

# Über die Mehr-Photonen-Spektroskopie an Xenon zur plasmadiagnostischen Untersuchung elektrischer Weltraumantriebe

Von der Fakultät Luft- und Raumfahrttechnik und Geodäsie  
der Universität Stuttgart zur Erlangung der Würde  
eines Doktor-Ingenieurs (Dr.-Ing.) genehmigte Abhandlung

Vorgelegt von  
**Christoph Eichhorn**  
aus Kronach

Hauptberichterin: Prof. Dr.-Ing. habil. Monika Auweter-Kurtz  
Mitberichter: Prof. Dr. habil. Stephan Fritzsche  
Mitberichter: Prof. Dr. rer. nat. Hans-Peter Röser  
Tag der mündlichen Prüfung: 28. Januar 2014

Institut für Raumfahrtsysteme der Universität Stuttgart  
2014



# Inhaltsverzeichnis

<b>Kurzfassung</b>	<b>v</b>
<b>Abstract</b>	<b>vi</b>
<b>Liste der wichtigsten Symbole und Abkürzungen</b>	<b>vii</b>
<b>1. Einleitung</b>	<b>1</b>
1.1. Stand der Forschung . . . . .	3
1.2. Zielsetzung und Inhalt der Arbeit . . . . .	4
<b>2. Einführende Erläuterungen zu elektrischen Antrieben und Beschreibung der Testanlage</b>	<b>5</b>
2.1. Grundlagen zu elektrischen Weltraumantrieben . . . . .	5
2.2. Grundlagen zu Ionenantrieben . . . . .	8
2.2.1. Funktionsweise des Radiofrequenz-Ionentriebwerks RIT . . . . .	9
2.2.2. Kurze Übersicht zu weiteren Ionenantrieben . . . . .	11
2.3. Beschreibung der Testanlage . . . . .	14
<b>3. Grundlagen der laserinduzierten Fluoreszenzspektroskopie mit Zwei-Photonen-Anregung</b>	<b>17</b>
3.1. Theorie der Zwei-Photonen-Absorption . . . . .	19
3.1.1. Kinetisches Modell der Zwei-Photonen-Anregung . . . . .	20
3.1.2. Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitte . . . . .	23
3.1.3. Bemerkungen zur $jK$ -Kopplung und zur Notation der Energiezustände . . . . .	26
3.1.4. Auswahlregeln für Zwei-Photonen-Prozesse . . . . .	28
3.2. Abregungsprozesse und Sättigungsphänomene . . . . .	31
3.2.1. Fluoreszenz- und Stoßabregungsraten . . . . .	31
3.2.2. Abregung mit Kaskaden und <i>line blending</i> . . . . .	33
3.2.3. Prozesse mit inversem Stoßtransfer . . . . .	36
3.2.4. Mehr-Photonen-Photoionisation . . . . .	38
3.2.5. Verstärkte spontane Emission (ASE) . . . . .	41
3.2.6. Assoziative Ionisation und Dissoziative Rekombination . . . . .	42
3.3. Bestimmung der Teilchendichte und Kalibriermethoden . . . . .	43
3.4. Einige Bemerkungen zur laserinduzierten Fluoreszenzspektroskopie an ionisiertem Xenon . . . . .	45

<b>4. TALIF-Studie an neutralem Xenon in einer statischen Kaltgaszelle</b>	<b>51</b>
4.1. Experimenteller Aufbau . . . . .	51
4.1.1. Aufbau zur TALIF-Spektroskopie . . . . .	51
4.1.2. Charakterisierung des experimentellen Aufbaus . . . . .	54
4.2. Ergebnisse der Untersuchung verschiedener TALIF-Schemen . . . . .	58
4.2.1. <b>6p</b> und <b>6p'</b> Multiplett . . . . .	58
4.2.2. <b>7p</b> Multiplett . . . . .	69
4.2.3. <b>8p</b> und <b>5f</b> Multipletts . . . . .	71
4.2.4. <b>9p</b> , <b>4f</b> und <b>6f</b> Multipletts . . . . .	77
<b>5. Untersuchungen im Freistrahle des Radiofrequenz-Iontriebwerks RIT-10</b>	<b>79</b>
5.1. Testbedingungen für das RIT-10 . . . . .	79
5.2. Emissionsspektroskopie im Freistrahle des RIT-10 . . . . .	83
5.2.1. Das Stoß-Strahlungsmodell nach Karabadzhak . . . . .	84
5.2.2. Messungen im Freistrahle des RIT-10 . . . . .	86
5.3. TALIF-Untersuchungen im Freistrahle des RIT-10 . . . . .	95
5.3.1. Versuchsaufbau und -durchführung . . . . .	95
5.3.2. Diskussion der Resultate . . . . .	96
<b>6. Zusammenfassung</b>	<b>107</b>
<b>Summary</b>	<b>109</b>
<b>A. Responsefunktionen der Detektionsapparatur</b>	<b>111</b>
<b>B. Beobachtete Emissionslinien im Freistrahle des RIT-10</b>	<b>115</b>
<b>C. Verwendete Interferenzfilter</b>	<b>121</b>
<b>Danksagung</b>	<b>137</b>
<b>Lebenslauf</b>	<b>139</b>

## Kurzfassung

Die Zwei-Photonen laserinduzierte Fluoreszenzspektroskopie gilt als wichtiges nicht-intrusives Verfahren zur quantitativen Bestimmung von atomaren und molekularen Grundzustandsdichten in Plasmaströmungen. In neutralem Xenon existieren eine Reihe möglicher Übergänge zur Zwei-Photonen laserinduzierten Fluoreszenz für Laseranregungswellenlängen zwischen 200 und 260 nm, einem Bereich der mit durchstimmbaren, frequenzverdoppelten Farbstofflasern abgedeckt werden kann. Xenon stellt gegenwärtig den meistverwendeten Treibstoff in Ionen- und Hall-Effekt-Triebwerken dar. Die Notwendigkeit der plasmadiagnostischen Untersuchung atomarer Dichten neutralen Xenons im Freistrahlsystem derartiger elektrischer Weltraumantriebssysteme erwächst durch das Auftreten dieser Spezies infolge von Mechanismen wie unvollständiger Ionisation des Treibstoffs in der Entladungskammer, Rekombination ionisierter Atome durch Gitter- oder Wandkollisionen oder als Beitrag der Neutralisatorströmung. Populationen neutralen Xenons nahe des Gittersystems sind darüber hinaus in physikalische Prozesse wie Ladungsaustauschreaktionen involviert, welche zu einem Rückstrom ionisierter Spezies in das Triebwerk oder auf Komponenten des Raumfahrzeugs und daraus resultierenden Beschädigungen führen können.

Die Messung von Grundzustandspopulationen neutralen Xenons mit der Methode der Zwei-Photonen laserinduzierten Fluoreszenz erfordert für den vorliegenden Anwendungsfall aufgrund der charakteristisch kleinen Massenströme in der Schubzeugung elektrischer Weltraumantriebe und den daraus resultierenden geringen Teilchendichten im Bereich von typischerweise  $10^{17}$  bis  $10^{18} \text{ m}^{-3}$  neben einem sensitiven Versuchsaufbau die Auswahl von Absorptions- und Fluoreszenzübergängen mit möglichst großen optischen Übergangsraten.

In dieser Arbeit werden in einer systematischen Studie eine Reihe von Übergängen quantitativ untersucht und hinsichtlich ihrer Anwendbarkeit zur Grundzustandsdiagnostik in dünnen Xenon-Plasmen, wie sie im Freistrahlsystem elektrischer Weltraumantriebe vorliegen, diskutiert. Es werden dabei Zustände der  $6p$ ,  $6p'$ ,  $7p$ ,  $8p$ ,  $9p$ ,  $4f$ ,  $5f$  und  $6f$  Multipletts durch Zwei-Photonen-Absorption in einer statischen Kaltgaszelle angeregt und die natürlichen Lebensdauern und Stoßdeaktivierungskoeffizienten für einige angeregte Zustände bestimmt. Relative Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitte werden für jeweils zwei Paare von Zuständen der  $6p$  und  $6p'$  Multipletts gemessen. Unter Berücksichtigung der Eigenemission des Plasmas im Freistrahlsystem des zu untersuchenden Ionentriebwerks wird, in Bezug auf frühere Studien zur Anwendung der Zwei-Photonen laserinduzierten Fluoreszenzspektroskopie in der Plasmadiagnostik elektrischer Weltraumantriebe, ein Anregungsschema unter Verwendung des  $6p'[1/2]_0$  Zustands als sinnvolle Erweiterung der bisher verwendeten Übergänge identifiziert.

Weiterhin werden Messungen zur Zwei-Photonen laserinduzierten Fluoreszenzspektroskopie im Freistrahlsystem des Radiofrequenz-Ionentriebwerks RIT-10 präsentiert. Die Untersuchungen erfolgen auf Grundlage zweier verschiedener Anregungsschemen unter Verwendung der  $6p'[1/2]_0$  und  $6p'[3/2]_2$  Zustände. Relative Grundzustandsdichten werden im Kaltgasstrom in Abhängigkeit des Massenstroms bestimmt. Bei Betrieb des Triebwerks werden Testbedingungen unter Variation des Massenstroms, sowie weiterer Betriebsparameter wie der Leistung des Radiofrequenzgenerators untersucht und diskutiert. Die Ergebnisse zeigen die Anwendbarkeit oben genannter Anregungsschemen für die plasmadiagnostische Charakterisierung des Freistrahls elektrischer Weltraumantriebe wie des hier untersuchten Radiofrequenz-Ionentriebwerks.

## Abstract

Two-photon absorption laser induced fluorescence spectroscopy represents an important non-intrusive method with respect to quantitative measurements of atomic and molecular ground state densities in plasma flows. In neutral xenon, a variety of possible two-photon transitions applying laser excitation between 200 and 260 nm exists, which corresponds to a wavelength range that is covered with tunable, frequency doubled dye lasers. For engineering and physical reasons, xenon is currently the favored propellant in ion- and Hall-effect thrusters. There is a need for plasmadiagnostic measurements of the densities of neutral xenon in the plume of such electric thrusters, since this species occurs due to mechanisms like incomplete ionization of the propellant in the discharge chamber, recombination of the ionized particles in collisions with the chamber walls or components of the grid system, as a contribution of the neutralizer flow, or as a background species in vacuum ground test facilities. In addition, populations of neutral xenon that reside in the exit area of the thruster near the grids are involved in physical processes like charge exchange transfer, which can finally produce a backflow of ionized particles into the thruster or striking other crucial components of the space vehicle, leading to damage of critical components such as the grid system or solar arrays.

The application of two-photon absorption spectroscopy for the plasmadiagnostic investigation of neutral xenon ground state populations in the plume of electric thrusters is challenging due to the low particle densities of the order  $10^{17}$  to  $10^{18}$   $\text{m}^{-3}$  related to the small mass flows that are characteristic for such electric propulsion devices. Therefore, besides a sensitive experimental set-up, the selection of an efficient excitation scheme with respect to large transition rates of the two-photon absorption process and the selected fluorescence transition, is of importance to detect analyzable signal intensities.

Within this work, a variety of two-photon excitation schemes is investigated within a systematic study, and discussed with regard to their feasibility for quantitative ground state diagnostics in a thin xenon plasma. Levels of the  $6p$ ,  $6p'$ ,  $7p$ ,  $8p$ ,  $9p$ ,  $4f$ ,  $5f$  and  $6f$  multiplets are excited by laser induced two-photon absorption in a static cold gas cell. Natural lifetimes and collisional deactivation coefficients are measured for a number of two-photon excited levels. Relative two-photon absorption cross sections are measured for two pairs of levels of the  $6p$  and  $6p'$  multiplets. With regard to an emission spectroscopic analysis of the plasma emission in the plume of the investigated ion thruster, an excitation scheme involving the  $6p'[1/2]_0$  level is found as a useful extension to formerly applied two-photon transitions for ion thruster plasmadiagnostic investigations.

In addition, results of two-photon absorption laser-induced fluorescence measurements in the plume of the radiofrequency ion thruster RIT-10 are reported. In these investigations, two different transitions for two-photon absorption, using excitation of the  $6p'[1/2]_0$  and  $6p'[3/2]_2$  levels, are applied. Relative ground state densities are measured in the cold gas flow for different mass flows. During thruster operation, test conditions with variation of the mass flow, and other operational parameters such as the power of the radiofrequency generator, are investigated and discussed. The results demonstrate the feasibility of two-photon absorption laser induced fluorescence spectroscopy involving the two excitation schemes mentioned above for plasmadiagnostic investigations of neutral xenon species in the plume of electric propulsion systems such as the radiofrequency ion thruster RIT-10.

# Liste der wichtigsten Symbole und Abkürzungen

## Deutsche Formelzeichen

$A$	inverse Lebensdauer eines angeregten Zustands	$s^{-1}$
$A_{ik}$	Übergangsrate für optische Übergänge	$s^{-1}$
$a^2\pi$	Querschnittsfläche des Laserstrahls	$m^2$
$c_e$	effektive Austrittsgeschwindigkeit	$m s^{-1}$
$D$	Kalibrierkonstante der TALIF-Anordnung	$V m sr$
$d, d_{eb}$	Gitterabstand zwischen Extraktionsgitter und Beschleunigungsgitter eines Gitterionentriebwerks	$m$
$E$	Energie (in SI-Einheiten)	$J$
	Energie (in Wellenzahlen)	$cm^{-1}$
$F(t)$	zeitliches Profil des Laserpulses	$s^{-1}$
$F$	Schubkraft eines elektrischen Triebwerks	$N$
$g(\omega)$	spektrales Linienprofil	$s$
$G^{(N)}$	Photonenstatistischer Faktor eines $N$ -Photonen-Prozesses	-
$I(r, z, t)$	Intensität	$W m^{-2}$
$I$	elektrische Stromstärke	$A$
$J$	Drehimpulsquantenzahl	-
$J_\lambda$	spektral integrierter Emissionskoeffizient eines strahlungsemitternden Volumenelements	$W m^{-3} sr^{-1}$
$j$	elektrische Stromdichte	$A m^{-2}$
$j_{max}$	(raumladungsbegrenzte) Sättigungsstromdichte	$A m^{-2}$
$k_q$	Stoßdeaktivierungskoeffizient	$m^3 s^{-1}$
$k_i^\lambda$	Stoßübergangskoeffizient für $i$ -ten Prozeß	$m^3 s^{-1}$
$L$	Länge des TALIF Detektionsvolumens	$m$
$l$	Bahndrehimpulsquantenzahl	-
$m_0$	Startmasse eines Raumfahrzeugs	$kg$
$m_f$	Brennschlußmasse eines Raumfahrzeugs	$kg$
$m_{LS}$	Nutzlast- und Strukturmasse eines Raumfahrzeugs	$kg$
$m_P$	Treibstoffmasse eines Raumfahrzeugs	$kg$
$m_{PS}$	Masse der Energieversorgungseinheit und des Antriebssystems eines Raumfahrzeugs	$kg$

## Liste der wichtigsten Symbole und Abkürzungen

$m_0$	Startmasse eines Raumfahrzeugs	kg
$m$	Atommasse	kg
$m_e$	Elektronenmasse	kg
$\dot{m}$	Massenstrom	kg s <sup>-1</sup>
$N_0$	räumliche Dichte von Atomen im Grundzustand	m <sup>-3</sup>
$N_1$	räumliche Dichte von Atomen im Besetzungszustand  1⟩	m <sup>-3</sup>
$N_1$	räumliche Dichte einfach geladener Atome	m <sup>-3</sup>
$N_2$	räumliche Dichte von Atomen im Besetzungszustand  2⟩	m <sup>-3</sup>
$N_2$	räumliche Dichte zweifach geladener Atome	m <sup>-3</sup>
$N_e$	räumliche Elektronendichte	m <sup>-3</sup>
$N_m$	räumliche Dichte von Atomen in metastabilen Zuständen	m <sup>-3</sup>
$n$	Hauptquantenzahl	-
$P$	Leistung	W
$p$	Druck	Pa
$Q$	Stoßdeaktivierungsrate	s <sup>-1</sup>
$q$	elektrische Ladung	C
$R$	Giterradius	m
$\mathbf{r}(x, y, z)$	Ortsvektor	m
$S$	Maß für die detektierte Fluoreszenzintensität	V
$T$	(Schwerteilchen-)Temperatur	K
$T_e$	Elektronentemperatur	K
$T_i$	Stoßtransferratenkoeffizient in $i$ -ten Zustand	m <sup>3</sup> s <sup>-1</sup>
$t$	Zeit	s
$U$	Potentialdifferenz, Spannung	V
$v_i$	Geschwindigkeit der Teilchen $i$ -ter Spezies	m s <sup>-1</sup>
$\Delta v$	charakteristisches Geschwindigkeitsinkrement	m s <sup>-1</sup>
$W^{(N)}$	Übergangsrate eines $N$ -Photonen-Prozesses	s <sup>-1</sup>

