbreite der 696,54nm Linie in 1bar Argon in Abhängigkeit vom Elektronenstrahlstrom. Die Lorentzbreite nimmt mit zunehmendem Strahlstrom etwas ab, was auf eine leichte Temperaturzunahme (und somit Dichteabnahme) im angeregten Gasvolumen schließen lässt. Dies wird auch dadurch bestätigt, dass sich die Messergebnisse bei gepulster Anregung (Pulslänge 100 μ s, Repetitionsrate 1kHz) gemäß dem zeitlichen Mittelwert des Strahlstroms in die Daten der Gleichstrommessungen einreihen. Für die beobachtete Abnahme der Linienbreite ist also nur der mittlere Energieeintrag in das angeregte Medium von Bedeutung, wodurch die mittlere Gastemperatur lokal etwas ansteigt. Wäre die Abnahme der Breite direkt abhängig vom Elektronenstrahlstrom, so müsste der Wert der gepulsten Messung eine entsprechend schmalere Lorentzbreite aufweisen.

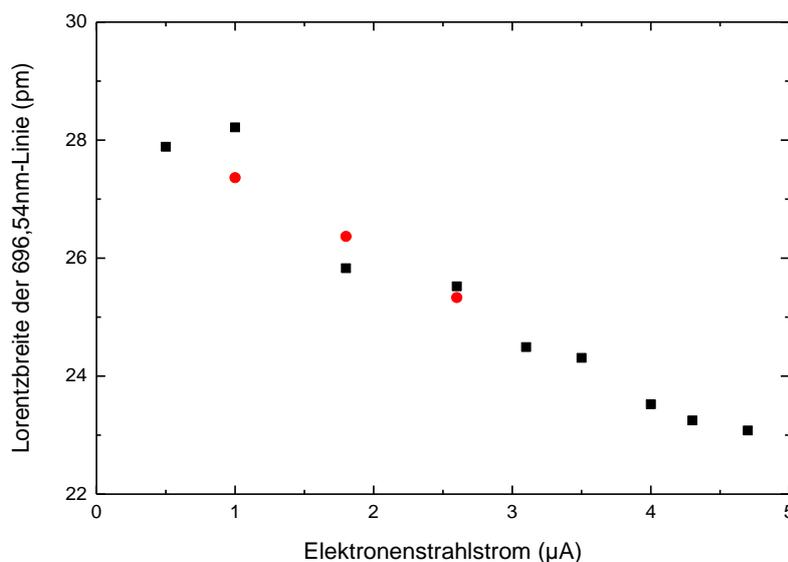


Abbildung 30 Lorentzbreite der 696,54nm Linie in 1bar Argon in Abhängigkeit vom Elektronenstrahlstrom sowohl für den Gleichstrombetrieb (**schwarze Quadrate**), wie auch für den Pulsbetrieb (100 μ s Pulslänge, 1kHz Repetitionsrate, **rote Kreise**). Der Strahlstrom bei der Pulsmessungen entspricht dem zeitlichen Mittelwert. Die Abnahme mit steigendem Strom ist auf eine lokale Erwärmung des angeregten Volumens zurückzuführen.

Bevor aus diesem Verlauf der Lorentzbreite nun auf die Temperatur geschlossen werden kann, muss bedacht werden, dass es sich hier um ein inhomogen leuchtendes Volumen handelt. Bereiche hoher Energideposition sind am heißesten, weisen aber gleichzeitig die höchste Lichtintensität auf, wodurch sie in der gemittelten Betrachtung der Linienbreite stärker gewichtet werden, als weiter außen liegende Bereiche. Hier soll allerdings die mittlere Temperatur im gesamten angeregten Volumen bestimmt werden. Aus diesem Grund wird in einem Modell das angeregte Volumen entlang der optischen Achse des Detektorsystems in einzelne Schritte aufgeteilt. Jedem Punkt wird dabei eine Temperatur und über Gleichung 11 eine Lorentzbreite zugeordnet. Es wird dabei angenommen, dass die Temperatur linear vom Zentrum des angeregten Volumens nach außen hin abnimmt. Die Lorentzbreite der einzelnen Teilschritte wird entsprechend dieses linearen Abfalls gewichtet. Der Mittelwert dieser gewichteten Verteilung der Lorentzbreite entspricht nun der Breite, welche mit dem Spektrometer tatsächlich beobachtet wird. Im Vergleich zu einer direkten Umrechnung der beobachteten Lorentzbreite in eine Temperatur nach Gleichung 11 werden auf diese Weise intensivere, heißere Bereiche des leuchtenden Volumens nicht mehr überschätzt. Das Modell liefert somit zu verschiedenen mittleren Temperaturen die zu beobachtende Lorentzbreite und ermöglicht somit die Zuordnung von gemessenen Lorentzbreiten der Elektronenstrahlstromserie aus Abbildung 30 zu einer jeweiligen mittleren Gastemperatur. Das Ergebnis dieses Vorgehens ist in Abbildung 31 gezeigt. Wie ein Vergleich zu späteren Messungen (vgl. Abbildung 52) zeigt, ist die Temperatur, und somit auch die beobachtete Linienbreite, auch abhängig von der Gasströmung durch die Zelle.

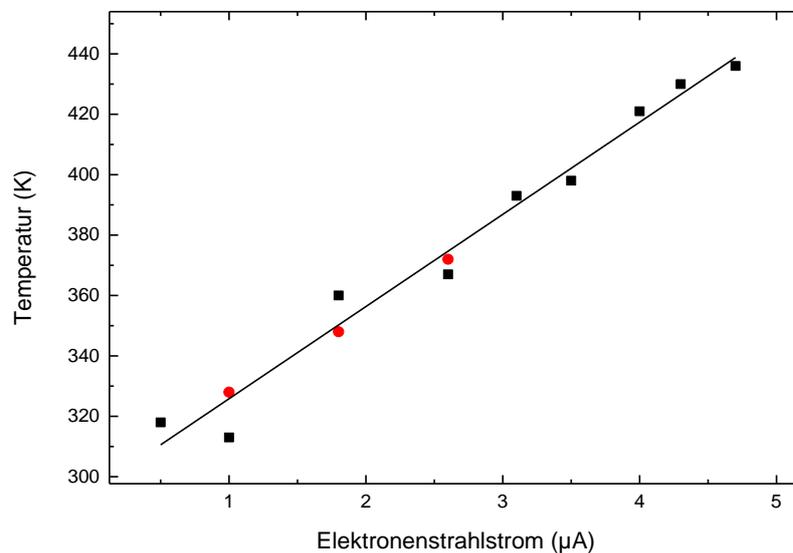


Abbildung 31 Temperaturanstieg in 1bar Argon mit steigendem Elektronenstrahlstrom ermittelt aus der Lorentzbreite der 696,54nm-Linie in Abbildung 30 sowohl für den Gleichstrombetrieb (**schwarze Quadrate**), wie auch für den Pulsbetrieb (100 μs Pulslänge, 1kHz Repetitionsrate, **rote Kreise**). Der Strahlstrom bei den Pulsmessungen entspricht dem zeitlichen Mittelwert. Die durchgezogene Linie wird im Folgenden als Temperaturkalibrierung verwendet.

Mit Hilfe dieser Kalibrierung kann nun eine zuverlässige Messung der Druckverbreiterung der 696,54nm-Linie durchgeführt werden. Um den Verbreiterungskoeffizienten bei Raumtemperatur zu bestimmen, müssen die bei verschiedenen Drücken gemessenen Werte entsprechend der

Gaserwärmung durch den Elektronenstrahl korrigiert werden. Eine auf diese Weise korrigierte Messreihe der Druckverbreiterung ist in Abbildung 32 gezeigt. Die Datenpunkte lassen sich sehr gut durch einen linearen Fit reproduzieren. Die Steigung der Kurve entspricht dem Druckverbreiterungskoeffizient, welcher hier zu $(0,0279 \pm 0,0003)$ pm/mbar ermittelt wurde. In Wellenzahlen pro Teilchendichte entspricht dies einem Wert von $(2,30 \pm 0,03) \cdot 10^{-20} \text{cm}^{-1}/\text{cm}^{-3}$. Dies ist in sehr guter Übereinstimmung mit einer Übersicht an Literaturwerten in Referenz [55], welche für die 696,54nm-Linie bei 300K zwischen $1,67 \cdot 10^{-20} \text{cm}^{-1}/\text{cm}^{-3}$ und $2,9 \cdot 10^{-20} \text{cm}^{-1}/\text{cm}^{-3}$ liegen. Der Offset des linearen Fits in Abbildung 32 stimmt mit 0,2pm sehr gut mit der Auflösung des Spektrometers von 0,3pm überein.

Abschließend sei erwähnt, dass sich in dieser Messung alle Korrekturen der verringerten Dichte bei hohen Strahlströmen auf die Daten in Abbildung 30 beziehen¹⁶. Um die Präzision der Messung weiter zu erhöhen, müsste für alle Drücke eine Stromserie (entsprechend Abbildung 30) gemessen werden. Dadurch wäre bei jedem Druck die Linienbreite bei 300K eigens zu bestimmen.

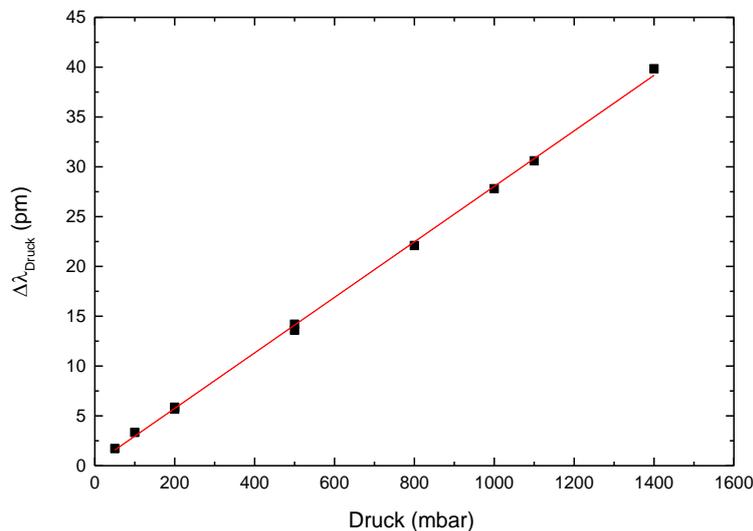


Abbildung 32 Druckabhängigkeit der Lorentzbreite der 696,54nm Linie in reinem Argon bei 300K. Die rote Linie gibt einen linearen Fit der Messergebnisse wieder und ergibt einen Druckverbreiterungskoeffizient von $(0,0279 \pm 0,0003)$ pm/mbar.

4.4 Temperaturabhängiges Verhalten der Excimerkontinua

Die Gastemperatur zeigt in verschiedenen spektralen Bereichen Einfluss auf die Lichtemission von Edelgasen. Im sichtbaren Bereich ist dies z.B. die im vorigen Kapitel beschriebene Linienbreite von Spektrallinien. Auch die Lichtemission der Excimere im VUV-Bereich ist von der Gastemperatur abhängig. Im Speziellen betrifft dies die Lage und Breite des 2. Kontinuums. Dies wurde bereits in Referenz [56] untersucht.

Abbildung 33 zeigt eine Messreihe in 1bar Argon bei verschiedenen Elektronenstrahlströmen. Der VUV-Bereich ist dabei, wie in Kapitel 2 erläutert, deutlich dominiert vom 2. Excimerkontinuum bei knapp 126nm. Durch das Fehlen eines optischen Fensters im Versuchsaufbau (vgl. Abschnitt 3.2)

¹⁶ Für andere Drücke wurde die Abweichung entsprechend umgerechnet.

ist auch das 1. Kontinuum im Spektrum sehr deutlich ausgeprägt. Der sog. LTP (vgl. Kapitel 2) wäre nur in einer logarithmischen Darstellung der Spektren leicht angedeutet. Um das Verhalten der Intensitäten beider Kontinua in Abhängigkeit vom Elektronenstrahlstrom besser zu veranschaulichen, wurde über die in Abbildung 33 angedeuteten Bereiche integriert (1. Kont.: 107-115nm und 2. Kont.: 123-131nm) und die Ergebnisse im rechten Bild dargestellt.

Die Gesamtintensität der Lichtemission der Excimere im VUV-Bereich nimmt proportional zum Elektronenstrahlstrom zu. Dies gilt für beide Produktionswege der Excimermoleküle (vgl. Kapitel 2). Für die direkte Besetzung der excimerbildenden 4s-Zustände aus dem Grundzustand benötigen die Elektronen eine hohe Energie von mehr als 11,5eV. Die Zahl der in diesem Sinne „hochenergetischen“ Elektronen¹⁷ ist proportional zur Zahl der primären Strahlelektronen. Die Rate für den direkten Besetzungsprozess R_{direkt} ist also direkt proportional zum Elektronenstrahlstrom I_{e^-}

$$R_{direkt} \sim I_{e^-} \quad (12)$$

Nur Elektronen niedriger Energien tragen zum zweiten Besetzungspfad über die Rekombination von Argonionen mit freien Elektronen bei. Hier sind also nicht die primären Strahlelektronen von Bedeutung, sondern der niederenergetische Anteil der EEDF (vgl. Abbildung 4 in Kapitel 2), welcher im Wesentlichen die Elektronendichte n_e bestimmt. Auch für die Besetzungsrate über den Rekombinationspfad R_{Rek} ergibt sich ein proportionaler Zusammenhang zum Elektronenstrahlstrom I_{e^-} (siehe Abschnitt 4.5 für eine detailliertere Beschreibung, insbesondere Gleichung 14 und 16):

$$R_{Rek} \sim n_e^2 \sim I_{e^-} \quad (13)$$

Die Gesamtintensität der Excimerlichtemission ist somit direkt proportional zum Elektronenstrahlstrom, wie auch die Messergebnisse in Abbildung 33 zeigen. Die Intensitäten der einzelnen Komponenten der VUV-Emission zeigen ein leicht unterschiedliches Verhalten. So nimmt die Intensität des 1. Kontinuums etwas stärker mit steigendem Strahlstrom zu als die des 2. Kontinuums. Hier lässt sich wiederum die im vorigen Kapitel beschriebene Temperaturerhöhung des angeregten Volumens beobachten. Eine Temperaturerhöhung führt zu einer verstärkten Besetzung von energetisch höherliegenden Vibrationszuständen der Excimermoleküle (vgl. Potentialdiagramm in Abbildung 2). Somit relaxieren (auch wegen der mit der Temperaturerhöhung einhergehenden Dichteverringern, vgl. Abschnitt 4.3) weniger Excimere in die niedrigsten Vibrationszustände und die Intensität des 2. Kontinuums sinkt (bei sonst unveränderten Parametern). Die höherliegenden Vibrationsniveaus tragen zur Lichtemission des 1. Kontinuums bei und dessen Intensität steigt. Je stärker das Intensitätsverhältnis zum 1. Kontinuum hin verschoben ist, umso heißer ist das Gas. Dieses Verhalten wird besonders deutlich bei der Kombination der Elektronenstrahlanregung mit Mikrowellenanregung (Abschnitt 5.1 und 6.1.1).

¹⁷ Im herkömmlichen Sinn sind auch das noch sehr niederenergetische Elektronen.

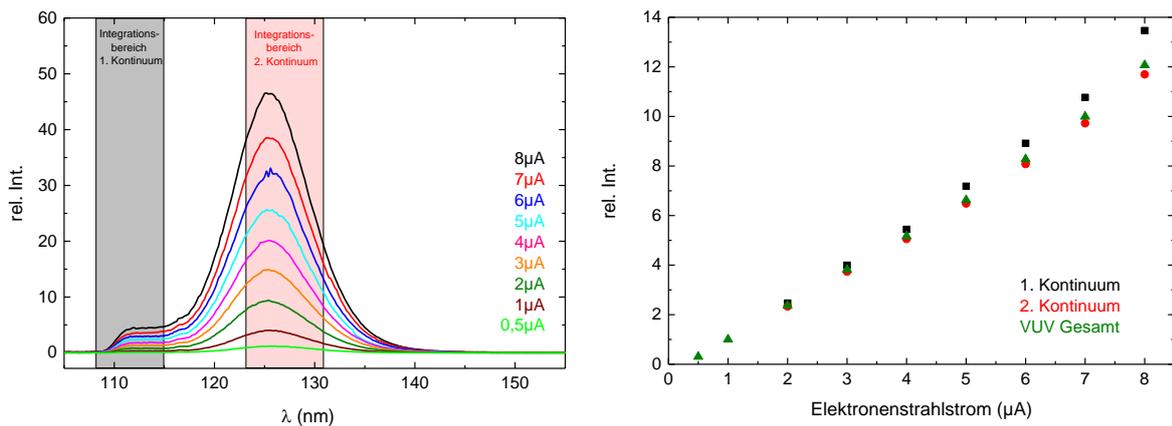


Abbildung 33 VUV-Emission in 1 bar Argon bei Elektronenstrahlanregung mit Strahlströmen von 0,5 bis 8 μA (links). Die Integrationsbereiche für 1. und 2. Kontinuum (107-115 nm bzw. 123-131 nm) sind schattiert angedeutet. Um die beiden Strukturen möglichst unbeeinflusst voneinander zu analysieren, wurde eine große Lücke zwischen den Integrationsbereichen gewählt. Die integrierten Werte für 1. Kontinuum, 2. Kontinuum und den gesamten VUV-Bereich, jeweils normiert auf die 1 μA -Messung, sind rechts dargestellt. Die Intensität des 1. Kontinuums steigt mit zunehmendem Strahlstrom temperaturbedingt etwas stärker an, als die des 2. Kontinuums (Details siehe Text).

Ein weiterer Effekt der Umbesetzung der Vibrationsniveaus ist die Verschiebung des Maximums des 2. Kontinuums zu kürzeren Wellenlängen sowie eine Verbreiterung des Kontinuums. Durch den asymmetrischen Potentialverlauf der angeregten Zustände (vgl. Potentialdiagramm in Abbildung 2) führt eine verstärkte Besetzung energetisch höher liegender Vibrationsniveaus im Mittel zu einer Verschiebung der optischen Übergänge nach rechts im Potentialdiagramm. Im Mittel ist dadurch die Energiedifferenz zwischen angeregtem Zustand und Grundzustand größer, womit auch das Maximum der Lichtemission mit steigender Temperatur zu höheren Energien, also kürzeren Wellenlängen schiebt. Ebenso führt dieser Effekt zu einer Verbreiterung des 2. Kontinuums. Mit der Temperaturkalibrierung aus dem vorigen Kapitel lässt sich die Position des 2. Kontinuums sowie dessen Breite in Abhängigkeit von der Gastemperatur wie in Abbildung 34 gezeigt darstellen.

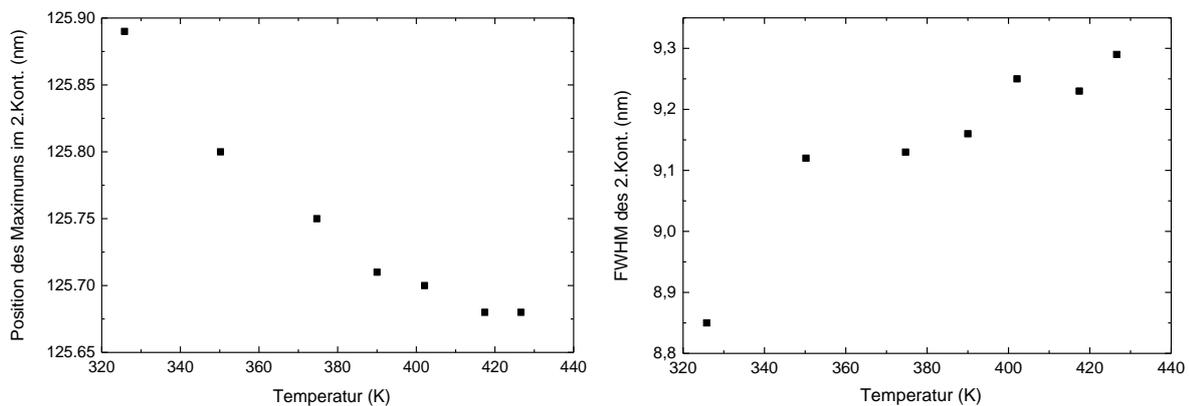


Abbildung 34 Temperaturabhängigkeit der Position (links) sowie der Breite (FWHM, rechts) des 2. Excimerkontinuums für Elektronenstrahlanregung von 1 bar Argon.

Die relativen Änderungen der hier gezeigten Messergebnisse zwischen Raumtemperatur und 100°C mit ca. 0,2nm (Position des Maximums) und 0,4nm (FWHM), wie auch die leichte Krümmung der Kurven, sind in sehr guter Übereinstimmung mit den Werten aus Referenz [56]. Die Absolutwerte weichen jedoch etwas von den in [56] ermittelten Werten bei Schwerionenstrahlanregung von Argon ab. Dies ist vermutlich auf die, sich in diesem Bereich sehr stark mit der Wellenlänge ändernde, Ansprechfunktion des Nachweissystems zurückzuführen. In diesem Wellenlängenbereich kommt es sehr schnell zu einem Fehler von einem Faktor 2 in der Ansprechfunktion. Im Aufbau von Referenz [56] wurde zudem ein MgF₂-Fenster verwendet, welches besonders den kurzwelligen Teil des 2. Kontinuums stark beschneidet und die Ungenauigkeit erhöhen kann. Die absoluten Werte für Position und Breite des 2. Kontinuums sind somit nur schwer als verlässliches Maß für die Gastemperatur verwendbar. Relative Änderungen können damit allerdings sehr gut veranschaulicht werden.

Prinzipiell wäre es auch möglich, das Intensitätsverhältnis zwischen 1. und 2. Kontinuum als Maß für die Temperatur zu verwenden. In diesem Fall werden allerdings die Fehler durch die Ansprechfunktion noch gravierender, weshalb von einer solchen Analyse hier abgesehen wird.

4.5 Abschätzung der Elektronendichte mit Hilfe von räumlich aufgelösten Messungen des angeregten Volumens

Mit der Messung von Linienbreiten in Abschnitt 4.3 wurde bereits ein Werkzeug vorgestellt, mit dem sich die hier beschriebenen Anregungsvarianten charakterisieren lassen. In diesem Kapitel soll nun die geometrische Ausdehnung des angeregten Volumens bestimmt werden. Ist die Größe des angeregten Volumens bekannt, so kann daraus die mittlere Elektronendichte abgeschätzt werden.

Der in Abschnitt 3.2 beschriebene experimentelle Aufbau wurde für diese Messungen um eine evakuierbare Spiegeloptik erweitert. Die Spiegeloptik befindet sich zwischen der Zelle und dem Monochromator (Position O in Abbildung 7). Ein verstellbarer Planspiegel in Kombination mit einem fest montierten Kugelspiegel [36] ermöglicht es, ausgewählte Bereiche des angeregten Volumens auf den Eintrittsspalt des Monochromators abzubilden und somit räumlich, wie auch spektral aufgelöste Messungen durchzuführen. Auf die spektral aufgelösten Messungen soll erst in den späteren Kapiteln bzgl. der kombinierten Anregung mit Mikrowellen bzw. den Entladungen eingegangen werden. Hier soll zunächst nur die räumliche Ausdehnung des angeregten Volumens in 1bar Argon bestimmt werden. Hierzu wurden Messungen mit der Spiegeloptik bei 126nm (2. Kontinuum) durchgeführt und mit Ergebnissen der Auswertung eines Fotos verglichen.

Bei den Messungen mit der Spiegeloptik wird jeweils ein Ausschnitt aus dem angeregten Volumen von etwa 1mm Kantenlänge akzeptiert. Die Ortsauflösung ist somit nicht sehr hoch. Der Bereich vor der Eintrittsmembran wurde in fünf 1mm-Schritten vermessen. Die Mittelpunkte des akzeptierten Ausschnitts lagen jeweils 0,5 – 1,5 – 2,5 – 3,5 bzw. 4,5mm vor der Membran. Abbildung 35 rechts zeigt eine Fotografie des leuchtenden Volumens, aufgenommen mit einer Digitalkamera. Das Ergebnis der Auswertung des Intensitätsprofils entlang der Richtung des

Elektronenstrahl ist in Abbildung 35 links dargestellt. Wie zu erwarten¹⁸, ist die Ausdehnung des leuchtenden Volumens im sichtbaren Bereich (atomare Argonlinien) in guter Übereinstimmung mit dem der Emission bei 126nm (2.Kontinuum). Die Ergebnisse zeigen eine vergleichbare Größe des angeregten Volumens wie die Simulationsergebnisse in Abbildung 27 in Abschnitt 4.2. Eine lineare Näherung der Lichtintensität ergibt eine Ausdehnung des Volumens von 2,5mm ab der Eintrittsmembran. Das Volumen gleicht einer Kugel, welche von der Membran etwas abgeschnitten wird. Die Größe des angeregten Volumens kann zu etwa 40mm³ abgeschätzt werden.

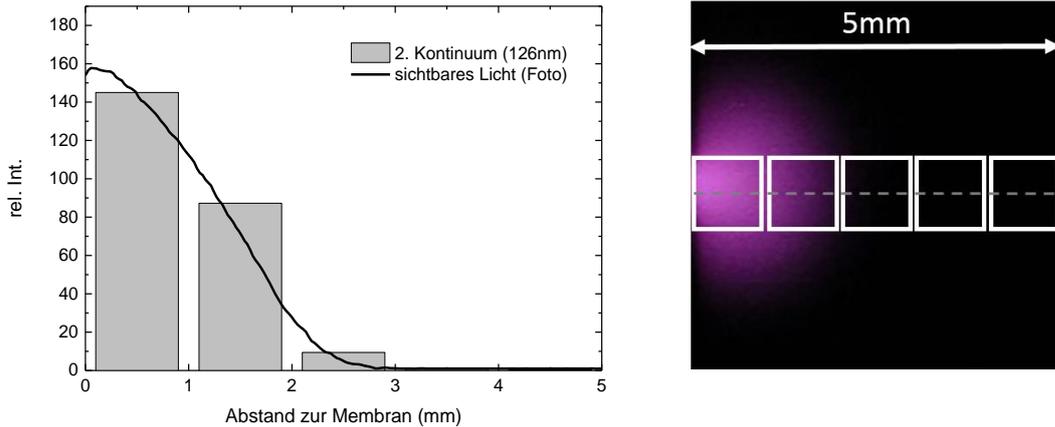


Abbildung 35 Links: Intensitätsverlauf von sichtbarem bzw. VUV-Licht in der verlängerten Richtung des Elektronenstrahls in Abhängigkeit vom Abstand von der Eintrittsmembran. Die Lichtintensität des 2.Kontinuums (126nm) wurde in fünf 1mm Schritten aufgenommen. Um die begrenzte Auflösung zu verdeutlichen, sind die so gewonnenen Intensitätswerte als breite Balken dargestellt. Die entsprechenden akzeptierten Bereiche sind **rechts** schematisch dargestellt. Das **rechte** Bild zeigt ein Foto des angeregten Volumens. Der Elektronenstrahl trifft von der linken Seite auf das Gasvolumen. Das Intensitätsprofil des sichtbaren Lichts wurde aus dem Foto entlang der gestrichelten grauen Linie gewonnen.

Um nun die mittlere Elektronendichte in diesem Volumen abschätzen zu können, müssen der Leistungseintrag in das Gas durch den Elektronenstrahl sowie die Rekombinationsverluste berücksichtigt werden. Eine zeitliche Änderung der Elektronendichte n_e durch Rekombination lässt sich nach Referenz [57]¹⁹ berechnen durch

$$\frac{dn_e}{dt}(\text{Rek.}) = -c_{rec}n_en_{Ar_2^+} = -c_{rec}n_e^2 \quad (14)$$

mit dem Ratenkoeffizient c_{rec} für dissoziative Rekombination und der Dichte der Argonionen $n_{Ar_2^+}$, die bei Atmosphärendruck zum größten Teil als Molekülonen vorliegen [24]. Da die freien Elektronen im Wesentlichen durch die Ionisierung des Argons erzeugt werden, herrscht Quasineutralität und die Ionendichte kann der Elektronendichte gleichgesetzt werden. Jedes Primärelektron kann aufgrund seiner hohen Energie von im Mittel 10,1keV (vgl. Abschnitt 4.2)

¹⁸ Durch die den dominanten Argonlinien zugehörigen optischen Übergänge werden die excimerbildenden 4s-Zustände im Argon besetzt (vgl. Kapitel 2). Sichtbares und VUV-Licht sollten aus demselben Bereich stammen.

¹⁹ Diese Veröffentlichung beschreibt das Vorgehen für Xenon. Die grundlegenden Prozesse sind für Argon allerdings die gleichen.

eine Vielzahl Sekundärelektronen erzeugen. Die charakteristische Größe für die notwendige Energie um ein Elektron-Ion-Paar zu erzeugen ist der sogenannte W-Wert und beträgt hier (für Elektronen dieser Energie) 26,4eV [21]. Dies zeigt, dass jedes Primärelektron knapp 400 Sekundärelektronen erzeugt, was die Vernachlässigung der Primärelektronen in Gleichung 14 und somit die Annahme der Quasineutralität rechtfertigt. Die Anzahl der durch den Elektronenstrahl erzeugten, freien Elektronen ist somit dessen Energieeintrag in das Gas geteilt durch den W-Wert. In die zeitliche Änderung der Elektronendichte geht dies als Leistungsdichte P/V geteilt durch den W-Wert ein. Unter der Annahme, dass die Rekombinationsverluste durch den Elektronenstrahl im Falle einer kontinuierlichen Anregung gerade kompensiert werden, kann Gleichung 15 für das sich einstellende Gleichgewicht 0 gesetzt werden:

$$\frac{dn_e}{dt} = -c_{rec}n_e^2 + \frac{P}{V \cdot W} = 0 \quad (15)$$

Für die mittlere Elektronendichte ergibt sich somit

$$n_e = \sqrt{\frac{U \cdot I_{e^-}}{V \cdot W \cdot c_{rec}}} \quad (16)$$

wobei der Leistungseintrag P des Elektronenstrahls durch $U \cdot I_{e^-}$ ersetzt wurde. Der Ratenkoeffizient für dissoziative Rekombination ist gemäß Referenz [58] abhängig von der Elektronentemperatur T_e :

$$c_{rec} = 9,1 \cdot 10^{-7} [300/T_e(K)]^{0,61} \frac{cm^3}{s} \quad (17)$$

Bei einer effektiven Beschleunigungsspannung²⁰ der Elektronen von $U = 10,1kV$, einem Strahlstrom von $I = 5\mu A$, einer Elektronentemperatur von $T_e = 0,5eV$ (vgl. Simulation in Referenz [31]²¹) und einem angeregten Volumen von $V = 40mm^3$ ergibt sich somit für die mittlere Elektronendichte zu etwa

$$n_e \approx 1,4 \cdot 10^{12} cm^{-3} \quad (18)$$

Wie eingangs dieses Abschnittes gezeigt wurde, lieferten die Simulationen aus Abschnitt 4.2 vergleichbare Ergebnisse zu den Messungen zur räumlichen Ausdehnung des angeregten Volumens. Für eine detailliertere Abschätzung der Elektronendichte im angeregten Volumen kann also das eben gezeigte Verfahren auf jedes, in der Simulation betrachtete, Volumenelement angewendet werden, wobei angenommen wird, dass sich jedes dieser Volumenelemente der Größe $0,5 \times 0,1 \times 0,1mm^3$ im Gleichgewicht befindet. Eine auf diese Weise berechnete, orts aufgelöste Elektronendichte in einer 0,5mm hohen Schicht in der Mitte des angeregten

²⁰ Durch die Verluste in der Eintrittsmembran ist die effektive Beschleunigungsspannung niedriger als die anfänglichen 12kV. Wie die Simulationen in Abschnitt 4.2 zeigen, kann der Mittelwert von 10,1kV gut verwendet werden um die in Abbildung 24 gezeigte EEDF zu nähern.

²¹ Diese Veröffentlichung beschreibt eine Simulation für Krypton. Die Größenordnung des Wertes sollte für Argon allerdings die gleiche sein.

Volumens ist in Abbildung 36 gezeigt. Die Berechnung einer mittleren Elektronendichte für das gesamte Volumen aus den Simulationsdaten führt zu einem Wert von:

$$n_e \approx 1,2 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3} \quad (19)$$

Dieser Wert ist in guter Übereinstimmung mit dem aus Gleichung 18, liegt jedoch etwas niedriger. Für die Abschätzung in Gleichung 18 wurde näherungsweise eine homogenen Anregung des Volumens angenommen. Da die Elektronendichte jedoch nicht linear mit der deponierten Leistung im Gas ansteigt, sondern mit $\sqrt{P/V}$ (vgl. Gleichung 16) und die Leistung, wie Abbildung 36 zeigt, sehr inhomogen über das Volumen verteilt wird, führt die Annahme einer homogenen Anregung zu einer leichten Überschätzung der mittleren Elektronendichte. Auch in den in Abbildung 36 gezeigten Werten mag die Elektronendichte, zumindest in den Außenbereichen, etwas überschätzt sein, da in diesen Bereichen die Elektronen im Mittel weniger Energie besitzen und für niederenergetische Elektronen der W-Wert (vgl. Gleichung 16) über den hier verwendeten Wert von 26,4eV ansteigt [59]. Dies verdeutlicht die Schwierigkeit einer qualifizierten Aussage über eine präzise Elektronendichte im angeregten Gasvolumen. Aus diesem Grund wird auf eine Fehlerangabe bei der Elektronendichte verzichtet und es sei darauf hingewiesen, dass die angegebenen Elektronendichten als Wert für deren Größenordnung zu verstehen sind.