## Griechische Formelzeichen

$\alpha, \beta, \gamma$	Parameter für relative Teilchendichten	-
$\alpha_F$	(Massen-)spezifische Leistung des Antriebssystems	W kg <sup>-1</sup>
$\alpha_{PS}$	(Massen-)spezifische Leistung der Energieversorgungsanlage	W kg <sup>-1</sup>
$\Delta\omega$	spektrale Halbwertsbreite	m
$\epsilon$	Polarisationsvektor	-
$\eta_M$	Ionisationseffizienz (mass utilization efficiency)	-
$\eta_t, \eta_\Phi$	Effizienzen des Detektionsapparates	-
$\eta_T$	Effizienz des Triebwerks	-
$\eta_{PC}$	Effizienz des Energiewandlers des Antriebssystems	-
$\lambda$	Wellenlänge	m
$\nu$	Frequenz	s <sup>-1</sup>
$\mu_{LS}$	Nutzlast- und Strukturmassenverhältnis	-



## Liste der wichtigsten Symbole und Abkürzungen

$\mu$	reduzierte Masse	kg
$\nu_{cm}, \nu_{dm}$	Stoßdeaktivierungs- und Diffusionsraten von Atomen in metastabilen Zuständen	$s^{-1}$
$\Phi$	Photonenflußdichte	$m^{-2}s^{-1}$
$\phi$	elektrisches Potential	V
$\sigma$	Abstand zwischen virtueller Elektrode und Beschleunigungsgitter	m
$\sigma_p$	Standardabweichung der Laserpulsdauer	s
$\sigma_i$	Stoßabregungsquerschnitt von Atomen im Zustand $ i\rangle$	$m^2$
$\sigma_i^\lambda$	stoßinduzierter Anregungsquerschnitt für $i$ -ten Prozeß	$m^2$
$\sigma^{(N)}$	$N$ -Photonen-Absorptionsquerschnitt	$m^{2N}s^{N-1}$
$\sigma_0^{(N)}$	Linienprofilunabhängiger Absorptionsquerschnitt eines $N$ -Photonen-Prozesses	$m^{2N}$
$\tau_{\text{eff}}$	effektive Lebensdauer eines angeregten Zustands	s
$\tau$	natürliche Lebensdauer eines angeregten Zustands	s
$\tau_p$	Halbwertsbreite der Laserpulsdauer	s
$\tau_T$	Brenndauer des Triebwerks, Transferzeit des Raumfahrzeugs	s
$\omega$	(Kreis-)frequenz $\omega = 2\pi\nu$	$s^{-1}$
$\Psi$	Wellenfunktion	$m^{-3/2}$

## Konstanten

$\alpha$	Feinstrukturkonstante	$7.297 \times 10^{-3}$
$a_0$	Bohrscher Radius	$0.529 \times 10^{-10}$ m
$c$	Lichtgeschwindigkeit	$2.998 \times 10^8$ m s $^{-1}$
$\epsilon_0$	Elektrische Feldkonstante	$8.854 \times 10^{-12}$ A s (V m) $^{-1}$
$e$	Elementarladung	$1.602 \times 10^{-19}$ C
$h$	Plancksches Wirkungsquantum	$6.626 \times 10^{-34}$ J s
$\hbar$	reduziertes Plancksches Wirkungsquantum $\hbar = h/2\pi$	$1.055 \times 10^{-34}$ J s
$k_B$	Boltzmann-Konstante	$1.381 \times 10^{-23}$ J K $^{-1}$

## Abkürzungen

ASE	Amplified Spontaneous Emission
ARTEMIS	Advanced Relay and Technology Mission
CCD	Charge Coupled Device
CEX	Charge Exchange
DLR	Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt
ECR	Electron Cyclotron Resonance
EURECA	European Retrievable Carrier

*Liste der wichtigsten Symbole und Abkürzungen*

FVP	Feinvakuumpumpe
HDF	High Deflection Frequency
HET	Hall-Effekt-Triebwerk
HVP	Hochvakuumpumpe
IRS	Institut für Raumfahrtsysteme
LIF	Laser Induced Fluorescence
NHV	Negative Hochspannungsversorgung
OD	Optische Dicke
PHV	Positive Hochspannungsversorgung
REMPI	Resonant Multiphoton Ionisation
RFG	Radiofrequenz-Generator
RIT	Radiofrequenz-Ionentriebwerk
sccm	Standardkubikzentimeter
SMART	Small Missions for Advanced Research in Technology
TALIF	Two-Photon Absorption Laser Induced Fluorescence
TLT	Thermisches Lichtbogentriebwerk
TWT	Travelling Wave Tube
UV	ultraviolett
VUV	vakuumultraviolett
VVP	Vorvakuumpumpe
ZWL	Zentralwellenlänge

# 1. Einleitung

Elektrische Raumfahrtantriebe stellen heute eine technisch erprobte, bedeutende Alternative zur Verwendung chemischer Antriebe auf Raumfahrzeugen bei der Durchführung von Weltraummissionen dar. In der Lageregelung und für Umlaufbahntransfers werden sie bereits auf einer Vielzahl von Satelliten eingesetzt, als Marschtriebwerke interplanetarer Raumflugkörper wurden sie etwa bei der Mission der amerikanischen Sonde *Deep-Space 1*, der europäischen Mondmission SMART-1 oder der japanischen Asteroidenmission *Hayabusa* verwendet [1–3]. Definiert durch das Prinzip der „Beschleunigung von Gasen zu Antriebszwecken durch elektrische Heizung und/oder elektrische und magnetische Kräfte“ [4] existiert eine Vielfalt an Triebwerkstypen, deren effiziente Treibstoffbeschleunigung auf einer breiten Anzahl physikalischer Phänomene der Elektro- und Magnetohydrodynamik sowie der Plasmaphysik beruht [4–7].

Unter den elektrostatischen Ionenbeschleunigern stellen Gitter- und Hallionentriebwerke die zur Zeit prominentesten Vertreter elektrischer Weltraumantriebe dar. Dem im Vergleich zu chemischen Triebwerken sehr viel kleineren Schubniveau (vorwiegend im sub-Newton-Bereich) steht bei Ionentriebwerken eine um typischerweise eine Größenordnung höhere Austrittsgeschwindigkeit der beschleunigten Ionen gegenüber. Als Treibstoff wird bevorzugt Xenon eingesetzt, welches ein zur Erzeugung möglichst hoher Schübe notwendig hohes Atomgewicht aufweist, und keine korrodierenden bzw. kontaminierenden Eigenschaften vergleichbarer atomarer Spezies wie Caesium oder Quecksilber besitzt. Raumladungsbegrenzende Phänomene zwischen den Gittern sowie der zunehmende Einfluß des Energieversorgungssystems auf die Gesamtmasse der Triebwerksanordnung bei Hochskalierung des Leistungsbedarfs führen auf charakteristisch kleine Massenströme und zu sehr kleinen Teilchendichten (von der Größenordnung  $10^{16} - 10^{19} \text{ m}^{-3}$ ) im Freistrahle eines solchen Antriebssystems.

Für die Weiterentwicklung und Optimierung von Ionentriebwerken ist ein Verständnis der physikalischen Phänomene wie Ladungsaustauschreaktionen oder Sputterprozesse im Freistrahle und der Entladungskammer von großer Bedeutung, ebenso die Kenntnis physikalischer Parameter wie Potentialverteilungen sowie lokalen Teilchengeschwindigkeiten und -dichten. Numerischen Simulationen kommt hierbei eine große Bedeutung zu [8, 9]; zu deren Verifikation bleibt die möglichst umfassende Bestimmung wichtiger Plasmagrößen eine unerläßliche Grundaufgabe der experimentellen Plasmadiagnostik. Unter den berührungslosen Meßverfahren erlaubt die optische Emissionsspektroskopie die Messung lokaler Elektronendichten, ist dabei jedoch auf umfangreiche Stoß-Strahlungsmodelle angewiesen [10], da die Besetzungszahlverteilung atomarer Energieniveaus infolge des thermischen Nicht-Gleichgewichts des Plasmas im Freistrahle und in der Entladungskammer nicht bekannt ist. Ergebnisse aus der Fabry-Pérot-Interferometrie an ionisiertem Xenon liegen für ein Hallionentriebwerk vor [11].

In diesem Kontext sind laserspektroskopische Verfahren aufgrund ihrer hohen Sensitivität und der zustandsselektiven Anregung von weitreichender plasmadiagnostischer Bedeutung. Experimente zur Charakterisierung des Freistrahls von Ionentriebwerken konzentrieren sich in der

## 1. Einleitung

Literatur vor allem auf die Bestimmung der lokalen Geschwindigkeit und Geschwindigkeitsdispersion neutralen und einfach ionisierten Xenons durch laserinduzierte Fluoreszenz (LIF). Da in diesem Fall nicht die Linienintensität, sondern die Messung der Dopplerverschiebung und der spektralen Breite der Absorptionslinie von physikalischer Bedeutung ist, spielt die Unkenntnis der Besetzungszahlen der Niveaus, von denen aus die Laseranregung stattfindet, keine Rolle. Im Fall von neutralem und einfach ionisiertem Xenon bilden (aus thermischen Gründen besetzte) metastabile Zustände hervorragende Ausgangsniveaus für die Ein-Photonen laserinduzierte Fluoreszenzspektroskopie. Experimentelle Studien wurden beispielsweise von Cedolin et al. [12,13], Smith [14], sowie von Severn et al. [15], und Mazouffre et al. [16–19], veröffentlicht.

Im Unterschied hierzu kann die Bestimmung von atomaren Teilchendichten in vielen Plasmen nur durch Anregung von Energieniveaus aus dem atomaren Grundzustand heraus erfolgen, um Annahmen über die Verteilungsfunktion der Besetzungszahlen in komplizierten Plasmazuständen, wie sie im Freistrahle eines Ionentriebwerks vorliegen, zu umgehen. Der Grundzustand selbst wird in den dabei auftretenden Temperaturbereichen als näherungsweise nicht entleert betrachtet. Aufgrund der großen Energielücke zwischen dem Grundzustand und den ersten anregbaren Zuständen können bei vielen atomaren Spezies Übergänge aus dem Grundzustand heraus nur durch simultane Absorption zweier oder mehr Photonen induziert werden. Die Zwei-Photonen-Absorption laserinduzierte Fluoreszenz (*Two-Photon Absorption Laser Induced Fluorescence*, fortan TALIF)-Spektroskopie stellt eine sehr sensitive Methode dar; die Übergangsrate für einen Zwei-Photonen-Prozess zwischen zwei bestimmten Energiezuständen liegt allerdings um etliche Größenordnungen niedriger gegenüber einer Ein-Photonen-Absorption (sofern die gleiche Laserenergie zur Anregung bereitgestellt wird). Die TALIF-Spektroskopie erfordert somit hohe Leistungsdichten des anregenden Lasers und stellt außerordentlich hohe Anforderungen an die Sensitivität der Versuchsanlage.

Die TALIF-Diagnostik wurde vielfach zur Ermittlung von räumlichen Dichten leichter atomarer Spezies wie Wasserstoff, Sauerstoff und Stickstoff angewandt. Teilchendichten atomaren Sauerstoffs in reaktiven Plasmen und atmosphärischen Jets wurden ausführlich von Niemi et al. [20,21] untersucht. Die Methode wurde ebenso - unter Verwendung einer erheblich größeren Versuchsgeometrie - bei der Charakterisierung von Plasmawindkanalanlagen zur Simulation atmosphärischer Wiedereintrittsbedingungen durch Löhle et al. [22,23] erfolgreich angewendet. Auch Resultate zur Teilchendichtebestimmung in Stickstoffplasmen liegen vor [24–26].

Eine vergleichsweise geringe Aufmerksamkeit kam in der Vergangenheit der Grundzustandsdiagnostik von neutralem Xenon in Xenon-Plasmen zu, wie sie etwa in der Entladungskammer und im Freistrahle von Ionentriebwerken auftreten. Die Detektion ionisierter Spezies ist gegenüber neutralem Xenon wesentlich aufwendiger, da hierbei TALIF-Übergänge mit Laserwellenlängen deutlich unter 200 nm oder Drei-Photonen-Übergänge entsprechend höherer Wellenlängen erforderlich sind. Für den Freistrahle herrscht davon unabhängig ein Bedarf an der Bestimmung von Plasmametern wie der Teilchendichte neutralen Xenons, da diese Spezies infolge unvollständiger Ionisation in der Entladungskammer, als Bestandteil der Neutralisatorströmung und als Hintergrundgas in Bodentestanlagen auftritt [7,27,28]. Atome neutralen Xenons im Freistrahle sind weiterhin in Ladungsaustauschprozesse eingebunden, welche Partikeltrajektorien mit einer schädlichen Wirkung auf Triebwerkskomponenten oder Teile des Raumfahrzeugs wie die Solarpaneele verursachen können [29].

Da die Teilchendichten im Freistrahle eines Ionentriebwerks deutlich unter denjenigen in

vergleichbaren Experimenten zur Detektion von Sauerstoffatomen in Plasmawindkanälen liegen [22, 23] kommt der Effizienz eines TALIF-Schemas besondere Bedeutung zu. Zur Erlangung einer möglichst großen Signalintensität sind Anregungsübergänge mit einem großem Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitt und einem großem *branching ratio* (dem Verhältnis aus der optischen Übergangsrate des gewählten Fluoreszenzübergangs und der inversen natürlichen Lebensdauer des angeregten Zustands) des beobachteten Fluoreszenzübergangs auszuwählen, während die Stoßabregung bei den geringen Dichten von untergeordneter Wichtigkeit ist. Auch die Eigenemission des Plasmas bei der Wellenlänge der selektierten Fluoreszenzlinie kann eine, die Signalqualität limitierende, Rolle spielen.

Bei zu hohen Laserleistungsdichten können konkurrierende Prozesse, wie die verstärkte spontane Emission (*Amplified Spontaneous Emission*, ASE) oder die resonante Multi-Photoionisation (*Resonant Multi-Photon Ionisation*, REMPI) quantitativen Einfluß auf die Signalintensität nehmen, wobei die Grenzen für das Auftreten dieser Effekte in Xenon vergleichsweise niedrig liegen [20,30]. Diese Phänomene führen zu einer Sättigung der Zwei-Photonen-Fluoreszenz und werden bei quantitativen Teilchendichtebestimmungen gewöhnlich vermieden, da ihr Einfluß auf das Fluoreszenzsignal nur schwer modellierbar ist. Ausreichend niedrige Leistungsdichten der anregenden Laserstrahlung sind hinsichtlich der geringen Teilchendichten und der großräumigen Versuchsgeometrie in den vorliegenden Experimenten im Freistrahlfeld des Radiofrequenz-Ionentriebwerks RIT-10 jedoch nur schwer einzuhalten, und mögliche Fehlerquellen durch Sättigungseffekte bei der Bestimmung relativer Grundzustandsdichten müssen gesondert diskutiert werden.

Neben der Anwendung zur Untersuchung von Xenon-Plasmen eignen sich TALIF-Übergänge in neutralem Xenon als Referenzmedium bei bekannter Dichte auch zur Kalibrierung von Zwei-Photonen-Experimenten leichterer Spezies wie atomarem Sauerstoff, Stickstoff oder Wasserstoff [20, 21, 30]. Voraussetzung ist die spektrale Nähe der Zwei-Photonen-Resonanz in neutralem Xenon zum Zwei-Photonen-Übergang der jeweiligen Spezies, um Unsicherheiten durch mögliche Veränderungen im spektralen, räumlichen und zeitlichen Profil des Laserpulses zu minimieren.