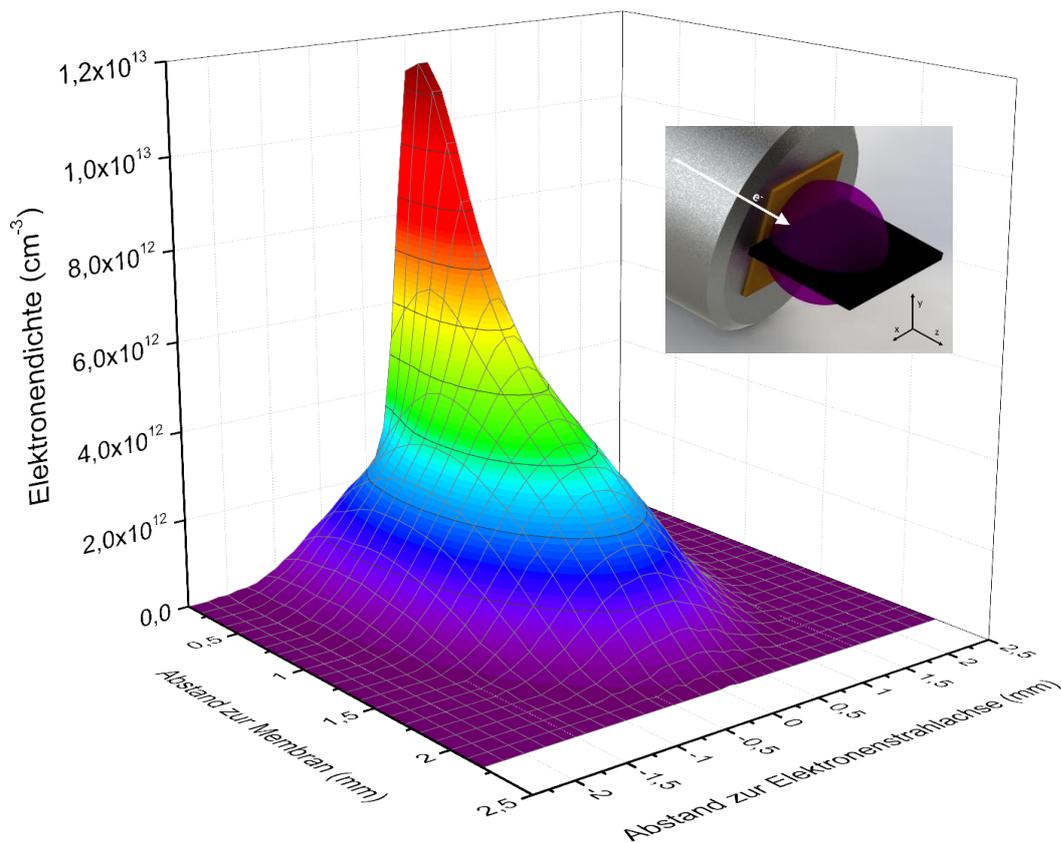


Abbildung 36 Ortsaufgelöste Darstellung der Elektronendichte in einer 0,5mm hohen Schicht in der Mitte des angeregten Volumens. Das eingefügte Schema zeigt die Lage dieser Schicht (**schwarz**) im angeregten Volumen (**violett**). Ebenso gezeigt ist die Siliziumnitridmembran (**braun**) durch die der Elektronenstrahl (**weißer Pfeil**) in das Gasvolumen eintritt. Die gezeigten Werte für die Elektronendichte beruhen auf den Simulationsergebnissen der Energiedeposition aus Abschnitt 4.2. Für eine detaillierte Beschreibung des Modells siehe Text.

4.6 Abschätzung der Elektronendichte mit Hilfe von zeitlich aufgelösten Messungen

Die im vorangegangenen Abschnitt beschriebene Methode zur Abschätzung der Elektronendichte eignet sich für die reine Elektronenstrahlanregung sehr gut. Für die in Kapitel 5 und 6 beschriebene Kombination mit Mikrowellenanregung, wie auch für die Radaranregung in Kapitel 7, ergeben sich jedoch gewisse Probleme. Ein Punkt ist die nur schwer zugängliche Elektronentemperatur T_e . Allerdings wäre hier keine große Abweichung zu erwarten, da T_e im Bereich weniger eV liegt und sich die Elektronendichte nach Gleichung 16 und 17 für diese Variation nur wenig ändert. Das größere Problem stellt die Produktionsrate freier Elektronen dar. Für die kombinierte Anregung ist diese noch dominiert durch die Elektronenstrahlanregung. Beim Übergang zur Entladung allerdings kann hier die Bildungsrate freier Elektronen (durch Emission an den Elektroden und Ionisierung im Gas) nicht aus den hier messbaren Größen abgeleitet werden. Alternative Methoden zur Bestimmung von Plasmaparametern, wie die Verwendung einer Langmuirsonde oder die Messung der Starkverbreiterung von Spektrallinien können in den hier beschriebenen Experimenten nicht angewendet werden. Eine Langmuirsonde könnte als Fremdkörper das sehr kleine Plasma für eine quantitative Messung zu stark beeinflussen und verändern. Die Starkverbreiterung von Spektrallinien trägt erst ab einer Elektronendichte von etwa 10^{15}cm^{-3} zu einem hier messbaren Anteil der Linienverbreiterung bei [51].

In diesem Abschnitt soll deshalb eine weitere Möglichkeit zur Abschätzung der Elektronendichte vorgestellt werden, welche rein auf der optischen Diagnostik beruht und bei den, in den folgenden Kapiteln beschriebenen, Entladungen angewendet werden kann. Die hier beschriebene Methode wurde in Referenz [57] bereits erfolgreich bei der Schwerionenstrahlanregung von Xenon verwendet. Hierzu wird bei einer gepulsten Anregung das zeitliche Verhalten des Rekombinationsleuchtens nach dem Anregungspuls genutzt, um auf die Elektronendichte zurückzuschließen. In Abbildung 37 ist die Lichtemission im 2. Kontinuum von Argon (126nm) bei gepulster Elektronenstrahlanregung (300 μA Pulsstrom, 20 μs Pulslänge, 100Hz Repetitionsrate) gezeigt. Zur Aufnahme des Zeitspektrums wurde der Photomultiplier im sog. Strommode betrieben (vgl. Abschnitt 3.2). Nach einer Anlaufphase von etwa 5 μs sättigt die Lichtemission. Die Pulslänge ist also so lange, dass sich ein Gleichgewicht, vergleichbar zur kontinuierlichen Anregung, einstellen kann. Nach dem Ende des Anregungspulses zeigt sich für etwa 30 μs ein deutliches Nachleuchten. In dieser Phase rekombinieren freie Elektronen mit Argonionen, wodurch auch nach dem Anregungspuls weiter Excimere gebildet werden, welche dann unter Lichtemission in den Grundzustand übergehen. Bei den Excimerzuständen gibt es, wie in Kapitel 2 beschrieben, einen kurzlebigen (4,2ns [19]) Singulettzustand und einen langlebigen (2,8 μs [23]) Triplettzustand. Durch die lange Lebensdauer des Triplettzustands wird die Auswertung, verglichen mit den Xenonmessungen aus Referenz [57], komplizierter. Bei Xenon sind beide Excimerlebensdauern deutlich kürzer als die auftretenden Rekombinationszeitkonstanten, wodurch man annehmen kann, dass durch Rekombination gebildete Excimere sofort nach ihrer Bildung unter Lichtemission zerfallen. Somit ist die Form des Nachleuchtens bei Xenon (zumindest in der Spätphase nach dem Anregungspuls) rein durch die Rekombination bestimmt. Bei Argon müssen die Lebensdauern aufgrund der vergleichbaren Größenordnung der Triplettlebensdauer zu den beobachteten Rekombinationszeitkonstanten im Bereich von Mikrosekunden in das Modell integriert werden.

Aus der Literatur ist bekannt, dass die beiden Zustände im Argon in etwa im Verhältnis 3:1 (Triplettsingulett, [19]) besetzt werden. Dies wiederum gilt jedoch nur für die Spätphase nach dem Puls, in der die Elektronen schon auf nahe Raumtemperatur abgekühlt sind. In der „heißen“ Frühphase nach dem Puls, in der auch die Elektronendichte noch vergleichsweise hoch ist, mischen die beiden Zustände noch verstärkt durch Stöße mit Elektronen [19]. Dieses Mischen zeigt sich im Zeitspektrum in Abbildung 37 in dem nach dem Anregungspuls zunächst schnellen Abfall der Lichtintensität, da die Excimere somit vermehrt über den schnellen „Singulett-Kanal“ zerfallen.

In der kalten Spätphase des Nachleuchtens kann das Mischen der Zustände vernachlässigt werden und das Besetzungsverhältnis von 3:1 angenommen werden. Unter Berücksichtigung der Lebensdauern kann somit die Abnahme der Lichtintensität numerisch modelliert werden (rote Kurve in Abbildung 37). Für die Besetzungsrate der Excimerzustände wird dabei die zeitliche Änderung der Elektronendichte aus Referenz [57] verwendet²²:

$$\frac{dn_e}{dt} = - \frac{c_{rec} \cdot n_{e,t_0,Modell}^2}{(1 + n_{e,t_0,Modell} \cdot c_{rec} \cdot t)^2} \quad (20)$$

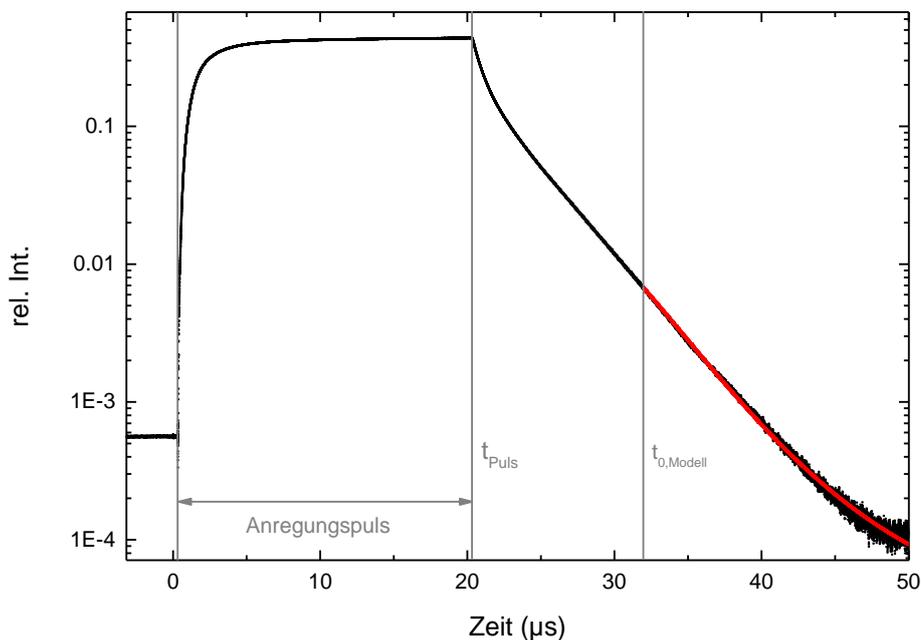


Abbildung 37 Zeitabhängige Lichtemission im 2. Kontinuum von 1bar Argon (126nm) bei gepulster Elektronenstrahlanregung (300μA Pulsstrom, 20μs Pulslänge, 100Hz Repetitionsrate). Die rote Kurve zeigt das Ergebnis einer Modellrechnung für die kalte Spätphase nach dem Anregungspuls (Details siehe Text).

²² Diese Veröffentlichung beschreibt das Vorgehen für Xenon. Die grundlegenden Prozesse sind für Argon allerdings die gleichen. Es wird dabei angenommen, dass jedes freie Elektron rekombiniert und durch jeden Rekombinationsprozess letztlich ein Excimer gebildet wird. Für das numerische Modell startet die Zeit t beim Zeitpunkt $t_{0,Modell}$.

Aufgrund der in der Spätphase bereits gekühlten Elektronen kann der Ratenkoeffizient für dissoziative Rekombination c_{rec} (vgl. Gleichung 17) als konstant angenommen werden. Die Besetzungsrate ist nach Gleichung 20 somit nur noch abhängig von der Elektronendichte $n_{e,t_0,Modell}$ zum Start der Modellrechnung bei $t_{0,Modell}$. Das Produkt aus Elektronendichte und Ratenkonstante kann dabei als charakteristische Rekombinationszeitkonstante T_{Rek} angesehen werden, welche über $n_{e,t_0,Modell}$ abhängig vom gewählten Startzeitpunkt $t_{0,Modell}$ ist:

$$T_{Rek} = \frac{1}{c_{rec} \cdot n_{e,t_0,Modell}} \quad (21)$$

Zusammen mit dem Abbau der Excimerzustände über den Singulett- und den Triplettkanal mit dem bekannten Besetzungsverhältnis und den bekannten Lebensdauern kann die Lichtintensität in der Spätphase nach dem Anregungspuls numerisch modelliert werden. Die Anfangsparameter für die Modellrechnung werden durch eine schrittweise Minimierung der quadratischen Abweichung von Modellwerten zu den gemessenen Werten ermittelt. Dadurch kann aus der Modellrechnung T_{Rek} und über Gleichung 20 die Elektronendichte $n_{e,t_0,Modell}$ zum Zeitpunkt $t_{0,Modell}$ bestimmt werden. Der Zeitpunkt $t_{0,Modell}$ wird nun schrittweise so weit nach vorne geschoben, bis das Modell aufgrund des einsetzenden Singulett-Triplett-Mixing und der höheren Elektronentemperatur beginnt zu versagen. Aus den Modellrechnungen, welche auch bei verschiedenen Startzeitpunkten in sich konsistent sind, wird die Elektronendichte in der Spätphase nach dem Anregungspuls abgeschätzt.

Wenn auch in der Frühphase nach dem Anregungspuls davon ausgegangen wird, dass jedes freie Elektron letztlich zu einer Excimerbildung führt, so ist die Lichtintensität im Nachleuchten näherungsweise proportional zur Änderung der Elektronendichte²³ [57]:

$$I(t) \sim -\frac{dn_e}{dt} \quad (22)$$

Da die Elektronendichte spät nach dem Anregungspuls letztlich gegen 0 geht, ist das Integral über das gesamte Rekombinationsleuchten ab dem Ende des Anregungspulses t_{Puls} proportional zur Elektronendichte zur Zeit t_{Puls}

$$\int_{t_{Puls}}^{\infty} I(t) dt \sim n_e(t_{Puls}) \quad (23)$$

und kann über den bekannten Wert $n_{e,t_0,Modell}$ zu Beginn der Modellrechnung abgeschätzt werden zu

$$n_e \approx 1 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-3} \quad (24)$$

²³ Im Fall von Argon ist dies wiederum aufgrund der langen Triplett-Lebensdauer nur als Näherung zu verstehen.

Eine zum vorigen Kapitel analoge Abschätzung für eine Anregung mit einem Elektronenstrom von $300\mu\text{A}$ über die bekannte Leistungsdeposition des Elektronenstrahls im Gas, nach Gleichung 16 und 17, führt ebenfalls zu einem Wert von etwa $1,0 \cdot 10^{13} \text{cm}^{-3}$. Eine solche Abschätzung ist grundsätzlich gerechtfertigt, da die Pulslänge so lange gewählt wurde, dass die Lichtintensität am Ende des Anregungspulses sättigt (vgl. Abbildung 37), sich also ein Gleichgewicht einstellen kann. Die konsistenten Ergebnisse der beiden verschiedenen Ansätze zur Abschätzung der Elektronendichte, bestätigen die Gültigkeit der ermittelten Größenordnung von etwa 10^{12}cm^{-3} bei einer kontinuierlichen Anregung mit einem Strahlstrom von einigen μA , bzw. von etwa 10^{13}cm^{-3} bei einer gepulsten Anregung mit einigen hundert mA (und ausreichend langer Pulsdauer).

Es sei noch erwähnt, dass eine zeitliche Betrachtung der atomaren Argonlinien, welche der Excimerbildung direkt vorangehen und welche eine deutlich schnellere Zeitkonstante aufweisen, einen direkteren Zugang (vergleichbar mit der Modellierung für Xenon [57]) zum Rekombinationsverhalten bieten würde. Dies ist jedoch in den hier beschriebenen Messungen aus zwei Gründen nicht möglich. Zum einen kann mit dem hier verwendeten Monochromator (Acton VM-502) der dafür notwendige rote bzw. nah-infrarote Wellenlängenbereich nicht vermessen werden. Zum anderen soll die gewählte Methode auch für die Messungen in Kapitel 5 bis 7 verwendet werden. Hier sind jedoch die atomaren Argonlinien mit einer breiten Kontinuumsstrahlung überlagert, was eine ungestörte Betrachtung der Zeitstruktur der Linienstrahlung nicht zulässt.

5 Kombinierte Elektronenstrahl- und Hochfrequenzanregung dichter Gase

Es wurde bereits mehrfach gezeigt [3, 13], dass mit Hilfe der Elektronenstrahlanregung von Edelgasen sehr effiziente VUV-Lichtquellen realisiert werden können. Bei der Firma excitech [17] findet diese Technik auch ihren Weg in die breitere wissenschaftliche und kommerzielle Nutzung. Die maximal erreichbare Lichtleistung wird dabei limitiert durch den begrenzten Strahlstrom, der durch die Siliziumnitridmembran geschickt werden kann (vgl. Abschnitt 3.1). Um die Intensität der Lichtquelle dennoch steigern zu können, wurde eine alternative Methode gesucht, um zusätzlich Leistung in das angeregte Volumen einkoppeln zu können. Der in dieser Arbeit beschriebene Ansatz ist die Kombination der Elektronenstrahlanregung mit einer 2,45GHz-Mikrowellenanregung. Die höchste Lichtausbeute wird erreicht, wenn mit Hilfe des Elektronenstrahls eine Mikrowellenentladung gezündet wird [60]. Diese Variante wird in Kapitel 6 ausführlich beschrieben.

In Kapitel 5 wird die Vorstufe zu dieser Entladungsform diskutiert, in der die Vorionisierung durch den Elektronenstrahl genutzt wird, um zusätzliche Mikrowellenleistung in das angeregte Volumen einkoppeln zu können, diese Leistung aber noch nicht ausreicht, um eine Entladung zu zünden bzw. aufrecht zu erhalten. Diese Betriebsart stellt eine neue Form der sogenannten „electron beam sustained discharge“ dar, welche vor allem in den 1970er Jahren dazu verwendet wurde, um Gaslaser zu pumpen [4-6]. Die wesentlichen Unterschiede sind zum einen, dass, wie bereits erwähnt, keine selbstständige Entladung gezündet wird, und zum anderen, dass die hier beschriebene Form kontinuierlich betrieben werden kann und nicht auf den Pulsbetrieb beschränkt ist. Wenngleich diese Anregungsform keine drastische Erhöhung der Lichtintensität erlaubt, so bietet sie dennoch eine sehr interessante Möglichkeit, physikalische Vorgänge in Niedertemperaturplasmen zu studieren. Teile der hier vorgestellten Ergebnisse sind auch in Referenz [61] zu finden.

Wie die Übersichtsspektren in Abbildung 38 zeigen, führt die zusätzliche Anregung zu zahlreichen Veränderungen in den Emissionsspektren, welche im Wesentlichen auf eine Erhöhung der Elektronen- und Gastemperatur zurückgeführt werden. Die Mikrowellenanregung ist jedoch in diesem Fall noch nicht in der Lage, ausreichend freie Elektronen nachzuliefern, um Rekombinationsverluste im Gas zu kompensieren und eine selbstständige Entladung zu zünden. Dies führt dazu, dass sich trotz der deutlich höheren eingekoppelten Leistung bei der kombinierten Anregung die Elektronendichte nicht wesentlich ändert. Im Folgenden werden die

beobachteten Veränderungen in den Emissionsspektren detailliert beschrieben und qualitativ auf die Änderungen der Plasmaparameter zurückgeführt. Dabei wird jeweils das spektrale Verhalten bei Variation des Elektronenstrahlstroms und der Mikrowellenleistung miteinander verglichen.

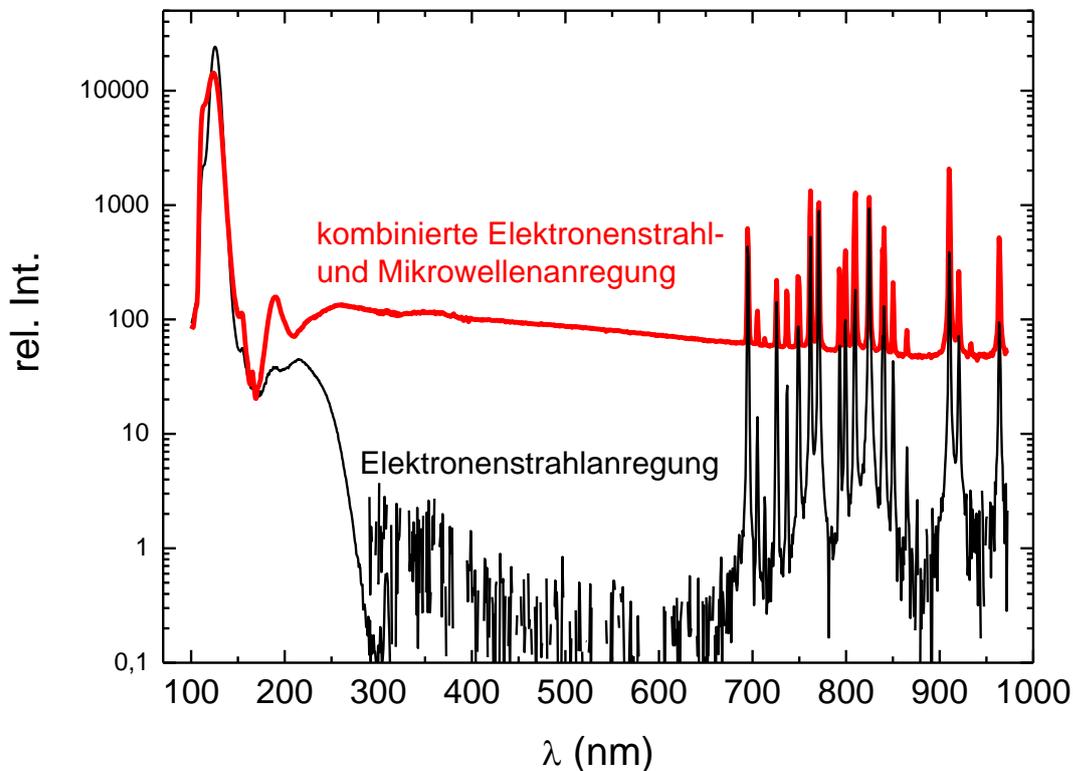


Abbildung 38 Übersichtsspektren zum Vergleich der reinen Elektronenstrahlanregung ($5\mu\text{A}$, **schwarze Kurve**) mit der kombinierten Elektronenstrahl- ($5\mu\text{A}$) und Mikrowellenanregung (5W , **rote Kurve**) von 1bar Argon. Die Spektren sind zusammengesetzt aus Messungen mit Monochromator und PMT im VUV-UV-Bereich und einem kompakten Gitterspektrometer im UV-VIS-IR-Bereich. Die Spektren wurden im Übergangsbereich bei etwa 300nm aufeinander skaliert. Die unterschiedlichen Anregungsmethoden zeigen zahlreiche Veränderungen der Lichtemission im gesamten beobachteten Spektralbereich von 100 bis 1000nm .

Abbildung 39 zeigt zwei Fotografien des leuchtenden Volumens bei den zwei verschiedenen Anregungsmethoden. Deutlich sichtbar sind sowohl die Farbunterschiede der Lichtemission, wie auch die Größe des leuchtenden Volumens. Dennoch reicht das leuchtende Volumen auch bei der kombinierten Anregung nicht bis zur Mikrowellenelektrode. Eine etwaige Elektroden-schicht fehlt (man sieht lediglich eine Reflexion an der Oberfläche der Aluminiumelektrode). Es sei deshalb nochmals betont, dass in diesem Fall keine selbstständige Mikrowellenentladung gezündet wurde. Dies bedeutet, dass die durch den Elektronenstrahl generierten freien Elektronen im Gasvolumen benötigt werden, um überhaupt Mikrowellenleistung einkoppeln zu können. Wird der Elektronenstrahl abgeschaltet, erlischt die gesamte Leuchterscheinung. In den folgenden Kapiteln werden die spektralen Unterschiede der beiden Anregungsformen unterteilt nach Wellenlängenbereichen diskutiert.

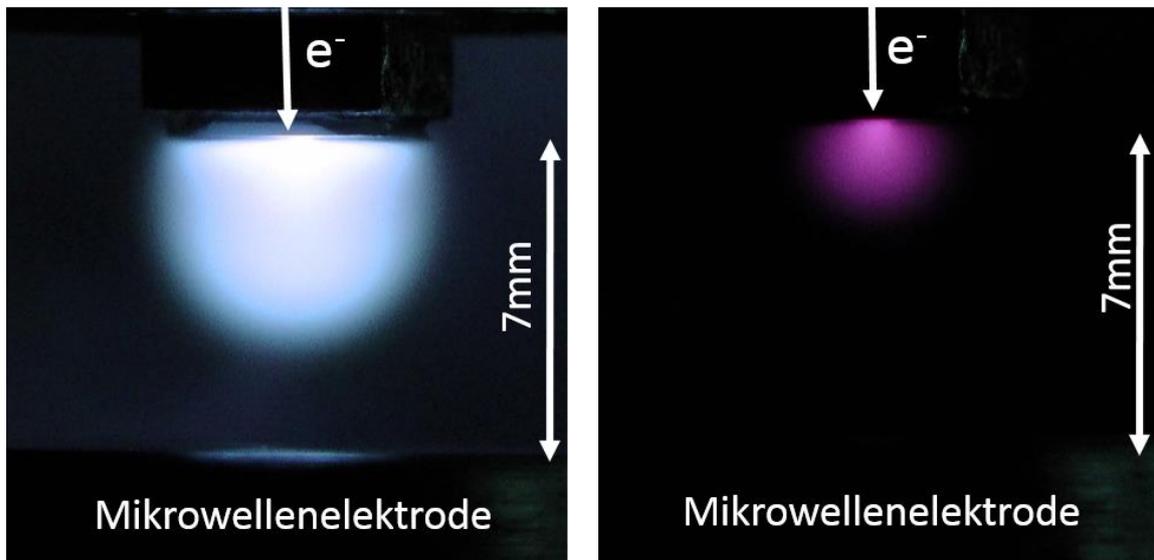


Abbildung 39 Zwei Fotografien des leuchtenden Volumens zum Vergleich der kombinierten Elektronenstrahl- ($5\mu\text{A}$) und Mikrowellenanregung (5W , **links**) mit der reinen Elektronenstrahlanregung ($5\mu\text{A}$, **rechts**) von 1bar Argon. Der Bildausschnitt ist in beiden Fällen der gleiche. Im linken Bild ist keine selbständige Mikrowellenentladung gezündet. Was an der unteren Elektrode wie eine helle Elektrodenschicht aussieht, ist lediglich eine Reflexion an der Oberfläche der Aluminiumelektrode.

5.1 Spektrales Verhalten im Bereich des 1. und 2. Excimerkontinuums

Die dominante Lichtemission im VUV-Bereich, die Excimerkontinua, zeigen ein sehr unterschiedliches Verhalten in Bezug auf die beiden verschiedenen Anregungsformen. Bei reiner Elektronenstrahlanregung steigt die Intensität von 1. und 2. Kontinuum (vgl. Kapitel 4.4) linear mit dem Elektronenstrahlstrom. Die Spektren sind auch in Abbildung 40 rechts nochmals gezeigt. Ein gänzlich anderes Verhalten lässt sich beobachten, wenn zu einem konstanten Elektronenstrahlstrom zusätzliche Mikrowellenleistung in das bereits angeregte Volumen eingekoppelt wird und diese Leistung schrittweise erhöht wird (Abbildung 40 links). Eine Erhöhung der Mikrowellenleistung führt in diesem Fall nicht zu einer Intensitätssteigerung, sondern zu einer Verschiebung vom 2. hin zum 1. Kontinuum. Die integrierten Werte über die in Abbildung 40 angedeuteten Bereiche für 1. und 2. Kontinuum ($107\text{-}115\text{nm}$ bzw. $123\text{-}131\text{nm}$) sind in Abbildung 41 gezeigt.

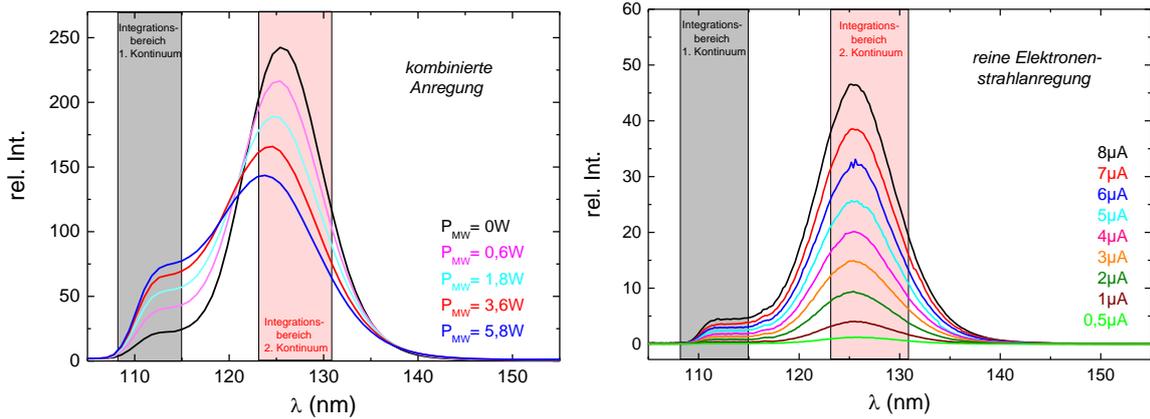


Abbildung 40 Vergleich des spektralen Verhaltens der Lichtemission im VUV-Bereich bei kombinierter Anregung (**links**) und reiner Elektronenstrahlanregung (**rechts**). Bei der kombinierten Anregung (**links**) wird ein konstanter Elektronenstrahl ($0,3\mu A$) genutzt um zusätzliche Mikrowellenleistung in das angeregte Volumen einkoppeln zu können und diese Leistung schrittweise zu erhöhen. Es zeigt sich eine Intensitätsverschiebung vom 2. zum 1. Kontinuum. Bei der reinen Elektronenstrahlanregung (**rechts**) steigt die Intensität beider Kontinua nahezu linear mit steigendem Elektronenstrahlstrom an.

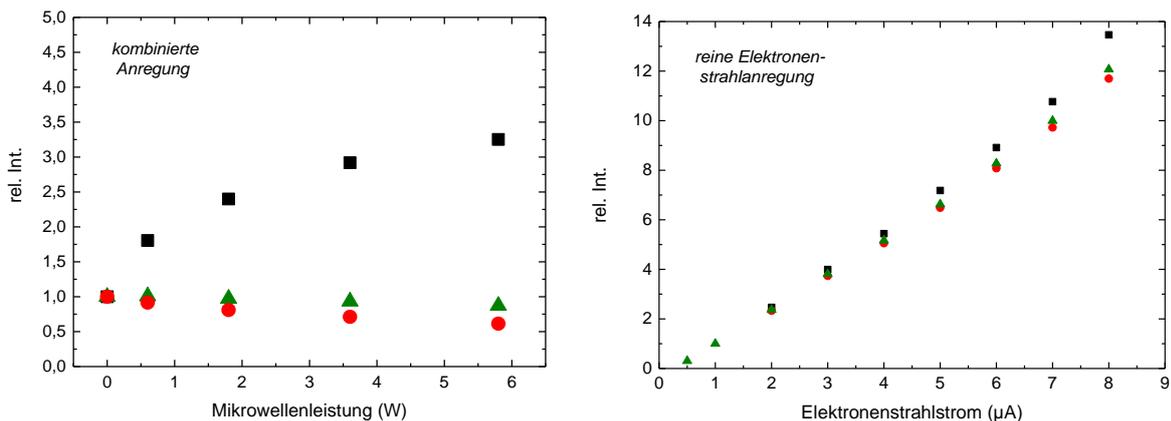


Abbildung 41 Intensitätsverlauf des 1. Kontinuums (**schwarze Quadrate**), des 2. Kontinuums (**rote Kreise**) und der Gesamtintensität unterhalb von 155nm (**grüne Dreiecke**) für kombinierte Anregung (**links**) und reine Elektronenstrahlanregung (**rechts**). Die Daten sind den Spektren aus Abbildung 40 entsprechend der dort angedeuteten Integrationsbereiche (1.Kont.: 107-115nm und 2.Kont.: 123-131nm) entnommen.

Abbildung 40 und Abbildung 41 zeigen sehr deutlich die unterschiedlichen Effekte der beiden Anregungsmethoden auf die Emissionsspektren und lassen darüber Rückschlüsse auf das Verhalten der Plasmaparameter zu. Trotz der deutlich höheren eingekoppelten Leistung im Fall der kombinierten Anregung steigt die Gesamtintensität im VUV-Bereich nicht an (vgl. Abbildung 41 links). Die Mikrowellenanregung ist demnach in diesem Fall zu schwach, um selbstständig Atome aus dem Grundzustand anzuregen oder sogar zu ionisieren. Das bedeutet, dass die Elektronendichte auch im Fall der kombinierten Anregung durch den Elektronenstrahlstrom bestimmt wird und somit im Wesentlichen unverändert bleibt. Eine Erhöhung der Elektronentemperatur mit steigender Mikrowellenleistung führt durch die, sich abschwächende, dissoziative Rekombination gemäß Gleichung 16 und 17 nur zu einer schwachen Erhöhung der Elektronendichte von etwa:

$$n_e \sim (T_e)^{0,3} \quad (25)$$

Dieser leichten Erhöhung mag das Hinzukommen eines weiteren Rekombinationsprozesses (Photorekombination, vgl. Abschnitt 5.3) entgegen wirken. Die Aufheizung des Gases führt zudem zu einer lokalen Verringerung der Gasdichte (vgl. Abschnitt 4.3) was ebenfalls einer Erhöhung von n_e entgegen wirkt. Diese Dichteverringern ist auch eine mögliche Ursache dafür, dass die Gesamtintensität in Abbildung 41 links sogar leicht abfällt²⁴ bzw. die Größe des leuchtenden Volumens in Abbildung 39 zunimmt. Ebenso werden erhöhte Absorptionsverluste an der kurzwelligen Seite des 1. Kontinuums durch Resonanzabsorption die Gesamtintensität im VUV-Bereich etwas verringern.

Auch der unterschiedliche Intensitätsgewinn von 1. und 2. Kontinuum mit steigendem Strom bei der reinen Elektronenstrahlanregung (Abbildung 41 rechts) lässt sich durch eine leicht erhöhte Gastemperatur erklären (vgl. Abschnitt 4.3). Dieser Effekt ist bei der zusätzlichen Einkopplung von Mikrowellenleistung sehr viel stärker ausgeprägt, wie Abbildung 40 und 41 verdeutlichen. Dies zeigt, dass die zusätzliche Mikrowellenanregung im Wesentlichen zu einer Erwärmung des angeregten Gasvolumens führt. Wie bereits in Abschnitt 4.4 beschrieben, führt dies zu einer Umbesetzung der angeregten Vibrationszustände der Excimermoleküle. Dadurch wird die Intensität im 1. Kontinuum erhöht²⁵ und die Intensität im 2. Kontinuum verringert (vgl. das Potentialdiagramm in Abbildung 2). Da die Mikrowellenleistung im Wesentlichen über freie Elektronen in das Gas eingekoppelt wird, zeigt sich in diesem Effekt auch der Anstieg der Elektronentemperatur.

Die hier beschriebene Kombination zweier verschiedener Anregungsmethoden zeichnet sich dadurch aus, dass die Plasmaparameter Elektronendichte und Temperatur (von Elektronen und Gas) nahezu unabhängig voneinander variiert werden können. Die Parameter sind zwar über die Rekombinationsrate (Gleichung 16, 17 bzw. 25) miteinander verknüpft, aber die wesentlichen Parameteränderungen können durch die Variation des Elektronenstrahlstroms (Elektronendichte) und der Mikrowellenleistung (Elektronen- und Gastemperatur) herbeigeführt werden.

5.2 Einfluss der Mikrowellenanregung auf das 3. Excimerkontinuum

Das 3. Excimerkontinuum ist in der grundsätzlichen Entstehung dem 2. Kontinuum ähnlich. Die zugehörigen optischen Übergänge sind im Potentialdiagramm jedoch den energetisch höherliegenden Molekülionen zuzuordnen. Der exakte Ursprung aller Komponenten des 3. Kontinuums ist jedoch noch nicht vollständig belegt. Verschiedene Forschergruppen beschäftigen sich seit geraumer Zeit mit dieser Thematik [62-66]. Die hier beschriebene Arbeit orientiert sich an der ausführlichen Studie aus Referenz [64], welche eine sehr gute Übereinstimmung zu den hier gewonnenen Ergebnissen liefert.

Das 3. Kontinuum von Argon liegt im Wellenlängenbereich zwischen 170 und 280nm. Abbildung 42 zeigt eine Messserie in 1bar Argon mit reiner Elektronenstrahlanregung bei verschiedenen

²⁴ Der Detektor sieht stets nur den gleichen Ausschnitt des leuchtenden Volumens.

²⁵ Ebenso steigt die Intensität des LTP (vgl. Kapitel 2), was allerdings nur in einer logarithmischen Darstellung der Spektren zu sehen ist.

Strahlströmen. Die Daten entstammen derselben Messreihe wie die Spektren des 1. und 2. Kontinuums in Abschnitt 4.4. Die integrierten Werte von 170 bis 280nm in Abbildung 42 rechts steigen wie auch die Summe aus 1. und 2. Kontinuum proportional zum Elektronenstrahl an.

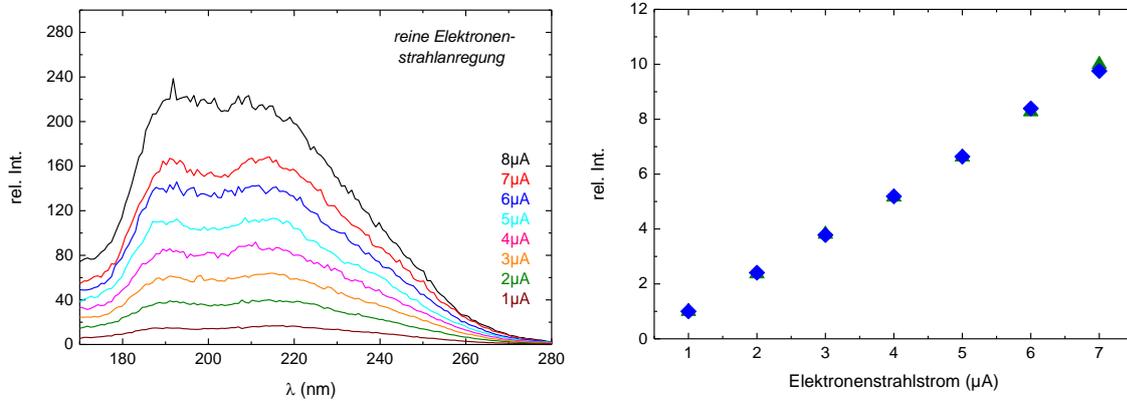


Abbildung 42 Spektrales Verhalten des 3. Excimerkontinuums in 1bar Argon bei reiner Elektronenstrahlanregung mit verschiedenen Strahlströmen (links). Wellenlängenintegrierte Werte (170 bis 280nm) des 3. Kontinuums (rechts, blaue Rauten) zeigen die gleiche Abhängigkeit vom Elektronenstrahlstrom wie die Summe aus 1. und 2. Kontinuum (grüne Dreiecke, vgl. Abbildung 41).

Wird nun analog zum vorigen Kapitel bei konstantem Strahlstrom zusätzlich Mikrowellenleistung eingekoppelt und schrittweise erhöht (Abbildung 43 links), so kann, wie schon bei 1. und 2. Kontinuum, eine Intensitätsverschiebung zwischen verschiedenen Komponenten des 3. Kontinuums beobachtet werden. Eine mögliche Erklärung hierfür liefert die Studie aus Referenz [64]. Alle beobachteten Komponenten des 3. Kontinuums werden dabei einer Kaskade von verschiedenen Molekülonen und Clustern zugeordnet, welche in Abbildung 43 rechts gezeigt ist.

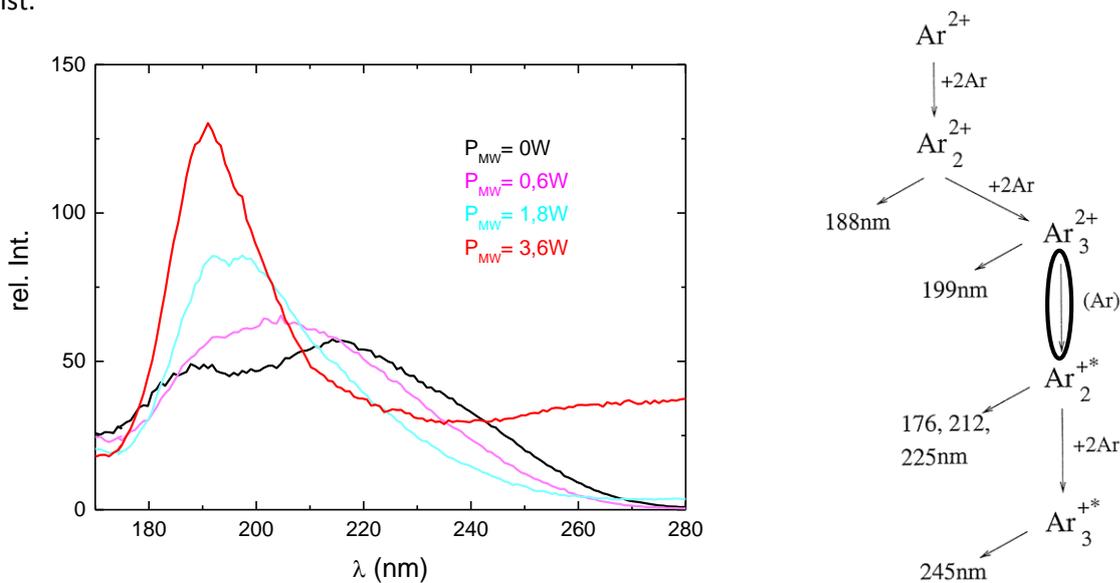


Abbildung 43 Spektrales Verhalten des 3. Excimerkontinuums in 1 bar Argon bei konstantem Elektronenstrahlstrom in Kombination mit Mikrowellenanregung verschiedener Leistung (links). Deutlich zu erkennen ist eine Intensitätsverschiebung zwischen den einzelnen Komponenten des 3. Kontinuums (Details siehe Text). Das rechte Bild zeigt die Kaskade aus Referenz [64], welche eine gute Erklärung für die einzelnen Komponenten liefert. Der Rekombinationsprozess ist mit einer schwarzen Ellipse gekennzeichnet.

Gemäß Referenz [64] sind die Komponenten mit Mittenwellenlänge 188nm und 199nm doppelt ionisierten Molekülonen zuzuordnen, wohingegen die restlichen bei 176nm, 212nm, 225nm und 245nm Emissionen einfach geladenen Molekülonen zuzuordnen sind. Geht man davon aus, dass die Spektren in Abbildung 43 links aus all diesen Komponenten zusammengesetzt sind, so lässt sich mit der Einkopplung der Mikrowellenleistung eine klare Intensitätsverschiebung von einfach zu doppelt ionisierten Molekülonen beobachten. Lässt man den Anstieg bei der 3,6W Messung zu langen Wellenlängen hin außer Acht²⁶, so lässt sich bei allen einfach ionisierten Komponenten (176nm, 212nm, 225nm und 245nm) eine Intensitätsabnahme mit steigender Mikrowellenleistung beobachten, wohingegen die Anteile doppelt ionisierter Moleküle (188nm und 199nm) einen deutlichen Intensitätsanstieg aufweisen. Diese Beobachtung deutet darauf hin, dass der Rekombinationsprozess in der Kaskade (schwarze Ellipse in Abbildung 43 rechts) mit steigender Mikrowellenleistung zunehmend unterdrückt wird. Darin spiegelt sich wiederum die steigende Elektronentemperatur wieder, welche dem dissoziativen Rekombinationsprozess (vgl. Gleichung 17) entgegenwirkt. Durch die unterdrückte Rekombination liegen die Moleküle länger in doppelt ionisierter Form vor und können zu den entsprechenden optischen Übergängen bei 188nm und 199nm beitragen. Die Gesamtintensität bleibt (wie schon bei 1. und 2. Kontinuum im vorigen Abschnitt) auch bei steigender Mikrowellenleistung unverändert. Dies zeigt einmal mehr, dass die Mikrowellenanregung in diesem Fall zu schwach ist, um doppelt ionisierte Atome oder Moleküle zu produzieren. Diese werden nur durch den Elektronenstrahl gebildet und die Besetzung der Energiezustände wird durch die Mikrowellenanregung lediglich umverteilt.

5.3 UV-VIS-IR Kontinuum

Bei der kombinierten Anregung taucht eine zusätzliche Struktur im Spektrum auf, welche bei der reinen Elektronenstrahlanregung bislang nicht beobachtet werden konnte. Es handelt sich hierbei um eine spektral sehr breite Kontinuumsstrahlung, die sich vom UV Bereich über den sichtbaren bis in den NIR Bereich erstreckt (siehe Abbildung 44). Um die in Abbildung 44 gezeigten Spektren aufzunehmen, wurde die Elektronenquelle bei einem möglichst geringen Strom ($< 0,1\mu\text{A}$)²⁷ betrieben. Dadurch konnte eine besonders hohe Intensität dieses Kontinuums erreicht werden, ohne eine selbstständige Mikrowellenentladung zu zünden. Wie im vorigen Kapitel bereits angedeutet und in Abbildung 43 zu sehen, überlappt dieses UV-VIS-IR-Kontinuum im UV Bereich unterhalb von etwa 280nm mit dem 3. Excimerkontinuum.

Eine derartige Kontinuumsstrahlung kann im Prinzip zwei Mechanismen zugeordnet werden (vgl. Kapitel 2): Bremsstrahlung und/oder Photorekombination. Bei der Bremsstrahlung werden freie Elektronen im Feld von Atomen oder Ionen abgebremst und geben dabei einen Teil ihrer Energie ab (frei-frei). Bei der Photorekombination werden die Elektronen von Ionen eingefangen, wobei sich das entstehende angeregte Atom bzw. Molekül direkt über einen optischen Übergang in einen niedriger angeregten Zustand abregt (frei-gebunden). Bei diesem Prozess trägt das Photon

²⁶ Diese Annahme ist gerechtfertigt, da der langwellige Anteil dem UV-VIS-IR Kontinuum zuzuschreiben ist, welches in Abschnitt 5.3 beschrieben wird, und welches in diesem Wellenlängenbereich dem dritten Kontinuum überlagert ist.

²⁷ In diesem Bereich erlaubt das Netzteil der Elektronenquelle keine quantitative Messung.

nahezu die gesamte kinetische Energie des Elektrons plus die Energiedifferenz der beteiligten Energieniveaus. Die beiden angesprochenen Prozesse werden seit langem ausführlich untersucht, sind aber immer noch Gegenstand aktueller Forschung (vergleiche beispielsweise Referenzen [24-30]). Beide Prozesse sind in Abbildung 45 nochmals schematisch dargestellt.

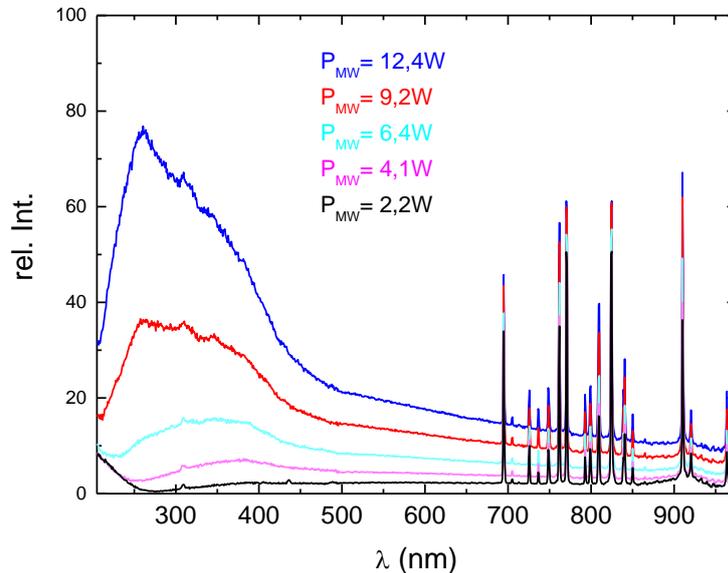


Abbildung 44 UV-VIS-IR-Kontinuum bei verschiedenen Mikrowellenleistungen. Die Elektronenquelle wurde mit einem Strom unterhalb des messbaren Limits von $0,1\mu\text{A}$ betrieben um den Effekt der Mikrowellenanregung möglichst deutlich zu zeigen, ohne dabei eine selbstständige Mikrowellenentladung zu zünden.

Im Prinzip kann das UV-VIS-IR Kontinuum eine Kombination beider Mechanismen sein, wobei die jeweiligen Anteile dabei in Abhängigkeit von den Plasmaparametern stark variieren können. In dieser Arbeit werden einige Hinweise darauf gegeben, dass bei den hier verwendeten Anregungsmethoden dieses Kontinuum stark durch Photorekombination dominiert ist.

Bereits die relativ niedrige Elektronentemperatur in den hier beschriebenen Experimenten (Größenordnung 1eV [31]) verglichen mit einer Photonenenergie von etwa 5eV im Maximum des Kontinuums (bei etwa 260nm) deutet darauf hin, dass dieses Kontinuum durch Photorekombination dominiert ist. Argon Molekülonen rekombinieren dabei mit freien Elektronen unter Aussendung eines Photons in unterschiedliche Vibrationsniveaus verschiedener Excimerzustände. Maximal sind durch die Energiedifferenz der Anregungszustände 4eV zu erklären (vergleiche Abbildung 45)²⁸. Die zum Maximum der Emission fehlende Energie der Größenordnung 1eV (vgl. Simulation in Referenz [31]) wird dabei durch die kinetische Energie des Elektrons zu Verfügung gestellt. Grundsätzlich besitzt auch bei niedrigen Elektronentemperaturen eine gewisse Anzahl der Elektronen eine Energie von mindestens 5eV (Boltzmannverteilung). Gerade für die Elektronen der Elektronenstrahlanregung mit einer Primärenergie von ca. 10keV trifft dies zu. Allerdings wurde dieses Kontinuum bislang nicht für reine Elektronenstrahlanregung beobachtet, was in Abbildung 46 verdeutlicht wird.

²⁸ Dies gilt für den hier beobachteten Wellenlängenbereich. Ein Photrekombinationsübergang in den Grundzustand wäre energetisch im VUV-Bereich anzusiedeln.

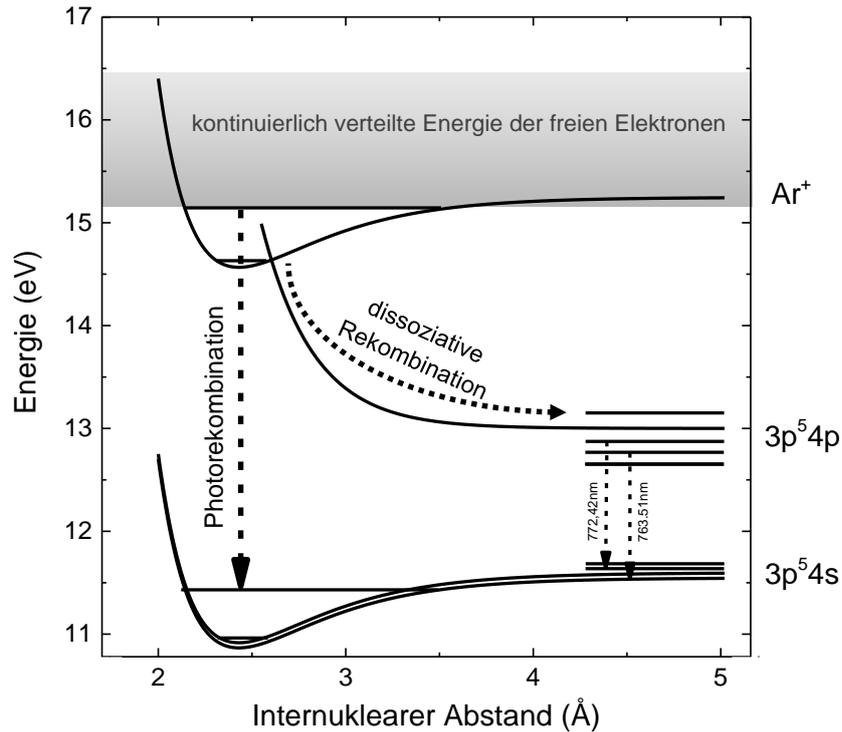


Abbildung 45 Ausschnitt aus dem schematischen Potentialdiagramm aus Abbildung 2. Verdeutlicht werden sollen die beiden möglichen Rekombinationspfade über Photorekombination und dissoziative Rekombination. Die graue Schattierung gibt die Energie des an der Rekombination beteiligten Elektrons an, welche die Energie eines Photorekombinationsphotons weiter erhöhen kann.

Abbildung 46 links zeigt ein Spektrum, aufgenommen bei reiner Elektronenstrahlanregung mit einem hohen Strahlstrom von $8\mu\text{A}$, sowie ein Spektrum bei kombinierter Anregung mit niedrigem Strahlstrom und niedriger Mikrowellenleistung. Im kombinierten Fall ist selbst bei einer relativ geringen eingekoppelten Leistung von etwa 1 Watt das UV-VIS Kontinuum stark ausgeprägt. Bei reiner Elektronenstrahlanregung kann es auch mit einer langen Integrationszeit (hier 10s) nicht beobachtet werden. Auch eine Erweiterung des Messbereichs bis in den Infrarotbereich bis $3,5\mu\text{m}$ zeigt keine derartige Emissionsstruktur (siehe Abbildung 46 rechts). Unter Berücksichtigung der simulierten Elektronentemperatur für die reine Elektronenstrahlanregung Referenz [31] ist dies ein starkes Argument gegen einen zugrundeliegenden Bremsstrahlungsprozess.

Unabhängig von der Art des Kontinuums, zeigt es die Erhöhung der Elektronentemperatur mit steigender Mikrowellenleistung. Mit steigender Leistung schiebt das Maximum des Kontinuums hin zu kürzeren Wellenlängen und somit zu höheren Energien. Da die kinetische Energie der Atome bzw. Moleküle nicht wesentlich zur Lichtemission beiträgt (dies gilt sowohl für Bremsstrahlung wie auch für Photorekombination), zeigt auch das UV-VIS-IR-Kontinuums die mit zunehmender Mikrowellenleistung steigende Elektronentemperatur.

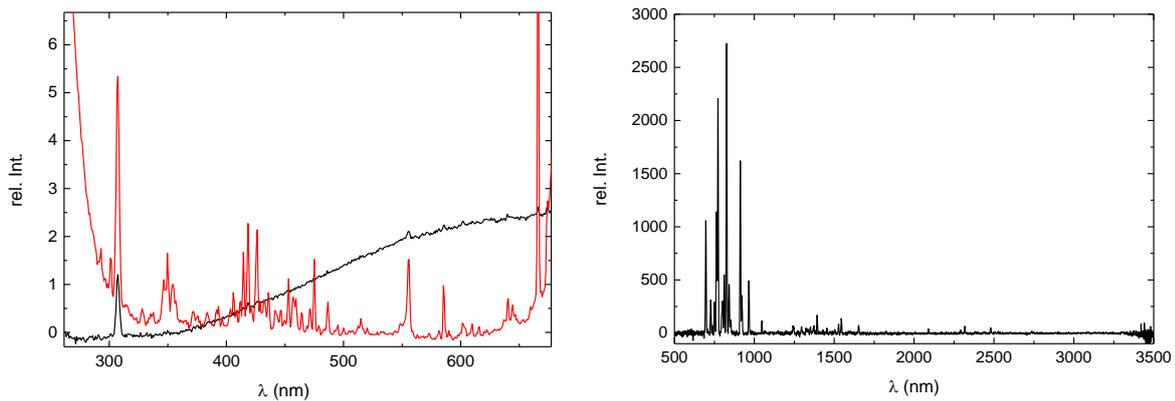


Abbildung 46 Links: Vergleich zweier Spektren bei reiner Elektronenstrahlanregung mit hohem Strahlstrom ($8\mu\text{A}$, rot) und bei kombinierter Anregung mit geringem Strahlstrom von $0,5\mu\text{A}$ in Kombination mit einer Mikrowellenleistung von etwa 1W (schwarz). Selbst bei hohem Strahlstrom und langer Integrationszeit von 10s ist das UV-VIS-IR Kontinuum bei reiner Elektronenstrahlanregung nicht zu beobachten. Rechts: Spektrum von $1,3\text{bar}$ Argon, aufgenommen bei reiner Elektronenstrahlanregung in einem, dem in dieser Arbeit beschriebenen, ähnlichen Messaufbau. Der messbare Spektralbereich ist durch die Verwendung einer InAs-Photodiode bis $3,5\mu\text{m}$ erweitert. Auch in diesem Wellenlängenbereich ist keine Kontinuumstrahlung zu beobachten.

Es mag verwunderlich sein, dass ein Photorekombinationskontinuum bei reiner Elektronenstrahlanregung nicht zu beobachten ist. Eine mögliche Erklärung hierfür soll im Folgenden gegeben werden. Der Ausgangspunkt für die Photorekombination sind ionisierte Argonatome und -moleküle. Im dichten Argongas bei Atmosphärendruck niedriger Temperatur, wie es bei der Elektronenstrahlanregung vorliegt, werden überwiegend Argonmolekülonen [24] in tief liegenden Vibrationsniveaus vorliegen (analog zum 2. Kontinuum). In diesem Fall sollte die dissoziative Rekombination (angedeutet durch die repulsive Potentialkurve in Abbildung 45, welche die Ar^+ -Zustände mit den 4p -Zuständen verbindet) der dominante Rekombinationsprozess sein.²⁹ Eine zusätzliche Mikrowellenanregung führt, wie schon in Abschnitt 5.1 beschrieben, zu einer Umverteilung der angeregten Molekülzustände hin zu höher liegenden Vibrationsniveaus. Dies kann das Gleichgewicht der Rekombinationsprozesse weg von der dissoziativen hin zur Photorekombination verschieben, weshalb dieses Kontinuum nur bei zusätzlicher Mikrowellenanregung (und der Entladung, siehe Kapitel 6) beobachtet wird.

Um die Zeitstruktur dieses Kontinuums zu untersuchen, wurden sowohl der Elektronenstrahl als auch die Mikrowellenleistung gepulst betrieben. Die Elektronenquelle wurde mit einer Pulslänge von $20\mu\text{s}$ betrieben (siehe Abbildung 47 oben). Mit dem Triggersignal des Netzteils wurde über einen Pulsgenerator die Steuerspannung des Mikrowellengenerators ebenfalls gepulst betrieben. Der Generator ist zwar nicht für eine schnelle Pulsung ausgelegt (siehe Zeitstruktur in Abbildung 47 oben), aber für eine qualitative Analyse reicht dieser Aufbau sehr gut aus. Das zugehörige Zeitspektrum bei 390nm ist in Abbildung 47 unten gezeigt. 390nm wurde als Wellenlänge gewählt, da dort einerseits das Detektorsystem noch eine ausreichende Sensitivität aufweist und andererseits eine verhältnismäßig niedrige Intensität durch Linienstrahlung vorliegt (vgl. Abbildung 46). Obwohl die Spalte des Monochromators auf das Maximum von 2mm geöffnet

²⁹ Es sei hierbei nochmals erwähnt, dass dies, aufgrund des Fehlens für Photorekombinationskoeffizienten für Argonmoleküle in der Literatur, nicht quantitativ belegt werden kann, es allerdings durch die hier vorgestellten Messergebnisse angedeutet wird.

wurden, reicht die Lichtintensität nur knapp aus, um den Photomultiplier im Strommode (vgl. Abschnitt 3.2) betreiben zu können. Die Daten wurden deshalb geglättet, um die Zeitstruktur besser sichtbar zu machen. Deutlich zu erkennen ist, dass mit dem Einschalten der Mikrowellenleistung auch die Lichtintensität deutlich ansteigt. Die schwache Intensität zwischen 0 und 7 μs , also bei reiner Elektronenstrahlanregung ist vermutlich auf atomare Linienstrahlung zurückzuführen. Da die Auflösung des Detektorsystems bei den weit geöffneten Monochromatorspalten nur ca. 8nm beträgt, wird bei dieser Messung ein sehr breiter Wellenlängenbereich akzeptiert. Wie in Abbildung 46 zu sehen, tritt bei hohen Strahlströmen in diesem Bereich auch atomare Linienstrahlung auf. Da im Puls der Elektronenstrahlstrom ca. 0,5mA betrug, ist davon auszugehen, dass sich hier auch im Zeitspektrum in Abbildung 47 die Linienstrahlung zeigt. Sobald der Mikrowellenpuls hinzukommt, dominiert jedoch das UV-VIS-IR Kontinuum. Das Kontinuum verläuft auf dieser Zeitskala prompt mit dem Anregungspuls. Insbesondere die Abnahme der Lichtintensität nach Pulsende zeigt die gleiche Zeitstruktur wie der Mikrowellenanregungspuls. Dies zeigt, dass mit dem Abschalten der „Heizleistung“ die Elektronen und das Gas sehr schnell abkühlen³⁰. Bezüglich der Photorekombination bedeutet dies, dass bereits kurz nach dem Mikrowellenpuls die dissoziative Rekombination wieder als Rekombinationsprozess dominiert.

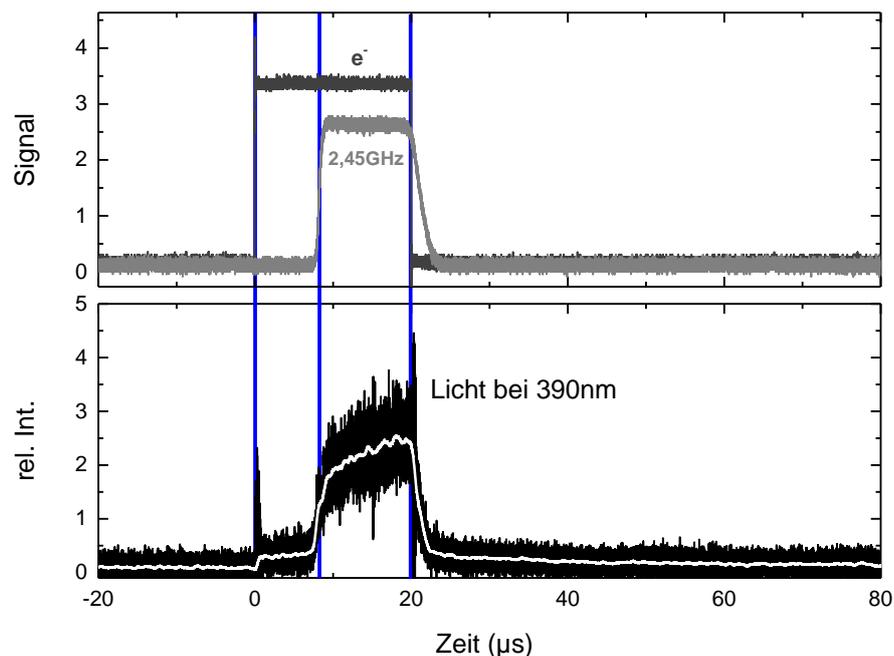


Abbildung 47 Zeitstruktur des UV-VIS-IR Kontinuums bei 390nm (unten). Die Daten (schwarz) wurden geglättet (weiße Kurve) um den zeitlichen Verlauf besser sichtbar zu machen. Die zugehörigen Anregungspulse von Elektronenstrahl (dunkelgrau) und Mikrowelle (hellgrau) sind oben gezeigt. Die Intensität bei reiner Elektronenstrahlanregung (ca. 0-7 μs) ist auf atomare Linienstrahlung zurückzuführen.

Ein sehr gutes Unterscheidungskriterium zwischen Bremsstrahlung und Photorekombination ist das Intensitätsverhalten in Abhängigkeit von der Elektronendichte. Bei der Bremsstrahlung unter den hier herrschenden Parametern dominieren Stöße von Elektronen mit neutralen Atomen [24].

³⁰ Diese Aussage gilt sowohl für ein Photorekombinations- wie auch für ein Bremsstrahlungskontinuum.

Somit ist ein linearer Zusammenhang zwischen Intensität und Elektronendichte n_e zu erwarten. Für die Photorekombination ist ein Stoß zwischen einem Elektron und einem Ion notwendig. Da Elektronendichte und Ionendichte nahezu gleich sind (vgl. Abschnitt 4.5), ist in diesem Fall die Lichtintensität proportional zu n_e^2 . Eine Variation der Elektronendichte kann in dem hier beschriebenen Aufbau sehr leicht durch die Variation des Elektronenstrahlstroms I_{e^-} erreicht werden. Wie in den Abschnitten 4.4 und 4.5 beschrieben gilt:

$$n_e^2 \sim I_{e^-} \quad (26)$$

Wird zugleich die Generatorleistung der Mikrowelle konstant gehalten, bleibt die Elektronentemperatur im Wesentlichen unverändert. Da im Mikrowellengenerator die Ausgangsleistung über die Spannungsamplitude bestimmt ist, bleibt das elektrische Wechselfeld im angeregten Volumen unverändert. Mit variierender Elektronendichte ändert sich zwar die insgesamt eingekoppelte Leistung, aber die pro Elektron deponierte Leistung ist gleich. Somit ist über die gesamte Messserie von einer konstanten Elektronentemperatur auszugehen. Das Intensitätsverhalten des UV-VIS-IR Kontinuums bei variiertem Elektronenstrahlstrom ist in Abbildung 48 dargestellt. Es zeigt sich ein nahezu perfekter linearer Zusammenhang zwischen Strahlstrom und Intensität des Kontinuums. Mit Gleichung 26 folgt damit eine Proportionalität der Lichtintensität zu n_e^2 . Das hier beobachtete Kontinuum ist also sehr wahrscheinlich dominiert durch Photorekombination.

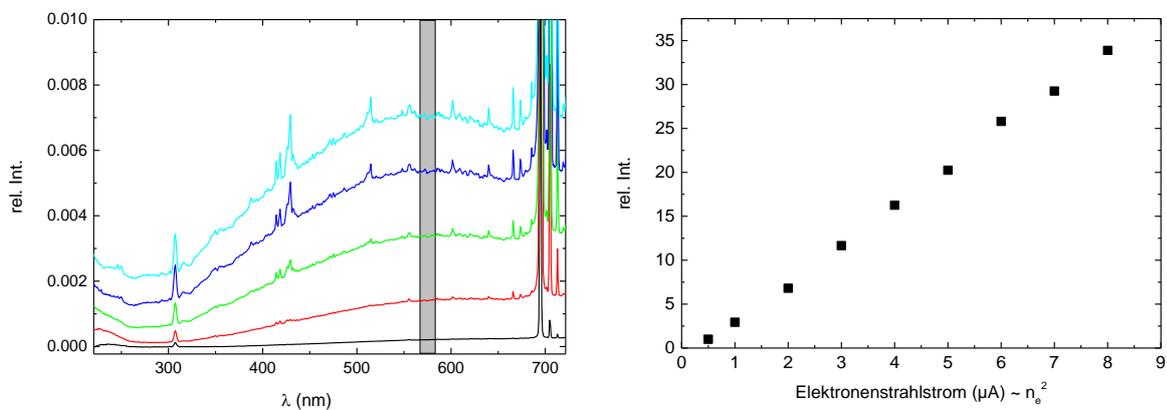


Abbildung 48 Spektrales Verhalten des UV-VIS-IR Kontinuums bei kombinierter Anregung von 1 bar Argon für verschiedene Elektronenstrahlströme (*links*). Die Generatorleistung der Mikrowelle lag konstant bei 5,2W. Die Werte *rechts* wurden durch Integration über den links grau hinterlegten Bereich zwischen 570 und 580nm gewonnen. Das Kontinuum zeigt eine lineare Abhängigkeit vom Strahlstrom und ist somit proportional zu n_e^2 (siehe Text).