## 1.1. Stand der Forschung

Es existieren zahlreiche Untersuchungen der Lebensdauern angeregter Zustände in neutralem Xenon unter Anwendung der Zwei-Photonen-Spektroskopie, mit einer starken Konzentration auf die niederenergetischen Multipletts ( $6p$ ,  $6p'$ ,  $7p$ ). Lebensdauern und Stoßdeaktivierungsraten nach Zwei-Photonen-Anregung wurden für  $6p$ ,  $6p'$  und  $7p$ ,  $J = 0, 2$  Zustände durch Bruce et al. [31] und Whitehead et al. [32], mit hoher Genauigkeit über Druckvariationen mehrerer Größenordnungen gemessen. Horiguchi et al. [33] bestimmten natürliche Lebensdauern, Stoßdeaktivierungsraten sowie eine umfassende Zahl an *branching ratios* über die Ein-Photonen-Anregung an neutralem Xenon in einer Plasmaentladung. *State-to-state* Stoßtransfer von neutralem Xenon in Xenon und in anderen Edelgasen wurde von zahlreichen Autoren untersucht [32,34–37]. Eine große Zahl an Experimenten zur Bestimmung der natürlichen Lebensdauern angeregter Zustände in neutralem Xenon beruhen auf Elektronenstoßanregung und sind im Anregungsmechanismus damit weniger zustandsselektiv [38–40]. Numerische Berechnungen von natürlichen Lebensdauern wurden vor allem von Aymar und Coulombe [41], sowie von Loginov und Gruzdev [42] durchgeführt, wobei einige experimentelle Arbeiten auch numerisch berechnete Lebensdauern enthalten [43].

## 1. Einleitung

Ein vergleichsweise deutlicher Mangel an Daten liegt für Zustände höherenergetischer Multipletts vor, welche auch in der vorgelegten Arbeit untersucht werden. Einige  $nf$  Zustände wurden hinsichtlich der natürlichen Lebensdauer quantitativ durch Elektronenstoßanregung untersucht [43, 44]. Für  $np$  Zustände ( $n \geq 8$ ) existieren Messungen basierend auf Elektronenstoßanregung [38], sowie dem Hanle-Effekt [45]. Die Zwei-Photonen-Anregung von  $8p$  und  $4f$  Zuständen wurde von Miller [46] erwähnt, allerdings konzentriert sich diese Arbeit auf eine qualitative Beschreibung von ASE und (2+1) REMPI-Prozessen. Die Arbeiten von Hu et al. [47] und Lipson et al. [48, 49] beinhalten die Zwei-Photonen-Anregung hochangeregter Zustände, beziehen sich jedoch auf Vorgänge in Zusammenhang mit assoziativer Ionisation und dissoziativer Rekombination über die  $\text{Xe}_2^+$ -Dimerbildung.

Ein Engpaß liegt bei der Verfügbarkeit von Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitten vor, gemessene Werte verschiedener Arbeitsgruppen weisen dabei teilweise erhebliche Diskrepanzen auf. Experimentelle Daten wurden für die Anregung der  $6p$  Zustände veröffentlicht [50–53]. Eine numerische Berechnung für die Anregung des  $6p[1/2]_0$  Zustands wurde von Pindzola et al. [54] durchgeführt. Für den  $7p[3/2]_2$  Zustand wurde der Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitt im Rahmen der Entwicklung der Edelgaskalibrierung von TALIF-Messungen durch Goehlich et al. [30] und Niemi et al. [20] gemessen. Niemi et al. [21] bestimmten weiterhin den Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitt des  $6p'[3/2]_2$  Zustands. Relative Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitte der  $6p'$  und  $7p$  Multipletts wurden von Alekseev und Setser [55] untersucht.

Eine Studie zur TALIF-Spektroskopie im Freistrahlfeld eines T5-Ionentriebwerks wurde von Crofton [56] veröffentlicht, wobei ein TALIF-Schema mit Anregung des  $7p[3/2]_2$  Zustands verwendet wurde. Abseits der laserspektroskopischen Charakterisierung elektrischer Antriebe liegt weiterhin eine Untersuchung relativer Teilchenkonzentrationen neutralen Xenons in einem magnetisierten Helicon-Plasma durch Aanesland et al. [57] vor.

## 1.2. Zielsetzung und Inhalt der Arbeit

In der vorgelegten Arbeit wird die TALIF-Spektroskopie an neutralem Xenon, mit dem Ziel der experimentellen Bestimmung relativer Grundzustandsdichten im Freistrahlfeld eines Radiofrequenz-Ionentriebwerks, behandelt. Es werden zahlreiche TALIF-Übergänge im Hinblick auf ihre Eignung zur Diagnostik von Xenon-Plasmen quantitativ hinsichtlich der natürlichen Lebensdauern und bimolekularen Stoßdeaktivierungsraten der angeregten Zustände in einer großräumigen Versuchsgeometrie untersucht, wie sie für plasmadiagnostische Aufgabenstellungen im Zusammenhang mit der Untersuchung elektrischer Weltraumantriebe erforderlich ist. Hierzu zählen auch hochangeregte Zustände insbesondere der  $8p$  und  $5f$  Multipletts, die potentiell zur Kalibrierung von TALIF-Messungen in atomarem Stickstoff herangezogen werden können. Es werden relative Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitte für jeweils zwei Energieniveaus der  $6p$  und  $6p'$  Zustände bestimmt. Weiterhin werden emissionsspektroskopische Messungen im Freistrahlfeld des Radiofrequenz-Ionentriebwerks RIT-10 analysiert. Einen zentralen Punkt bildet schließlich die Anwendung der Zwei-Photonen laserinduzierten Fluoreszenz in zwei TALIF-Schemen unter Anregung der  $6p'[1/2]_0$  und  $6p'[3/2]_2$  Zustände zum Nachweis neutralen Xenons im Freistrahlfeld des Radiofrequenz-Ionentriebwerks RIT-10 und zur quantitativen Bestimmung relativer Grundzustandsdichten im Kaltgasstrom sowie bei verschiedenen Betriebsparametern.

## 2. Einführende Erläuterungen zu elektrischen Weltraumantrieben und Beschreibung der Testanlage

Der Schwerpunkt der vorgelegten Arbeit besteht in der Weiterentwicklung und Anwendung der Zwei-Photonen laserinduzierten Fluoreszenzspektroskopie im Freistrahldes mit Xenon betriebenen Radiofrequenz-Ionentriebwerks RIT-10. Während dieses Triebwerk, neben einer Reihe weiterer elektrischer Weltraumantriebe, bereits zur Anwendung auf Raumfahrzeugen zur Verfügung steht, eröffnet eine Fortentwicklung elektrischer Raumfahrtantriebe für künftige Weltraummissionen ein großes Potential insbesondere hinsichtlich der Nutzung interplanetarer Bahntrajektorien, welche Flugaufgaben gestatten, die mit chemischen Antriebssystemen nicht oder nur unter Aufwendung großer Treibstoffmengen durchführbar sind. Dabei ist Xenon der bevorzugte Treibstoff einer Klasse elektrischer Weltraumantriebe, welche unter der Bezeichnung *elektrostatische Triebwerke* zusammengefaßt werden können. Angesichts der zunehmenden Bedeutung elektrischer Weltraumantriebe stellt die im Hinblick auf die Plasmadiagnostik an Ionentriebwerken anwendungsorientierte Xenon-Spektroskopie ein beträchtliches Forschungsgebiet dar [10, 12, 13, 15–19, 58–60]. In diesem Kapitel soll zunächst eine kurze Einführung in die physikalischen Konzepte elektrischer Weltraumantriebe sowie der grundlegenden Motivation ihrer Verwendung gegeben werden (Abschnitt 2.1). In Abschnitt 2.2 folgt eine Darstellung der Funktionsweise des in dieser Arbeit untersuchten RIT-10 Triebwerks, sowie eine kurze Erläuterung weiterer, aus Sicht der Xenon-Diagnostik relevanter Triebwerkstypen. Eine Beschreibung der Testanlage wird in Abschnitt 2.3 gegeben.

### 2.1. Grundlagen zu elektrischen Weltraumantrieben

Elektrische Weltraumantriebe unterscheiden sich von chemischen Antriebssystemen durch die Energieform, welche zur Beschleunigung des Treibstoffs genutzt wird. Während bei einem chemischen Triebwerk die Freisetzung chemischer Energie durch Verbrennungsprozesse geeigneter Reaktanden zur Erhitzung der Reaktionsprodukte genutzt wird, wird bei einem elektrischen Triebwerk einem Treibstoff elektrische Leistung zugeführt und mit möglichst hohem Wirkungsgrad in eine Antriebsleistung umgesetzt. Der letztere Fall erfordert das Mitführen eines externen Energieversorgungssystems, welches in Abhängigkeit von den Rahmenbedingungen der Missionsplanung beispielsweise auf der Nutzung von Solar- oder Nuklearenergie basieren kann.

Es ist in der Literatur weitgehend üblich, gemessen an den Unterschieden der physikalischen Mechanismen, welche zur Erzeugung von lokalen Schubdichten führen, eine Einteilung elektrischer Weltraumantriebe in drei Hauptkategorien vorzunehmen (Darstellung nach [61]):

## 2. Einführende Erläuterungen zu elektrischen Antrieben und Beschreibung der Testanlage

1. Elektrothermische Antriebssysteme. Ein Treibstoff wird durch eine Lichtbogenentladung (Thermisches Lichtbogentriebwerk, TLT), an einer elektrisch (widerstands-) beheizten Oberfläche (Resistojet), oder durch induktive Einkopplung erhitzt. Die Beschleunigung des Treibstoffs erfolgt anschließend durch die Entspannung in einer Düse.
2. Elektrostatische Antriebssysteme. Ein Treibstoff wird in einer induktiven Entladung (Radiofrequenz-Ionentriebwerk), einer Gleichstromentladung (Kaufman-Triebwerk) oder durch Einkopplung von Mikrowellen ionisiert. Die Beschleunigung der Ionen erfolgt durch das Durchlaufen einer Potentialdifferenz in einer geeigneten Gitteranordnung. Der austretende Ionenstrahl wird durch die Zugabe von Elektronen neutralisiert.
3. Elektromagnetische Antriebssysteme. Ein Treibstoff wird in geeigneter Weise ionisiert. Die der Beschleunigung des Treibstoffs zugrundeliegenden lokalen Kraftdichten auf die jeweiligen Plasmaspezies werden durch Beiträge der thermischen Expansion, sowie mit der Entladung selbstkonsistenter Stromdichten und elektromagnetischer Felder bestimmt. Ein dominierender Anteil des Magnetfelds kann vom Anlegen externer Magnetfelder (Fremdfeldbeschleuniger) oder von in der Entladung auftretenden internen Magnetfeldern (Eigenfeldbeschleuniger) herrühren. Diese Kategorie umfaßt auch gepulste Systeme, bei denen der Treibstoff in einer instationären Entladung zunächst ablatiert wird, und die Volumenkraft im folgenden durch die thermische Expansion des Plasmas, sowie selbstinduzierte elektromagnetische Kräfte innerhalb des Plasmas festgelegt sind.

Hallionen- oder Hall-Effekt-Triebwerke (HETs) beruhen auf der gitterfreien elektrostatischen Beschleunigung von Ionen, wobei sich die zugehörigen lokalen Kraftdichten auch durch die eigeninduzierte elektronische Hallstromkomponente senkrecht zum einem externen, radial gerichteten Magnetfeld und dem angelegten elektrischen Feld darstellen lassen. Aus diesem Grund wird die Einteilung dieses Triebwerktyps in die Kategorien 2 oder 3 in der Literatur uneinheitlich vorgenommen [7, 61]. Eine ähnliche Schwierigkeit ergibt sich für das *High Efficiency Multistage Plasma* (HEMP)-Triebwerk, welchem das Prinzip magnetischer Spiegel für den Elektroneneinschluß zugrundeliegt [62, 63]. Im folgenden sollen diese beiden Triebwerkstypen gemeinsam mit den in Kategorie 2 eingereihten Geräten als Ionentriebwerke bezeichnet werden.

Das wesentliche Charakteristikum eines elektrischen Weltraumantriebs besteht in der Erzeugung deutlich höherer effektiver Austrittsgeschwindigkeiten (TLT 5–10 km/s, Ionentriebwerke 25–55 km/s, typische Werte) des Treibstoffs aus der Triebwerksanordnung gegenüber denjenigen, die bei chemischen Triebwerken (Feststofftriebwerk  $\sim 2.5$  km/s, Space Shuttle Main Engine  $\sim 4.5$  km/s) erreicht werden können. Der Vorteil dieser Eigenschaft zeigt sich unmittelbar anhand der Ziolkowski-Gleichung [4, 61]

$$e^{-\Delta v/c_e} = \frac{m_f}{m_0} = 1 - \frac{m_P}{m_0}, \quad (2.1)$$

welche durch Integration der Bewegungsgleichung einer Rakete im kräftefreien Raum unter Annahme einer im Bezugssystem der Rakete konstanten effektiven Austrittsgeschwindigkeit  $c_e$  des Treibstoffs folgt. Gleichung (2.1) enthält weiter die Brennschlußmasse  $m_f = m_{LS} + m_{PS}$  als Summe der Nutzlast- und Strukturmasse  $m_{LS}$ , und der Masse der Energieversorgungseinheit einschließlich der Triebwerksmasse  $m_{PS}$ , während in die Startmasse  $m_0 = m_f + m_P$  des Vehikels noch die Treibstoffmasse  $m_P$  eingeht. Das charakteristische Geschwindigkeitsinkrement



$\Delta v$  ist eine vielverwendete Größe in der Raketentechnik und der Bahnmechanik. Es bezeichnet zum einen die Geschwindigkeit des Vehikels der Masse  $m_f$  nach Brennschluß bei Abwesenheit externer Kräfte, und steht, bei festgehaltenen Größen  $c_e$  und  $m_0$ , in eindeutigen (nicht-linearem) Zusammenhang mit der aufgewendeten Energie  $E = \frac{1}{2}m_P c_e^2$ ,  $\Delta v = \Delta v(E, c_e, m_0)$ . In der Bahnmechanik stellt  $\Delta v$  eine charakteristische Kenngröße einer Trajektorie dar und kann für komplette Missionsabläufe bilanziert werden<sup>1</sup>.

Aus Gleichung (2.1) wird ersichtlich, daß ein möglichst hohes Verhältnis zwischen Brennschlußmasse und Startmasse  $m_f/m_0$  an effektive Austrittsgeschwindigkeiten der Größenordnung von  $\Delta v$  gebunden ist. Aufgrund der exponentiellen Abhängigkeit ergibt sich damit ein hohes Einsparungspotential an Treibstoffmasse zwischen chemisch und elektrisch angetriebenen Weltraummissionen bei gleichen  $\Delta v$  und  $m_f$ . Mit elektrischen Antrieben können somit Missionen mit hohem  $\Delta v$ -Bedarf ermöglicht werden, während chemische Antriebe durch die grundsätzlich limitierten Austrittsgeschwindigkeiten ihrer Treibstoffe als  $\Delta v$ -begrenzt angesehen werden müssen. Ein wesentlicher Unterschied zu chemischen Antriebssystemen besteht in dem vergleichsweise kleinen Schubniveau elektrischer Antriebe, welches in einem Bereich bis zu einigen Newton bei TLTs [64], für weitere Triebwerkstypen meist wesentlich darunter liegt. Elektrische Triebwerke werden in der Konsequenz in längeren, kontinuierlichen Schubphasen zur Erlangung des entsprechenden Antriebsbedarfs betrieben.