5.4 Atomare Linienstrahlung im sichtbaren und NIR-Bereich

5.4.1 Relative Linienintensitäten

Linienintensitätsverhältnisse können als Messgröße zur Bestimmung von Plasmaparametern verwendet, beispielsweise anhand von Emissionslinien einer kleinen Beimengung von Wasserstoff. Diese Variante kann in den hier beschriebenen Messungen nicht verwendet werden, da für eine intensive VUV-Emission der Edelgase Verunreinigungen gerade vermieden werden

sollen. Somit stehen nur die reinen Argon-Emissionslinien als Messgröße zu Verfügung. Auch mit Hilfe dieser Linien können prinzipiell Plasmaparameter bestimmt werden. Allerdings ist es hier von Vorteil, die relativen Intensitäten von verschiedenen Liniengruppen zu vergleichen, deren Energieniveaus weit auseinanderliegen (4p-Niveaus, 3d-Niveaus, ...). Eine unterschiedliche Besetzung dieser Niveaus lässt in Abhängigkeit vom Energieabstand zu den tieferliegenden Niveaus (4s-Niveaus bzw. Grundzustand) Rückschlüsse auf die Elektronentemperatur zu (bei bekannter Elektronendichte).

In dem hier beschriebenen Aufbau sind mit der reinen Elektronenstrahlanregung bzw. der kombinierten Anregung lediglich die stärksten Argonübergänge (4p nach 4s) gut zu beobachten. Der Effekt der unterschiedlich starken Besetzung der 4p-Niveaus in Abhängigkeit von der Elektronentemperatur ist hier nur von untergeordneter Bedeutung. Viel stärker zu beobachten ist eine Umbesetzung innerhalb der 4p-Niveaus durch Stoßprozesse in Abhängigkeit von der Gastemperatur. Dieser Effekt soll im Folgenden qualitativ beschrieben werden.

Abbildung 49 zeigt zunächst das Verhalten der Lichtemission bei reiner Elektronenstrahlanregung von 1bar Argon. Die linke Abbildung stellt einen Ausschnitt aus den, mit dem Gitterspektrometer mit geringer Auflösung aufgenommenen, Spektren dar. Gezeigt sind die beiden benachbarten Spektrallinien bei 763,51nm und 772,42nm in Abhängigkeit vom Elektronenstrahlstrom. Die Ausgangsniveaus der beiden Linien sind zwei verschiedene 4p-Niveaus (763,51nm: $4p[3/2]_2$ (13.17eV) und 772,42nm: $4p[1/2]_1$ (13.33eV) [67] in Racah Notation [20]). Beide Linien zeigen ein sehr ähnliches Verhalten mit steigendem Strahlstrom. Die integralen Werte über beide Linien sind zusammen mit den Ergebnissen der vorigen Kapitel in Abbildung 49 rechts dargestellt. Beide Linien zeigen, ebenso wie die Excimerkontinua, eine lineare Abhängigkeit vom Elektronenstrahlstrom.

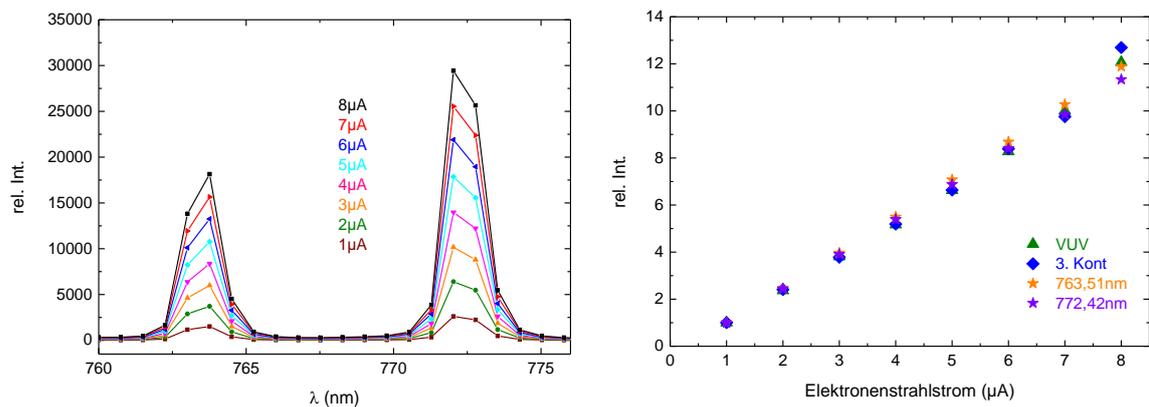


Abbildung 49 Links: Verhalten der beiden atomaren Argonlinien (763,51nm und 772,42nm) in Abhängigkeit vom Elektronenstrahlstrom in 1bar Argon. Rechts: Integrale Werte der 763,51nm und der 772,42nm Linie im Vergleich zu den Ergebnissen der VUV-Emission und des 3. Excimerkontinuums aus den vorigen Kapiteln.

Derselbe Spektralbereich ist in Abbildung 50 links bei kombinierter Anregung von 1bar Argon dargestellt. Der Elektronenstrahlstrom wurde konstant bei 0,3µA belassen und die zusätzlich eingekoppelte Mikrowellenleistung schrittweise erhöht. Wie in den vorigen Abschnitten bereits diskutiert ist die Mikrowellenanregung selbst nicht in der Lage, Atome aus dem Grundzustand

heraus anzuregen. Der beobachtete Intensitätsanstieg ist also auf eine erneute Anregung mancher Atome aus den 4s-Niveaus in die 4p-Niveaus zurückzuführen. Der sehr unterschiedliche Verlauf der beiden Linienintensitäten in Abhängigkeit von der Mikrowellenleistung (integrale Werte sind in Abbildung 50 rechts dargestellt) kann jedoch nicht alleine auf die unterschiedliche Lage der beteiligten Energieniveaus zurückgeführt werden. Der Energieunterschied der beiden den Linien zugehörigen 4p-Niveaus beträgt mit 0,16eV lediglich 10% der notwendigen Anregungsenergie aus den 4s-Niveaus. Die Intensität der 763,51nm-Linie wird mit steigender Mikrowellenleistung auf das 2,5-fache verstärkt. Die 772,42nm-Linie, welche vom 10% niedriger liegenden Energieniveau (bezogen auf die notwendige Anregungsenergie aus den 4s-Niveaus) ausgeht, zeigt eine nahezu konstante Intensität. Dieses stark unterschiedliche Verhalten ist rein mit einer der Elektronentemperatur proportionalen Besetzung der unterschiedlich hoch liegenden Energieniveaus nicht zu begründen. Darüber hinaus zeigen weitere Argonlinien, welche Energieniveaus angehören, die zwischen den beiden gezeigten liegen, eine noch höhere Verstärkung als die 763,51nm-Linie, was einer derartigen Systematik widerspricht.

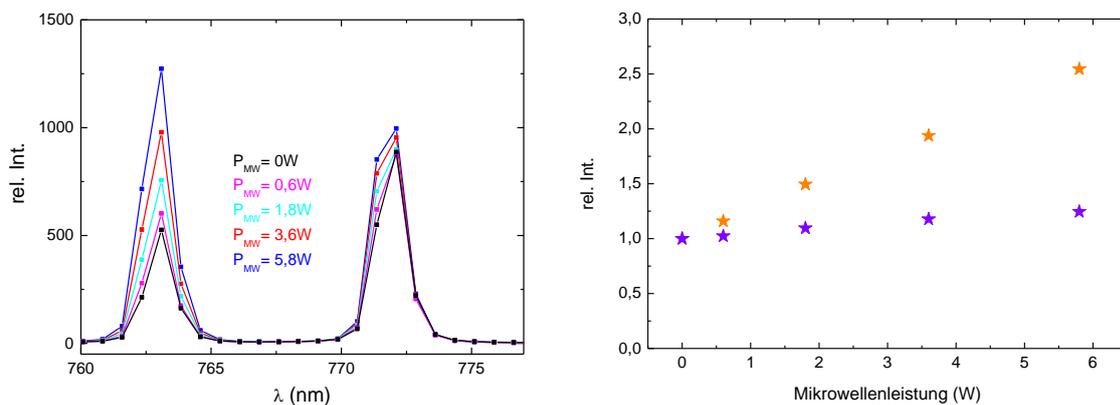


Abbildung 50 Links: Verhalten der beiden atomaren Argonlinien (763,51nm und 772,42nm) in Abhängigkeit von der Mikrowellenleistung bei kombinierter Anregung von 1bar Argon. Rechts: Integrale Werte der beiden Linien.

Noch deutlicher zeigt sich der unterschiedliche Intensitätsverlauf der atomaren Argonlinien, wenn die 772,42nm Linie mit dem hochauflösenden Echellespektrometer analysiert wird. Ein solches Spektrum ist in Abbildung 51 gezeigt. Um eine für dieses Spektrometer ausreichende Intensität der Linie zu erreichen, müssen die Parameter im Vergleich zu denen in Abbildung 50 etwas angepasst werden (Elektronenstrahlstrom 3,5μA - Mikrowellenleistung 2,7W). Die 772,42nm Linie zeigt schon in Abbildung 50 links den Trend zu einer Schulter an der kurzwelligen Seite. Die hochaufgelösten Messungen bestätigen diese Beobachtung. In Abbildung 51 wird deutlich, dass sich in Abbildung 50 links die beiden nah benachbarten Linien bei 772,38nm und 772,42nm überlagern. Dabei wird die Intensität der 772,38nm Linie sehr viel stärker durch die Mikrowellenanregung beeinflusst als die 772,42nm Linie.

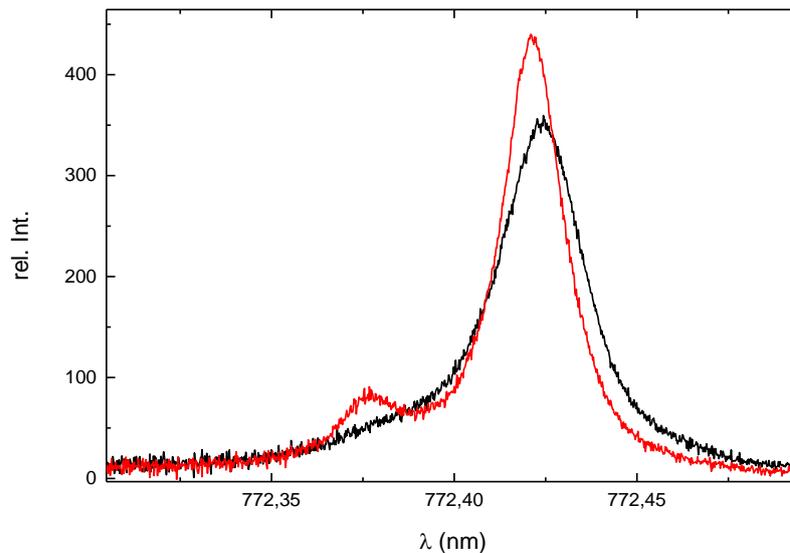


Abbildung 51 Hochaufgelöstes Spektrum der 772,38nm und 772,42nm Linien in 1bar Argon bei reiner Elektronenstrahlanregung mit einem Strahlstrom von $3,5\mu\text{A}$ (**schwarz**) und kombinierter Anregung mit einer zusätzlichen Mikrowellenleistung von 2,7W (**rot**).

Die unterschiedlichen Linienverhältnisse sind auf Stoßumbesetzungen innerhalb der 4p-Niveaus zurückzuführen. Referenz [68] gibt eine Übersicht über die temperaturabhängigen Ratenkonstanten, welche den Energietransfer durch Stöße innerhalb der 4p-Niveaus beschreiben. Von einer quantitativen Auswertung der Linienverhältnisse mit Lösung der zugehörigen Ratengleichungen soll hier abgesehen werden. Es soll allerdings als qualitative Erklärung der beobachteten Spektren genügen, wobei wiederum die Erwärmung des angeregten Gasvolumens durch die Mikrowellenanregung verdeutlicht wird.

5.4.2 Linienbreiten

Analog zu Abschnitt 4.3 wurde die Linienbreite der 696,54nm Linie mit dem hochauflösenden Echellespektrometer vermessen, um eine Abschätzung der Gastemperatur des angeregten Volumens treffen zu können. In diesem Fall wurde mit einem Elektronenstrahlstrom von $4,3\mu\text{A}$ gearbeitet. Die leichte Diskrepanz der Breite bei der Messung ohne zusätzliche Mikrowellenleistung in Abbildung 52 links zu der $4,3\mu\text{A}$ Messung in Abbildung 30 in Abschnitt 4.3 ist vermutlich auf einen etwas unterschiedlichen Gasdurchfluss und somit eine etwas veränderte Kühlleistung zurückzuführen. Abbildung 52 links zeigt eine Verschmälerung der Spektrallinie mit steigender Mikrowellenleistung. Wie in Abschnitt 4.3 bereits diskutiert, kann dies durch eine lokale Temperaturerhöhung im angeregten Gasvolumen erklärt werden. Analog zu Abschnitt 4.3 lässt sich somit wiederum eine mittlere Gastemperatur in Abhängigkeit von der Mikrowellenleistung abschätzen. Die Ergebnisse sind in Abbildung 52 rechts gezeigt.

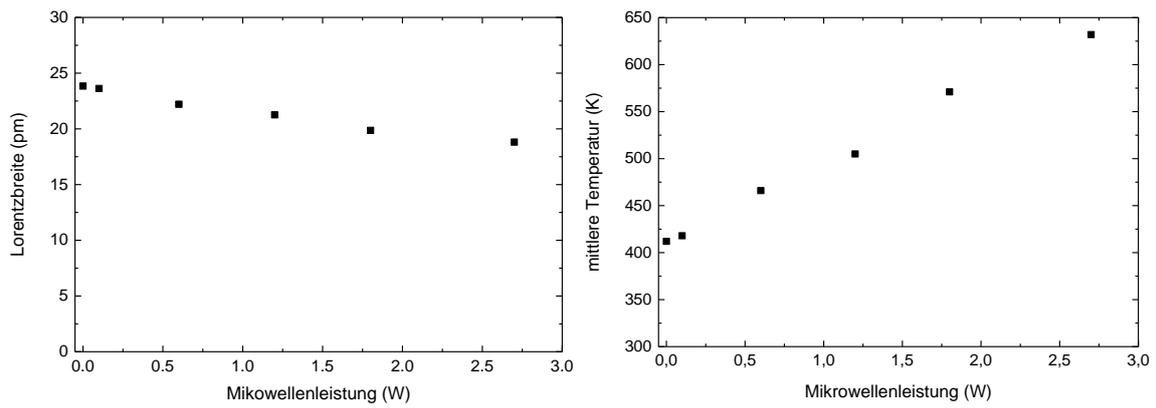


Abbildung 52 *Linienbreite der 696,54nm bei kombinierter Anregung in 1bar Argon in Abhängigkeit der Mikrowellenleistung (**links**). Mit der Temperaturkalibrierung aus Abschnitt 4.3 ergibt sich eine Abschätzung der mittleren Gastemperatur (**rechts**).*

6 Mikrowellenentladung bei 2,45GHz

Im vorigen Kapitel wurde mit der kombinierten Anregung durch Elektronenstrahl und Mikrowelle eine Methode beschrieben, durch welche v.a. die Intensität im Bereich des 1. Kontinuums deutlich gesteigert werden konnte. Zudem bietet diese Anregungsmethode durch die Möglichkeit, auf die beiden Plasmaparameter Elektronendichte und Elektronentemperatur nahezu getrennt voneinander Einfluss zu nehmen, einen grundlagenorientierten Zugang zum Studium von Niedertemperaturplasmen. In diesem Kapitel soll nun auf die Weiterführung dieser Anregungsmethode eingegangen werden, insbesondere mit dem Ziel der Steigerung der Lichtintensität im gesamten VUV-Bereich. Hierzu wird die Elektronenstrahlanregung nicht mehr nur dazu genutzt, um Mikrowellenleistung in das Gasvolumen einzukoppeln zu können, sondern die eingekoppelte Leistung so hoch zu treiben, dass eine Entladung gezündet werden kann. Eine solche Zündung kann mit Hilfe des Elektronenstrahls sehr leicht bewerkstelligt werden, so dass selbst bei Atmosphärendruck die Elektrodengeometrie relativ frei gewählt werden kann. Es gilt zwar, dass eine spitze Mikrowellenelektrode die Zündung der Entladung aufgrund der Feldverteilung erleichtert; dennoch kann selbst mit einer planen Elektrode und bei relativ großem Elektrodenabstand von über 1cm eine Atmosphärendruckentladung gezündet werden, obwohl die Mikrowellengeneratorleistung mit maximal 28W relativ gering ist. Um die Entladung räumlich stabil zu halten, empfiehlt es sich dennoch, die Elektrode in etwa der Entladungsgröße anzupassen. Abbildung 53 C zeigt ein Foto der Entladung in 1bar Argon mit einer Mikrowellenelektrode vom Durchmesser 3mm. Zum Vergleich sind auch die Fotos aus den vorigen Kapiteln zur reinen Elektronenstrahlanregung (A) und zur kombinierten Anregung (B) gezeigt. In diesen Fällen wurde eine plane Mikrowellenelektrode vom Durchmesser 20mm verwendet. Da die geerdete Elektrode (in den Bildern oben) in diesem Aufbau durch das Gehäuse der Elektronenröhre vorgegeben ist, konnte die geerdete Elektrode in ihrer Form nicht verändert werden. Dafür ermöglicht es diese Anordnung, den Elektronenstrahl durch diese Elektrode hindurch direkt in das Entladungsvolumen einzukoppeln.

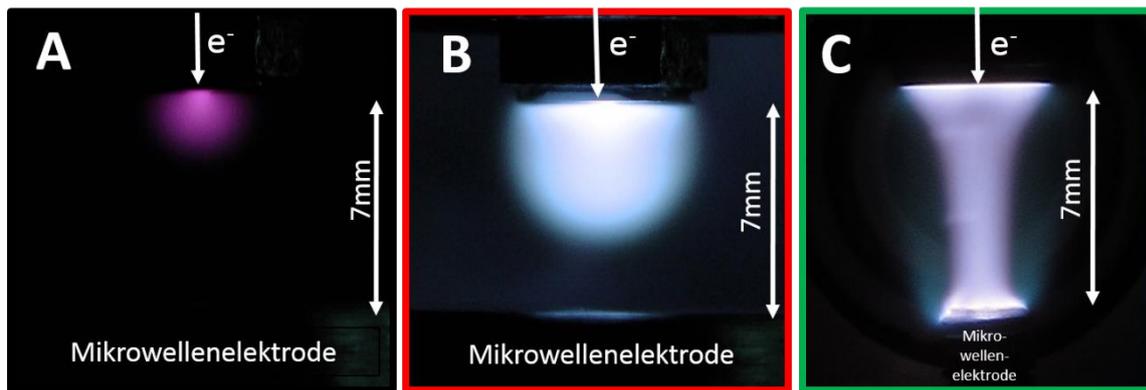


Abbildung 53 Fotos der drei verschiedenen Anregungsformen: reine Elektronenstrahlanregung (A), kombinierte Elektronenstrahl- und Mikrowellenanregung (B) sowie selbstständige Mikrowellenentladung (C). In C wird der Elektronenstrahl nur zur Zündung der Entladung benötigt und kann anschließend abgeschaltet werden. In B hingegen führt ein Abschalten des Elektronenstrahls zur Löschung der gesamten Entladung.

In den folgenden Abschnitten wird die wellenlängen-, räumlich und zeitlich aufgelöste Lichtemission dieser Entladungsform beschrieben. Zunächst wird wiederum auf Argon bei Atmosphärendruck eingegangen. In Abschnitt 6.2 werden auch Emissionsspektren anderer Edelgase und deren Mischungen gezeigt.

6.1 Mikrowellenentladung in Argon bei Atmosphärendruck

Gerade im kontinuierlichen Betrieb ist, wie eingangs beschrieben, die Lichtemission der reinen Elektronenstrahlanregung stark durch die thermische Belastbarkeit der Eintrittsmembran limitiert. Durch die Mikrowellenleistung kann nun auf einem zusätzlichen Weg Leistung in das Gas eingekoppelt werden, ohne die Membran dabei über ihre Grenzen zu belasten. Obwohl die Entladung, wie Abbildung 53 C zeigt, direkt auf die Membran brennt, übersteht diese bei achtsamen Gebrauch selbst im Entladungsbetrieb hunderte Betriebsstunden.

6.1.1 Wellenlängenaufgelöste Messungen

Auch bei der Mikrowellenanregung sind im VUV-Bereich das 1. und 2. Kontinuum die dominanten Strukturen, wie in Abbildung 54 zu sehen. Diese Abbildung zeigt einen Vergleich von Spektren bei reiner Elektronenstrahlanregung ($5\mu\text{A}$ Strahlstrom³¹), kombinierter Elektronenstrahl- und Mikrowellenanregung sowie der elektronenstrahlgezündeten Mikrowellenentladung (mit der in diesem Aufbau höchsten erreichbaren Leistung von 28W). Verglichen mit der reinen Elektronenstrahlanregung und der kombinierten Anregung ist der Intensitätsanstieg im Bereich des 1. Excimerkontinuums am stärksten. Es kann im Entladungsbetrieb nahezu die gleiche Intensität wie im 2. Kontinuum erreicht werden.

³¹ Dieser Wert ist auf einen langlebigen Betrieb der Lichtquelle ausgelegt. Die Belastungsgrenze der Eintrittsmembran liegt in etwa bei $10\mu\text{A}$.

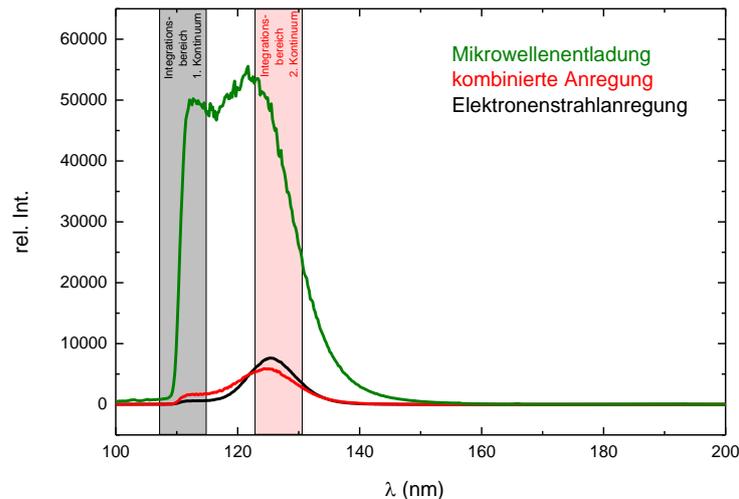


Abbildung 54 Vergleich des spektralen Verhaltens von 1. und 2. Excimerkontinuum bei **reiner Elektronenstrahlanregung**, **kombinierter Anregung** und **Mikrowellenentladung**. Die Integrationsbereiche für die Werte in diesem Kapitel (1.Kont.: 107-115nm und 2.Kont.: 123-131nm) sind identisch zu denen in Abschnitt 4.4 und 5.1 und sind schattiert angedeutet. Der Integrationsbereich für das zweite Kontinuum wurde auch für die Entladungsspektren bewusst an der gleichen Stelle belassen (auch wenn das beobachtete Intensitätsmaximum aus diesem Bereich herauswandert), um die identischen optischen Übergänge miteinander zu vergleichen.

Um die Effekte der verschiedenen Anregungsformen in Relation zu setzen, zeigt Abbildung 55 die relativen Intensitäten der verschiedenen Wellenlängenbereiche im VUV-Bereich jeweils normiert auf die Messung bei reiner Elektronenstrahlanregung. Die Integrationsbereiche (1.Kont.: 107-115nm und 2.Kont.: 123-131nm) wurden identisch zu denen aus Abschnitt 4.4 und 5.1 gewählt. Die Verschiebung der Lage des 2. Kontinuums hin zu kurzen Wellenlängen in Abbildung 54, wie auch der deutlich stärkere Intensitätsanstieg im 1. Kontinuum sind auf die Temperaturzunahme im angeregten Volumen durch die eingekoppelte Mikrowellenleistung zurückzuführen³². Dies gilt sowohl für die kombinierte Anregung wie auch für die Mikrowellenentladung. Bei der Entladung hingegen steigt auch die gesamte Intensität durch die sehr viel höhere eingekoppelte Leistung in etwa um den Faktor 10 an. Dies zeigt, dass die Mikrowellenentladung im kontinuierlichen Betrieb zu einer deutlichen Verbesserung der Lichtquelle führt³³. Im Bereich des 1. Kontinuums kann mit der Entladung die Intensität sogar um einen Faktor 80 gesteigert werden.

Ein Teil des Intensitätsanstiegs ist bei der Entladung auf die Vergrößerung des angeregten Volumens zurückzuführen. Dies wird besonders deutlich, wenn die Leistung der Mikrowelle schrittweise variiert wird. Fotos einer solchen Messreihe sind in Abbildung 56 gezeigt. Der Elektrodenabstand beträgt hier in allen Fällen 5mm. Mit steigender Mikrowellenleistung nimmt der Durchmesser der zylinderförmigen Entladung zu. Die Entladung zündet dabei erstmals bei einer Leistung von 8,5W. Die Entladungen mit niedrigerer Leistung können nur betrieben werden, wenn die Entladung zunächst mit einer höheren Mikrowellenleistung gezündet werden, und die Leistung anschließend wieder reduziert wird. Der zur Zündung benötigte Elektronenstrahl wurde für die Aufnahme der Bilder abgeschaltet.

³² Für eine detailliertere Beschreibung siehe Abschnitt 4.4 und 5.1.

³³ Im Pulsbetrieb können auch mit dem Elektronenstrahl deutlich höhere Intensitäten erreicht werden, wodurch sich eine Umstellung der Lichtquelle auf eine Mikrowellenentladung in diesem Leistungsbereich nur für den kontinuierlichen Betrieb eignet.

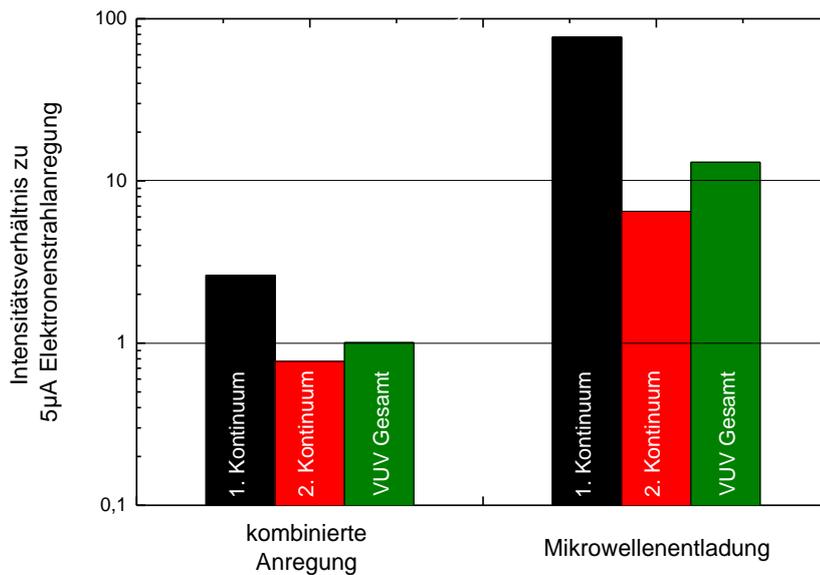


Abbildung 55 Relative Intensitätsänderungen von **1. Kontinuum**, **2. Kontinuum** und **gesamter VUV-Emission**. Die Werte sind normiert auf eine kontinuierliche Elektronenstrahlanregung bei 5μA.

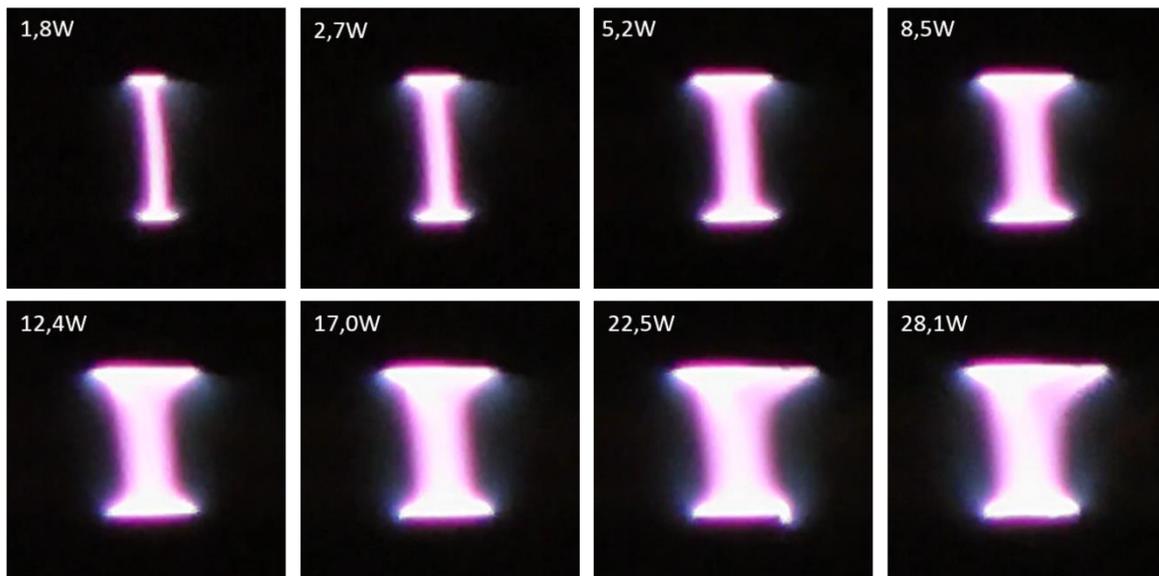


Abbildung 56 Zunahme der Entladungsbreite mit steigender Mikrowellenleistung. Die Höhe der Entladung beträgt jeweils 5mm. Zur Zündung war eine Leistung von 8,5W notwendig. Zur Messung der niedrigeren Leistungen musste die Entladung zunächst mit 8,5W gezündet werden, und die Mikrowellenleistung anschließend wieder reduziert werden. Der zur Zündung notwendige Elektronenstrahl ist in allen Bildern abgeschaltet.

Abbildung 57 links zeigt die aus den Fotos aus Abbildung 56 ermittelte mittlere Breite der Entladungssäule in Abhängigkeit der Mikrowellenleistung. Aus diesen Werten kann das Volumen der zylinderförmigen Entladungssäule berechnet werden. Trägt man dieses Volumen gegenüber

der eingekoppelten Leistung³⁴ auf, ergibt sich der in Abbildung 57 rechts gezeigte Verlauf. Bei niedrigen Leistungswerten ergibt sich ein linearer Zusammenhang von Entladungsvolumen und Leistungseintrag ins Gas. Erst bei höheren Leistungen weicht das Volumen von dieser Linearität ab. Wie die Fotos in Abbildung 56 zeigen, bedeckt bei hohen Leistungen die Entladung die gesamte Elektrodenfläche, wodurch eine weitere Erhöhung der Leistung, ohne dass sich die Entladung gleichmäßig ausdehnen kann, zu einer schlechteren Einkopplung führt.

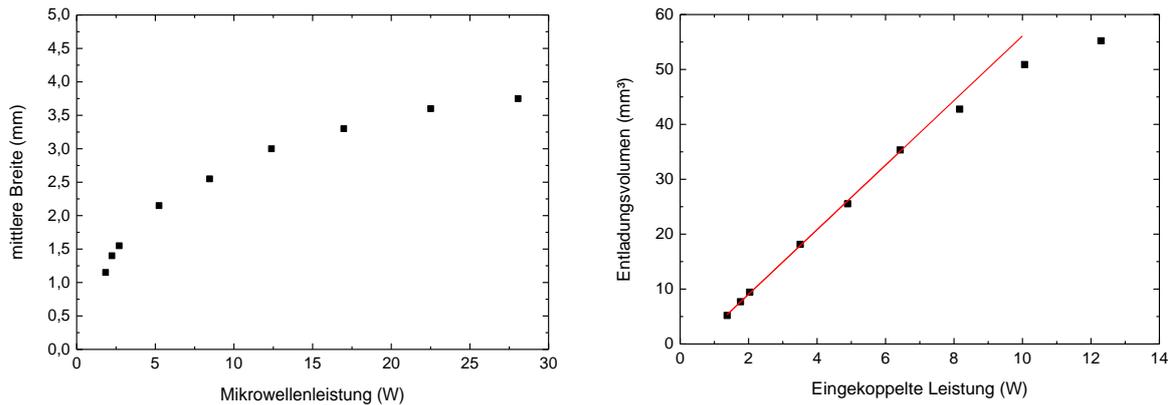


Abbildung 57 Links: Anstieg der Breite der Entladungssäule mit zunehmender Mikrowellenleistung. **Rechts:** Zunahme des Volumens der Entladungssäule in Abhängigkeit von der eingekoppelten Leistung. Hier wurde bewusst die eingekoppelte Leistung (und nicht die Generatorleistung) zur Darstellung gewählt, um den Zusammenhang von der Größe des angeregten Volumens und dem Leistungseintrag in dieses Volumen zu verdeutlichen. Die rote Gerade gibt einen extrapolierten, linearen Fit der ersten sechs Messwerte wieder.

Die optische Achse des VUV-Detektorsystems verläuft in den Bildern in Abbildung 56 von rechts nach links nahe an der oberen Elektrode vorbei. Daher resultiert eine größere Breite der Entladung in den Bildern in einer größeren Tiefe der Entladung für das VUV-Detektorsystem. Um den Zusammenhang zwischen der Entladungsgeometrie und der Lichtintensität zu verdeutlichen, zeigt Abbildung 58 das Intensitätsverhalten verschiedener Spektralbereiche sowie die Breite der Entladungssäule in Abhängigkeit von der Mikrowellenleistung. Gezeigt sind in dieser Abbildung auch Werte für das UV-VIS-IR-Kontinuum. Wenngleich die verschiedenen Spektralbereiche ein etwas unterschiedliches Verhalten mit variiert Mikrowellenleistung aufweisen, so folgen sie im übergeordneten Trend dennoch der geometrischen Breite der Entladung. Am stärksten gewinnt das UV-VIS-IR Kontinuum mit steigender Mikrowellenleistung an Intensität. Durch die Erwärmung des angeregten Gasvolumens wird das Verhältnis der Rekombinationsprozesse weiter von der dissoziativen Rekombination hin zur Photorekombination geschoben (vgl. Abschnitt 5.3).