Für die Bewertung der Einsatzszenarien von Raumfahrzeugen mit elektrischem (Primär-)Antrieb sind tiefergehende Überlegungen notwendig, welche an dieser Stelle allerdings nur ansatzweise skizziert werden können. Derartige Untersuchungen müssen neben dem Verhältnis  $m_f/m_0$  weitere Parameter wie das Nutzlast- und Strukturmassenverhältnis  $\mu_{LS} = m_{LS}/m_0$ , die Triebwerksbrenndauer  $\tau_T$  sowie die Wirkungsgrade des Triebwerks  $\eta_T$  und des Energiewandlers  $\eta_{PC}$  einbeziehen; der Zusammenhang zwischen diesen Größen ist innerhalb der Einschränkungen der ungestörten Ziolkowski-Gleichung durch den Ausdruck [65]

$$e^{-\Delta v/c_e} = \frac{\mu_{LS} + c_e^2/2\alpha_F\tau_T}{1 + c_e^2/2\alpha_F\tau_T} \quad (2.2)$$

gegeben. Hierin bedeutet ferner  $\alpha_F$  die spezifische Leistung des Triebwerkssystems, definiert durch die Beziehung  $P = \alpha_F m_{PS}$ , wodurch in einer einfachen linearen Form die mit höheren effektiven Antriebsleistungen  $P$  aus technischen Gründen notwendigerweise zunehmende Masse  $m_{PS}$  des Antriebssystems einschließlich der Energieversorgung eingeht. Es kann gezeigt werden, daß aus Gleichung (2.2) als Extremalproblem der Größe  $\mu_{LS}$  ein Maximum für die Austrittsgeschwindigkeiten  $c_e$  folgt; Auweter-Kurtz et al. [65, 66] leiten entsprechende Beziehungen unter Berücksichtigung eines von der effektiven Austrittsgeschwindigkeit abhängigen Wirkungsgrads  $\eta_T(c_e)$  des Triebwerks für  $\alpha_F = \eta_{PC}\eta_T(c_e)\alpha_{PS}$  ab, und finden einen starken Einfluß der Funktion  $\eta_T(c_e)$  auf die Parameteroptimierung. Die Wahl des optimalen Treibstoffs ist dabei stark abhängig von den physikalischen Beschleunigungsmechanismen der zuvor erläuterten Kategorisierung, und richtet sich nach z. T. sehr komplexen plasmaphysikalischen Zusammenhängen

<sup>1</sup> $\Delta v$  wird auch als der *Bedarf* der Geschwindigkeitsänderung zur Nutzung einer Bahntrajektorie bezeichnet. Unter dem Einfluß externer Kräfte beschreibt  $\Delta v$  im allgemeinen nicht die Summe tatsächlicher Geschwindigkeitsänderungen, sondern ist als verallgemeinerte Kenngröße einer Bahnänderung zu verstehen. Für die Untersuchung grundlegender Zusammenhänge ist es in den meisten Fällen dennoch möglich,  $\Delta v$  auf die ungestörte Ziolkowski-Gleichung (2.1) zu beziehen [61].

## 2. Einführende Erläuterungen zu elektrischen Antrieben und Beschreibung der Testanlage

zwischen der Austrittsgeschwindigkeit  $c_e$  und dem Wirkungsgrad  $\eta_T$ , sowie spezifischen Eigenschaften wie der Ionisierungsenergie und der kritischen Alfvén-Geschwindigkeit [6, 66]. Derartige Berechnungen unterstreichen die Vorzüge hoher effektiver Austrittsgeschwindigkeiten bei elektrischen Triebwerken für unterschiedlichste Missionsaufgaben, welche von der Bahnkorrektur der Nord-Süd-Drift geostationärer Satelliten bis zum Einsatz als Primärtrieb auf interplanetaren Trajektorien mit hohem  $\Delta v$ -Bedarf reichen.

Es wird noch angemerkt, daß kontinuierliche Schubphasen bei geringer Schubkraft grundsätzlich auf andere optimale Trajektorien („Aufspiralen“) gegenüber impulsförmigen Schubphasen hoher Schubkraft (z.B. einer Hohmann-Transferellipse) führen. In der Konsequenz übertrifft der  $\Delta v$ -Bedarf einer durch elektrische Antriebe zugänglichen Bahnform die Entsprechung chemischer Antriebe in der Regel, ohne i. a. die Vorzüge einer geringeren Treibstoffmasse aufzuwiegen. Trotz der verhältnismäßig kleinen Schübe elektrischer Antriebe ergeben sich im Hinblick auf Flugaufgaben mit hohem  $\Delta v$ -Bedarf häufig große Vorteile bezüglich der gesamten Missionsdauer: Für bemannte Marsflüge (d.h. für  $m_{PS}$  in der Größenordnung von 50–100 Tonnen) finden Schmidt et al. [69] eine beträchtliche Verkürzung der gesamten Mission (bestehend aus Hinflug, Aufenthalt und Rückflug) bei der Verwendung elektrischer Antriebe mit kontinuierlichen Schubphasen, bedingt durch die aus den Bahnformen herrührende größere Flexibilität bezüglich der zeitlichen Rückkehrstartfenster. Bei geeigneter Missionsplanung können Transferzeiten vergleichbar zu denjenigen durchgeführt mit chemischen Antrieben erreicht werden [67–69]. Wenngleich die in [69] untersuchten Parameter des Antriebssystems (Schubkraft 100 N, effektive Austrittsgeschwindigkeit 30 km/s, insgesamt zur Verfügung stehende Leistung 4 MW) bezüglich des Schubes und der Antriebsleistung beispielsweise bei kommerziell verfügbaren Hallionentriebwerken noch um etwa drei Größenordnungen unterschritten werden, so sind in der zukünftigen technischen Entwicklung vermutlich eine Reihe elektrischer Antriebssysteme geeignet, derartige Einsatzszenarien unter der Voraussetzung der Verfügbarkeit leistungsfähiger (möglicherweise nuklearer) Energieversorgungssysteme und der Bündelung einzelner Triebwerke zu realisieren.

## 2.2. Grundlagen zu Ionenantrieben

Dieser Abschnitt behandelt Triebwerke, deren Mechanismus der Treibstoffbeschleunigung auf ionisierten Spezies beruht, indem diese eine extern angelegte Potentialdifferenz durchqueren. In *Gittertriebwerken* wird diese Potentialdifferenz zwischen den Komponenten einer ionenoptisch ausgelegten, häufig aus Molybdän oder Graphit gefertigten Lochgitteranordnung erzeugt; der Treibstoff wird dabei auf geeignete Weise vor der Gitteranordnung ionisiert. Bei *gitterfreien* Triebwerken liegt die entsprechende Spannung zwischen den Elektroden an, welche gleichzeitig die Entladung in der Triebwerkskammer aufrechterhalten.

In beiden Fällen gehen in den räumlichen Potentialverlauf, bei vorgegebenen Randbedingungen der Potentiale an den jeweiligen Elektroden, Beiträge der Felder der Plasmaspezies mit ein. Dies führt bei Gittertriebwerken zu raumladungsbegrenzten Ionenstromdichten zwischen den Gittern, da hier keine Elektronen zur Gewährleistung der lokalen quasi-Neutralität vorhanden sind. Die Sättigungsstromdichte ist als Child-Langmuir-Gesetz bekannt [4, 70, 71]

$$j_{max} = \frac{4}{9} \varepsilon_0 \sqrt{\frac{2q_I}{m_I}} \frac{U^{3/2}}{d^2}. \quad (2.3)$$

Hierin bezeichnet  $j_{max}$  die sich maximal ausbildende Stromdichte zwischen zwei planparallelen, im Abstand  $d$  getrennten Platten der Potentialdifferenz  $U$ , weiter bedeuten  $q_I$  und  $m_I$  jeweils den Ladungszustand und die Masse der betrachteten ionisierten Teilchen, sowie  $\varepsilon_0$  die dielektrische Feldkonstante. Mit der Verknüpfung aus Massenstrom und (Ionen-)Strahlstrom,  $\dot{m} = (m_I/q_I)I$ , sowie der Geschwindigkeit

$$v_I = \sqrt{\frac{2q_I U}{m_I}} \quad (2.4)$$

als größtmögliche Austrittsgeschwindigkeit folgt der Schub eines an der Sättigungsstromdichte betriebenen Triebwerks

$$F = \dot{m}v_I = \frac{2}{9}\varepsilon_0 \pi R^2 \left(\frac{m_I}{q_I}\right)^2 \frac{v_I^4}{d^2}, \quad (2.5)$$

worin  $\pi R^2$  die Gitterfläche angibt.

Die letzte Gleichung kann für fest vorgegebene  $v_I$  interpretiert werden, da, wie im vorigen Abschnitt angedeutet, die effektive Austrittsgeschwindigkeit für einen missionspezifisch vorgegebenen  $\Delta v$ -Bedarf optimiert [4, 6, 65, 66], und für viele Anwendungen auch erreicht werden kann. In der Konsequenz sind für Iontriebwerke zur Erlangung einer möglichst großen Schubkraft Treibstoffe hoher Atommasse vorteilhaft, die auf niedriger Ionisationsstufe vorliegen sollten. Aufgrund der erodierenden und kontaminierenden Eigenschaften von Caesium und Quecksilber, welche in früheren Entwicklungsstadien als Treibstoffe eingesetzt wurden, wird heute weitgehend Xenon verwendet, welches eine unter den Edelgasen relativ niedrige Ionisationsenergie sowie effiziente Lagerungseigenschaften besitzt. Mit Ausnahme der Argumente in Zusammenhang mit der Raumladungsbegrenzung treffen dieselben Gründe der Treibstoffwahl auch auf Hallionentriebwerke zu [72].

Anhand einer Betrachtung der Größenordnungen der in Gleichung (2.3) auftretenden Parameter kann leicht gefolgert werden, daß Iontriebwerke bei kleinen Massenstromdichten operieren müssen. Für einen als Beispiel betrachteten Xenon-Massenstrom von 1 mg/s (entsprechend 10.17 sccm) folgt damit für eine Austrittsgeschwindigkeit von 30 km/s und einem Austrittsdurchmesser von 10 cm bei ideal vollständiger Ionisation eine mittlere Ionendichte von  $\sim 2.0 \times 10^{16} \text{ m}^{-3}$  an der Austrittsfläche; entsprechend eine Neutralteilchendichte von  $\sim 2.5 \times 10^{18} \text{ m}^{-3}$  bei vollständig unterbleibender Ionisation unter Annahme thermischer Geschwindigkeit bei Raumtemperatur. Gitterfreie Iontriebwerke allerdings können, infolge der nicht auftretenden Raumladungsbegrenzung, bei deutlich höheren Massenströmen betrieben werden, auch hier existieren jedoch plasmaphysikalische und technische Beschränkungen [7, 72].

### 2.2.1. Funktionsweise des Radiofrequenz-Iontriebwerks RIT

Als Radiofrequenz-Iontriebwerk RIT wird eine Klasse von Iontriebwerken bezeichnet, welche auf der Forschung der Arbeitsgruppe von Prof. H. Loeb (Universität Gießen) zu Hochfrequenzquellen beruht [74–76]. Abbildung 2.1 zeigt schematisch den Aufbau des Triebwerks. Eine kurze Beschreibung der Funktionsweise kann wie folgt aussehen [75–79]:

Das als Treibstoff verwendete Xenon wird in gasförmigem Zustand in die Entladungskammer

## 2. Einführende Erläuterungen zu elektrischen Antrieben und Beschreibung der Testanlage

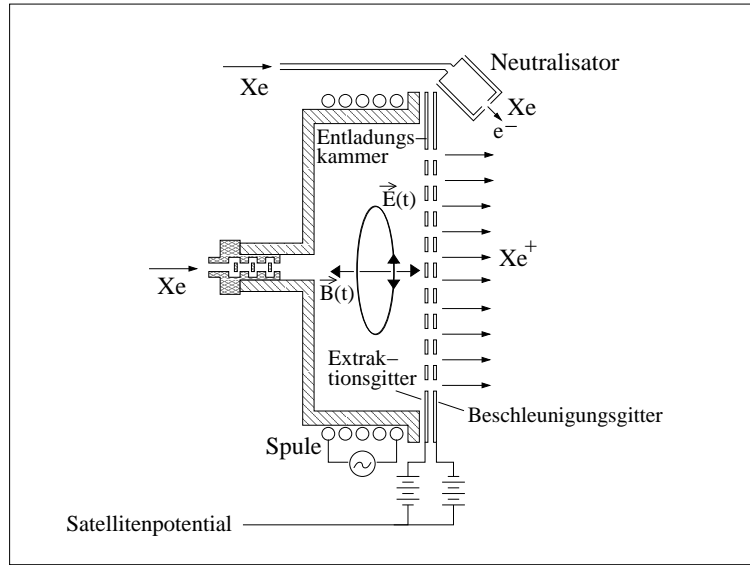


Abbildung 2.1.: Schematische Zeichnung eines RIT Triebwerks, nach [77].

geleitet, deren Wandmaterialien nicht elektrisch leitfähig sind. Die Entladungskammer ist von einer Spule umwickelt, welche von einem hochfrequenten Wechselstrom durchflossen wird, und somit ein zeitlich veränderliches, axial gerichtetes Magnetfeld innerhalb der Spule erzeugt. Die zeitliche Änderung der magnetischen Flußdichte führt nach dem Faradayschen Induktionsgesetz zur Ausbildung eines elektrischen Wirbelfelds, in diesen Wirbelfeldern beschleunigte Elektronen erzeugen durch Stoßionisation eine ringförmige Entladung. Die Effektivität des Ionisationsprozesses ist in erster Linie von der Geometrie der Spule und des Entladungsgefäßes, der Frequenz des Spulenstroms und dem Massenstrom (in Zusammenhang mit dem Druck im Entladungsgefäß) abhängig. Das Extraktionsgitter (*screen grid*) liegt auf dem positiven Potential  $\phi_e$ . Die sich ausbildende Ladungsverteilung des Plasmas in der Entladungszone bildet die Quellen des Plasmopotentials, wodurch der Potentialverlauf im Plasma ortsabhängig ist  $\phi_p = \phi_p(\mathbf{r})$ , um den Randbedingungen (z. B. dem festgelegten Potential des Extraktionsgitters) zu genügen<sup>2</sup>.

Die Bewegung der Ionen zwischen ihrem Entstehungsort und dem Extraktionsgitter wird durch das resultierende Potential  $\phi_{dis} = \phi_e + \phi_p$  in der Entladungszone festgelegt, wonach sie im Feld zwischen Extraktions- und Beschleunigungsgitter (*acceleration grid*) den wesentlichen Anteil ihrer Beschleunigung erfahren. Die für den Schub des Triebwerks größtmögliche Geschwindigkeit  $v = \sqrt{2eU_{tot}/m_{Xe}}$  eines (Xenon-) Ions folgt aus der Potentialdifferenz zwischen denjenigen der Entladungszone und in großer Entfernung,  $U_{tot} = \phi_{dis} - \phi(r \rightarrow \infty)$ . Die größtmögliche Ionenstromdichte  $j_{max}$  zwischen diesen Gittern wird durch das Child-Langmuir-

<sup>2</sup>Die Bewahrung der Ladungsneutralität erfordert betragsmäßig gleich große elektrische Ströme von Ionen und Elektronen aus dem Raumgebiet der Entladungskammer. Der Potentialverlauf ist das Resultat der unterschiedlichen Beweglichkeiten von Elektronen und Ionen aufgrund ihres Massenunterschieds, sowie ihrer unterschiedlichen (kinetischen) Temperaturen. Die Lösung der Poisson-Gleichung ergibt in diesem Fall einen Potentialabfall innerhalb eines bestimmten Bereichs hin zu den Wänden und dem Extraktionsgitter. Bei Triebwerken des Kaufman-Typs bildet gegenüber der Hohlkathode eine nahe der Wände des Entladungsgefäßes befindliche Elektrode die Anode; grundsätzlich liegen Anode und Extraktionsgitter auf unterschiedlichen Potentialen. Eine detailliertere Betrachtung unterteilt den Potentialverlauf im Inneren der Entladungskammer und in der Randzone, was jedoch auf die phänomenologische Beschreibung keine Auswirkung hat. Siehe [7] hierzu gleichwie für eine detailliertere Darstellung.

Gesetz gegeben (Gleichung 2.3). Für die Gültigkeit des Child-Langmuir-Gesetzes wird eine hinreichend niedrige Elektronentemperatur  $T_e$  vorausgesetzt,  $eU_{eb}/k_bT_e \gg 1$ , mit der Potentialdifferenz  $U_{eb}$  zwischen den beiden Gittern. In der Folge sind die Elektronen nicht in der Lage, den Potentialwall zwischen den Gittern zu durchlaufen; sie werden über das Extraktionsgitter abgezogen. Die Lochdurchmesser der Gitter werden von der Größenordnung des Gitterabstands gewählt; für diesen Fall belegen numerische Simulationen der Trajektorien der Ionen in der Umgebung der Gitter eine geringe Kollisionsrate zwischen Ionen und dem Beschleunigungsgitter sowie eine geringe Strahldivergenz [7]. Eine Lichtbogenentladung einer Hohlkathode, zu deren Aufrechterhaltung ein kleiner Teil des Xenonflusses abgezweigt wird, neutralisiert den Ionenstrom und gewährleistet die Ladungsneutralität des Gesamtsystems.