³⁴ Im Gegensatz zu den restlichen Diagrammen, in denen die Generatorleistung angegeben ist, wurde hier bewusst die eingekoppelte Leistung gewählt. Dadurch soll der direkte Bezug zum Energieeintrag in das Gasvolumen hergestellt werden.

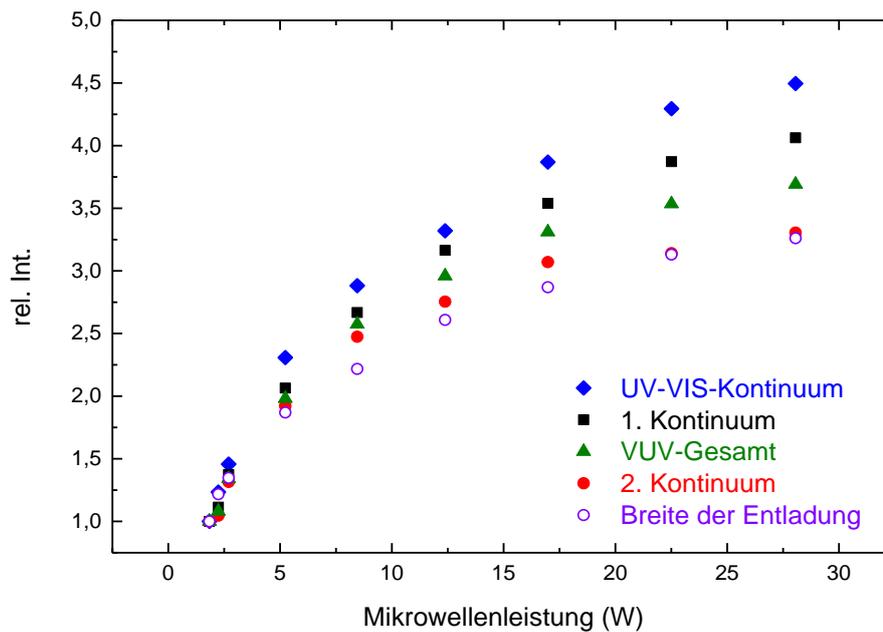


Abbildung 58 Relativer Intensitätsverlauf der Lichtintensität in verschiedenen Wellenlängenbereichen. Ebenso gezeigt ist die aus Abbildung 56 ermittelte Breite der Entladungssäule. Im übergeordneten Trend folgt die Intensität aller gezeigten Strukturen der Breite der Entladung.

Um das relative Intensitätsverhalten pro Volumenelement der Entladung darzustellen (also die Veränderung der Spektren unabhängig von der räumlichen Ausdehnung der Entladung), wurden in Abbildung 59 die Daten aus Abbildung 58 auf die Breite der Entladung normiert. Ab der Messung bei 8,5W zeigt sich ein klarer Trend in den verschiedenen Wellenlängenbereichen. Für niedrigere Mikrowellenleistungen (grau hinterlegt) weichen die Messungen von diesem Trend ab. Dies liegt daran, dass die Entladung in diesen Fällen räumlich nicht stabil ist, sondern etwas über die Elektroden wandert³⁵. Durch dieses Wandern „blickt“ das Detektorsystem manchmal etwas an der Entladung vorbei, wodurch die beobachtete Intensität abgesenkt ist. Wie Abbildung 59 links nahelegt, ist die gesamte (auf die Entladungsbreite normierte) VUV-Intensität kaum abhängig von der Mikrowellenleistung. Somit können die Effekte der räumlich instabilen Entladung bei niedrigen Leistungen näherungsweise korrigiert werden, indem die Daten zusätzlich noch auf die VUV-Gesamtintensität normiert werden (Abbildung 59 rechts). Dadurch lässt sich nun über die gesamte Messreihe ein einheitlicher Trend der Intensität des 1. und 2. Kontinuums erkennen³⁶. Wie auch schon für die reine Elektronenstrahlanregung (Abschnitt 4.4) und die kombinierte Anregung (Abschnitt 5.1) führt auch bei der selbständigen Mikrowellenentladung eine Leistungssteigerung zu einer weiteren Erhöhung der Gastemperatur und somit zu einer Verschiebung der Lichtintensität vom 2. zum 1. Excimerkontinuum. Dadurch nimmt die normierte Intensität des 2. Kontinuums in Abbildung 59 ab, wohingegen die des 1. Kontinuums zunimmt.

³⁵ Wird die Gasströmung im System abgestellt, so ist die Entladung auch bei niedrigen Leistungen stabil, allerdings verändern sich in diesem Fall die Spektren sehr stark aufgrund der dann fehlenden Gasreinigung.

³⁶ Für die UV-VIS-IR Daten funktioniert diese Korrektur nur bedingt, da dieses Spektrometer die Entladung bzgl. des VUV-Spektrometers um 90° gedreht beobachtet und sich die Bewegung der Entladung in den Daten somit anders niederschlägt. Diese Daten sind deshalb in Abbildung 59 rechts nicht gezeigt.

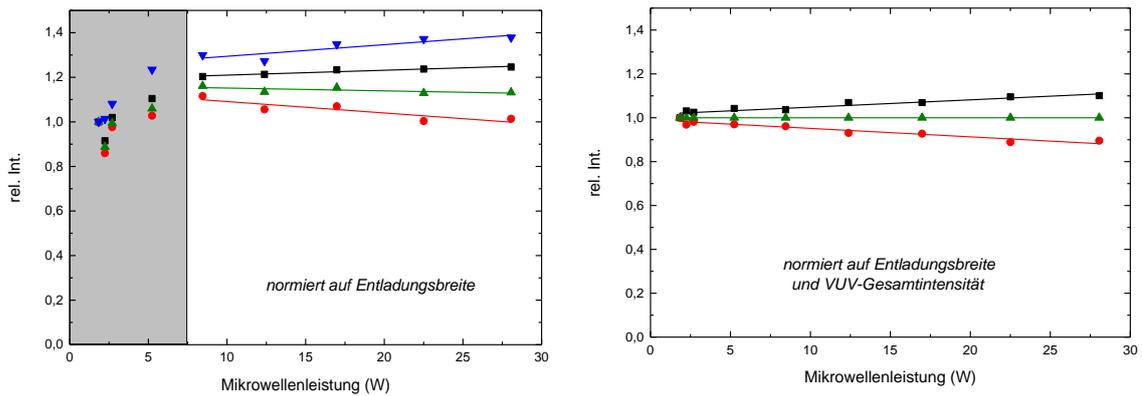


Abbildung 59 Relatives Verhalten der Lichtemission im VUV-Bereich (**1. Kontinuum**, **2. Kontinuum** und **Gesamt-VUV**) sowie des **UV-VIS-IR**-Kontinuums in Abhängigkeit von der Mikrowellenleistung. Alle Daten sind normiert auf die Messung bei 1,8W sowie auf die Breite der Entladung aus Abbildung 58, um das Intensitätsverhalten unabhängig von der räumlichen Ausdehnung der Entladung darzustellen. Im grau hinterlegten Bereich (**links**) ist die Entladung örtlich nicht stabil, wodurch die Intensität vom restlichen Trend abweicht. Um diesen Effekt zu korrigieren sind **rechts** die Daten aus der linken Abbildung zusätzlich auf die gesamte VUV-Intensität normiert.

Die Temperaturzunahme des angeregten Gasvolumens zeigt sich wiederum auch in den hochaufgelösten Spektren der atomaren Argonlinien im sichtbaren Bereich (vgl. Abschnitt 5.4.1). Die Spektren der beiden Linien bei 772,38 und 772,42nm in Abbildung 60 weisen drei Effekte auf, an welchen die Temperaturzunahme bzw. die damit einhergehende Dichteabnahme mit Erhöhung der Mikrowellenleistung und Zündung der Entladung gezeigt werden kann. Zum einen kommt es vor allem mit Zündung der Entladung zu einer starken Intensitätsverschiebung von der 772,42nm Linie hin zur 772,38nm Linie, was auf eine temperaturabhängige Umbesetzung innerhalb der 4p-Niveaus zurückzuführen ist³⁷. Zum anderen führt eine lokale Dichteverringerng im angeregten Volumen zu einer Verschmälerung der Spektrallinien³⁸ sowie zu einer Verschiebung der Linien hin zu etwas kürzeren Wellenlängen. Analog zu Abschnitt 4.3 kann aus der Lorentzbreite der 772,42nm Linie eine Abschätzung der mittleren Temperatur in der Entladungssäule gegeben werden. Das Ergebnis ist in Abbildung 61 dargestellt. Mit Zündung der Entladung zeigt sich hier ein sprunghafter Anstieg der Gastemperatur. Eine weitere Leistungssteigerung führt nur noch zu einer vergleichsweise geringen Temperaturerhöhung. Ein Großteil der Leistung geht hierbei, wie zuvor beschrieben, in die räumliche Ausdehnung des Entladungsvolumens.

³⁷ siehe Abschnitt 5.4.1

³⁸ siehe Abschnitt 4.3

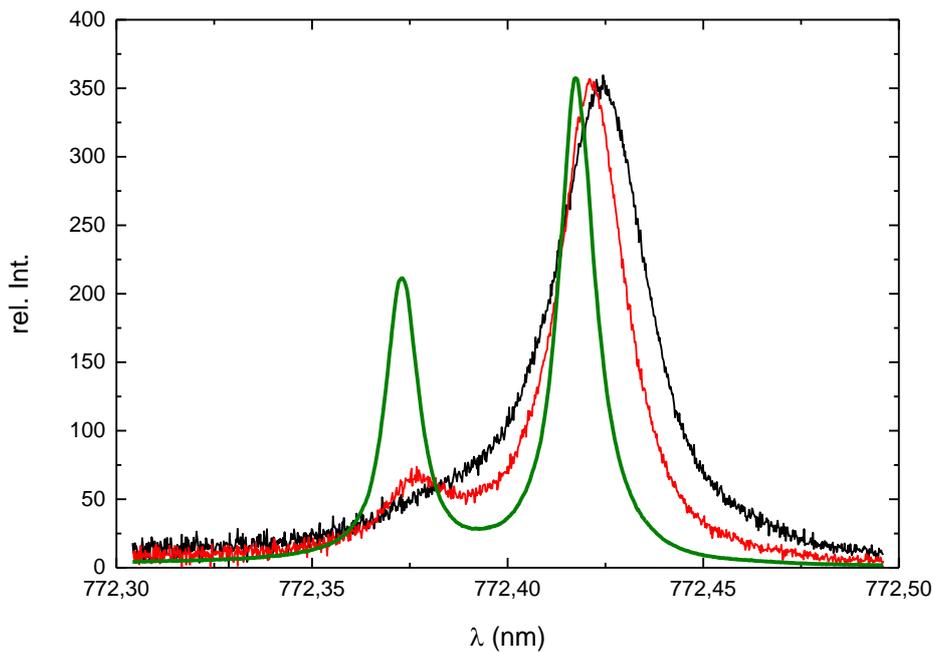


Abbildung 60 Hochaufgelöstes Spektrum der atomaren Argonlinien bei 772,38 und 772,42 nm für **reine Elektronenstrahlanregung**, **kombinierte Anregung** von Elektronenstrahl und Mikrowelle und **Mikrowellenentladung**. Die Intensitäten sind auf die 772,42 nm Linie normiert. Die für eine Temperaturerhöhung/Dichteverringern typische Verschmälerung sowie Verschiebung der Linien zu kürzeren Wellenlängen ist deutlich sichtbar. Ebenso zeigt sich eine Intensitätsverschiebung zwischen den beiden Linien (Details siehe Text).

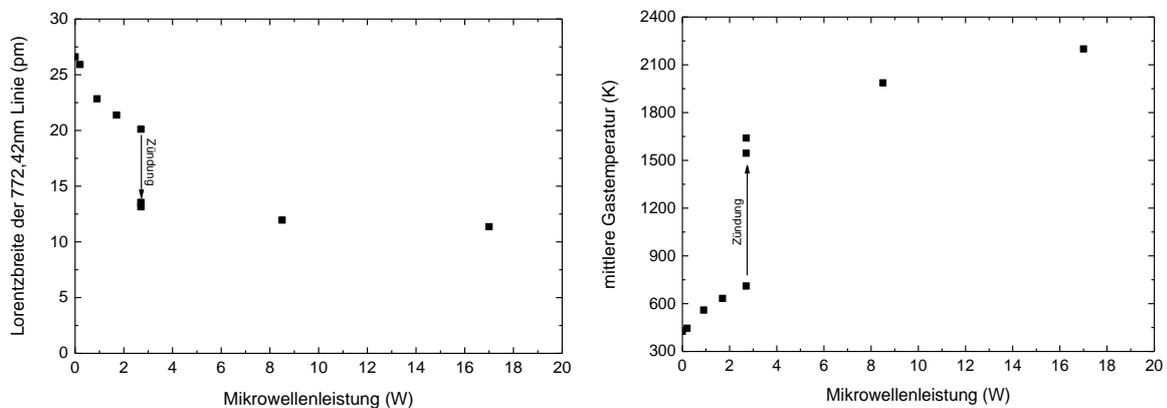


Abbildung 61 Aus der Lorentzbreite der 772,42 nm Linie in Abhängigkeit von der Mikrowellenleistung für kombinierte Anregung und Mikrowellenentladung (**links**) lässt sich eine Abschätzung für die mittlere Temperatur in der Entladungssäule geben (**rechts**). Mit der Zündung der Entladung steigt die Gastemperatur sprunghaft an.

Wenngleich mit Zündung der Entladung nun Atome durch die eingekoppelte Mikrowellenleistung ionisiert werden können, so reicht die Energie dennoch auch hier noch nicht aus, um in großer Anzahl mehrfach ionisierte Ionen zu bilden. Dies zeigt sich in den Spektren bei einer genaueren Betrachtung des dritten Kontinuums (vgl. Abschnitt 5.2). Abbildung 62 zeigt hierzu zwei Spektren im VUV-Bereich bei gezündeter Entladung, wobei einmal der Elektronenstrahl zusätzlich aktiv ist und einmal abgeschaltet ist. Das dritte Kontinuum ist nur im Falle des Elektronenstrahls zu

beobachten, wohingegen 1. und 2. Kontinuum hier nahezu unabhängig vom Elektronenstrahl sind. In Abbildung 62 rechts ist der Bereich des dritten Kontinuums vergrößert dargestellt für eine Serie von verschiedenen Elektronenstrahlströmen. Besonders hier wird deutlich, dass die dem dritten Kontinuum zuzuordnenden mehrfachionisierten Atome und Moleküle ausschließlich durch die Elektronenstrahlanregung gebildet werden.

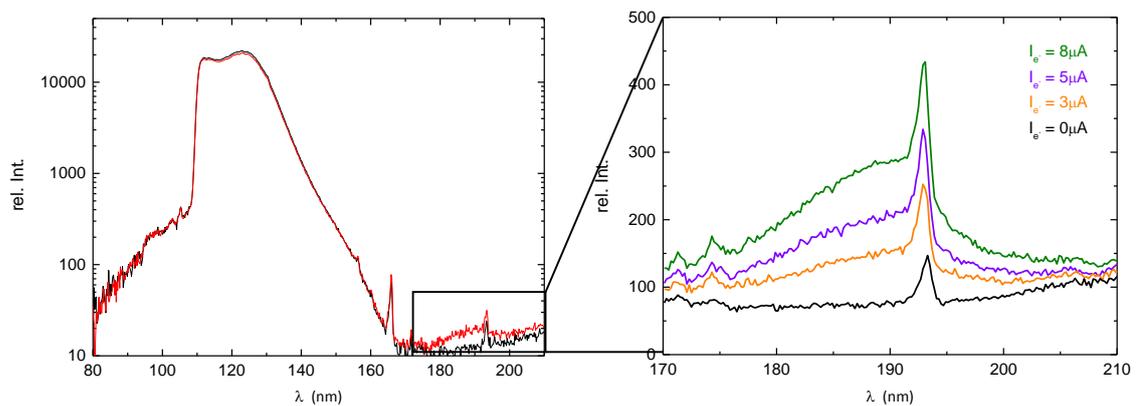


Abbildung 62 Links: Übersicht über die Lichtemission im VUV-Bereich bei gezündeter Mikrowellenentladung. Das **schwarze** Spektrum zeigt die reine Entladung; beim **roten** Spektrum ist zusätzlich der Elektronenstrahl noch aktiv. Rechts: Vergrößerte Darstellung des Bereichs des 3. Kontinuums bei verschiedenen Elektronenstrahlströmen. Das 3. Kontinuum ist überlagert von einer Kohlenstofflinie bei 193nm.

Das gleiche Ergebnis zeigt sich bei einer räumlich aufgelösten Vermessung der Entladung. Hierzu wurden verschiedene Positionen der Entladung mittels der in Referenz [36] beschriebenen Spiegeloptik auf den Eintrittsspalt des Monochromators abgebildet. Abbildung 63 links zeigt eine Kombination von VUV- und UV-Spektren an verschiedenen Punkten der Entladung (jeweils normiert auf das 2. Kontinuum). Deutlich zu erkennen ist, dass das 3. Kontinuum zwischen ca. 170 und 200nm nur nahe der oberen Elektrode gebildet wird, durch die der Elektronenstrahl ins Gasvolumen eintritt. Das UV-VIS-IR Kontinuum weist hingegen in der Mitte zwischen den Elektroden die höchste Intensität (relativ zum 2. Kontinuum) auf. Um dies genauer zu analysieren, ist in Abbildung 63 unten die gleiche Messung für Krypton gezeigt. Dies hat den Vorteil, dass auch das 1. Kontinuum in den Spektren beobachtet werden kann³⁹. Das grundsätzliche spektrale Verhalten sollte für die beiden Edelgase sehr ähnlich sein (vgl. Abschnitt 6.2). Hierbei zeigt sich, dass die Intensität des UV-VIS-IR Kontinuums mit der des 1. Kontinuums korreliert. Das UV-VIS-IR Kontinuum entstammt somit Gebieten der Entladung mit besonders hoher Gastemperatur. Dies ist konsistent mit der Theorie zu dem Photorekombinationskontinuum aus Abschnitt 5.3, welches ebenfalls mit steigender Temperatur zunimmt.

³⁹ Für Argon ist dies aufgrund der optischen Abbildung mit der Spiegeloptik nicht möglich, da die Reflektivität der Spiegel in diesem Wellenlängenbereich zu gering ist.

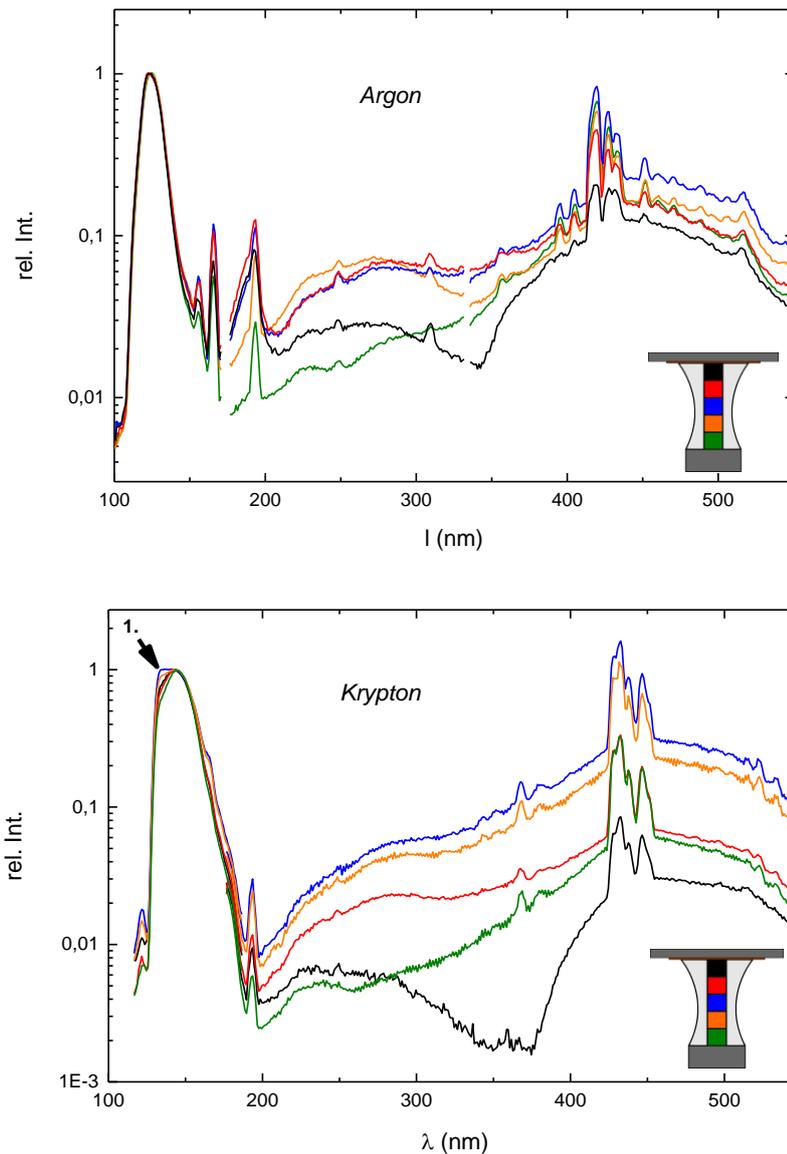


Abbildung 63 Spektraler Intensitätsverlauf in verschiedenen Bereichen der Entladung. Die Farbcodierung der Spektren ist jeweils rechts unten in den Schemata der Entladung gezeigt. Die Spektren sind jeweils auf das Maximum im 2. Kontinuum normiert. **Oben:** Messung in 1bar Argon. Das 3. Kontinuum ist nur in den oberen Bereichen der Entladung zu beobachten, wo der Elektronenstrahl in das Gas eintritt. Um auch das 1. Kontinuum darstellen zu können ist **unten** eine Messung in 1bar Krypton gezeigt. Die relative Intensität des Photorekombinationskontinuums ist in der Mitte der Entladung am höchsten, wo auch das 1. Kontinuum (**Pfeil**) die höchste Intensität aufweist. Der „Knick“ zwischen 300 und 400nm, vor allem in den schwarzen Spektren, ist auf die Ansprechfunktion zurückzuführen. Für diesen Aufbau wurde keine eigene Kalibrierung durchgeführt.

6.1.2 Zeitaufgelöste Messungen

In diesem Kapitel soll auf den zeitlichen Verlauf der Lichtemission eingegangen werden. Hierzu wurde die Mikrowellenleistung wie schon in Abschnitt 5.3 gepulst betrieben. Um die Lichtemission der Mikrowellenentladung möglichst unbeeinflusst vom Elektronenstrahl beobachten zu können wurde auch der Elektronenstrahl gepulst. Ein zweiter Vorteil dieser Methode ist, dass so die Lichtemission der Elektronenstrahlanregung in der gleichen Messung untersucht werden kann wie

auch die der Mikrowellenentladung. Eine Übersicht über eine solche Messung ist in Abbildung 64 gezeigt. Die Pulslänge des Elektronenstrahls betrug in diesem Fall $10\mu\text{s}$. Mit einer Verzögerung von $11\mu\text{s}$ zum Ende des Elektronenstrahlpulses wurde ein Mikrowellenpuls von ca. $20\mu\text{s}$ Länge eingekoppelt⁴⁰. Für die Zündung der Entladung werden also nur die nach dieser Zeit noch nicht rekombinierten Elektronen verwendet. Die blaue Kurve in Abbildung 64 gibt dabei die eingekoppelte Leistung wieder. Diese wurde über zwei am Richtkoppler angeschlossene Diodenköpfe bestimmt. Sie entspricht der Differenz aus Mikrowellenleistung in Vorwärtsrichtung und der an der Messzelle reflektierten Leistung. Der Verlauf der eingekoppelten Leistung zeigt, dass in diesem Fall in den ersten $10\mu\text{s}$ des Mikrowellenpulses zunächst wenig Leistung in das Gas eingekoppelt wird. Während der Zündung steigt die eingekoppelte Leistung rapide an, um nach dem Zündvorgang wieder abzufallen. In einem längeren Puls (und auch im DC-Betrieb) stellt sich nach einer gewissen Zeit ein Gleichgewicht ein und auch die eingekoppelte Leistung bleibt konstant (vgl. Abbildung 66).

Abbildung 64 zeigt zudem den Verlauf der Lichtemission im 1. bzw. im 2. Kontinuum. Die Intensitäten sind im Maximum des Zündvorgangs aufeinander skaliert. Vergleicht man die Entladung mit der Elektronenstrahlanregung, so ist, wie zu erwarten, das 1. Kontinuum für die Elektronenstrahlanregung deutlich schwächer⁴¹. Mit der Zündung der Entladung steigt die Lichtintensität beider Kontinua schnell an. Im Maximum der Leistungseinkopplung erreicht auch die Lichtintensität ihr erstes Maximum. Mit dem anschließenden Abfall der Leistung kühlt das Gas wieder etwas ab, wodurch die Intensität des ersten Kontinuums schneller abfällt als die des 2. Kontinuums. Nach Ende des Mikrowellenpulses kühlt das Gas und vor allem die Elektronen so schnell ab, dass die Rekombinationsrate drastisch ansteigt⁴². Dieser Effekt ist bei der Mikrowellenentladung so stark, dass das Maximum der Lichtemission erst einige Mikrosekunden nach dem Anregungspuls erreicht wird. Verbunden mit der Kühlung des Gases, ist der Anstieg für das 1. Kontinuum weniger stark als für das 2. Kontinuum. Zudem kann beobachtet werden, dass das Maximum des 1. Kontinuums etwas früher (ca. um $0,4\mu\text{s}$) erreicht wird als das Maximum des 2. Kontinuums. Auch dies zeigt wiederum die in dieser Phase noch andauernde Kühlung des Gases in Verbindung mit der Relaxationszeit. Dies ist die Zeit, welche die Excimermoleküle benötigen, um aus hochgelegenen Vibrationsniveaus in tieferliegende Niveaus zu relaxieren.

Das UV-VIS Kontinuum zeigt eine ähnliche Zeitstruktur wie bei den Messungen für die kombinierte Anregung in Abschnitt 5.3. Wie in Abbildung 65 zu sehen ist, fällt die Lichtintensität bei 350nm nach dem Ende des Mikrowellenpulses schnell ab. Auch hier verschiebt sich also der dominante Rekombinationsprozess rasch von der Photorekombination zur dissoziativen Rekombination.

⁴⁰ Da der Mikrowellengenerator, wie bereits in Abschnitt 5.3 beschrieben, nicht speziell für eine gepulste Anregung ausgelegt ist, war es nicht möglich einen sauberen Rechteckpuls der Mikrowelle zu generieren.

⁴¹ Vgl. Abschnitt 4.4

⁴² Vgl. Abschnitt 4.5

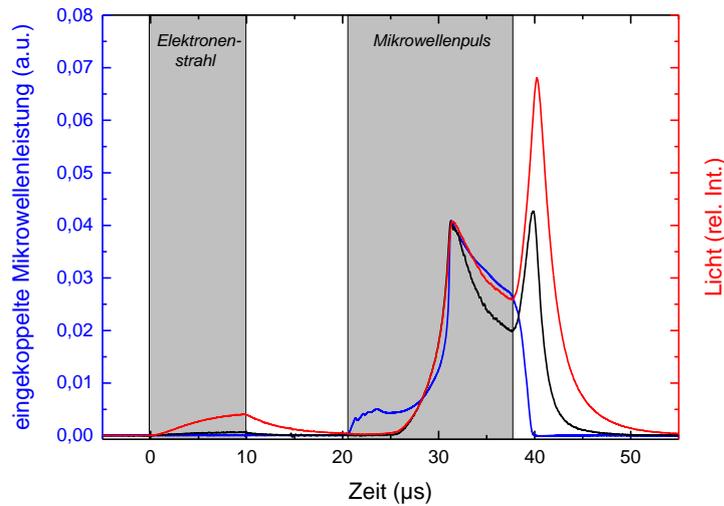


Abbildung 64 Zeitlicher Verlauf der Lichtemission im 1. (schwarz) und 2. Kontinuum (rot). Der Verlauf der eingekoppelten Mikrowellenleistung ist in blau dargestellt. Sowohl Elektronenstrahl als auch Mikrowelle wurden gepulst betrieben. Die Einkopplung der Mikrowellenleistung erfolgt an den, nach einer zeitlichen Verzögerung von $11\mu\text{s}$, noch verbliebenen Elektronen der Elektronenstrahlanregung. Die höchste Lichtintensität wird im Rekombinationsleuchten nach dem Anregungspuls der Mikrowelle erreicht.

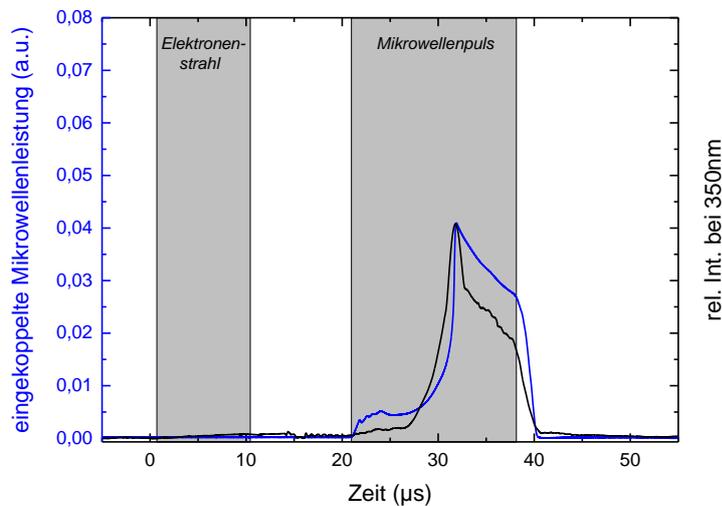


Abbildung 65 Zeitlicher Verlauf des UV-VIS-IR Kontinuums bei 350nm (blaue Kurve). Die eingekoppelte Mikrowellenleistung ist in schwarz gezeigt. Der rasche Abfall der Lichtintensität nach Ende des Anregungspulses zeigt die rasche Kühlung des angeregten Gasvolumens und damit die Verschiebung von Photorekombination hin zu dissoziativer Rekombination vgl. Abschnitt 5.3.

Analog zu Abschnitt 4.6 soll nun wieder die Zeitstruktur der Lichtintensität im 2. Kontinuum nach dem Anregungspuls dazu genutzt werden, um auf die Elektronendichte im Puls rückzuschließen. Hierzu wurde eine Messung gewählt, bei der sich zum Pulsende hin ein Gleichgewicht einstellen kann. Dies wurde im Vergleich zu Abbildung 64 durch eine kürzere zeitliche Verzögerung zwischen Elektronenstrahlanregung und Mikrowellenanregung erreicht. Dadurch zündet die Entladung fast mit dem Start des Mikrowellenpulses und zum Ende des Pulses hat sich bereits nahezu ein

Gleichgewicht eingestellt (siehe Abbildung 66). Aus dem zeitlichen Verlauf der Lichtemission in der Spätphase nach dem Anregungspuls lässt sich die mittlere Elektronendichte am Pulsende abschätzen zu:

$$n_e \approx 1 \cdot 10^{13} \text{cm}^{-3} \quad (27)$$

Eine Abschätzung gemäß der Lesitungseinkopplung analog zu Gleichung 16 und 17 in Abschnitt 4.5 ergibt einen Wert von etwa $n_e \approx 2 \cdot 10^{13} \text{cm}^{-3}$ (mit einem abgeregten Volumen von etwa 60mm^3 und einer eingekoppelten Leistung von 12W , vgl. Abbildung 57 rechts). Es ergibt sich hier eine etwas größere Abweichung zwischen den beiden Modellen als bei der reinen Elektronenstrahlanregung in den Abschnitten 4.5 und 4.6. Wie schon in Abschnitt 4.5 angesprochen, ist der W-Wert für niedrige Elektronenenergien höher als $26,4 \text{eV}$, wodurch die Abschätzung gemäß Gleichung 16 und 17 die Elektronendichte etwas überschätzt⁴³. Im Falle der Mikrowellenentladung mit den deutlich höheren Temperaturen (Gas- wie auch Elektronentemperatur) ist zudem nach dem Pulsende ein Quenching der Excimere nicht auszuschließen, welches die Lichtintensität (und somit auch die ermittelte Elektronendichte) etwas verringert. Bei hohen Temperaturen ist zudem die Lichtintensität im VUV-Bereich zum 1. Kontinuum hin verschoben (vgl. Abschnitt 5.1 und 6.1.1), was für diese Messungen einen ähnlichen Effekt zum Quenching zur Folge hat. Als Größenordnung für die mittlere Elektronendichte ist durch die beiden Methoden der Bereich von wenigen 10^{13}cm^{-3} dennoch bestätigt.

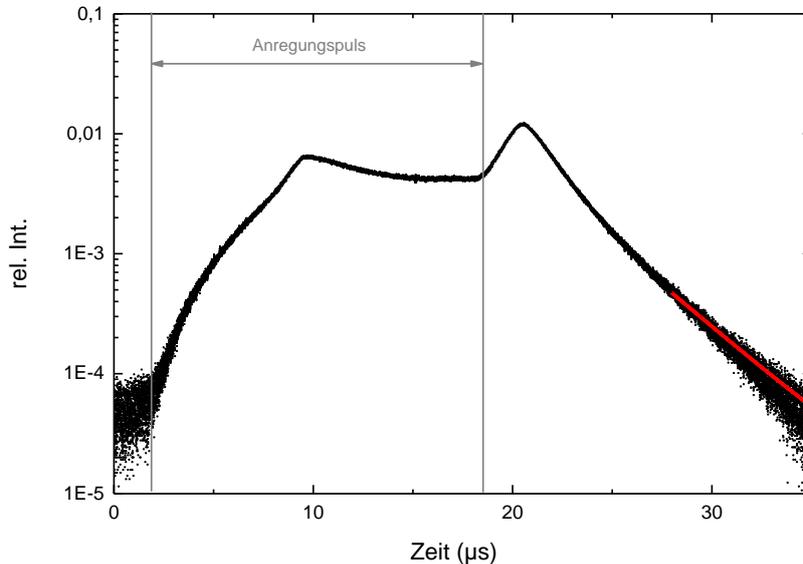


Abbildung 66 Zeitlicher Verlauf der Lichtemission im 2. Kontinuum von Argon bei Atmosphärendruck und einer gepulsten Mikrowellenentladung. Verglichen mit Abbildung 64 ist die Zeitverzögerung zum ebenfalls gepulst betriebenen Elektronenstrahl (zeitlich vor $t=0$, nicht im Bild) kürzer, so dass die Entladung schneller zündet und sich am Ende des Anregungspulses ein Gleichgewicht einstellen kann (die Lichtintensität sättigt). Nach dem Anregungspuls steigt die Lichtintensität aufgrund der zunehmenden Rekombination an. In der Spätphase kann die Lichtemission gemäß dem Modell aus Abschnitt 4.6 beschrieben werden (rot) und somit die Elektronendichte abgeschätzt werden (siehe Text).

⁴³ Die Elektronentemperatur ist zwar in der Entladung höher als bei der Elektronenstrahlanregung, allerdings ist für den W-Wert die Energie des Primärteilchens von Belang, welche bei der Elektronenstrahlanregung in etwa 10keV beträgt.

6.1.3 Freistehende Entladung - „Entladungskerze“

In den vorigen Kapiteln war der Versuchsaufbau stets aufrecht ausgerichtet, so dass die Entladung vertikal brannte. Ein interessantes Phänomen tritt auf, sobald man den Aufbau um 90° zur Seite kippt. Eine Fotostrecke der Entladung ist für diesen Fall in Abbildung 67 gezeigt. Die beiden Elektroden liegen nun horizontal nebeneinander. In diesem Fall zündet die Entladung zunächst wie im vertikalen Fall auf direktem Weg zwischen den beiden Elektroden. Nach der Zündung wandert die Entladung allerdings nach oben weg. Die Entladung folgt dem aufsteigenden, heißen Gas und formt dabei die weiter außenliegenden gekrümmten Feldlinien nach. Da in heißen Gebieten die Rekombination abgeschwächt wird, kann sich hier eine höhere Elektronendichte aufbauen, wodurch dort insgesamt mehr Leistung ins Gas eingekoppelt werden kann. Wenn der Entladungskanal schließlich abreißt, zündet zwischen den beiden Elektroden eine neue Entladung. Dieser Vorgang ereignet sich mit einer Frequenz von wenigen Hertz.

Wird in diesem Betriebsmodus nach dem Zündvorgang die Mikrowellenleistung reduziert, kann nach dem Abreißen des Entladungskanals keine neue Entladung mehr gezündet werden. Es bildet sich an der getriebenen Elektrode eine freistehende Entladung in Form einer Art „Entladungskerze“ aus, die sehr einem sogenannten Plasma Jet ähnelt, bei dem eine solche Entladungsform durch einen starken Gasfluss generiert wird. Direkt entlang des heißen, aufsteigenden Gases kann die Entladung über eine gewisse Strecke noch aufrecht erhalten werden. Mit abnehmender Mikrowellenleistung (nach rechts in Abbildung 68) nimmt die Länge der Entladung immer weiter ab, bis sie schließlich erlischt.



Abbildung 67 Fotoserie der Entladung in 1 bar Argon bei horizontal liegenden Elektroden. Die Serie stellt eine zeitliche Abfolge verschiedener Entladungszustände dar. Nach der Zündung im linken Bild wandert der Entladungskanal nach oben. Im rechten Bild ist oben noch der Rest des ersten Entladungskanals zu sehen sowie auch schon ein neu gezündeter.

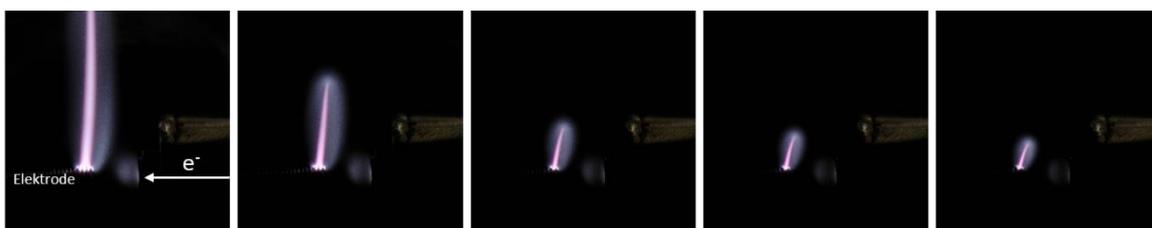


Abbildung 68 Fotoserie der „Entladungskerze“ für von links nach rechts abnehmende Mikrowellenleistung. Diese Entladung wurde auf die in Abbildung 67 gezeigte Weise gezündet. Wird dann die Mikrowellenleistung reduziert, kann nach dem Abreißen des Entladungskanals keine neue Entladung mehr gezündet werden.

6.2 Mikrowellenentladung in anderen Edelgasen und Mischungen

Eine große Stärke der in dieser Arbeit beschriebenen Experimente ist die hohe Flexibilität. Im Sinne der Optimierung von VUV-Lichtquellen zur Photoionisation im Bereich von 10-11eV wurden bislang überwiegend die Ergebnisse für Argon beschrieben. Alle drei bislang beschriebenen Anregungsvarianten können auch auf die anderen Edelgase angewendet werden. Eine Übersicht über deren Lichtemission im VUV-Bereich ist in Abbildung 69 gezeigt. Die grundlegenden physikalischen Prozesse sind dabei für alle Edelgase gleich. Bei reiner Elektronenstrahlanregung können im VUV-Bereich jeweils die beiden Excimerkontinua beobachtet werden, wobei das 2. Kontinuum stets dominiert. Mit der zusätzlichen Mikrowellenanregung wird die Intensität etwas hin zum 1. Kontinuum geschoben⁴⁴, worin sich das Aufheizen des angeregten Volumens durch die Mikrowellenleistung zeigt. In allen hier gezeigten Edelgasen, konnte durch die Vorionisierung des Gases durch den Elektronenstrahl eine selbstständige Mikrowellenentladung gezündet werden. In allen fünf gezeigten Fällen nimmt die Lichtintensität mit der Zündung deutlich zu und auch die Intensitätsverschiebung zum 1. Kontinuum verstärkt sich weiter. Lediglich bei Helium stößt der hier beschriebene Versuchsaufbau an seine Grenzen. Vermutlich da die leichten Heliumionen sehr viel Energie aus dem elektrischen Wechselfeld aufnehmen können wird hier so viel Leistung eingekoppelt, dass die Eintrittsmembran des Elektronenstrahls mit Zündung der Entladung zerstört wird.

Auch Edelgasmischungen lassen sich mit den verschiedenen Methoden gut analysieren. Hier zeigen sich allerdings größere Unterschiede in den Spektren als bei den reinen Edelgasen. Als Beispiel ist in Abbildung 70 die Lichtemission einer ArKr-Mischung (1000:1) gezeigt. Bei diesem Mischungsverhältnis kann mit der reinen Elektronenstrahlanregung der ArKr*-Mischexcimer beobachtet werden, welcher ein Maximum der Lichtemission bei 134nm aufweist [69]. Dieser Mischexcimer ist nur sehr schwach gebunden und wird bei weiterer Energiezufuhr leicht zerstört. Schon bei der kombinierten Anregung wird die Lichtemission des Mischexcimers stark verringert. Inwieweit die Intensität zum 1. Kontinuum oder zum reinen Argonexcimer geschoben wird, kann nur schwer beurteilt werden. Mit dem Zünden der Entladung geht jedoch die gesamte Anregungsenergie in die Bildung des Argonexcimers über. Im Fall der Entladung kann die Kryptonverunreinigung durch das Auftreten von Absorptionslinien in der Kontinuumsstrahlung beobachtet werden.

⁴⁴ Lediglich bei Helium ist dieser Effekt nicht zu beobachten. Helium verhält sich grundsätzlich etwas anders als die restlichen Edelgase, da es lediglich zwei s-Elektronen besitzt.

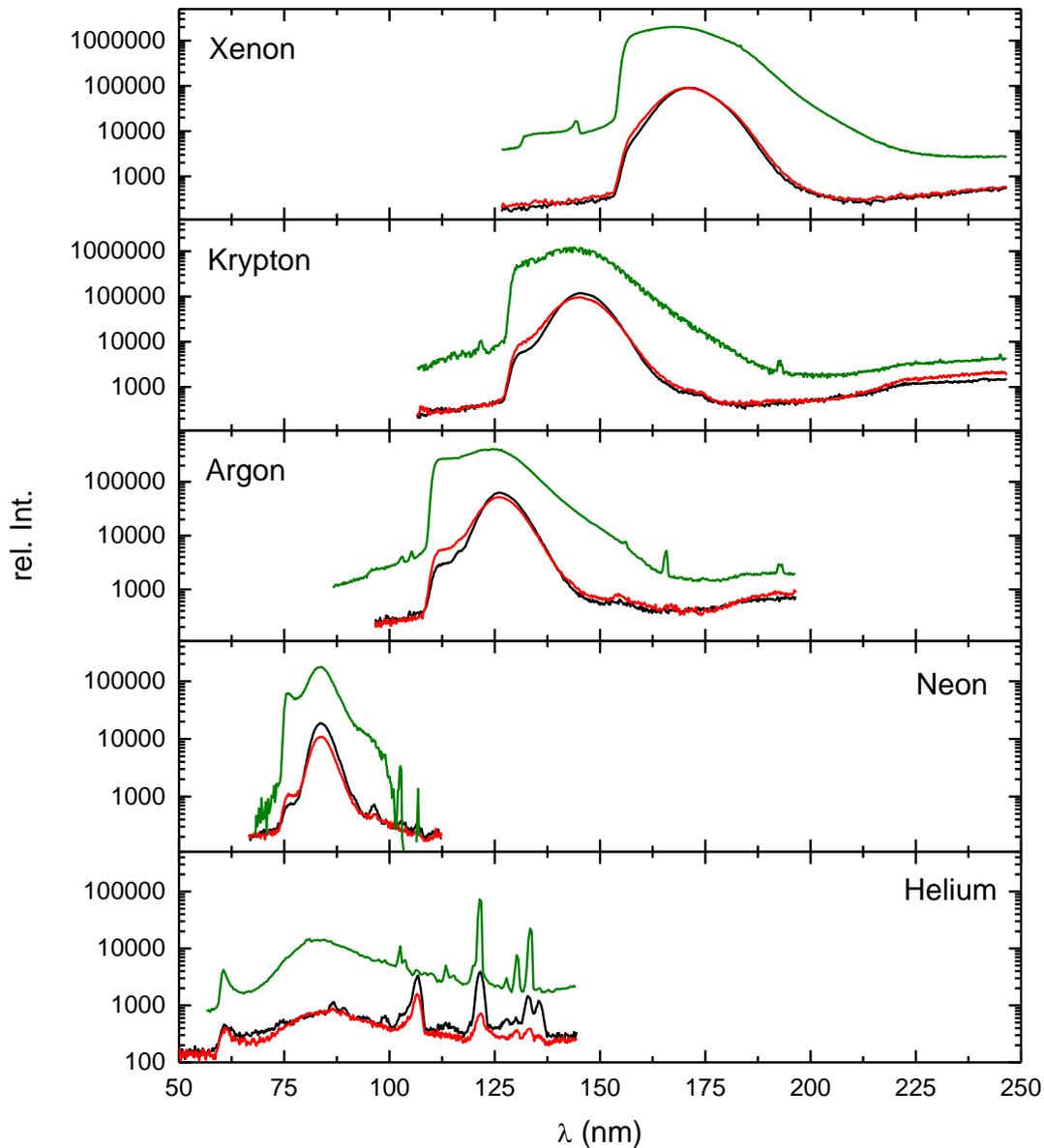


Abbildung 69 Übersicht der verschiedenen Anregungsmethoden in verschiedenen Edelgasen. Bis auf bei Helium (0,5bar) sind alle Spektren bei Atmosphärendruck aufgenommen. In **schwarz** ist jeweils die reine Elektronenstrahlanregung gezeigt. **Rot** zeigt die kombinierte Elektronenstrahl- und Mikrowellenanregung und **grün** die selbstständige Mikrowellenentladung. Die Spektren von Neon und Helium konnten nicht kalibriert werden, da in diesem Wellenlängenbereich keine Referenzlichtquelle verfügbar ist. In allen Fällen ist bei der Entladung, aufgrund der erhöhten Gesamtintensität, auch der Untergrund deutlich erhöht gegenüber den Spektren für reine Elektronenstrahlanregung und kombinierte Anregung.

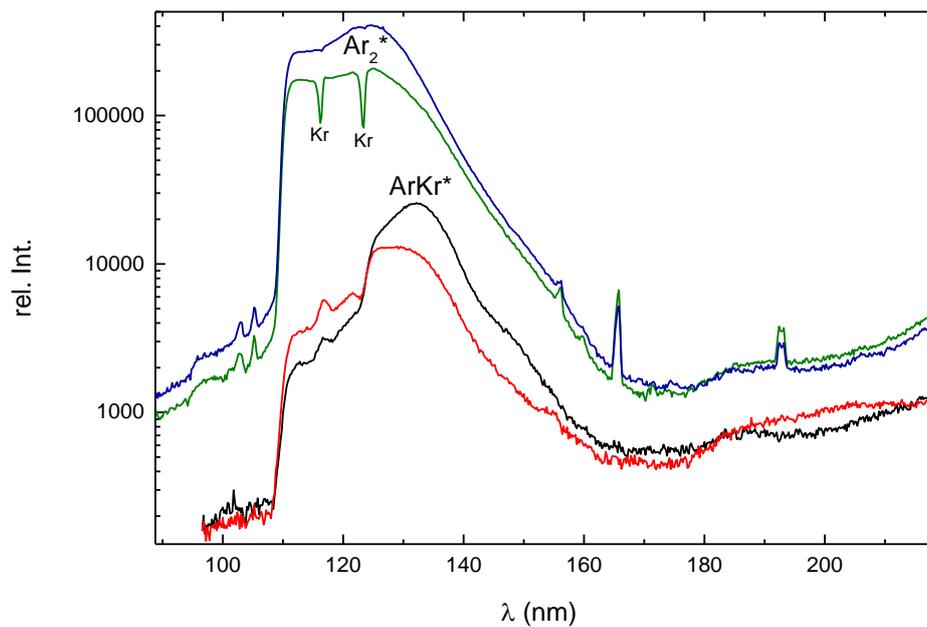


Abbildung 70 Lichtemission im VUV-Bereich einer ArKr-Mischung (1000:1) bei Atmosphärendruck für die verschiedenen Anregungsmethoden (**reine Elektronenstrahlanregung**, **kombinierte Anregung** und **Mikrowellenentladung**). Zum Vergleich ist auch das Entladungsspektrum von reinem Argon in **dunkelblau** gezeigt. Der ArKr*-Mischexcimer, welcher bei der reinen Elektronenstrahlanregung gut zu beobachten ist, kann sich in der Entladung nicht ausbilden. Hier tritt die Kryptonverunreinigung durch Absorptionslinien zu Tage. Bei der kombinierten Anregung wird die Intensität des 2. Kontinuums des Mischexcimers wohl teils auf das 1. Kontinuum und teils auf den reinen Argonexcimer übertragen.

7 Gepulste Entladung bei 9,4GHz mit 25kW Pulsleistung

Die Ergebnisse des vorigen Kapitels zeigen das große Potential der Mikrowellenentladung als Lichtquelle im VUV-Bereich. Die, mit dem dort beschriebenen Aufbau maximal erreichbare, Leistung ist mit 30W jedoch verhältnismäßig gering. Dies motiviert weitere Untersuchungen inwieweit die Lichtemission bei weiterer Erhöhung der Mikrowellenleistung gesteigert werden kann. Um dies zu untersuchen, wurde auf ein kommerzielles Gerät aus der Schiffstechnik zurückgegriffen. Radarsender mit vielen Kilowatt Pulsleistung sind dort Stand der Technik. In den hier beschriebenen Experimenten wurde ein Magnetron mit 25kW Pulsleistung bei einer Frequenz von 9,4GHz (X-Band Radar) verwendet. Ein kontinuierlicher Betrieb der Entladung ist in diesem Fall nicht mehr möglich. Die Messungen wurden bei einer Pulslänge von 500ns mit variabler Repetitionsrate bis maximal 1kHz durchgeführt. Bei sehr hohen Frequenzen (wie hier 9,4GHz) empfiehlt es sich, das Signal nicht über Kabel sondern über Hohlleiter zu transportieren, um die Verluste zu minimieren. Ein auf eine Frequenz von 9,4GHz angepasster Hohlleiter mit einer Kantenlänge von 22,8 x 10,1mm (siehe Abbildung 71) eignet sich gut, um direkt als Entladungsvolumen genutzt zu werden. Durch die breite Seite des Hohlleiters wurde der Elektronenstrahl eingekoppelt, um eine Zündung der Entladung bei hohen Drücken zu ermöglichen. Um das Gasvolumen abzuschließen und in das Gasreinigungssystem aus den vorigen Kapiteln integrieren zu können, wurde ein Stück des Hohlleiters generatorseitig mit einer Kaptonfolie versehen. Gegenüberliegend wurde das Volumen mit einem MgF_2 -Fenster abgeschlossen. Zwei Fotos durch dieses MgF_2 -Fenster sind in Abbildung 71 gezeigt. Das linke Bild zeigt die reine Elektronenstrahlanregung von 1bar Argon. Rechts ist ein Entladungspuls bei Radaranregung zu sehen. Bereits mit bloßem Auge zeigt sich die deutlich erhöhte Lichtintensität der Entladung trotz der sehr viel kürzeren Anregungsdauer. In den folgenden Kapiteln wird diese Entladungsform räumlich, zeitlich und wellenlängenaufgelöst beschrieben.

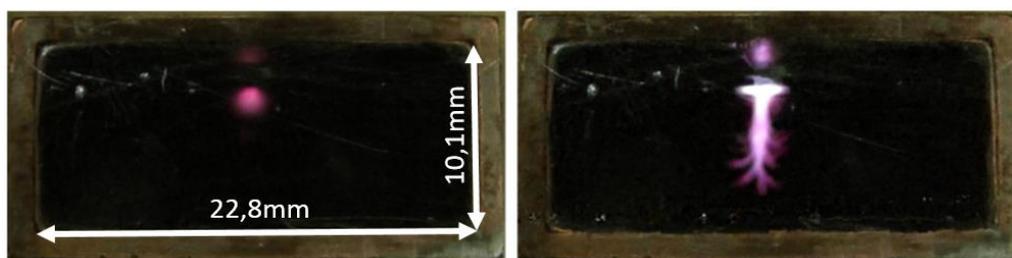


Abbildung 71 Fotos des Entladungsvolumens bei 1bar Argon. **Links:** Reine Elektronenstrahlanregung. **Rechts:** Elektronenstrahlgezündete Radarentladung.

7.1 Zündverhalten der Entladung

Wie schon bei der Mikrowellenentladung, ermöglicht die Vorionisierung des Gasvolumens durch den Elektronenstrahl eine Zündung der Entladung auch bei hohen Drücken. Um das Zündverhalten der Entladung druckabhängig und elektronenstrahlstromabhängig studieren zu können, wurde die zeitliche Struktur des durch die Entladungszelle transmittierten Radarsignals mit einer HF-Diode gemessen. Sobald die Entladung zündet, wird ein Großteil der Radarleistung in das Gas eingekoppelt bzw. im Hohlleiter zurückreflektiert. Dadurch bricht das Transmissionssignal bei der Zündung ein.

Abbildung 72 links zeigt die Druckabhängigkeit des Zündzeitpunktes. Wie zu erwarten, führt eine Druckverringerung zu einer Erleichterung der Zündung und damit zu einem früheren Zündzeitpunkt⁴⁵. Das rechte Bild in Abbildung 72 zeigt den Effekt des Elektronenstrahlstroms auf das Zündverhalten. Ohne den Elektronenstrahl kann in diesem Druckbereich keine Entladung gezündet werden. Diese Messung liefert das Referenzsignal (graue Kurve). Ein Strahlstrom von $0,5\mu\text{A}$ reicht gerade aus, um in 900mbar Argon zum Ende des Radarpulses die Zündung zu starten. Erst mit höheren Strahlströmen zündet die Entladung vollständig durch. Diverse Schwankungen in den in Abbildung 72 gezeigten Kurven sollten nicht überinterpretiert werden, da der gepulste Betrieb eines 25kW-Signals zu großen elektrischen Störungen besonders in der Verkabelung der Messtechnik führt. Um das prinzipielle Zündverhalten zu untersuchen reichen, diese Messungen aber aus.

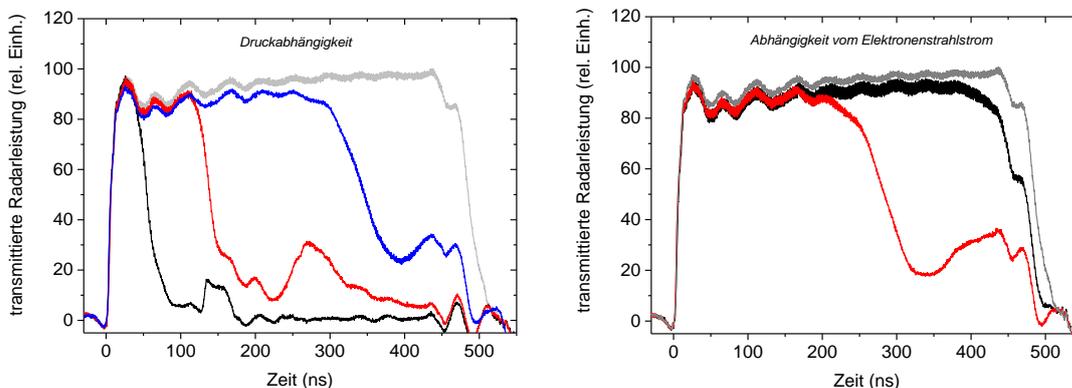


Abbildung 72 Zeitliches Zündverhalten der Radarentladung in Argon. Gezeigt ist jeweils das durch das Entladungsvolumen transmittierte Radarsignal. Die **graue** Kurve gibt als Referenzsignal das transmittierte Signal ohne Zündung einer Entladung wieder. Sie zeigt also den vollständigen 500ns langen Radarpuls. **Links:** Transmittiertes Radarsignal bei verschiedenen Drücken (**300, 600** und **900mbar**). Je niedriger der Druck (in diesem Druckbereich), umso früher zündet die Entladung. **Rechts:** Transmittiertes Radarsignal bei zwei verschiedenen Elektronenstrahlströmen (**0,5** und **5µA**) bei 900mbar. Es zeigt sich deutlich die Notwendigkeit des Elektronenstrahls, um in diesem Druckbereich eine Entladung zu zünden.

⁴⁵ Dies gilt für den hier studierten Druckbereich. Gemäß der Paschenkurve würden deutlich niedrigere Drücke die Zündung wieder erschweren.

7.2 Wellenlängenaufgelöste Messungen im VUV und VIS-IR-Bereich

Abbildung 73 zeigt, dass die Spektren auch bei der deutlich erhöhten Leistungsdichte der Radarentladung durch die gleichen Emissionstrukturen dominiert werden wie bei Elektronenstrahl- und Mikrowellenanregung. Das VUV-Spektrum weist zwar drei Kohlenstofflinien (156,1nm, 165,7nm und 195,3nm) auf, dominiert wird das Spektrum aber auch hier durch 1. und 2. Excimerkontinuum. Auch in diesem Entladungstyp ist die Intensität sehr stark zum 1. Kontinuum geschoben. Zu beachten ist in Abbildung 73 oben, dass für diesen Aufbau keine Kalibrierung durchgeführt werden konnte. Außerdem musste, im Gegensatz zu den VUV-Messungen in den vorigen Kapiteln, ein MgF₂-Fenster zwischen Gasvolumen und Detektor eingebaut werden, wodurch die Spektren auf der kurzwelligen Seite stark beschnitten werden. Dadurch erscheint das 1. Kontinuum in Abbildung 73 deutlich schwächer als es tatsächlich ist.

Auch der sichtbare und nahe Infrarotbereich in Abbildung 73 zeigt keine prinzipiellen Unterschiede zur 2,45GHz-Mikrowellenentladung mit einer Leistung von 28W. Das Spektrum ist dominiert durch atomare Argonlinien. Auch die schwächeren Linien zwischen ca. 300 und 700nm, in Abbildung 73 Mitte, können im Wesentlichen optischen Übergängen in neutralen Argonatomen zugeordnet werden. Den Linien überlagert ist auch hier wieder das breite Photorekombinationskontinuum.

Abbildung 73 unten zeigt zum Vergleich auch ein Spektrum bei reiner Elektronenstrahlanregung mit einem kontinuierlichen Strahlstrom von 5μA. Im Mittel ist die Intensität der Linien bei der Radarentladung in etwa um einen Faktor 3 gegenüber der reinen Elektronenstrahlanregung erhöht. Zu beachten ist hier, dass eine kontinuierliche Elektronenstrahlanregung mit einer gepulsten Radarentladung mit einem Tastverhältnis von 1:2000 (500ns Pulslänge, 1kHz Repetitionsrate) verglichen wird. Normiert man die Intensität auf die Anregungszeit ergibt sich für die Radarentladung eine um einen Faktor $6 \cdot 10^3$ erhöhte Intensität. Dieser Wert ist aus zwei Gründen nur als Abschätzung der Größenordnung zu betrachten. Zum einen ist aus Abschnitt 5.4.1 bekannt, dass sich die Intensitäten unterschiedlicher atomarer Argonlinien aufgrund der thermischen Stoßbesetzung der angeregten Energieniveaus sehr unterschiedlich verhalten können. Zum anderen dauert die Lichtemission in der gepulsten Anregung deutlich länger als der Anregungspuls (Rekombinationsleuchten, vgl. Abschnitt 6.1.2). Die momentane Lichtleistung während des Anregungspulses ist deutlich niedriger.

Für den VUV-Bereich in Abbildung 73 links ist eine analoge Betrachtung der Intensitätsverhältnisse nicht möglich. Da der Photomultiplier hier als Einzelphotonenzähler verwendet wird, ist eine sehr hohe Lichtintensität in einer kurzen Zeit problematisch, da sich die Signale der einzelnen Photonen überlagern können, wodurch mehrere Photonen nur als ein Photon gezählt werden können. Die Intensität würde dadurch also unterschätzt. Eine Abschätzung der Lichtintensität im VUV-Bereich folgt in Abschnitt 7.4 im Rahmen der zeitaufgelösten Messungen des 2. Kontinuums.

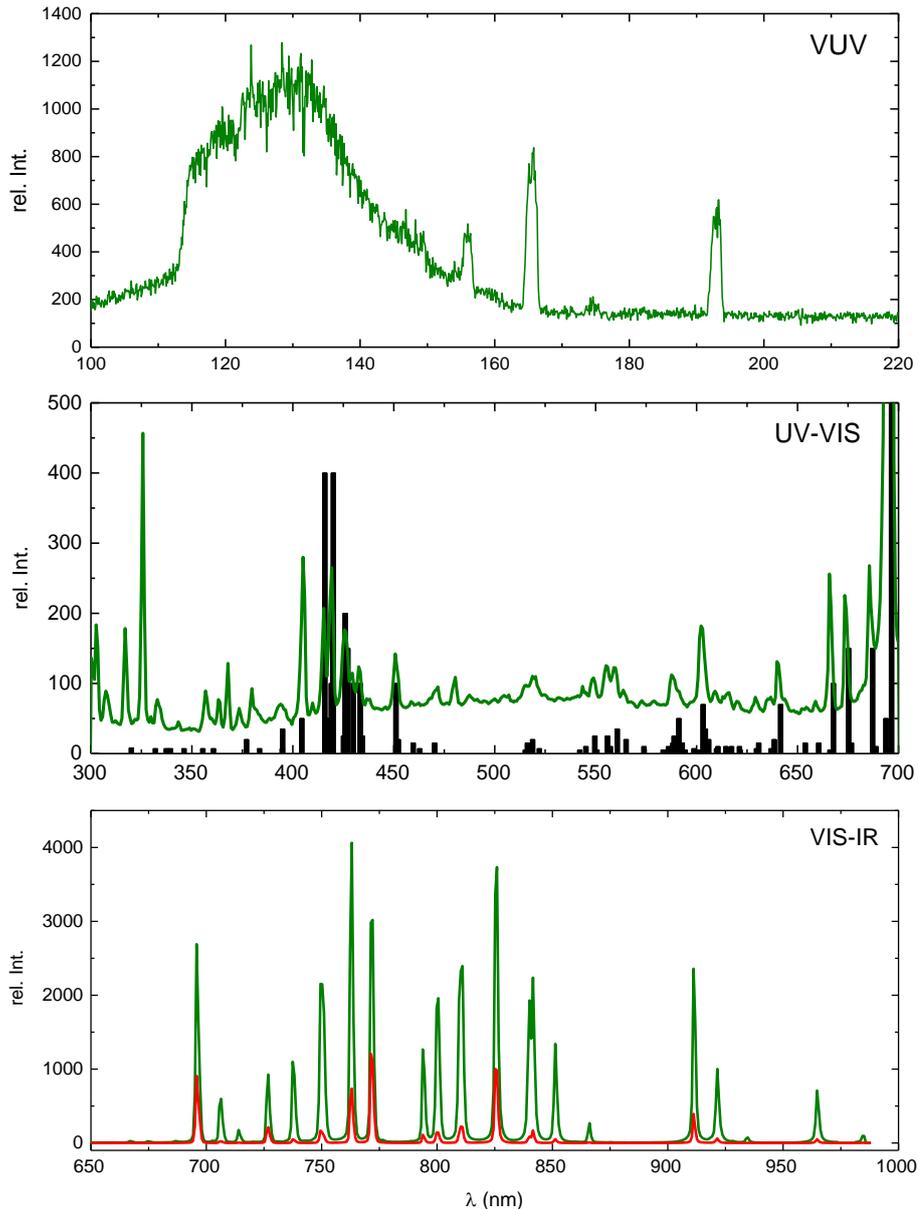


Abbildung 73 VUV- (oben), UV-VIS (Mitte) und VIS-IR-Spektrum (unten) der Radarentladung (grün). Im mittleren Bild ist in schwarz die Zuordnung der Linien zu den Tabellenwerten für atomare Argonlinien der NIST Atomic Database [70] gezeigt. Unten ist zum Vergleich ein Spektrum bei reiner Elektronenstrahlanregung mit 5 μ A Strahlstrom gezeigt (rot).

7.3 Zeitaufgelöste räumliche Ausdehnung der Entladung

Da das UV-VIS-IR Kontinuum, wie in den Abschnitten 5.3 und 6.1.2 beschrieben, sehr schnell mit dem Ende des Anregungspulses verschwindet, kann ein, im sichtbaren Spektralbereich empfindliches, schnelles Kamerasystem gut dazu verwendet werden, um die räumliche Ausdehnung der Entladung zeitaufgelöst zu untersuchen (ohne durch ein rekombinationsbedingtes Nachleuchten verfälscht zu werden). Um die Entladung in sehr kurzen Zeitabständen fotografieren zu können, wurde sie mit einer Linse auf eine schnelle „micro-channel-plate“ (MCP) abgebildet. Diese MCP war in unterschiedlichen Abständen zum Zündzeitpunkt der Entladung für jeweils 10ns aktiv. Die jeweiligen Bilder der Entladung auf einem

Szintillatorschirm wurden mit einer Kamera (EG&G) fotografiert. Die Ergebnisse für zwei verschiedene Gasdrücke (500 und 800mbar) sind in Abbildung 74 und Abbildung 75 gezeigt. Leichte Unterschiede in den Fotoreihen sind darauf zurückzuführen, dass jeweils unterschiedliche Entladungen fotografiert wurden. Das Kamerasystem war nicht in der Lage, eine schnelle Fotofolge aufzunehmen, sondern pro Entladung nur ein Bild über einem festen Zeitintervall. Die Helligkeitsschwankungen der Bilder sind zum Teil auf das Kamerasystem zurückzuführen. Die Form der Entladung bleibt hingegen über viele Zündungen weitgehend konstant. Durch die optische Abbildung sind die Bilder verglichen mit denen in Abbildung 71 auf den Kopf gestellt. In Abbildung 74 und Abbildung 75 kommt der Elektronenstrahl also von unten. In beiden Fotostrecken bildet sich, ausgehend vom durch den Elektronenstrahl vorionisierten Gebiet, ein ballonförmiges, homogen leuchtendes Volumen aus. Es gleicht in der Form sehr stark der typischen Lichterscheinung der Vorstufe eines negativen Streamers [71] und würde in diesem Fall von einer einzelnen Elektronenlawine herrühren. Auch die Ausbreitungsgeschwindigkeit liegt mit einigen $10^{-5}s$ [39] in der typischen Größenordnung einer solchen Elektronenlawine [71]. Ausgehend von diesem Volumen bilden sich nach einer gewissen Zeit (ca. 90ns bei 500mbar und ca. 60ns bei 800mbar) einzelne Streamer aus, welche bei der 500mbar-Messung auch bis zur gegenüberliegenden Wand reichen.