In vielen Anwendungen wird ein drittes, sogenanntes Bremsgitter (*deceleration grid*), in der Reihenfolge *screen grid - acceleration grid - deceleration grid* eingebracht. Die primäre Aufgabe des Bremsgitters besteht darin, für eine vorgegebene optimal Austrittsgeschwindigkeit der Ionen die Beschleunigungsspannung  $U_{eb}$  und damit die Sättigungsstromdichte  $j_{max}$  zu erhöhen. In einem 3-Gittersystem erfolgt somit ein Potentialanstieg zwischen dem Beschleunigungs- und dem Bremsgitter, wobei das Bremsgitter auf ein gegenüber dem Satelliten (und dem Neutralisator) schwach negatives Potential oder - in anderen Realisierungen - auf das Satellitenpotential selbst gelegt wird. Auch der Abstand zwischen Beschleunigungs- und Bremsgitter muß hinsichtlich der Ionenoptik optimiert werden, um die Gittererosion durch Kollisionen mit Ionen möglichst gering zu halten [4, 7].

Radiofrequenz-Ionentriebwerke des Typs RIT werden vom Unternehmen EADS-Astrium kommerziell gefertigt. RIT-Triebwerke sind zudem durch ihren Einsatz auf der im Weltraum frei fliegenden Forschungsplattform EURECA (European Retrievable Carrier) zwischen 1992 und 1993 sowie auf dem Technologiedemonstrationssatelliten ARTEMIS (Advanced Relay Technology Mission) 2001 flugerprobt [79, 80].

### 2.2.2. Kurze Übersicht zu weiteren Ionenantrieben

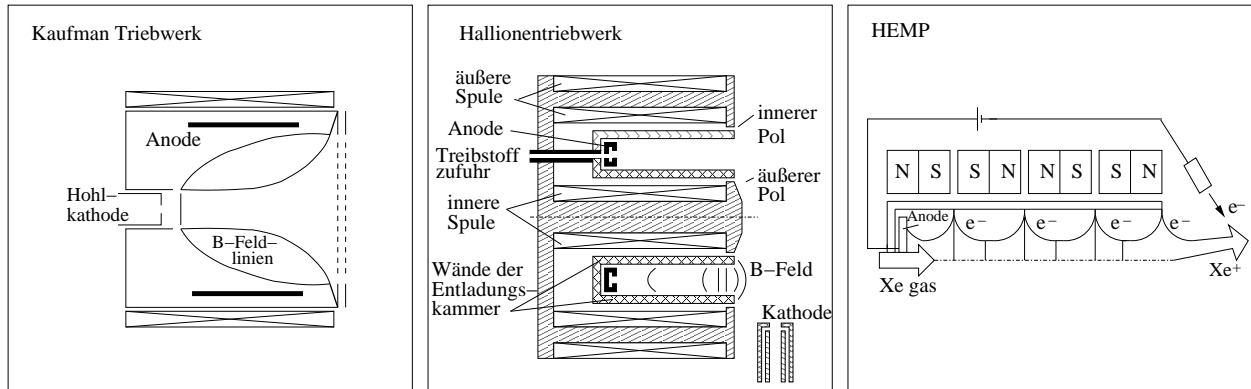
Neben dem Radiofrequenz-Ionentriebwerk gibt es weitere Gittertriebwerkstypen, die sich in der Art der Plasmaerzeugung, insbesondere den Realisierungen einer Gleichstromentladung oder der Zyklotronresonanz, voneinander abgrenzen. Die danach beschriebenen gitterfreien Triebwerke erzwingen hingegen durch das Anlegen gekreuzter  $\mathbf{E} \times \mathbf{B}$ -Felder einen Einschluß von Elektronen in Bereichen der Entladungskammer, wobei sich dieser Einschluß entweder durch die Bewegung auf annähernd geschlossenen Bahnen (Hallionentriebwerk) oder innerhalb magnetischer Spiegel (HEMP-Triebwerk) manifestiert.

#### Gittertriebwerke

##### **Kaufman-Triebwerk**

Kaufman-Triebwerke sind Gittertriebwerke, bei welchen die Ionisation des Treibstoffs durch eine Gleichstrom(Lichtbogen-)entladung zwischen einer Hohlkathode und der in Wandnähe der Entladungskammer befindlichen Anode hervorgerufen wird (Abbildung 2.2, *links*). Das Gittersystem zur Ionenextraktion, Beschleunigung und gegebenenfalls Abbremsung gleicht prinzipiell

## 2. Einführende Erläuterungen zu elektrischen Antrieben und Beschreibung der Testanlage



**Abbildung 2.2.:** Schematische Zeichnung eines Kaufman-Triebwerks (links, nach [7]), eines Hallionentriebwerks (mitte, nach [72]), und eines HEMP-Triebwerks (rechts, nach [63]).

der Beschreibung im vorangegangenen Abschnitt. Dabei wurde eine Vielfalt an Modellen vorgeschlagen, welche sich in extern angelegten Magnetfeldkonfigurationen unterscheiden (siehe z.B. in [7]). Die Funktion des Magnetfelds besteht dabei darin, Elektronen auf Gyrationenbahnen zu zwingen, wodurch eine Verlängerung ihrer effektiven Wegstrecke in der Triebwerkskammer und damit eine erhöhte Ionisationswahrscheinlichkeit und -effizienz erreicht wird, sowie Ionenverluste an den Wänden reduziert werden können [7]. Das Konzept geht auf Arbeiten der NASA in den sechziger Jahren zurück [81]. Kaufman-Triebwerke wurden (und werden) unter anderem auf den Missionen der Raumsonden Deep-Space-1 und Dawn [1, 82] verwendet und sind kommerziell verfügbar.

### Electron Cyclotron Resonance (ECR)-Triebwerk

Die Forschung an Triebwerken, deren Ionisationsprinzip auf der Zyklotronresonanz basiert, wurde in der Vergangenheit insbesondere in Japan forciert und bis zur Einsatzreife für die erfolgreiche Mission der Asteroidsonde *Hayabusa* weiterentwickelt [3]. Während die Beschleunigung der Ionen durch ein Gittersystem erfolgt, wird die Ionisation durch Plasmaheizung aufgrund der Einkopplung von Mikrowellen in die Entladungskammer über geeignete Wellenleiter [83, 84] bewirkt. Ein Eindringen der Mikrowelle in das Plasma ist dabei nur für Frequenzen kleiner der Plasmafrequenz möglich, welche von der Elektronendichte abhängt [7]. Ein essentieller Teil der Triebwerksanordnung ist eine von Permanentmagneten hervorgerufene Magnetfeldgeometrie, welche die Elektronen zu einer Zyklotronbewegung veranlaßt, und gleichzeitig die Plasmaheizung nahe den Wänden unterdrückt [84]. Absorption (Zyklotronresonanz) tritt auf, wenn die eingekoppelte Mikrowellen- und die Zyklotronfrequenz der Elektronen resonant sind. ECR-Triebwerke bieten damit, wie auch das RIT, den Vorteil einer elektrodenlosen Plasmaerzeugung.

### Gitterfreie Triebwerke

#### Hallionentriebwerk

Hallionentriebwerke, auch Hall-Effekt-Triebwerke (HETs) oder *Stationary Plasma Thrusters* (SPTs) genannt, werden durch die  $\mathbf{E} \times \mathbf{B}$ -Drift der Elektronen einer Entladung zwischen der

Anode und einer als Neutralisator dienenden Kathode in der Entladungskammer charakterisiert [72, 73]: Das in der Entladungskammer radial gerichtete Magnetfeld wird durch eine geeignete Spulenanordnung mit Magnetkernen erzeugt (Abbildung 2.2, *mitte*). Da die azimutale Drift der Elektronen unter idealen Umständen auf nahezu geschlossenen Trajektorien verläuft, wird auch die Bezeichnung *Closed-Drift Thruster* gebraucht. Das Plasma kann durch die eingeschlossenen Elektronen in der Entladungskammer als weitgehend quasi-neutral betrachtet werden, wodurch keine Raumladungsbegrenzung der Ionenstromdichte folgt. Ursache für die Beschleunigung der Ionen ist die Potentialdifferenz über die Länge der Entladungskammer, wiewohl die genauen Feld- und Stromdichteverläufe sehr kompliziert sind und als selbstkonsistente Lösungen der Maxwell-Gleichungen unter Berücksichtigung von Stoßprozessen, welche für den zur Aufrechterhaltung der Entladung notwendigen Transport von Elektronen in axialer Richtung notwendig sind, gesucht werden müssen.

Die Forschung an Hallionentriebwerken wurde vornehmlich in Rußland vorangetrieben; sie zählen zu den heute am häufigsten eingesetzten elektrischen Triebwerkstypen. Als eine bedeutende wissenschaftliche Mission wurde die europäische Mondsonde SMART-1 mit einem Hallionenantrieb durchgeführt [2].

### High Efficiency Multistage Plasma Thruster (HEMP)-Triebwerk

Das Konzept des *High Efficiency Multistage Plasma* (HEMP)-Triebwerks beruht auf Forschungsarbeiten der Firma Thales Electron Devices [62], die gegenwärtig Flugmodelle des Triebwerks im Rahmen des Raumfahrtprojekts *SmallGeo* entwickelt [85]. Während sich das ursprüngliche technische Design an der Technik sogenannter *Travelling Wave Tubes* (TWTs) orientierte, wurden in den Folgejahren einige Modifikationen, wie beispielsweise die Verwendung eines herkömmlichen Neutralisators anstelle eines bei TWTs eingesetzten Elektronenstrahlsystems vorgenommen [63]. Die nachfolgende Zusammenfassung des Funktionsprinzips beruht auf den Darstellungen in [62, 63].

Zentrales Element eines HEMP-Triebwerks ist die Anordnung rotationssymmetrischer Permanentmagneten um die Entladungskammer, wie auf der rechten Seite von Abbildung 2.2 gezeigt. Benachbarte Magnete (welche eine „Stufe“ im Sinne der Triebwerksbezeichnung definieren) besitzen gleiche Pole. Auf der Höhe der jeweiligen Zwischenräume der Magnete in axialer Richtung treten nahe der Wände der Entladungskammer erhöhte, radial gerichtete magnetische Flußdichten auf, wodurch im Sinne des Prinzips einer magnetischen Flasche ein effizienter Einschluß der um die magnetischen Feldlinien gyrierenden Elektronen in der jeweiligen Stufe bewirkt, und auf diese Weise (erodierende) Stöße mit den Wänden unterdrückt werden. Die Entladungskammer wird durch ein Loch in der Anode mit Xenon gespeist, welches durch Stoßprozesse mit den gyrierenden Elektronen ionisiert und in dem aus der Plasmaentladung resultierenden, axial gerichteten elektrischen Feld beschleunigt wird. Die Plasmaentladung wird durch eine axiale Bewegungskomponente der Elektronen zur Anode als Folge des nicht exakten magnetischen Einschlusses aufrechterhalten. Der entsprechende Elektroneneinschluß nahe der Austrittsfläche des Triebwerks führt im Austrittsbereich zur Ausbildung einer virtuellen Kathode, welche durch einen steilen Potentialabfall ausgezeichnet ist und die effektive Beschleunigungszone der Xenon-Ionen bildet.

Die wesentlichen Vorzüge der HEMP Technologie bestehen in der geringen Erosionsrate der Wände der Entladungskammer durch den effizienten Elektroneneinschluß, sowie der Stabilität

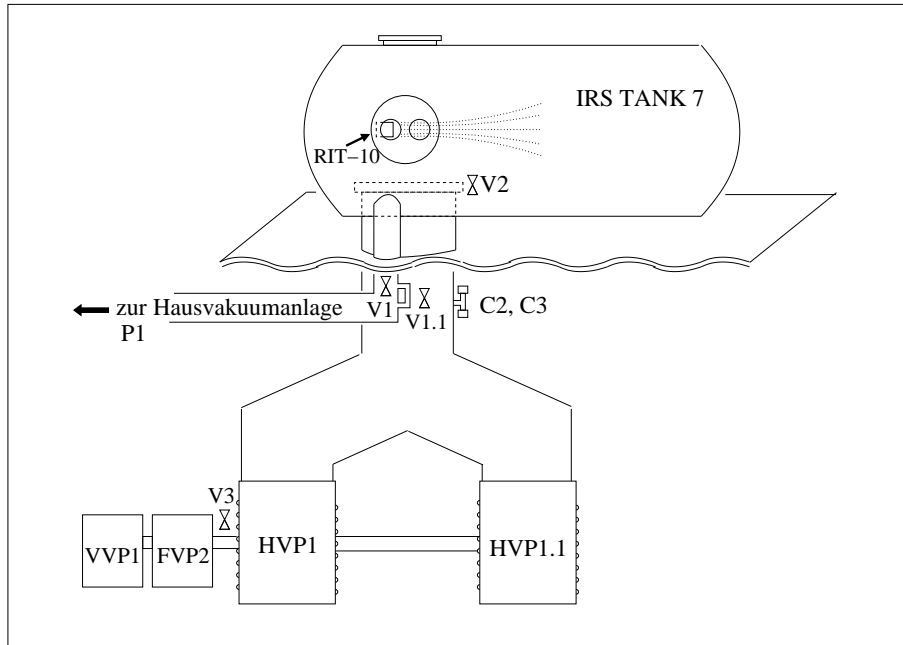


Abbildung 2.3.: Schematische Darstellung des Teststands für Versuche mit dem RIT-10 Triebwerk.

der Entladung in Bezug auf Oszillationen des Entladungsstroms. Aufgrund des Aufbaus erfordert das Gesamtsystem eine weniger komplexe elektronische Regelung in seiner Energieversorgung.

### 2.3. Beschreibung der Testanlage

Aufgrund der kleinen Massenströme im Freistrahlfeld eines Ionentriebwerks mit Gasflüssen von wenigen Standardkubikzentimetern pro Minute (sccm) können bereits geringe Umgebungsdrücke in Bodentestanlagen erheblichen Einfluß auf lokale Ionengeschwindigkeiten [86], oder auf die Gittererosion begünstigende Ladungsaustausch (*Charge Exchange*)-Prozesse nehmen [87]. Zur Ausblendung derartiger Effekte sind für den Betrieb eines Ionentriebwerks in geeigneten Versuchstestständen niedrige Umgebungsdrücke erforderlich, typischerweise in Größenordnungen von  $10^{-3}$  bis  $10^{-5}$  Pa. Solche Vakua können, bei großen Rezipienten mit Volumina im Bereich von 10 bis 100 m<sup>3</sup>, durch mehrstufige Pumpsysteme erzeugt werden, deren Endstufen eine bzw. mehrere Öldiffusionspumpeneinheiten bilden, oder indem die Kondensation bzw. Adsorption der Gase an tiefgekühlten Flächen sogenannter Kryopumpensysteme erfolgt.

Im Labor des Instituts für Raumfahrtsysteme (IRS) steht eine geeignete Vakuumtestanlage zur Verfügung, der zugehörige Rezipient wird mit Tank 7 bezeichnet. Eine schematische Übersicht ist in Abbildung 2.3 gezeigt. Das Triebwerk wird in einem zylinderförmigen Vakuumentank mit einer Länge von 4.8 m und einem Durchmesser von 2 m installiert. Die Vorevakuierung des Rezipienten auf Drücke der Größenordnung von  $\sim 1$  Pa erfolgt zunächst durch das Pumpsystem P1 der universitätseigenen Hausvakuumanlage, welches über die Ventile V1 und V1.1 mit dem Rezipienten verbunden ist. Der für den Betrieb des Triebwerks notwendige Umgebungsdruck wird anschließend durch das Zuschalten eines von der Hausvakuumanlage unabhängigen Hochvakuum-Pumpsystems erzeugt. Durch Öffnen des Ventils V2 wird der Rezipient auf



Drücke von minimal  $8 \times 10^{-4}$  Pa evakuiert. Vor dem Öffnen des Ventils V2 werden die Ventile V1 und V1.1 verschlossen, so daß der Rezipient und die Hochvakuumumpumpen ein gegenüber den übrigen Versuchsanlagen des Labors abgeschlossenes System bilden.