Für eine Lichtquelle mit möglichst hoher Brillanz und definiertem Ort der Lichtemission ist besonders das homogen leuchtende Volumen der ersten Elektronenlawine zu Beginn der Entladung von Interesse. Die in Abbildung 74 und Abbildung 75 gezeigten Messreihen zeigen, dass die Brillanz durch eine Erhöhung des Gasdrucks verbessert werden kann. In diesem Aufbau mit dem Hochgeschwindigkeitskamarasystem war eine weitere Druckerhöhung leider nicht möglich. In Kapitel 8 wird dieser Effekt am Beispiel von Neon gezeigt.

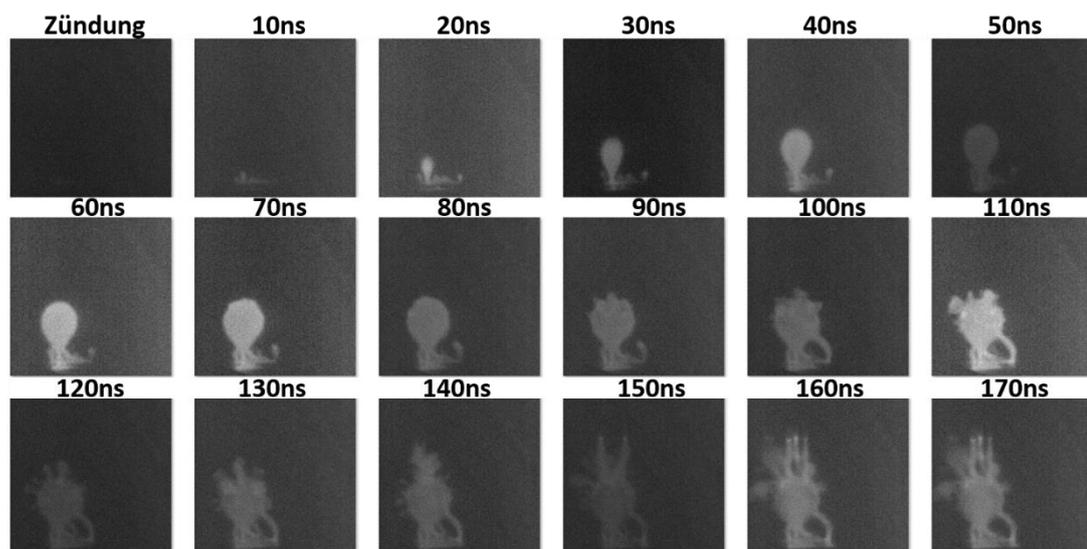


Abbildung 74 Zeitliche Entwicklung der Radarentladung in 500mbar Argon. Die Bilder wurden mit einer schnellen MCP in Kombination mit einer Kamera (EG&G) aufgenommen. Der Elektronenstrahl tritt in diesem Fall von unten in das Gasvolumen ein. Da das Kamerasystem keine schnelle Bildfolge aufnehmen kann, zeigt jedes Bild eine eigene Entladung jeweils zu einem unterschiedlichen Zeitpunkt. Wenngleich die beobachtete Helligkeit (bedingt durch das Kamerasystem) dabei schwankt, so ist die Form der Entladung über viele Zündungen hin nahezu konstant.

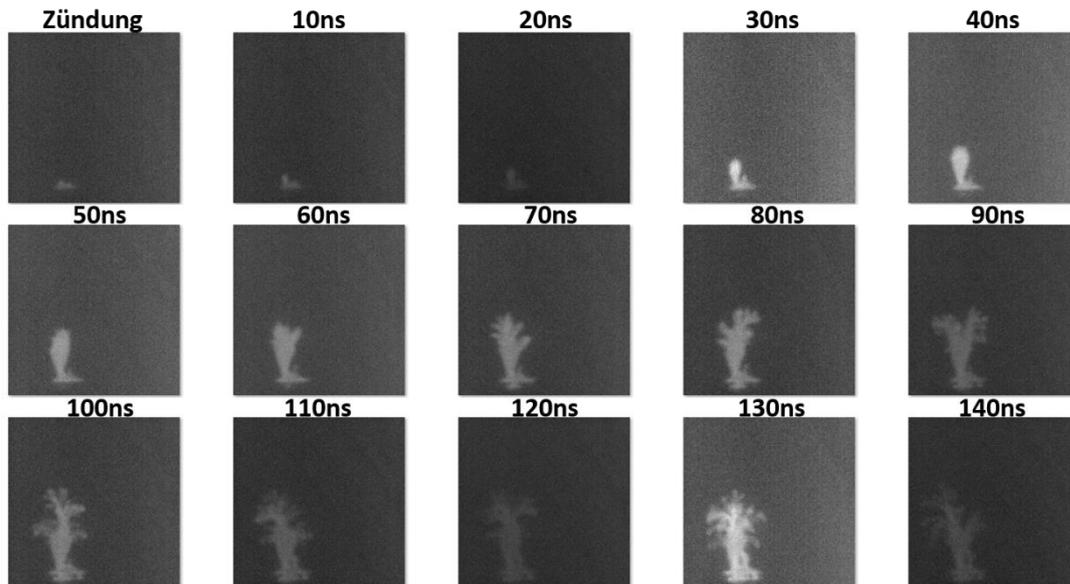


Abbildung 75 Zeitliche Entwicklung der Radarentladung in 800mbar Argon. Die Bilder wurden mit einer schnellen MCP in Kombination mit einer Kamera (EG&G) aufgenommen. Der Elektronenstrahl tritt in diesem Fall von unten in das Gasvolumen ein. Da das Kamerasystem keine schnelle Bildfolge aufnehmen kann, zeigt jedes Bild eine eigene Entladung jeweils zu einem unterschiedlichen Zeitpunkt. Wenngleich die beobachtete Helligkeit (bedingt durch das Kamerasystem) dabei schwankt, so ist die Form der Entladung über viele Zündungen hin nahezu konstant.

7.4 Zeitstruktur des 2. Kontinuums

Das VUV-Spektrum in Abbildung 73 deutet bereits an, dass die Lichtemission sehr ähnlich zu der bei Elektronenstrahl- und kombinierter Anregung ist. Wie in Abschnitt 7.2 beschrieben, war bei den Messungen mit dem PMT im Einzelphotonenmodus keine qualifizierte Abschätzung der Lichtintensität möglich. Für die nun beschriebenen Messungen der Zeitstruktur der Lichtemission wurde der PMT im sog. Strom-Mode betrieben. D.h. dem PMT wird durch sehr breite Monochromatorschlitze bewusst so viel Licht zugeführt, dass der PMT keine Einzelpulse zu den jeweiligen Photonen ausgibt, sondern ein durchgängiges Signal proportional zur Lichtintensität. Ein so generiertes Zeitspektrum für das 2. Kontinuum (126nm) in 1bar Argon ist in Abbildung 76 gezeigt. Die Entladung wurde mit einem kontinuierlichen Elektronenstrahl von $1\mu\text{A}$ gezündet und es wurde über 1000 Messungen gemittelt. Nach Zündung der Entladung in etwa zur Hälfte des Radarpulses ist ein relativ gleichmäßiger Anstieg der Lichtemission bis etwa $250\mu\text{s}$ nach Ende des Radarpulses zu erkennen. Um zu verdeutlichen, dass dieses Nachleuchten echt ist und nicht etwa durch ein Artefakt in Form einer zeitlichen Verzögerung in der Zeitmessung zustande kommt, ist zudem eine Messung der Zeitstruktur von Xenon gezeigt. Die Lichtemission von Xenon reagiert aufgrund der schnelleren Zeitkonstanten direkter auf das An- und Abschalten der Radaranregung. Bei der Xenonmessung ist zum Pulsende hin bereits eine leichte Abschwächung des Anstiegs der Lichtintensität zu beobachten. Dies weist auf die beginnende Einstellung eines Gleichgewichts in der Entladung hin. Nach Ende des Anregungspulses kühlen Gas und Elektronen rasch ab, wodurch die Rekombinationsrate ansteigt. Des führt zu dem erneuten steileren Anstieg der Lichtemission.

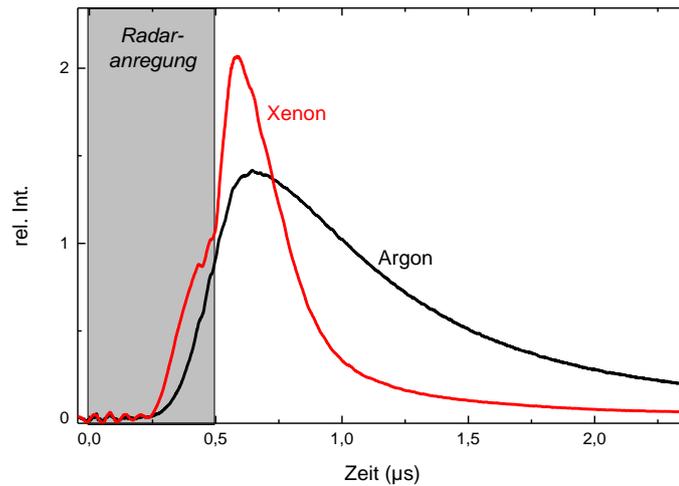


Abbildung 76 Zeitspektren der Lichtemission im 2. Kontinuum für elektronenstrahlgezündete Radarentladung. Das Maximum der Lichtemission tritt im Rekombinationsleuchten nach dem Ende des Anregungspulses auf. Die Zeitstruktur in **Argon** scheint aufgrund der für diese Pulslänge ungünstigen Zeitkonstanten von Rekombination und Triplett-Zustand etwas „verschmiert“. Um das Ende des Anregungspulses auch in der Lichtemission darzustellen, ist auch ein Spektrum von **Xenon** bei 1 bar gezeigt. Dessen schnellere Zeitkonstanten führen dazu, dass die Lichtemission direkter auf den Anregungspuls reagiert.

Dieselben Vorgänge laufen auch im Argon ab. Aufgrund der langsameren Zeitkonstanten (Rekombination und Triplettlebensdauer) ist das Pulsende in der Zeitstruktur nicht so stark ausgeprägt wie beim Xenon. Bei einem längeren Anregungspuls würde man qualitativ den gleichen Verlauf wie im Xenon auch im Argon beobachten.

Analog zu den Abschnitten 4.6 und 6.1.2 soll nun wiederum mittels des zeitlichen Verlaufs der Lichtemission im 2. Kontinuum auf die Elektronendichte zurückgerechnet werden. Abbildung 77 zeigt hierzu die Lichtemission des 2. Kontinuums bis spät (30µs) nach dem Anregungspuls. Für die in Abbildung 77 gezeigten Modellrechnungen ergibt sich eine Elektronendichte am Pulsende von

$$n_e \approx 2 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3} \quad (28)$$

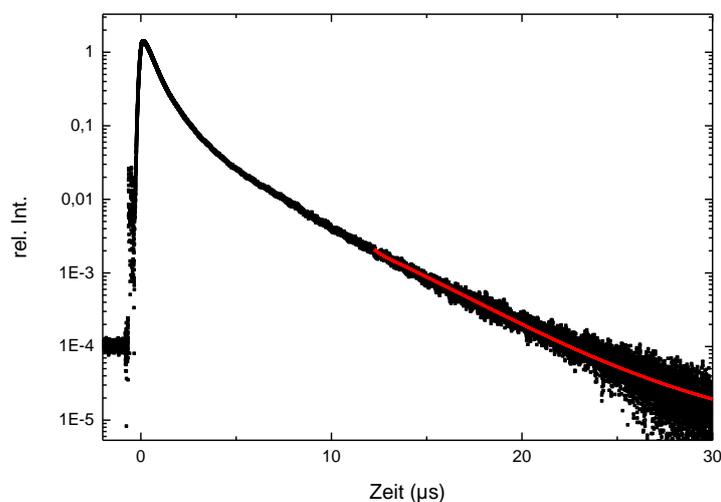


Abbildung 77 Zeitstruktur der Lichtemission im 2. Kontinuum von Argon bei Atmosphärendruck bis 30µs nach Ende des Anregungspulses. Ebenso gezeigt ist das Ergebnis einer Modellrechnung für die Lichtemission in der Spätphase nach dem Anregungspuls (rot).

Eine zu Abschnitt 4.5 analoge Abschätzung der Elektronendichte über die Leistungseinkopplung ist etwas problematisch. So ist beispielsweise kein Messgerät zur Messung der eingekoppelten Leistung vorhanden. Außerdem zeigt die Entladung zwei unterschiedliche Formen (homogene Vorstufe der Streamer bzw. Streamer selbst), so dass zum einen die Größe des angeregten Volumens nur schwer abgeschätzt werden kann, zum anderen die Plasmamparameter in den beiden Formen sehr unterschiedlich sein dürften. Ebenso ist zu bedenken, wie bereits in Abschnitt 6.1.2 angesprochen, dass der exakte W -Wert für diese Anregungsform nicht bekannt ist. Führt man die Abschätzung der Elektronendichte ungeachtet dieser Punkte dennoch durch, so ergibt sich ein Wert von $n_e \approx 1 \cdot 10^{15} \text{cm}^{-3}$. Bezogen auf das gesamte angeregte Volumen (ungeachtet der einzelnen Streamer) dürfte dieser Wert als Obergrenze zu verstehen sein. Der zuvor ermittelte Wert aus dem zeitlichen Verhalten der Lichtemission dürfte hingegen als untere Grenze gelten (vgl. Abschnitt 6.1.2). Durch die hohe Leistungsdichte im Radarpuls und die damit verbundenen hohen Temperaturen im angeregten Volumen sind bei dieser Anregungsmethode Quencheffekte durch Verunreinigungen sowie auch Selbstquenching wahrscheinlich. Es ist somit davon auszugehen, dass der wahre Wert für die mittlere Elektronendichte in der Größenordnung von einigen 10^{14}cm^{-3} liegt.

Das Vorhandensein von Quenchprozessen wird dadurch angedeutet, dass die Lichtintensität nach dem Erreichen des Maximums zunächst relativ schnell abfällt und sich dieser Abfall nach einigen Mikrosekunden deutlich abschwächt. Das anfängliche Auftreten einer schnelleren Zeitkonstante als erwartet weist auf Quenchingeffekt hin⁴⁶. Der Beitrag der Verunreinigungen zu diesem Verhalten kann direkt gezeigt werden, in dem auch die Zeitstruktur der Kohlenstoffverunreinigungen (vgl. Abbildung 73) analysiert wird. Diese sind zusammen mit den verschiedenen Komponenten der Argonemission in Abbildung 78 gezeigt. In der heißeren Frühphase nach dem Anregungspuls läuft der Energietransfer von Argon zu Kohlenstoff effizienter ab, wodurch die Lichtintensität von Argon schneller und die von Kohlenstoff langsamer abfällt. Erst in der späteren Phase, in der das Gas zunehmend abkühlt, stellt sich eine konstante Rate für den Energietransfer ein. Da die Lebensdauern der den Kohlenstofflinien zugehörigen Energieniveaus kurz sind, folgt dann die Zeitstruktur dieser Linien derjenigen der Argonemission.

⁴⁶ Auch ein starkes Mischen von Singulett- und Triplettzuständen, wie in Abschnitt 4.6 diskutiert, trägt zu diesem zeitlichen Verlauf bei.

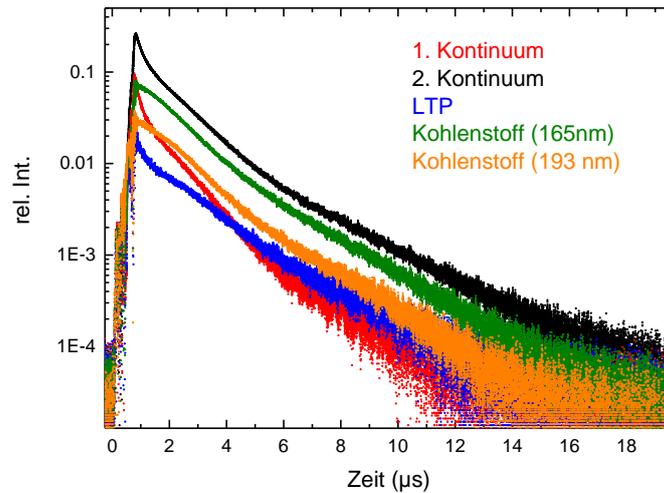


Abbildung 78 Einfluss der Kohlenstoffverunreinigung auf die Lichtemission von Argon. Die unterschiedliche Krümmung der Kurven im Bereich von etwa 1-3 μ s zeigt den starken Energietransfer von Argon auf Kohlenstoff. Die Lichtemission von Argon nimmt schneller, die von Kohlenstoff langsamer ab, als ohne den Energietransfer.

Abschließend soll aus einem Vergleich der Zeitspektren von Radarentladung und Elektronenstrahlanregung der Gewinn an Lichtintensität durch die erhöhte Leistungseinkopplung abgeschätzt werden. Verglichen wird hierbei das Integral über einen Radarpuls mit dem eines 300 μ A Elektronenstrahlpulses⁴⁷ bei sonst gleichen Parametern (Pulslänge und Repetitionsrate). Die zugehörigen Zeitspektren sind in Abbildung 79 dargestellt. Die integrale Lichtausbeute ist bei der Radarentladung in etwa um einen Faktor 100 erhöht gegenüber dem 300 μ A-Elektronenstrahlpuls⁴⁸.

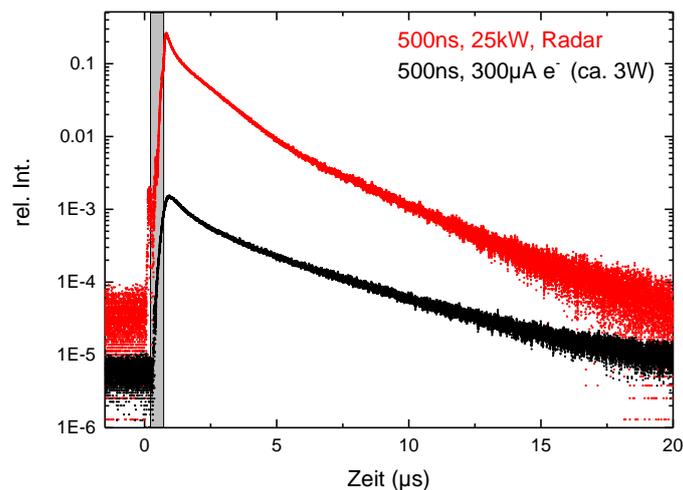


Abbildung 79 Vergleich der zeitabhängigen Lichtemission im 2. Kontinuum von Argon bei Atmosphärendruck für **Radar-** bzw. **Elektronenstrahlanregung**. Ein Vergleich der Integrale der beiden Kurven liefert die Grundlage für die Abschätzung der Intensitätsverhältnisse in Abbildung 80.

⁴⁷ Jeweils inklusive Rekombinationsleuchten.

⁴⁸ Um die Siliziumnitridmembran zu schonen wurde hier nicht der maximal mögliche Strom der Elektronenquelle von 1mA verwendet.

Wie eingangs beschrieben, ist besonders das 1. Kontinuum für die Anwendung als Lichtquelle von Interesse. Hierbei sind die Zeitspektren von Elektronenstrahl- und Radaranregung nicht direkt vergleichbar, da einmal mit und einmal ohne MgF_2 -Fenster gemessen wurde. Konservativ kann jedoch, gemäß der Ergebnisse für die Mikrowellen in Abschnitt 6.1.1 (vgl. Abbildung 55), abgeschätzt werden, dass die Intensität des 1. Kontinuums beim Übergang zur Hochfrequenzentladung etwa 10mal stärker an Intensität gewinnt, als das 2. Kontinuum. Diese Abschätzung geht in die in Abbildung 80 gezeigte Übersicht über den relativen Intensitätsverlauf bei den verschiedenen in dieser Arbeit beschriebenen Anregungsmethoden mit ein. Die Werte sind alle normiert auf den Energieeintrag, den die jeweilige Anregungsmethode in 500ns (feste Pulslänge der Radaranregung) leisten kann. Der niedrigste Wert ($5\mu\text{A}$ Elektronenstrahlanregung) gilt für die Standardbetriebsparameter der konventionellen Elektronenröhre im kontinuierlichen Betrieb. Für die reine Elektronenstrahlanregung kann hier im besten Fall noch ein Faktor zwei gewonnen werden, wenn man sich der thermischen Belastungsgrenze der Membran bei $10\mu\text{A}$ nähert. Dies ist allerdings für den Langzeitbetrieb nicht zu empfehlen. Im kontinuierlichen Betrieb zeigt die Mikrowellenanregung eine deutliche Verbesserung der Lichtemission im 1. Kontinuum.

Verwendet man eine gepulste Anregung, so sind auch mit der Elektronenstrahlanregung höhere Intensitäten möglich, da für kurze Zeit sehr viel höhere Strahlströme durch die Membran geschickt werden können, als im kontinuierlichen Betrieb. Ein Strahlstrom von ca. 1mA stellt hier das mit der konventionellen Elektronenröhre erreichbare Maximum dar. Zu beachten ist, dass die relative Intensität in Abbildung 80 auch das Rekombinationsleuchten nach dem Anregungspuls berücksichtigt. Die momentane Lichtintensität während dem Anregungspuls ist somit niedriger. Die Belastungsgrenze der Membran bei 500ns Pulsanregung liegt in etwa bei $0,3\text{A}$ Strahlstrom. Auch der damit erreichbare Wert ist in Abbildung 80 gezeigt. Hierfür ist die Verwendung spezieller Elektronenquellen, wie beispielsweise einer Elektronenquelle in Pierce-Geometrie (Firma Litton) notwendig. Mit der Radaranregung ist hier im 1. Kontinuum eine vergleichbare Lichtintensität erreichbar; allerdings bei einer höheren notwendigen Leistung. Der Vorteil der Radaranregung ist, dass deutlich höhere Repetitionsraten verwendet werden können. Gerätebedingt konnten in dieser Arbeit nur Raten bis zu 1kHz untersucht werden. Die Elektronenstrahlanregung wäre hierbei (wiederum durch die Belastbarkeit der Eintrittsmembran) auf weniger als 100Hz limitiert. Ebenso sind bei der Radaranregung prinzipiell längere Pulslängen möglich. Dies zeigt das Potential dieser Anregungsform zu einer hochintensiven Lichtquelle im VUV-Bereich. Eine Abschätzung der Konversionseffizienz in VUV-Licht (gesamter VUV-Bereich) ist nicht ohne weiteres möglich, da die Volumina der verschiedenen Entladungen unterschiedlich sind und das Detektorsystem somit unterschiedliche Ausschnitte der angeregten Volumina sieht. Eine grobe Abschätzung führt aber sowohl für die Mikrowellenentladung aus Kapitel 6, wie auch für die Radarentladung in die Größenordnung von etwa 1%.

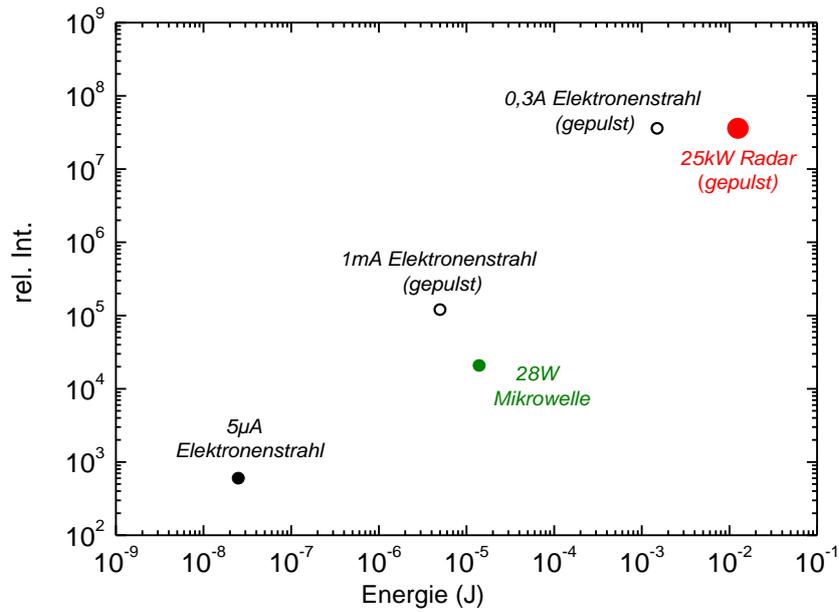


Abbildung 80 Übersicht über das relative Intensitätsverhältnis im 1. Kontinuum von Argon bei Atmosphärendruck für die in dieser Arbeit beschriebenen Anregungsmethoden. Die Werte sind aufgetragen über die Energie, welche in 500ns eingestrahlt wird. Bei den Werten für gepulste Anregung (Elektronenstrahl und Radar) ist jeweils auch das Rekombinationsleuchten berücksichtigt, d.h. diese Werte entsprechen nicht der momentanen Lichtintensität während des Anregungspulses.

8 Ausblick - Anwendung als Lichtquelle und Optimierungspotential

Die Elektronenstrahlanregung dichter Gase eignet sich für eine Vielzahl verschiedenster Anwendungen. Wie in dieser Arbeit beschrieben, reichen diese von sehr grundlagenorientierten Laborversuchen (z.B. Linienbreitenmessungen) bis hin zu kommerziellen Produkten (VUV-Lichtquelle [17]). Da die Anregungsform weitgehend unabhängig von Zusammensetzung und Druck des Gases ist, können mit der Elektronenstrahlanregung beispielsweise Druckverbreiterungskoeffizienten von Spektrallinien hervorragend bestimmt werden (vgl. Abschnitt 4.3). Ein in dieser Arbeit nicht beschriebenes Feld, welches aber in der aktuellen Forschung von sehr großem Interesse ist, betrifft die Untersuchung der Szintillation flüssiger Edelgase. Diese sollen in aktuellen oder im Aufbau befindlichen Detektoren zum Nachweis hochenergetischer Teilchen als Detektormedium dienen [14-16]. Auch dieser Bereich wurde und wird weiterhin in unserer Arbeitsgruppe an der TU München intensiv verfolgt [37, 72-76].

Die Elektronenstrahlanregung dichter Gase ermöglicht die Realisierung von sehr kompakten und hochbrillanten Lichtquellen im VUV-Bereich [1-3, 13, 17]. Ein mögliches Einsatzgebiet solcher VUV-Lichtquellen betrifft das Feld der Photoionisation. Diese fragmentierungsfreie Ionisierungsmethode eignet sich besonders gut zum Nachweis von diversen Substanzen in Flugzeit- [9] oder Quadrupolmassenspektrometern [10] sowie Ionenmobilitätsspektrometern. Auf die letztgenannte Variante zielte das BMBF-Verbundprojekt DIVE (Detektionssystem zum schnellen Vor-Ort-Nachweis sicherheitsrelevanter Substanzen mittels eines Ionenmobilitätsspektrometers mit VUV-Multipasszelle zur Einzelphotonenionisation, Förderkennzeichen 13N11376) ab, im Rahmen dessen an der TU München die VUV-Lichtquelle optimiert werden sollte. Ein erster Ansatz hierzu war es, die verwendete Lichtsammeloptik möglichst effizient zu gestalten. Um den größtmöglichen Anteil des erzeugten Lichts in das Reaktionsvolumen des Ionenmobilitätsspektrometers (IMS) zu führen wurde für den Sammelspiegel eine Ellipsegeometrie gewählt. Eine schematische Darstellung des Konzepts ist in Abbildung 81 dargestellt.

Für ein solches Konzept, wie in Abbildung 81 dargestellt, ist der Einbau eines optischen Fensters (MgF_2) notwendig. Ebenso ist am Ort des Lichtseintritts in das Reaktionsvolumen des IMS ein metallisches Gitter vorzusehen, um über dem Ionisationsvolumen des IMS ein elektrisches Feld anlegen zu können. Auch ein solches Gitter sollte eine möglichst hohe optische Transmission für das VUV-Licht aufweisen. MgF_2 -Fenster von besonders hoher Qualität wurden von der Firma Korth

Kristalle [77] gefertigt. An der TU München wurde auf diese Fenster ein 200nm dünnes Goldgitter aufgedampft. Durch die geringe Dicke des Gitters wird auch schräg einfallendes Licht (vgl. Abbildung 81) kaum abgeschattet. Durch dieses Verfahren kann die Transmission der räumlichen Trennung von Lichtquelle und IMS-Reaktionsvolumen auch im kurzwelligen VUV-Bereich auf über 50% gebracht werden, wie in Abbildung 82 rechts dargestellt. In dem Verbundvorhaben wurde als Gasfüllung für die Lichtquelle letztlich eine Neonwasserstoffmischung gewählt, welche sich durch eine intensive Emission der Lyman- α -Linie bei 121,6nm auszeichnet [11, 12]. Bei dieser Wellenlänge beträgt die Transmission des bedampften optischen Fensters sogar 58%.

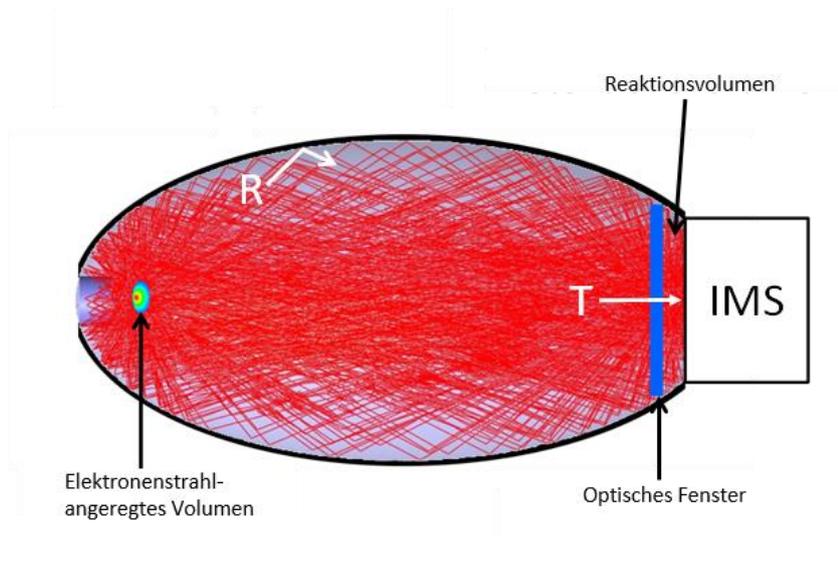


Abbildung 81 Schematische Darstellung des Ellipsenspiegels mit einigen zusätzlichen Komponenten. Die roten Linien sind das Ergebnis einer „Ray-Tracing-Simulation“ des Fraunhoferinstituts IOF in Jena. Diese Simulation ergibt, dass das Licht im Mittel unter einem Winkel von ca. 15° auf das optische Fenster trifft. Das Bild ist dem Abschlussbericht für das BMBF-Verbundvorhaben DIVE entnommen [78] und bearbeitet.

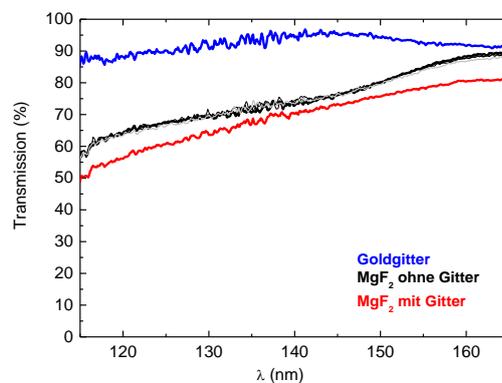
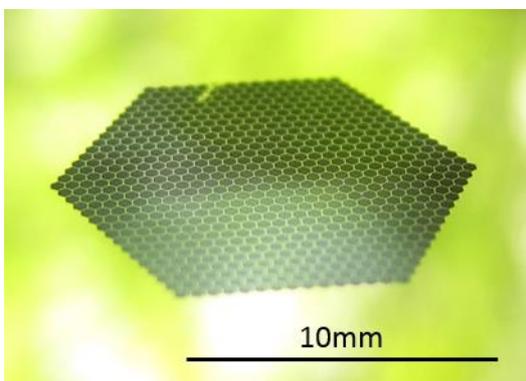


Abbildung 82 Links: Foto des auf ein MgF₂-Fenster aufgedampften Goldgitters. **Rechts:** Transmissionsmessungen im VUV-Bereich des MgF₂-Fensters und des Goldgitters. Bei 121,6nm beträgt die Transmission von MgF₂-Fenster inklusive Goldgitter ca. 58%.

Im Rahmen des Verbundprojekts wurde ein Demonstrator aufgebaut, welcher am Wehrwissenschaftlichen Institut für Schutztechnologien (WIS) in Munster erfolgreich getestet wurde. Ein Foto des Demonstrators sowie zwei beispielhafte Messungen zum Nachweis von Aceton und Toluol sind in Abbildung 83 gezeigt.

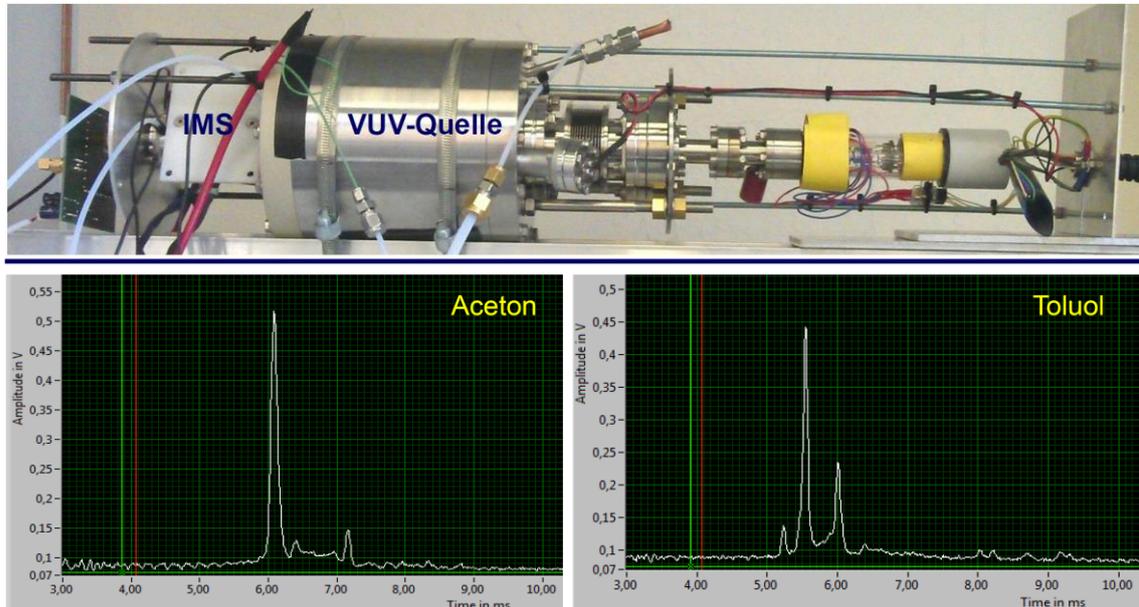


Abbildung 83 Entnommen aus dem Abschlussvortrag des Wehrwissenschaftlichen Instituts (WIS) aus Munster [79] **Oben:** Foto des fertiggestellten Demonstrators. Links im Bild befindet sich das Ionenmobilitätsspektrometer (IMS). Das Gasvolumen der Lichtquelle ist mit „VUV-Quelle“ gekennzeichnet. Im Bereich des gelben Klebebands weiter rechts befindet sich die Elektronenquelle. **Unten:** Zwei Beispiele für den erfolgreichen Test dieses Systems mit zwei verschiedenen Substanzen (Aceton bzw. Toluol).

Die Fertigung und VUV-Beschichtung eines Ellipsoidspiegels gestaltet sich als sehr kostspielig. Auch für eine NeH-Lichtquelle kann über eine alternative Anregungsmethode zur reinen Elektronenstrahlung nachgedacht werden. Die in Kapitel 7 vorgestellte Radaranregung könnte hier eine Option darstellen. In ersten Vorversuchen konnte auch für diese Gasmischung ein deutlicher Intensitätsgewinn zur reinen Elektronenstrahlanregung festgestellt werden, wie in Abbildung 84 dargestellt. Hierbei ist zu beachten, dass es sich in diesem Fall lediglich um erste Testmessungen handelte. Eine Optimierung der Gasmischung wurde nicht durchgeführt. Dies zeigt sich besonders im Übersichtsspektrum in Abbildung 84 links. Für eine optimale Gaszusammensetzung sollte im gezeigten Bereich nur die 121,6nm Linie zu beobachten sein. Durch die stark unterschiedlichen Plasmaparameter bei den verschiedenen Anregungsmethoden ändert sich auch der Energietransfer sehr stark und die optimale Gaszusammensetzung müsste an die Anregungsform angepasst werden. Abbildung 84 rechts zeigt allerdings, dass durch die Radarentladung auch ohne optimale Gasmischung eine, zu Abschnitt 7.4 vergleichbare, eine Verstärkung der Lichtleistung in der Größenordnung eines Faktors von einigen Tausend (normiert auf die zeitliche Dauer der Anregung und verglichen mit einer kontinuierlichen Elektronenstrahlanregung mit 5 μ A) erreicht werden kann.

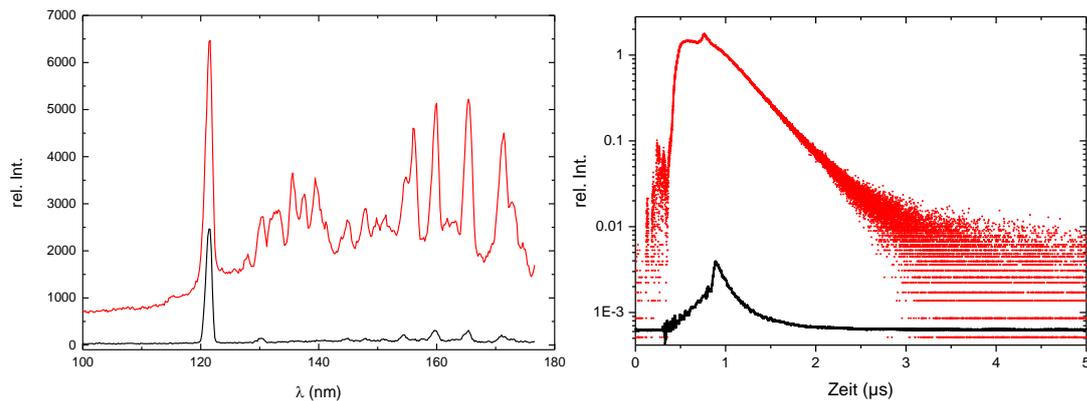


Abbildung 84 Vergleich der Lichtemission einer NeH-Mischung (1,2bar) bei reiner Elektronenstrahlanregung (**schwarz**) und gepulster Radaranregung (**rot**). **Links:** Wellenlängen aufgelöstes Spektrum im VUV-Bereich. Der Strahlstrom betrug in diesem Fall $0,5\mu\text{A}$ und die Radarleistung wurde mit einer Repetitionsrate von 100Hz betrieben. Es zeigt sich deutlich, dass die Gasmischung nicht auf die Lyman- α -Linie bei $121,6\text{nm}$ optimiert wurde, da diese sonst das Spektrum sehr viel deutlicher dominieren würde. **Rechts:** Zeitspektrum bei gepulster Anregung (Pulslänge jeweils 500ns , Elektronenstrahlstrom im Puls: $30\mu\text{A}$). Das integrale Intensitätsverhältnis zwischen den beiden Kurven beträgt ca. 500.

Da Neon ein leichteres Edelgas ist als Argon, werden die Elektronen des Elektronenstrahls nicht so effizient gestoppt wie in Argon (vgl. Abschnitt 4.2). Ein ähnlicher Effekt bzgl. der Entladungsgröße (vgl. Abbildung 74 und Abbildung 75) ist bei der Radarentladung zu erwarten. Deshalb ist gerade bei der Neonwasserstoffmischung für eine hohe Brillanz der Lichtquelle auch ein hoher Gasdruck anzustreben. Eine Fotostrecke über eine erste Testserie ist in Abbildung 85 gezeigt. Selbst bei einem Druck von 5bar ist eine Elektronenstrahlzündung der Radarentladung möglich. Die Entladung zündet dabei nicht direkt an der Position des Elektronenstrahls, sondern an kleinen Metallspitzen neben der Membran⁴⁹. Das Entladungsvolumen erscheint allerdings als sehr homogen und beschränkt sich scheinbar auf zwei Einzellawinen ohne die weitere Ausbreitung von Streamern, wie es bei Argon bei niedrigeren Drücken zu beobachten war (vgl. Abbildung 74 und Abbildung 75). Diese Beobachtung bestätigt die Aussage aus Kapitel 7, dass sich bei der Radarentladung eine Druckerhöhung positiv auf die Brillanz und die Homogenität der Entladung auswirkt.

⁴⁹ In diesem Aufbau wurde die Siliziummembran auf das Metallgehäuse der Elektronenquelle aufgelötet. Dadurch entstanden neben der Membran kleine metallische Spitzen.

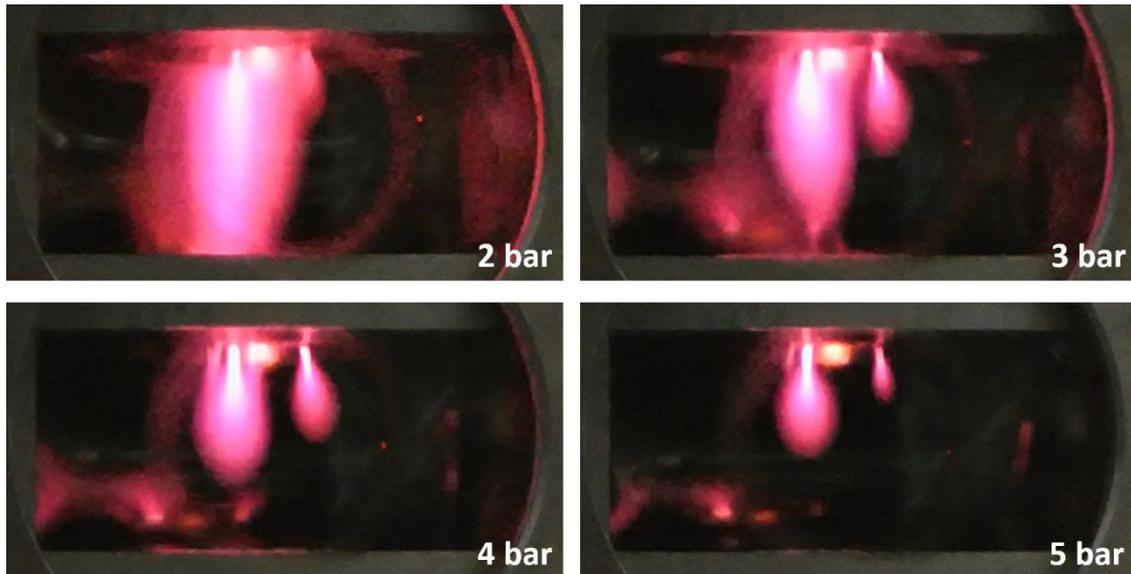


Abbildung 85 Fotostrecke der elektronenstrahlgezündeten Radarentladung (9,4GHz, 25kW Pulsleistung) in einer NeH-Mischung bei verschiedenen Drücken. Die Entladung zündet an zwei metallischen Spitzen, welche versehentlich durch das Auflöten der Membran auf das Gehäuse der Elektronenquelle entstanden.

Weiteres Optimierungspotential liegt bei der Elektronenquelle selbst. Geheizte Kathodenstrahlröhren verschwinden aufgrund der geringen Nachfrage zunehmend vom Markt und benötigen zudem für einen stabilen Betrieb eine relativ aufwändige elektronische Regelung. Es wurden parallel zu den hier beschriebenen Arbeiten auch Versuche unternommen, auf kalte Kathoden, basierend auf der Feldemission an Carbon-Nanotubes, umzustellen. Hierzu wurden Kathoden entwickelt, welche ein sogenanntes Bucky-Paper nutzen, ein Vlies aus Carbon-Nanotubes. Alternativ wurden kommerzielle Kathoden wie beispielsweise der Firma XinRay bezogen. Abbildung 86 links zeigt eine Strom-Spannungs-Kurve einer selbstentwickelten Feldemitterkathode im kontinuierlichen Betrieb. Die Belastungsgrenze der Keramikmembran von $10\mu\text{A}$ ist dabei sehr leicht zu erreichen. Als Zündröhre für die in Kapitel 6 und 7 beschriebenen Entladungen wäre dieses Konzept also durchaus geeignet. Abbildung 86 rechts zeigt die Strom-Spannungscharakteristik einer kommerziellen Kathode (Firma XinRay) im gepulsten Betrieb. Verglichen mit der herkömmlichen thermischen Kathode (Firma Richardson, max. 1mA) kann eine Erhöhung des maximal erreichbaren Stroms gezeigt werden. Gegenüber speziellen Hochstromkathoden in Pierce-Geometrie (wenige Ampere) besteht allerdings noch Verbesserungsbedarf.

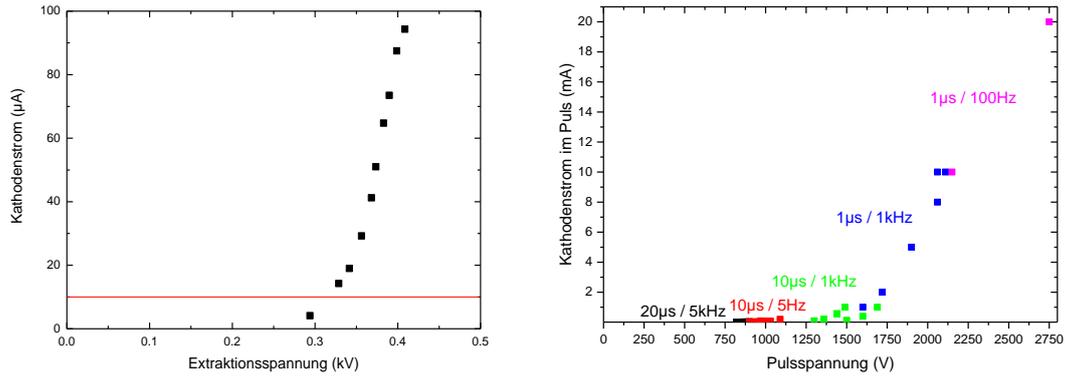


Abbildung 86 Strom-Spannungs-Charakteristik der Feldemitterkathoden. **Links:** Kontinuierlicher Betrieb einer an der TU München gefertigten Elektronenquelle auf Feldemitterbasis. **Rechts:** Gepulster Betrieb bei verschiedenen Pulsweiten und Repetitionsraten einer kommerziellen Feldemitterkathode der Firma XinRay.

Die größte Herausforderung bei den Carbon-Nanotube-basierten Kathoden ist die Überführung der Technologie in vakuumtechnisch abgeschlossene, portable Röhren. Bislang konnten erfolgreiche Experimente nur in Laboraufbauten bzw. durchgehend bepumpten Röhren durchgeführt werden. Die Entwicklung langlebiger, hochspannungsfester, abgeschlossener Röhren erfordert besonders im Fertigungsprozess noch einige Verbesserungen.

Die in dieser Arbeit beschriebenen Experimente bestätigen durchweg die grundsätzliche Eignung der vorgestellten Anregungsmethoden zur Lichterzeugung im VUV-Bereich. Für eine erfolgreiche technische Umsetzung in ein kommerzielles Produkt sind weitere gezielte Fragestellungen zu untersuchen. Diese betreffen beispielsweise eine mögliche Miniaturisierung der Lichtquelle. Aus wirtschaftlicher Sicht ist ein möglichst schlichter Aufbau der Lichtquelle anzustreben. Im Fall der Mikrowellenentladung wäre beispielsweise zu untersuchen, inwieweit die Elektroden aus dem Gasvolumen herausgehalten werden können, wie es beispielsweise bei dielektrisch behinderten Entladungslampen (DBDs) erfolgreich praktiziert wird. Im Fall der Radarentladung ist, wie bereits angesprochen, besonders die Untersuchung höherer Druckbereiche hinsichtlich der Zündbedingung und Gaszusammensetzung von Interesse. Auch ist bei der Radaranregung auf eine gute elektrische Abschirmung der Lichtquelle zu achten, da das schnelle Schalten hoher Leistungen zu großen Störungen in einer empfindlichen Messelektronik führt.

Literaturverzeichnis

- [1] A. Ulrich, *Light emission from particle beam induced plasma: An overview*, *Laser Part Beams* **30** (2012) 199.
- [2] A. Ulrich, T. Heindl, R. Krucken, A. Morozov, C. Skrobol, J. Wieser, *Electron beam induced light emission*, *Eur. Phys. J. - Appl Phys* **47** (2009) 22815.
- [3] J. Wieser, D.E. Murnick, A. Ulrich, H.A. Huggins, A. Liddle, W.L. Brown, *Vacuum ultraviolet rare gas excimer light source*, *Rev. Sci. Instrum.* **68** (1997) 1360.
- [4] E.R. Pugh, J. Wallace, J.H. Jacob, D.B. Northam, J.D. Daugherty, *Optical Quality of Pulsed Electron-Beam Sustained Lasers*, *Appl. Optics.* **13** (1974) 2512.
- [5] L.A. Newman, T.A. Detemple, *High-Pressure Infrared Ar-Xe Laser System - Ionizer-Sustainer Mode of Excitation*, *Appl. Phys. Lett.* **27** (1975) 678.
- [6] N.W. Harris, F. Oneill, W.T. Whitney, *Compact High-Pressure Electron-Beam-Controlled Laser System*, *Rev. Sci. Instrum.* **48** (1977) 1042.
- [7] M. Nagano, K. Kobayakawa, N. Sakaki, K. Ando, *New measurement on photon yields from air and the application to the energy estimation of primary cosmic rays*, *Astroparticle Physics* **22** (2004) 235.
- [8] M. Ave et al., *Measurement of the pressure dependence of air fluorescence emission induced by electrons*, *Astroparticle Physics* **28** (2007) 41.
- [9] F. Muhlberger, T. Streibel, J. Wieser, A. Ulrich, R. Zimmermann, *Single photon ionization time-of-flight mass spectrometry with a pulsed electron beam pumped excimer VUV lamp for on-line gas analysis: Setup and first results on cigarette smoke and human breath*, *Anal. Chem.* **77** (2005) 7408.
- [10] F. Muhlberger, J. Wieser, A. Morozov, A. Ulrich, R. Zimmermann, *Single-photon ionization quadrupole mass spectrometry with an electron beam pumped excimer light source*, *Anal. Chem.* **77** (2005) 2218.
- [11] A. Morozov, R. Krucken, A. Ulrich, J. Wieser, T. McCarthy, *Energy-transfer processes in neon-hydrogen mixtures excited by electron beams*, *J. Chem. Phys.* **123** (2005) 234311.
- [12] J. Wieser, M. Salvermoser, L.H. Shaw, A. Ulrich, D.E. Murnick, H. Dahi, *Lyman-alpha emission via resonant energy transfer*, *J. Phys. B - Mol. Opt.* **31** (1998) 4589.
- [13] A. Morozov, T. Heindl, R. Krucken, A. Ulrich, J. Wieser, *Conversion efficiencies of electron beam energy to vacuum ultraviolet light for Ne, Ar, Kr, and Xe excited with continuous electron beams*, *J. Appl. Phys.* **103** (2008) 3301.
- [14] E. Aprile, A.E. Bolotnikov, A.I. Bolozdynya, T. Doke, *Noble gas detectors*, John Wiley & Sons, Weinheim Germany (2007).

- [15] M.I. Lopes, V. Chepel, *Liquid rare gas detectors: Recent developments and applications*, IEEE Trans. Dielect. El. In. **10** (2003) 994.
- [16] A. Curioni, *Noble liquid detectors for fundamental physics and applications*, Nucl. Phys. B - Proc. Sup. **197** (2009) 48.
- [17] Firma excitech GmbH, Schortens, online: <http://www.excitech.de/>
- [18] V. Potapov, I. Kardash, V. Sorokin, S. Sokolov, T. Evlasheva, *Photoionization of heteroaromatic compounds*, Khim. Vys. Energy **6** (1972) 392.
- [19] D. Lorents, *The physics of electron beam excited rare gases at high densities*, Physica B+C **82** (1976) 19.
- [20] B.A. Lengyel, *Lasers*, second edition, Wiley-Interscience, New York, (1971).
- [21] J. Weiss, W. Bernstein, *The Current Status of W, the Energy to Produce One Ion Pair in a Gas*, Radiat. Res. **6** (1957) 603.
- [22] E. Colbourn, A. Douglas, *The spectrum and ground state potential curve of Ar₂*, J. Chem. Phys. **65** (1976) 1741.
- [23] N. Thonnard, G.S. Hurst, *Time-Dependent Study of Vacuum Ultraviolet Emission in Argon*, Phys. Rev. A - Gen. Phys. **5** (1972) 1110.
- [24] A.B. Treshchalov, A.A. Lissovski, *VUV-VIS spectroscopic diagnostics of a pulsed high-pressure discharge in argon*, J. Phys. D - Appl. Phys. **42** (2009) 245203.
- [25] R.R. Johnston, *Free-Free Radiative Transitions - a Survey of Theoretical Results*, J. Quant. Spectrosc. Ra. **7** (1967) 815.
- [26] D. Schlüter, *Die Emissionskontinua thermischer Edelgasplasmen*, Zeitschrift für Physik, **210** (1968) 80.
- [27] U. Bauder, *Radiation from High-Pressure Plasmas*, J. Appl. Phys. **39** (1968) 148.
- [28] A.T.M. Wilbers, G.M.W. Kroesen, C.J. Timmermans, D.C. Schram, *The Continuum Emission of an Arc Plasma*, J. Quant. Spectrosc. Ra. **45** (1991).
- [29] L.G. D'Yachkov, Y.K. Kurilenkov, Y. Vitel, *Radiative continua of noble gas plasmas*, J. Quant. Spectrosc. Ra. **59** (1998) 53.
- [30] J. Park, I. Henins, H.W. Herrmann, G.S. Selwyn, *Neutral bremsstrahlung measurement in an atmospheric-pressure radio frequency discharge*, Phys. Plasmas **7** (2000) 3141.
- [31] G.N. Zvereva, *Calculation of parameters of krypton plasma excited by electron beam with additional heating by high-frequency electric field*, Opt. Spectrosc. **108** (2010) 4.
- [32] A. Morozov, R. Krucken, J. Wieser, A. Ulrich, *Gas kinetic studies using a table-top set-up with electron beam excitation: quenching of molecular nitrogen emission by water vapour*, Eur. Phys. J. D **33** (2005) 207.

- [33] R. Steinhuebl, K. Besenthal, N. Koch, G. Kornfeld, *Development of electron guns for excimer light sources in the vacuum UV*, IEEE Transactions on Electron Devices **52** (2005) 884.
- [34] P. Lenard, *Über Kathodenstrahlen in Gasen von atmosphärischem Druck und im äussersten Vacuum*, Annalen der Physik **287** (1894) 225.
- [35] J.R.M. Vaughan, *Synthesis of the Pierce gun*, IEEE Transactions on Electron Devices **28** (1981) 37.
- [36] M. Salvermoser, *Untersuchung von Rekombinationslaserschemata bei Anregung mit hochenergetischen Schwerionenstrahlen*, Dissertation, TU München Physik Department E12, (1998).
- [37] A. Neumeier, M. Hofmann, L. Oberauer, W. Potzel, S. Schonert, T. Dandl, T. Heindl, A. Ulrich, J. Wieser, *Attenuation of vacuum ultraviolet light in liquid argon*, Eur. Phys. J. C **72** (2012).
- [38] W.M. Burton, B.A. Powell, *Fluorescence of Tetraphenyl-Butadiene in Vacuum Ultraviolet*, Appl. Optics **12** (1973) 87.
- [39] S. Jarosch, *Studium einer neuartigen Kombination von Elektronenstrahl- und Hochfrequenzanregung dichter Gase*, Bachelorarbeit, TU München Physik Department E12, (2013).
- [40] J. Abraham et al., *The fluorescence detector of the Pierre Auger Observatory*, Nucl. Instr. **620** (2010) 227.
- [41] T. Dandl, T. Heindl, A. Ulrich, *Fluorescence of nitrogen and air*, J. Inst. **7** (2012) 11005.
- [42] P. Key, D. Nettleton, *Deuterium lamps as transfer standards for spectral radiance measurements*, Commission of the European Communities, Luxembourg, (1985).
- [43] K. Aho, L.E. Berg, U. Hallsten, P. Lindblom, O. Solin, *Observation of Dominant Emission of the Gaydon-Herman Green System in Dense Nitrogen Excited by Energetic Ions*, J. Phys. B - Mol. Opt. **27** (1994) 525.
- [44] A. Ulrich, B. Busch, W. Krotz, G. Ribitzki, J. Wieser, D.E. Murnick, *Emission of Light from Matter Excited by Heavy-Ion Beams*, Nucl. Instrum. Meth. A **278** (1989) 72.
- [45] A. Morozov, T. Heindl, C. Skrobol, J. Wieser, R. Krucken, A. Ulrich, *Transmission of ~10 keV electron beams through thin ceramic foils: Measurements and Monte Carlo simulations of electron energy distribution functions*, Eur. Phys. J. D **48** (2008) 383
- [46] S. Agostinelli, J. Allison, K.a. Amako, J. Apostolakis, H. Araujo, P. Arce, M. Asai, D. Axen, S. Banerjee, G. Barrand, *GEANT4—a simulation toolkit*, Nucl. Instrum. A **506** (2003) 250.
- [47] J. Allison, K. Amako, J. Apostolakis, H. Araujo, P.A. Dubois, M. Asai, G. Barrand, R. Capra, S. Chauvie, R. Chytracsek, *Geant4 developments and applications*, , IEEE Transactions on Nuclear Science, **53** (2006) 270.
- [48] P. Hovington, D. Drouin, R. Gauvin, *CASINO: A new Monte Carlo code in C language for electron beam interaction—part I: Description of the program*, Scanning **19** (1997).

- [49] D. Drouin, A.R. Couture, D. Joly, X. Tastet, V. Aimez, R. Gauvin, CASINO V2. 42—A Fast and Easy-to-use Modeling Tool for Scanning Electron Microscopy and Microanalysis Users, *Scanning* **29** (2007) 92.
- [50] H. Eylers, *Untersuchung der räumlichen Verteilung der Lichtemission in Edelgastargets bei Anregung mit einem Schwerionenstrahl*, Diplomarbeit, TU München Physik Department E12, 1990.
- [51] L.F. Dong, J.X. Ran, Z.G. Mao, *Direct measurement of electron density in microdischarge at atmospheric pressure by Stark broadening*, *Appl. Phys. Lett.* **86** (2005) 161501.
- [52] H. Griem, *Spectral line broadening by plasmas*, Elsevier (2012).
- [53] D. Herrmann, *High-Resolution Spectroscopy of Atomic Line Emission from Dense Gases*, Masterarbeit, TU München Physik Department E12 (2015).
- [54] F.K. Kneubühl, M.W. Sigrist, *Laser*, Springer-Verlag (2008).
- [55] C.S. Lee, D.M. Camm, G.H. Copley, *Van der Waals broadening of argon absorption lines*, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* **15** (1975) 211.
- [56] R. Prem, *Untersuchung der Excimerlichtemission von Argon in Abhängigkeit von Temperatur und Gasreinheit*, Diplomarbeit, TU München Physik Department E12 (1994).
- [57] G. Ribitzki, A. Ulrich, B. Busch, W. Krotz, J. Wieser, D.E. Murnick, *Electron-Densities and Temperatures in a Xenon Afterglow with Heavy-Ion Excitation*, *Phys. Rev. E* **50** (1994) 3973.
- [58] Y.J. Shiu, M.A. Biondi, *Dissociative Recombination in Argon - Dependence of Total Rate Coefficient and Excited-State Production on Electron-Temperature*, *Phys. Rev. A* **17** (1978) 868.
- [59] D. Combecher, *Measurement of W-Values of Low-Energy Electrons in Several Gases*, *Radiat. Res.* **84** (1980) 189.
- [60] T. Dandl, H. Hagn, T. Heindl, R. Krucken, J. Wieser, A. Ulrich, *Electron-beam-ignited, high-frequency-driven vacuum ultraviolet excimer light source*, *EPL (Europhysic Letters)* **94** (2011) 53001.
- [61] T. Dandl, H. Hagn, A. Neumeier, J. Wieser, A. Ulrich, *Electron-beam-sustained discharge revisited - light emission from combined electron beam and microwave excited argon at atmospheric pressure*, *Eur. Phys. J. D* **68** (2014).
- [62] H. Langhoff, *The Origin of the 3rd Continua Emitted by Excited Rare-Gases*, *Opt. Commun.* **68** (1988) 31.
- [63] A. Boichenko, V.F. Tarasenko, E. Fomin, S.I. Yakovlenko, *Broadband emission continua in rare gases and in mixtures of rare gases with halides*, *Quantum. Electron.* **23** (1993) 3.
- [64] J. Wieser, A. Ulrich, A. Fedenev, M. Salvermoser, *Novel pathways to the assignment of the third rare gas excimer continua*, *Opt. Commun.* **173** (2000) 233.
- [65] A.A. Lissovski, A.B. Treshchalov, *Emission of the third continuum of argon excited by a pulsed volume discharge*, *Phys. Plasmas* **16** (2009) 123501.

- [66] A.B. Treshchalov, A.A. Lisovski, *Multi-band spectral structure and kinetics of the third continua in Ar, Kr and Xe gases excited by a pulsed discharge*, Eur. Phys. J. D **66** (2012).
- [67] N.S.S. A.R. Striganov, *Tables of spectral lines of neutral and ionized atoms*, IFI/Plenum New York (1968).
- [68] T. Nguyen, N. Sadeghi, *Rate coefficients for collisional population transfer between 3 p 5 4 p argon levels at 300° K*, Phys. Rev. A **18** (1978) 1388.
- [69] J. Kawanaka, S. Kubodera, W. Sasaki, *134 nm vacuum ultraviolet emission using an Ar/Kr gas mixture excited by a quasi-continuous-wave gas jet discharge*, Appl. Phys. B - Lasers **72** (2001) 179.
- [70] online: http://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/lines_form.html
- [71] L. Bergmann, C. Schaefer, *Lehrbuch der Experimentalphysik Bd 5 - Gase Nanosysteme Flüssigkeiten*, Walter de Gruyter (2006).
- [72] A. Neumeier, T. Dandl, T. Heindl, A. Himpsl, L. Oberauer, W. Potzel, S. Roth, S. Schonert, J. Wieser, A. Ulrich, *Intense vacuum ultraviolet and infrared scintillation of liquid Ar-Xe mixtures*, EPL (Europhysics Letters) **109** (2015) 12001.
- [73] A. Neumeier, T. Dandl, T. Heindl, A. Himpsl, H. Hagn, M. Hofmann, L. Oberauer, W. Potzel, S. Roth, S. Schonert, J. Wieser, A. Ulrich, *Intense infrared scintillation of liquid Ar-Xe mixtures*, EPL (Europhysics Letters) **106** (2014) 12001.
- [74] M. Hofmann, T. Dandl, T. Heindl, A. Neumeier, L. Oberauer, W. Potzel, S. Roth, S. Schonert, J. Wieser, A. Ulrich, *Ion-beam excitation of liquid argon*, Eur. Phys. J. C **73** (2013).
- [75] T. Heindl, T. Dandl, A. Fedenev, M. Hofmann, R. Krucken, L. Oberauer, W. Potzel, J. Wieser, A. Ulrich, *Table-top setup for investigating the scintillation properties of liquid argon*, J. Inst. **6** (2011) 02011.
- [76] T. Heindl, T. Dandl, M. Hofmann, R. Krucken, L. Oberauer, W. Potzel, J. Wieser, A. Ulrich, *The scintillation of liquid argon*, EPL (Europhysics Letters) **91** (2010) 62002.
- [77] Firma Korth Kristalle GmbH, Kiel, online: <http://www.korth.de/>
- [78] A. Gebhardt, S. Wilbrandt, O. Stenzel, Abschlussbericht: Detektionssystem zum schnellen Vor-Ort-Nachweis sicherheitsrelevanter Substanzen mittels eines Ionenmobilitätsspektrometers mit VUV-Multipasszelle zur Einzelphotonenionisation (DIVE, FKZ: 13N11376) - Teilvorhaben: Physikalisch-technische Grundlagenuntersuchungen und Testaufbau einer VUV-Multipass-Reflexionszelle (DIVE-IOF), BMBF-Verbundvorhaben (2015).
- [79] J. Rothe, Abschlussvortrag zum BMBF-Projekt "Forschung für zivile Sicherheit": Detektionssystem zum schnellen Vor-Ort-Nachweis sicherheitsrelevanter Substanzen mittels eines Ionenmobilitätsspektrometers mit VUV-Multipasszelle zur Einzelphotonenionisation (DIVE, FKZ: 13N11376) - Teilvorhaben: Wehrwissenschaftliches Institut für Schutztechnologien (WIS), Munster, BMBF-Verbundvorhaben (2014).

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben. Einige seien besonders hervorgehoben.

Bei Herrn PD Dr. Andreas Ulrich möchte ich mich für die Überlassung der Arbeit und die exzellente Betreuung bedanken. Seine Ohren waren stets offen für Probleme und er war mit großem Eifer bei Diskussionen und selbst im Labor zur Stelle. Dass der Betreuer einer Dissertation „noch schnell ein Teil in der Werkstatt dreht“, damit die Experimente vorangehen, ist mit Sicherheit einmalig. Tiefes Hintergrundwissen und eine enorme Begeisterung für die Physik scheinen bei ihm nie zu versiegen. Vielen Dank für die tatkräftige Unterstützung!

Auch bei meinem Kollegen und Spezl Herrn Alexander Neumeier möchte ich mich für die Hilfe bei zahlreichen Experimenten und Simulationen herzlich bedanken. Er lieferte die nötige Mischung aus Fachwissen und Gaudi, um auch die anstrengenden Zeiten während der letzten Jahre zu überstehen. Ein besonderer Dank auch für die zwei Kist!! Oder zahlt die jemand anderes?

Ein großer Dank gilt auch den übrigen, aktuellen und ehemaligen, Mitgliedern unserer Arbeitsgruppe, insbesondere Herrn Dr. Jochen Wieser, Herrn Thomas Heindl und Herrn Andreas Himpsl. Durch sie wurde unser kleines Grüppchen zu einer schlagkräftigen Truppe, in der die gemeinsame Arbeit stets Freude bereitete.

Ein besonderer Dank gilt Herrn Hermann Hagn, der nicht müde wurde, mich mit Fachwissen und Material bezüglich der Hochfrequenztechnik zu versorgen.

Bei Herrn Ralf Lang und Herrn Michael Klöckner, von der Werkstatt des Instituts E12, möchte ich mich für die schnelle und präzise Fertigung vieler benötigter Bauteile bedanken. Danke, dass nur „a bissl blöd dahergeredet“ wurde, wenn mir wieder einmal spontan auffiel, dass ich ein Teil am besten „jetzt“ brauchte.

Gleiches gilt für die Mitarbeiter des Kristalllabors bei denen sogar noch das „blöd daherreden“ wegfiel. Danke auch ihnen für die schnelle Hilfe bei zahlreichen kleineren Problemen.

Bei meiner Familie möchte ich mich für die unentbehrliche Unterstützung während des gesamten Studiums bedanken. Auch wenn sich der Abschluss, wie so oft, länger hingezogen hat als erwartet, so war die positive Einstellung stets eine Motivation zum „Dranbleiben“.

Ein ganz liebes Dankeschön an meine Verlobte Elke, ohne die ich die letzte Zeit sicher nicht wohlbehalten überstanden hätte. Danke, dass du mir nie von der Seite gewichen bist, auch wenn ich, je näher die Abgabe rückte, wahrscheinlich immer unausstehlicher wurde. Ohne dich wäre ich nicht so weit gekommen und die Arbeit konnte deine Korrekturen sehr gut gebrauchen. Danke auch im Voraus für dein kleines Cello-Konzert. Im Herbst bist dann du dran...

Nicht zuletzt gilt mein Dank dem Bundesministerium für Bildung und Forschung für die finanzielle Unterstützung dieser Arbeit.