Das Hochvakuum-Pumpensystem kann sowohl in der Automatiksteuerung mit vorprogrammierten Evakuierungsschritten des Hochvakuum-Pumpensystems, als auch in der Handsteuerung, d.h. der manuellen Schaltung der jeweiligen (Vor-)Pumpen und Ventile betrieben werden. Bei geschlossenen Ventilen V2 und V3 werden zunächst die Vorpumpen VVP1 (Dreh-schieberpumpe; Saema 1200) und FVP2 (Rootspumpe; Edwards EH1200) eingeschaltet. Nach Erreichen der Druckbedingung im Vorpumpensystem an der Meßstelle (Labovac PIA100) erfolgt das Öffnen des Ventils V3. Unterhalb eines Vorvakuumdrucks von 1 Pa im gesamten Pumpensystem P1 werden die Heizungen der beiden Öldiffusionspumpen HVP1 und HVP1.1 (Haraeus DIP50000) aktiviert. Die spezifizierte Saugleistung beträgt 50000 l/s für jede der beiden Öldiffusionspumpeneinheiten. Aufgrund des Zusammenschlusses der Pumpen durch ein T-förmiges Verbindungsstück und dem weiteren Zugang zum Ventil V2 von etwa drei Metern Länge und einem Meter Durchmesser ist die gesamte effektive Pumpleistung jedoch reduziert. Sobald Hochvakuumbedingungen mit einem Druck von weniger als  $10^{-2}$  Pa an den Druckmeßstellen C2/C3 (Pirani PI3C/Penning CF2P, Alcatel) erreicht sind, wird das Ventil V2 geöffnet. Der Druck im Rezipienten wird durch ein Full-Range Meßgerät überwacht (Pfeiffer Full Range 250).

Das Triebwerk und der Radiofrequenzgenerator sind durch Aluminiumträger auf der zentralen Achse des Vakuumtanks installiert, mit optischen Zugängen sowohl seitlich als auch von der Oberseite des Vakuumteststands. Das Triebwerk befindet sich dadurch direkt oberhalb des Zugangs zu den Öldiffusionspumpen; zur Vermeidung von Komplikationen durch abfließendes Wasser im Fall eines Kühlungslecks wird der Radiofrequenzgenerator ebenfalls durch einen Ölkreislauf gekühlt.



### 3. Grundlagen der laserinduzierten Fluoreszenzspektroskopie mit Zwei-Photonen-Anregung

Das Verfahren der laserinduzierten Fluoreszenzspektroskopie erlaubt in einer nicht-intrusiven (d.h. berührungslosen) Meßanordnung eine räumlich und zeitlich aufgelöste, quantitative Analyse atomarer und molekularer Spezies<sup>1</sup>. Das Prinzip beruht auf der Anregung eines atomaren Übergangs der zu untersuchenden Teilchenspezies durch Absorption von Laserlicht, bei anschließender Detektion der von den angeregten Atomen emittierten Fluoreszenzstrahlung. Neben dem damit verbundenen sensitiven Nachweis von Teilchenspezies läßt die Analyse der Linienform und einer möglichen (Doppler-)Verschiebung der Absorptionswellenlänge sowie von Intensität, Polarisierung und zeitlichem Abklingverhalten der Fluoreszenzstrahlung Rückschlüsse auf charakteristische Plasmaparameter wie etwa lokale Dichten, Temperaturen, Geschwindigkeiten und Geschwindigkeitsdispersionen der untersuchten Spezies, als auch auf atomspezifische Größen wie Kollisionsquerschnitte oder natürliche Lebensdauern angeregter atomarer Zustände zu. In der Plasmadiagnostik ergibt sich ein weites Feld von Anwendungen, die von der Strömungscharakterisierung bis zur Verbrennungsdiagnostik reichen [88].

Die räumliche Auflösung relevanter Meßgrößen wird durch die Fokussierung der Laserstrahlung auf ein bestimmtes räumliches Gebiet (Fokusvolumen) bei gleichzeitiger Abbildung des Volumens emittierender Fluoreszenzstrahlung (Detektionsvolumen) auf einen optischen Detektor erreicht. Das Detektionsvolumen muß dabei nicht notwendigerweise dem Fokusvolumen des anregenden Laserstrahls entsprechen, „defokussierte“ Ausrichtungen der Detektionsoptik können angewendet werden, um mit der laserinduzierten Fluoreszenz konkurrierende Effekte zu umgehen. In der plasmadiagnostischen Anwendung muß weiterhin gewährleistet sein, daß während des Detektionsvorgangs, der auf der Zeitskala der Lebensdauer des angeregten atomaren Zustands abläuft, keine angeregten Atome aus dem Detektionsvolumen herausströmen. Die temporale Auflösung wird durch einen zeitlich begrenzten Anregungsmechanismus gepulster Laserstrahlung bestimmt. Die detektierte Fluoreszenzstrahlung kann dann als Maß für die Dichte der untersuchten Spezies (d.h. einer gemittelten Anzahldichte der Teilchen im Detektionsvolumen des Zustands, aus dem die laserinduzierte Anregung vollzogen wurde) angesehen werden, solange konkurrierende und schwer modellierbare Effekte, wie etwa verstärkte spontane Emission oder Mehr-Photonen-Photoionisation, gegenüber der Fluoreszenzabregung des laserangeregten Zustands zu vernachlässigen sind.

Allerdings ist, bei laserinduzierter Anregung mit einem beliebigen atomaren Energiezustand als Ausgangszustand, der Rückschluß auf eine Teilchendichte der untersuchten Spezies nur dann

---

<sup>1</sup>In dieser Arbeit werden keine Moleküle betrachtet, daher sollen im folgenden vereinfachend nur die Begriffe Atom bzw. atomar in Zusammenhang mit Teilchenspezies verwendet werden.

### 3. Grundlagen der laserinduzierten Fluoreszenzspektroskopie mit Zwei-Photonen-Anregung

möglich, sofern die Besetzungsverteilung der Zustände bekannt ist. Die Schwierigkeiten in Zusammenhang mit der Unkenntnis dieser Verteilungsfunktion im thermischen Nichtgleichgewicht vereinfachen sich allerdings, solange der Grundzustand näherungsweise als nicht entvölkert angenommen werden darf. Dieser Umstand ist in Niedertemperaturplasmen, wie sie in Ionentriebwerken vorliegen, gegeben. In diesem Fall kann gewöhnlich die Dichte der Teilchen im Grundzustand mit der absoluten Teilchendichte der untersuchten Spezies gleichgesetzt werden.

Die Energielücke zwischen dem Grundzustand und den ersten anregbaren Zuständen entspricht jedoch bei vielen atomaren Spezies (H, N, O, Kr, Xe) einer Anregungswellenlänge im VUV-Bereich. Die Probleme der Erzeugung derart kurzwelliger Strahlung können umgangen werden, wenn die laserinduzierte Anregung durch die simultane Absorption zweier oder mehr Photonen vollzogen wird, deren addierte Photonenenergien der Anregungsenergie des atomaren Übergangs entsprechen. Eine vergleichsweise einfache technische und kommerziell verfügbare Realisierung durchstimmbarer Laserstrahlung im UV-Bereich mit Hilfe von Frequenzverdopplungskristallen ist aufgrund der optischen Absorptionseigenschaften der Kristallmaterialien gegenwärtig auf Wellenlängen größer als  $\sim 200$  nm beschränkt [89].

Die Übergangsrate  $W^{(N)}$  für die simultane Absorption von  $N$  Photonen kann durch den grundlegenden Zusammenhang

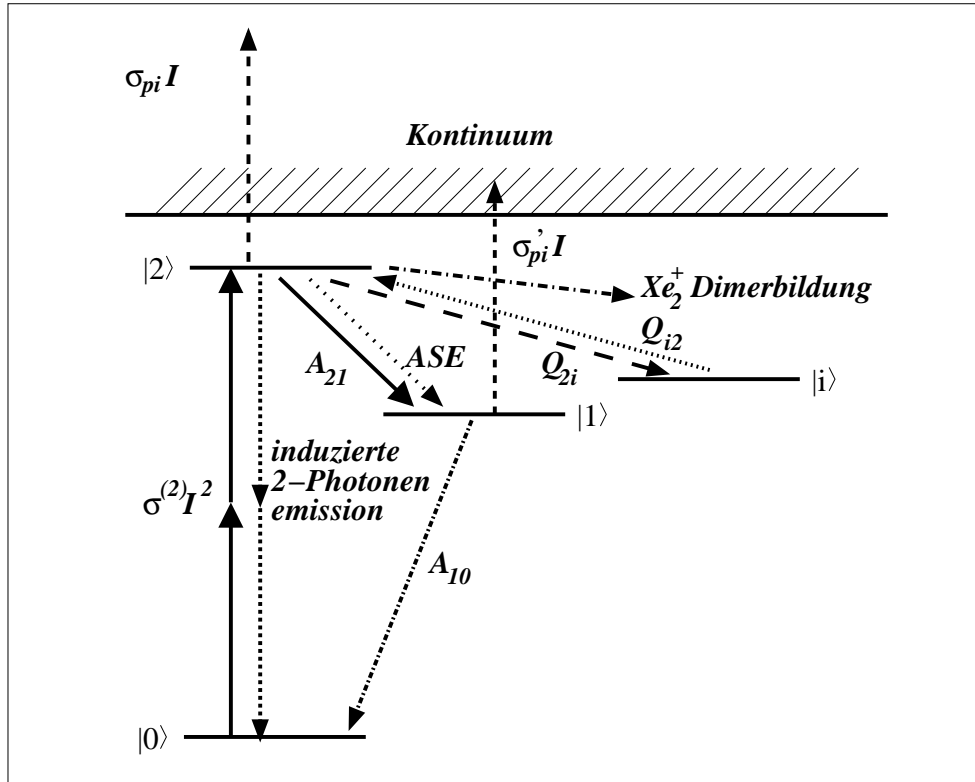
$$W^{(N)} = \sigma^{(N)} \Phi^N \quad (3.1)$$

beschrieben werden. Es bedeuten  $\sigma^{(N)}$  den (von der Linienform abhängigen)  $N$ -Photonen-Absorptionsquerschnitt (in  $\text{cm}^{2N} \text{s}^{N-1}$ ) sowie  $\Phi$  den Photonenfluss (in  $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ ) der den Übergang induzierenden Laserstrahlung<sup>2</sup>. Der Ausdruck (3.1) kann quantenmechanisch begründet werden; das Potenzgesetz folgt aus der störungstheoretischen Behandlung eines Atoms in einem Strahlungsfeld [90]. Der  $N$ -Photonen-Absorptionsquerschnitt läßt sich von der Linienform unabhängig formulieren und stellt dann für jeden Übergang eine intrinsische Größe des Atoms dar (siehe Kapitel 3.1.2). Mehr-Photonen-Prozesse erfordern mit zunehmender Ordnung  $N$  allerdings einen deutlich empfindlicheren Detektionsaufbau, da - bei vergleichbaren Laserpulsenergien - ihre Übergangsraten jeweils von der Ordnung  $N$  nach  $N+1$  typischerweise um einige Größenordnungen abnehmen (vgl. Kapitel 3.4). Gleichung (3.1) bildet die Voraussetzung für die Formulierung kinetischer Modelle, die auf Ratengleichungen basieren.

In der vorliegenden Arbeit wird die Zwei-Photonen laserinduzierte Fluoreszenz (*Two-Photon Absorption Laser Induced Fluorescence*, TALIF-)Spektroskopie in neutralem Xenon (Xe I) behandelt. In Kapitel 3.1 werden zunächst nur die elementaren Prozesse, nämlich die Zwei-Photonen-Anregung und die nachfolgende Abregung durch Fluoreszenzemission und strahlungslose Stoßdeaktivierung ohne inversen Stoßtransfer behandelt, zudem werden die elektrischen Dipol-Auswahlregeln für Zwei-Photonen-Übergänge besprochen sowie die gebräuchliche  $jK$ -Notation der Kopplung der Drehimpulse für die Energiezustände der schwereren Edelgase erläutert. Kapitel 3.2 behandelt einige, zur Sättigung des TALIF-Prozesses führende Effekte. Die Kalibriertechnik für Zwei-Photonen-Untersuchungen wurde ausführlich von Goehlich et al. [30] und Niemi et al. [20, 21, 116] untersucht, und wird in Kapitel 3.3 kurz erläutert. Der Abschnitt 3.4 gibt schließlich einen Ausblick auf eine mögliche Detektion von ionisiertem Xenon mittels der TALIF- und der Drei-Photonen-Spektroskopie.

---

<sup>2</sup>im Einklang mit der Literatur sollen einige Größen dieser Arbeit in cgs-Einheiten angegeben werden



**Abbildung 3.1.:** Zentrale Prozesse der Zwei-Photonen laserinduzierten Fluoreszenz (TALIF-Schema, durchgezogene Pfeile) und konkurrierende Prozesse, Darstellung in Anlehnung an [116].

### 3.1. Theorie der Zwei-Photonen-Absorption

In Abbildung 3.1 ist ein TALIF-Schema mit dem Grundzustand  $|0\rangle$ , dem durch die Laserstrahlung angeregten Zustand  $|2\rangle$  sowie dem Fluoreszenzübergang  $|2\rangle \rightarrow |1\rangle$  skizziert. Die Zwei-Photonen-Anregung  $|0\rangle \rightarrow |2\rangle$  wird durch die Übergangsrate  $\sigma^{(2)}I^2$  bestimmt, die emittierte Fluoreszenzstrahlung des detektierten Fluoreszenzübergangs  $|2\rangle \rightarrow |1\rangle$  durch die Übergangsrate  $A_{21}$ . Aufgrund von Stoßprozessen kann jeder angeregte Zustand strahlungslos entleert werden, die Stoßlöschungsrate für den betrachteten Zustand  $|2\rangle$  addiert sich aus den Anteilen jedes möglichen stoßinduzierten Übergangs  $Q \equiv \sum_{i \neq 2} Q_{2i}$ . Neben diesen elementaren Prozessen kann die erwartete Fluoreszenzintensität durch  $(2+1)$  resonante Photoionisation des Zustands  $|2\rangle$  mit einer Übergangsrate  $\propto \sigma_{pi}I$  reduziert sein. Die richtungsabhängige verstärkte spontane Emission (*Amplified Spontaneous Emission, ASE*) kann aufgrund der durch den Anregungsprozeß erzeugten Besetzungsdichten entlang der Ausbreitungsrichtung des Laserstrahls bei hinreichend hohen Laserpulsleistungsdichten und großen Verstärkungslängen in einer Vielzahl von Fluoreszenzkanälen auftreten [32, 46]. Inverser Stoßtransfer der Rate  $Q_{i2}$  zwischen energetisch naheliegenden Niveaus  $|i\rangle$ ,  $|2\rangle$  kann zur Wiederbevölkerung des untersuchten angeregten Zustands  $|2\rangle$  führen [31]. Assoziative Ionisation, die zur Bildung von  $\text{Xe}_2^+$ -Dimeren führt, ist möglicherweise für hochangeregte Zustände ein wichtiger konkurrierender Prozeß [47–49]. Die Wiederbevölkerung des Grundzustands aus dem Zustand  $|1\rangle$  mit der Rate  $A_{10}$  sowie die Photoionisation von Zustand  $|1\rangle$  muß im Fall einer wesentlichen Entleerung des Grundzustands beachtet werden.

### 3.1.1. Kinetisches Modell der Zwei-Photonen-Anregung

Die Veränderung der Besetzungszahl des durch Laserlicht angeregten Zustands  $|2\rangle$  und die Anzahl der emittierten Photonen während und nach der zeitlich begrenzten Anregung wird gewöhnlich durch die Lösung eines Systems von Ratengleichungen beschrieben. Wird dabei die Re-Population des Grundzustands durch den Übergang  $|1\rangle \rightarrow |0\rangle$  vernachlässigt, was näherungsweise erlaubt ist, wenn der Grundzustand während der Zeitdauer des Laserpulses nicht signifikant entleert wird, kann das Ratengleichungssystem auf eine Beschreibung der Niveaus  $|0\rangle, |2\rangle$  bzw. deren Besetzungszahlen  $N_0$  und  $N_2$  beschränkt werden. Eine solche Modellierung wurde ausführlich von Bamford et al. [91] besprochen, nachfolgend sollen daraus die wesentlichen Schritte zur Erlangung der wichtigen Gleichung (3.17) verkürzt dargestellt werden.

Im folgenden soll die Photonenflussdichte als Funktion der räumlichen Koordinaten und der Zeit aufgefaßt werden  $\Phi = \Phi(r, z, t)$ . Dabei wird Rotationssymmetrie des räumlichen Laserprofils die Ausbreitungsrichtung vorausgesetzt. Die Intensität der Laserstrahlung einer Frequenz  $\omega$  werde durch

$$I(r, z, t) = \hbar\omega\Phi(r, z, t) \quad (3.2)$$

eingeführt<sup>3</sup>. Für das räumliche und zeitliche Profil des Laserstrahls gelte der Ansatz

$$I(r, z, t) = U(r, z)F(t) \quad (3.3)$$

wobei  $U(r, z)$  die Geometrie der Fokussierung enthält

$$U(r, z) = \frac{2E}{\pi a^2(z)} e^{-2r^2/a^2(z)}, \quad (3.4)$$

während die normierte zeitliche Verteilungsfunktion des Laserpulses durch  $F(t)$  beschrieben wird. Es ist zu beachten, daß  $U(r, z)$  eine flächenbezogene Energiedichte mit der Laserpulsenergie  $E$  darstellt, keine Dichte bezüglich der Koordinate  $z$ . Somit beschreibt das Produkt  $U(r, z)F(t)$  eine flächenbezogene Leistungsdichte. Aufgrund der endlichen Ausbreitungsgeschwindigkeit des Pulses wird der zeitliche Verlauf zwar auf einer Fläche an der beliebig festgelegten Stelle  $z_1$  richtig beschrieben, jedoch nicht auf zwei Flächen gleichzeitig. Beschreibt  $\tau_p$  die Halbwertsbreite des Laserpulses und  $c$  die Lichtgeschwindigkeit, so gilt jedoch wegen  $c\tau_p \gg \Delta z$  die Verteilung  $I(r, z, t)$  näherungsweise über das Detektionsvolumen der Länge  $\Delta z$ .

Der Fokaldurchmesser (definiert als der  $1/e^2$ -Radius der Intensitätsverteilung) wird durch

$$a^2(z) = a_0^2 \left[ 1 + \left( \frac{z}{z_0} \right)^2 \right] \quad (3.5)$$

beschrieben, worin  $z_0$  die Brennweite und  $a_0$  den Fokaldurchmesser in der Brennebene bedeuten.

Für große Brennweiten soll das Detektionsvolumen in der Umgebung der Fokalebene zylinderförmig angenommen werden; d.h. über das gesamte Detektionsvolumen der Länge  $\Delta z$  sei der Querschnitt konstant  $a^2(z=0) = a_0^2$ . Die Integration über die Querschnittsfläche an einer

---

<sup>3</sup>Die Intensität hat somit die Einheit  $\text{W cm}^{-2}$ . Die spektrale Linienbreite der Laserstrahlung wird in der Linienform des Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitts berücksichtigt.

Stelle  $z_1$  liefert

$$\int_{\partial A} U(r, z_1) F(t) dA = \int_0^\infty \int_0^{2\pi} U(r, z_1) F(t) r d\varphi dr = EF(t) \quad (3.6)$$

und ist nicht von  $z_1$  abhängig.  $EF(t)$  hat die Dimension einer Leistung, und die Energie eines Laserpulses folgt aus

$$\int_{-\infty}^{\infty} EF(t) dt = E. \quad (3.7)$$

Für die weitere Herleitung ist innerhalb des Detektionsvolumens das Flächenintegral

$$\int_{\partial A} U^2(r, z) dA = \int_0^\infty \int_0^{2\pi} U^2(r, z) r d\varphi dr = \frac{E^2}{\pi a_0^2}. \quad (3.8)$$

Unter Berücksichtigung von Gleichung (3.1) lauten die Ratengleichungen für die zeitliche Besetzung der Zustände  $|0\rangle$  und  $|2\rangle$  (Zahl an Atomen pro Volumen)

$$\dot{N}_0(r, z, t) = -\sigma^{(2)} \Phi^2 N_0(r, z, t) \quad (3.9)$$

$$\dot{N}_2(r, z, t) = \sigma^{(2)} \Phi^2 N_0(r, z, t) - (A + Q) N_2(r, z, t). \quad (3.10)$$

Die Abregung des Zustands  $|2\rangle$  berücksichtigt die Entleerung durch spontane Emission und Stoßprozesse; die Übergangsrate  $A$  beinhaltet alle vom Zustand  $|2\rangle$  ausgehenden Fluoreszenzübergänge  $A \equiv \sum_{j \neq 2} A_{2j}$  mit den Übergangsraten  $A_{ij}$ ,  $Q$  bezeichnet die Gesamtrate aller Stoßprozesse, die zur Entvölkerung des angeregten Zustands führen.

Die Gleichung (3.10) kann mit dem Standardverfahren der Variation der Konstanten gelöst werden, es folgt

$$N_2(r, z, t) = \sigma^{(2)} e^{-(A+Q)t} \int_{-\infty}^t N_0(r, z, t') \Phi^2(r, z, t') e^{(A+Q)t' - \sigma^{(2)} \Omega(r, z, t')} dt', \quad (3.11)$$

wobei die Abkürzung  $\Omega(r, z, t) = \int_{-\infty}^t \Phi^2(r, z, t') dt'$  verwendet wurde. Für eine räumlich wie zeitlich konstante, näherungsweise nicht entvölkerte Grundzustandsdichte ( $N_0 = \text{const.}$ ) kann der Ausdruck

$$e^{-\sigma^{(2)} \Omega(r, z, t')} \approx 1$$

gesetzt werden, was sich unter dieser Voraussetzung unmittelbar aus der Lösung von Gleichung (3.9) begründet. Die Zahl der über den gesamten Beobachtungszeitraum emittierten Photonen pro Volumenelement wird durch Integration über die Zeit

$$N_{h\nu}(r, z, t \rightarrow \infty) = A_{21} \int_{-\infty}^{\infty} N_2(r, z, t) dt \quad (3.12)$$

### 3. Grundlagen der laserinduzierten Fluoreszenzspektroskopie mit Zwei-Photonen-Anregung

erhalten. Unter der Voraussetzung, daß die Halbwertsbreite des zeitlichen Laserprofils  $F(t)$  wesentlich kürzer als die effektive Lebensdauer  $(A + Q)^{-1}$  des angeregten Zustands ist, kann weiterhin

$$\begin{aligned}
 \mathcal{N}_{\hbar\omega}(r, z, t \rightarrow \infty) &= A_{21}\sigma^{(2)}N_0 \int_{-\infty}^{\infty} e^{-(A+Q)t'} \int_{-\infty}^{t'} \Phi^2(r, z, t'') e^{(A+Q)t''} dt'' dt' \\
 &\approx A_{21}\sigma^{(2)}N_0 \int_0^{\infty} e^{-(A+Q)t'} dt' \times \int_{-\infty}^{\infty} \Phi^2(r, z, t') dt' \\
 &= \frac{A_{21}\sigma^{(2)}N_0 U^2(r, z)}{(A + Q)(\hbar\omega)^2} \int_{-\infty}^{\infty} F^2(t') dt'
 \end{aligned} \tag{3.13}$$

geschrieben werden<sup>4</sup>. Die räumliche Integration von Gleichung (3.13) liefert unter Beachtung von Gleichung (3.8) die Gesamtanzahl der während des Prozesses beobachtbaren Photonen

$$\mathcal{N}_{\hbar\omega} = \frac{A_{21}}{A + Q} \frac{\sigma^{(2)}N_0 L E^2}{\pi a_0^2 (\hbar\omega)^2} \int_{-\infty}^{\infty} F^2(t) dt, \tag{3.14}$$

wobei in der Ausbreitungsrichtung des Laserstrahls über die Länge  $\Delta z \equiv L$  des Beobachtungsvolumens integriert wurde. Aufgrund der Voraussetzung  $N_0 \equiv \text{const.}$  wurde eine räumliche Abhängigkeit der Grundzustandsdichte nicht berücksichtigt,  $N_0$  beschreibt daher eine über das Detektionsvolumen gemittelte Teilchendichte. Die Vorfaktoren wurden so gewählt, daß  $F(t)$  normiert ist; im Fall eines Gaußprofils ist  $F(t) \equiv (1/\sqrt{(2\pi)\sigma_p})e^{-t^2/2\sigma_p^2}$ . Es folgt demnach  $\int_{-\infty}^{\infty} F^2(t) dt = (1/2\sqrt{\pi}\sigma_p)$ , wobei die Laserpulsdauer  $\tau_p$  üblicherweise mit der Halbwertsbreite  $\tau_p = \sigma_p\sqrt{8\ln 2}$  der Funktion  $F(t)$  identifiziert wird.

Für die Umrechnung einer Photonenzahl  $\mathcal{N}_{\hbar\omega}$  in das tatsächlich erfaßte Meßsignal einer Detektionsanordnung müssen Faktoren für die elektronische Signalwandlung und die Detektionsgeometrie berücksichtigt werden. Bei der Verwendung eines Photomultipliers als Photonenzähler wird in der Meßtechnik das Fluoreszenzsignal in eine elektrische Spannung gewandelt. Eine Signalstärke  $S$  (in V) kann durch

$$S = \frac{1}{4\pi} \frac{\mathcal{N}_{\hbar\omega} D}{L} \tag{3.15}$$

eingeführt werden, wobei die Normierung auf den gesamten Raumwinkel  $4\pi$  und der Länge des Detektionsvolumens  $L$  aus der Definition der Kalibrierkonstanten  $D$  herrühren, sie lautet für Experimente der Versuchsanordnung aus Kapitel 4

$$D = L \frac{\Omega}{4\pi} \eta_t \eta_\Phi e K G_p \frac{G_a}{C}. \tag{3.16}$$

<sup>4</sup>Es kann gezeigt werden, daß die hier enthaltene Näherung exakt gilt, sofern  $F(t)$  eine Gaußfunktion beschreibt. Für beliebige, an den Rändern hinreichend schnell abfallende Funktionen  $F(t)$  kann, unter o.g. Voraussetzung die Exponentialfunktion über den Integrationsbereich des inneren Integrals als konstant angesehen werden



Neben der Elementarladung  $e$  beschreiben die hierin auftretenden Größen geometrische, optische und bei der elektronischen Signalverarbeitung eingehende Faktoren, die die Sensitivität der Detektionsanordnung festlegen. Es bezeichnen  $\Omega$  den Raumwinkel (in sr),  $\eta_t$  die Gesamttransmission der im Fluoreszenzstrahlengang befindlichen optischen Filter, Fenster etc.,  $\eta_\Phi$  die Quanteneffizienz des verwendeten Photomultipliers,  $G_p$  die Verstärkung des Photomultipliers,  $G_a$  die Vervielfachung externer Signalvorverstärker,  $K$  die einstellbaren Sensitivitäten bei der Signalverarbeitung des verwendeten Boxcar-Averagers (siehe Kapitel 4), und  $C$  die Kapazität der verwendeten Kabel. Die Einheit von  $D$  ist somit V m sr.

Nach den Gleichungen (3.14) und (3.15) lautet demnach der Zusammenhang zwischen dem detektierten Signal und der mittleren Teilchendichte  $N_0$

$$S = \frac{A_{21}}{A + Q} \frac{\sigma^{(2)} N_0 D E^2}{4\pi^2 a_0^2 (\hbar\omega)^2} \int_{-\infty}^{\infty} F^2(t) dt. \quad (3.17)$$

Aus dieser Gleichung wird ersichtlich, daß die Effizienz eines TALIF-Schemas, neben den in der Kalibrierkonstanten  $D$  zusammengefaßten Faktoren, die die Sensitivitäten der Versuchsanordnung beschreiben, durch das reduzierte optische Verzweigungsverhältnis (*reduced branching ratio*)  $A_{21}/(A + Q)$  und den Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitt  $\sigma^{(2)}$  bestimmt sind. Die Stoßdeaktivierungsrate ist in erster Näherung eine lineare Funktion des Gasdrucks der Stoßpartner; für  $p \rightarrow 0$  ergibt sich das *branching ratio* in seiner bekannten Form  $A_{21}/A$ . Bei sehr schwach erwarteten Signalen aufgrund geringer Teilchenkonzentrationen sind bei der Auswahl eines TALIF-Schemas prinzipiell angeregte Niveaus mit geringer Neigung zur Stoßabregung zu bevorzugen, zusätzlich sollte ein möglichst großer Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitt vorliegen.

Gleichung (3.17) zeigt weiterhin den charakteristischen quadratischen Zusammenhang zwischen der detektierten Laserintensität und der Laserpulsenergie  $S \propto E^2$ . Bei Anwesenheit konkurrierender Prozesse wie der (2+1) resonanten Photoionisation oder der verstärkten spontanen Emission müssen weitere Terme in den Ratengleichungen berücksichtigt werden, welche zu Abweichungen von der quadratischen Abhängigkeit und somit zur Sättigung der Fluoreszenz führen.

### 3.1.2. Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitte

Der im vorherigen Abschnitt eingeführte Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitt muß einen die Linienform der Absorptionslinie beschreibenden Anteil enthalten. Es ist üblich, durch

$$\sigma^{(2)}(\omega) = \sigma_0^{(2)} g(\omega) G^{(2)} \quad (3.18)$$

einen von der Linienform  $g(\omega)$  unabhängigen Querschnitt  $\sigma_0^{(2)}$  einzuführen [91, 94]. Die Darstellung in diesem Kapitel soll sich auf eine einzige Laserstrahlungsquelle zur optischen Anregung beschränken. Für  $\sigma_0^{(2)}$  wird in quantenmechanischer Störungsrechnung zweiter Ordnung der

### 3. Grundlagen der laserinduzierten Fluoreszenzspektroskopie mit Zwei-Photonen-Anregung

Ausdruck [90]

$$\sigma_0^{(2)} = 2\pi(2\pi\alpha)^2\omega^2 \left| \sum_m \frac{\langle f|\boldsymbol{\epsilon}\mathbf{r}|m\rangle\langle m|\boldsymbol{\epsilon}\mathbf{r}|g\rangle}{(\omega_m - \omega_g - \omega)} \right|^2 \quad (3.19)$$

hergeleitet, hierin bezeichnen  $|f\rangle$  und  $|g\rangle$  den Anfangs- und den Endzustand des betrachteten Zwei-Photonen-Übergangs,  $\omega_g$  die Eigenfrequenz des Endzustands,  $\omega$  die Frequenz und  $\boldsymbol{\epsilon}$  den Polarisationsvektor der anregenden Photonen,  $\mathbf{r}$  den Ortsvektor und  $\alpha$  die Feinstrukturkonstante. Es ist dabei charakteristisch für die Störungsrechnung höherer Ordnung, daß sich die Summation über die Matrixelemente aller Eigenzustände  $|m\rangle$  und Eigenfrequenzen  $\omega_m$  des betrachteten Atoms erstreckt.

In Gleichung (3.18) tritt der photonenstatistische Faktor  $G^{(2)}$  auf, der das limitierte zeitliche Auflösungsvermögen eines Meßsystems zur Charakterisierung des zeitlichen Laserprofils  $F(t)$  berücksichtigt. Setzt sich Laserlicht aus einer Vielzahl phasenunkorrelierter Moden zusammen, resultieren daraus Fluktuationen der Laserintensität auf einer sehr kleinen Zeitskala. Die Kohärenzzeit kann dabei erheblich kleiner als das kleinste zeitliche Meßintervall des Detektors sein. In diesem Fall müssen  $F(t)$  und  $F^2(t)$  durch geeignet gemittelte Funktionen ersetzt werden, und es folgt i.a.  $\langle F^2(t) \rangle \neq \langle F(t) \rangle \langle F(t) \rangle = \langle F(t) \rangle^2$ . Der photonenstatistische Faktor für einen Zwei-Photonen-Prozeß wird durch [92]

$$\langle F^2(t) \rangle = G^{(2)} \langle F(t) \rangle \langle F(t) \rangle \quad (3.20)$$

eingeführt; er nimmt folglich den Wert  $G^{(2)} = 1$  an, wenn ideal monochromatische Laserstrahlung vorliegt, während  $G^{(2)} = 2$  beträgt für ein chaotisches Multimoden-Laserfeld. In dieser Arbeit wurde  $G^{(2)}$  für das verwendete Lasersystem nicht experimentell bestimmt. Da die Anregungswellenlängen bei der Messung relativer Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitte nur geringfügig variieren, soll im folgenden  $G^{(2)} = \text{const.}$  angenommen werden.

Die spektrale Linienform  $g(\omega)$  ist normiert,  $\int_{-\infty}^{\infty} g(\omega) d\omega = 1$ , und setzt sich aus den Linienprofilen der natürlichen Linienbreite  $g_N$ , der Dopplerbreite  $g_D$  und der Laserbreite  $g_L$  zusammen. Die natürliche Linienbreite der Absorptionslinie ist durch ein Lorentzprofil gegeben. Ihre Halbwertsbreite  $\Delta\omega_L$  kann aus der Energie-Zeit-Unschärfe abgeschätzt werden (siehe z.B. [93]), sie liegt für die hier betrachteten Übergänge mit  $\Delta E > 78000 \text{ cm}^{-1}$  und typischen effektiven Lebensdauern zwischen 10 und 200 ns in der Größenordnung von maximal einigen MHz. Die Dopplerbreite  $\Delta\omega_D$  einer Absorptionslinie mit der Übergangsfrequenz  $\omega_{fi}$  ist durch [93]

$$\Delta\omega_D = \frac{\omega_{fi}}{c} \sqrt{\frac{8k_B T \ln 2}{m}} \quad (3.21)$$

bestimmt, worin  $m$  die Atommasse,  $T$  die Temperatur,  $c$  die Lichtgeschwindigkeit und  $k_B$  die Boltzmann-Konstante bedeuten. Bei Raumtemperatur ergeben sich bei Xenon für optische Übergänge aus dem Grundzustand Doppler-Linienbreiten in der Größenordnung einiger GHz, denen ein gaußförmiges Linienprofil zugrundeliegt. Die Breite des spektralen Laserlinienprofils  $g_L$  des in der vorliegenden Arbeit verwendeten Farbstofflasersystems ist von der Größenordnung der Dopplerbreite der induzierten Übergänge.

Aufgrund ihres kleinen Beitrags kann die natürliche Linienverbreiterung für das Weitere

vernachlässigt werden. Das resultierende Linienprofil einer Zwei-Photonen-Absorption ergibt sich somit aus der Faltung [30]

$$g = g_D * g_L * g_L. \quad (3.22)$$

Im Fall eines gaußverteilten spektralen Laserprofils ist die gesamt resultierende Linienform wiederum gaußförmig

$$g(\omega) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\beta} e^{-(\omega-\omega_R)^2/2\beta^2}, \quad (3.23)$$

wobei die Halbwertsbreite  $\Delta\omega$  durch  $\Delta\omega = \beta\sqrt{8\ln 2}$  gegeben ist. Für die Faltung von Gaußfunktionen kann leicht gezeigt werden, daß die Halbwertsbreite der resultierenden Gaußfunktion  $g$  aus der Faltung (3.22) durch

$$\Delta\omega = \sqrt{\Delta\omega_D^2 + 2\Delta\omega_L^2} \quad (3.24)$$

mit den Halbwertsbreiten der Faltfunktionen verknüpft ist. Damit lautet das normierte Linienprofil an der Stelle der Resonanz  $\omega = \omega_R$

$$g(\omega = \omega_R) = \sqrt{\frac{8\ln 2}{2\pi}} \frac{1}{\Delta\omega}. \quad (3.25)$$

Der Vergleich zwischen experimentell und numerisch bestimmten Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitten erfolgt am einfachsten über die von der Linienform unabhängige Größe  $\sigma_0^{(2)}$  [91,94]. Das im Experiment gemessene Absorptionsprofil (3.17) ergibt für den Absorptionsquerschnitt

$$\sigma^{(2)}(\omega) = S \frac{A + Q}{A_{21}} \frac{4\pi^2 a_0^2 (\hbar\omega)^2}{N_0 D E^2 \int_{-\infty}^{\infty} F^2(t) dt}, \quad (3.26)$$

woraus  $\sigma_0^{(2)}$  durch

$$\int_{-\infty}^{\infty} \sigma^{(2)}(\omega) d\omega = \sigma_0^{(2)} G^{(2)} \quad (3.27)$$

erhalten wird. Die Einheit von  $\sigma_0^{(2)}$  wird üblicherweise in  $\text{cm}^4$  angegeben. Für ein Gauß-Profil ergibt sich dann wegen (3.18) und (3.25) an der Stelle der Resonanz

$$\sigma^{(2)}(\omega = \omega_R) = G^{(2)} g(\omega = \omega_R) \sigma_0^{(2)} = G^{(2)} \sqrt{\frac{8\ln 2}{2\pi}} \frac{1}{\Delta\omega} \sigma_0^{(2)}. \quad (3.28)$$

Eine ebenfalls häufig verwendete Größe wird durch

$$\alpha \equiv \frac{\sigma_0^{(2)}}{\hbar\omega} \quad (3.29)$$

### 3. Grundlagen der laserinduzierten Fluoreszenzspektroskopie mit Zwei-Photonen-Anregung

definiert<sup>5</sup>, in den Einheiten  $\text{cm}^4/\text{J}$  oder  $\text{cm}^4/\text{erg}$ .

Weicht die spektrale Linienform des Lasers von einem Gaußprofil ab, so sind (3.24), (3.25) und (3.28) entsprechend zu modifizieren. Einfache Zusammenhänge zwischen dem Maximum einer Voigt-Verteilung und ihrer Halbwertsbreite lassen sich z. B. nach den analytischen Näherungen in [95] berechnen. Eine detaillierte Besprechung Voigt-verbreiteter Absorptionslinien wird in Kapitel 4 gegeben.

#### Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitte in neutralem Xenon

Es gibt nur eine sehr begrenzte Zahl numerischer Berechnungen von Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitten in neutralem Xenon. Eine große Schwierigkeit liegt in der Berechnung der für die Störungstheorie höherer Ordnung charakteristischen Summe über sämtliche Energieeigenzustände des betrachteten Atoms, wobei die Kontinuumszustände *a priori* nicht vernachlässigt werden dürfen [90]. Pindzola et al. [54] berechneten den Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitt für die Anregung des  $6p[1/2]_0$  Zustands aus dem Grundzustand ( $2 \times 249.6 \text{ nm}$ ). Die Wellenfunktionen wurden dabei in der Dirac-Fock-Näherung in Dipol-Längen- und Dipol-Geschwindigkeitsdarstellungen erzeugt und mit nicht-relativistischen Berechnungen basierend auf dem Hartree-Fock-Verfahren verglichen. Für die Angabe eines absoluten Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitts überdecken die Rechnungen einen Bereich von etwa zwei Größenordnungen. Als verlässlichster Wert wird die Mittelung aus den beiden Dirac-Fock-Darstellungen bezeichnet, dieser beträgt  $\sigma_0^{(2)} = 8.5 \times 10^{-36} \text{ cm}^4$ . Der geschätzte Fehler wird mit mindestens einem Faktor 3.5 angegeben<sup>6</sup>.

Experimentelle Bestimmungen des eben genannten sowie zweier weiterer  $J = 2$  Niveaus des  $6p$  Multipletts wurden von Gornik et al. [50], Raymond et al. [51], und von Kröll und Bischel [53] unternommen. Es ergeben sich teilweise gute Übereinstimmungen relativer Absorptionsquerschnitte jeweils zweier Zustände innerhalb der angegebenen Fehlergrenzen (Raymond et al.: Faktor 3, Gornik et al.: 10%, Kröll und Bischel: 30-50%). Die Zahlenwerte werden in Kapitel 4 diskutiert. Für höhere Multipletts liegen - nach bestem Wissen - bislang nur Messungen absoluter Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitte für die Anregung der Zustände  $7p[3/2]_2$  durch Goehlich et al. [30] und Niemi et al. [20], sowie  $6p'[3/2]_2$  durch Niemi et al. [21] vor. Relative Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitte der  $7p$  und  $6p'$  Multipletts wurden von Alekseev und Setser [55] veröffentlicht.

#### 3.1.3. Bemerkungen zur $jK$ -Kopplung und zur Notation der Energiezustände

Die Wahl des Kopplungsschemas der Elektronendrehimpulse ist im allgemeinen abhängig von der Stärke der Wechselwirkung der einzelnen Spin- und Bahndrehimpulse der jeweils betrachteten atomaren Spezies. Die Anwendung der Russel-Saunders- $(LS)$ -Kopplung setzt voraus, daß

---

<sup>5</sup>Pindzola et al. [54] geben ihre Zwei-Photonen-Übergangswahrscheinlichkeiten in dieser Größe an. Es ist zu beachten, daß bisweilen auch  $\alpha \equiv \sigma^{(2)}/(\hbar\omega)^2$  verwendet wird, siehe auch Saxon und Eichler [94].

<sup>6</sup>Es sind die Umrechnungen nach den Gleichungen (3.28) und (3.29) zu beachten. Zusätzlich werden in [54] Zahlenwerte für  $\sigma^{(2)}$  unter der Vorgabe fiktiver spektraler Laserlinienbreiten unter Anwendung von (3.28) genannt.

Racah	Paschen	Racah	Paschen	Racah	Paschen
$6p[5/2]_2$	$2p_9$	$6p'[3/2]_2$	$2p_3$	$7p[3/2]_2$	$3p_6$
$6p[3/2]_2$	$2p_6$	$6p'[1/2]_0$	$2p_1$	$7p[1/2]_0$	$3p_5$
$6p[1/2]_0$	$2p_5$	$7p[5/2]_2$	$3p_9$	$8p[1/2]_0$	$4p_5$

**Tabelle 3.1.:** Racah- und Paschen-Notation einiger  $np$  Zustände.

die Spin-Bahn-Wechselwirkung ( $H \propto \mathbf{s}_i \mathbf{l}_i$ ) für jedes einzelne ( $i$ -te) Elektron schwach ist gegenüber der Wechselwirkung der Bahndrehimpulse ( $H \propto \mathbf{l}_i \mathbf{j}$ ) und der Wechselwirkung der Spins ( $H \propto \mathbf{s}_i \mathbf{s}_j$ ) zweier beliebiger Elektronen ( $i, j$ ). Der umgekehrte Fall, bei dem die Spin-Bahn-Wechselwirkung dominiert, wird durch die  $jj$ -Kopplung beschrieben [96].

Allerdings ist keiner dieser Grenzfälle bei neutralem und (einfach) ionisiertem Xenon gegeben. Eine große Reinheit besitzen jedoch Zustände, die durch die Kopplung der Drehimpulse des Valenzelektrons an den Gesamtdrehimpuls der Elektronenhülle konstruiert werden. Es ist inzwischen weit verbreitet, für Xenon sowie einige andere Edelgase die sogenannte  $jK$  (seltener als  $jl$  bezeichnete) Kopplung zu verwenden (folgend der Darstellung nach Racah [97]):

Es werden zunächst alle Drehimpulse der Elektronenhülle nach der  $LS$ -Kopplung addiert. Der so erhaltene Gesamtdrehimpuls der Elektronenhülle  $\mathbf{j}_{core}$  wird mit dem Bahndrehimpuls des Valenzelektrons gekoppelt,

$$\mathbf{K} = \mathbf{j}_{core} + \mathbf{l}. \quad (3.30)$$

Der Gesamtdrehimpuls aller Elektronen folgt dann durch Addition des noch nicht berücksichtigten Spins des Valenzelektrons,

$$\mathbf{J} = \mathbf{K} + \mathbf{s}. \quad (3.31)$$

Diese Vorgehensweise beschreibt demnach den Fall, in dem die Wechselwirkung zwischen dem Gesamtdrehimpuls der Hüllenelektronen und dem Bahndrehimpuls des Valenzelektrons schwach ist gegenüber der Kopplung der gesamten Bahndrehimpulse  $\mathbf{L}$  und der gesamten Spindrehimpulse  $\mathbf{S}$  der Hüllenelektronen, jedoch die Wechselwirkung zwischen dem Spin- und dem Bahndrehimpulsanteil des Valenzelektrons dominiert. Das Auftreten von Dubletts energetisch eng benachbarter Energieniveaus  $K \pm 1/2$  ist somit charakteristisch für dieses Kopplungsschema, was sich im Fall neutralen Xenons durch die augenscheinliche Paarstruktur der  $nf$  Zustände zeigt.

Der Landé-Faktor für den Gesamtdrehimpuls  $\mathbf{J}$  in der  $jK$ -Kopplung lautet [97]

$$g = \frac{2J+1}{2K+1} + 2 \frac{K(K+1) + j(j+1) - l(l-1)}{(2K+1)(2J+1)} (g_j - 1) \quad (3.32)$$

wobei  $J, j, K, l$  jeweils die Quantenzahlen zu den Drehimpulsen  $\mathbf{J}, \mathbf{j}, \mathbf{K}, \mathbf{l}$ , und  $g_j$  den Landé-Faktor für den Gesamtdrehimpuls der Hüllenelektronen bedeuten.

Es ist weiterhin üblich, zur Identifikation der Energieniveaus die Racah-Notation in der Form  $nl[K]_J$  zu verwenden, worin  $n$  für die Hauptquantenzahl und  $l$  für den Bahndrehimpuls des Valenzelektrons stehen;  $K$  und  $J$  bezeichnen die Quantenzahlen zu den Drehimpulsen nach den obigen Definitionen. Im Fall neutralen Xenons treten für die Elektronenhüllen die Kon-

### 3. Grundlagen der laserinduzierten Fluoreszenzspektroskopie mit Zwei-Photonen-Anregung

figurationen ( ${}^2P_{3/2}$ ) und ( ${}^2P_{1/2}$ ) auf. Ihre ausführliche Bezeichnung wird meist nicht notiert, Zustände mit der Hüllkonfiguration ( ${}^2P_{1/2}$ ) werden durch ein Apostroph gekennzeichnet, so etwa  $6p'[1/2]_0$  anstelle der ausführlichen Notation ( ${}^2P_{1/2}$ ) $6p[1/2]_0$ .

Insbesondere in der älteren Literatur sind die Energiezustände neutralen Xenons teilweise in der *Paschen*-Notation klassifiziert. Sie besitzt die Bezeichnungsweise  $nl_x$ , worin  $x$  einen Nummerierungsindex darstellt. Die Nummerierung erfolgt bei  $2p_x$  und  $3p_x$  von hohen nach niedrigen Energiezuständen, wobei gestrichene Zustände in ihre jeweilige  $nl$  Gruppe eingegliedert sind. Die Notation ist vor allem für  $s, p, d$  Konfigurationen gebräuchlich, wird in dieser Arbeit jedoch lediglich in Kapitel 5.2 verwendet, um den Vergleich mit der dort zitierten Literatur zu erleichtern. In Tabelle 3.1 sind die Termbezeichnungen in Racah- und Paschen-Notation für einige Energieniveaus von Interesse gegenübergestellt.

#### 3.1.4. Auswahlregeln für Zwei-Photonen-Prozesse

Aus der Formel (3.19) für den Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitt ist sofort ersichtlich, daß der Anfangszustand  $|g\rangle$  und der Endzustand  $|f\rangle$  die gleiche Parität besitzen müssen, da nur die Matrixelemente einen Beitrag zur Summe über alle Eigenzustände liefern, in denen sich die Parität der Zustände  $|f\rangle$  und  $|m\rangle$  bzw.  $|g\rangle$  und  $|m\rangle$  unterscheiden. Für eine weitergehende Betrachtung ist es hilfreich, von dem Ausdruck [93, 96, 98]

$$\sigma_0^{(2)} \propto \omega_1 \omega_2 \left| \sum_m \frac{\langle f | \boldsymbol{\varepsilon}_1 \mathbf{r} | m \rangle \langle m | \boldsymbol{\varepsilon}_2 \mathbf{r} | g \rangle}{(\omega_m - \omega_g - \omega_1)} + \frac{\langle f | \boldsymbol{\varepsilon}_2 \mathbf{r} | m \rangle \langle m | \boldsymbol{\varepsilon}_1 \mathbf{r} | g \rangle}{(\omega_m - \omega_g - \omega_2)} \right|^2 \quad (3.33)$$

auszugehen; er beschreibt die Proportionalitäten des Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitts für den allgemeinen Fall der optischen Anregung durch zwei statistisch unabhängige Laserstrahlen der Frequenzen  $\omega_1$  und  $\omega_2$  und der Polarisationsvektoren  $\boldsymbol{\varepsilon}_1$  und  $\boldsymbol{\varepsilon}_2$  unter Vernachlässigung der natürlichen Linienbreiten der in den Matrixelementen enthaltenen Übergänge.

Die weiteren Auswahlregeln für Zwei-Photonen-Übergänge können aus dem Ausdruck (3.33) mit Hilfe der Gruppentheorie hergeleitet werden. Bonin und McIlrath [98] zeigen, daß der Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitt nach der Einführung sphärischer Tensoroperatoren  $D_{\mathcal{M}}^{(\mathcal{J})}$  anstelle des Operators  $\boldsymbol{\varepsilon} \mathbf{r}$  durch die Beziehung

$$\sigma_0^{(2)} \propto \left| \sum_m \sum_{\mathcal{J}=0}^2 \langle \gamma J_f || D^{(\mathcal{J})}(m) || \delta J_i \rangle (-1)^{J_f + \mathcal{J} + 2J_i} (2\mathcal{J} + 1)^{1/2} \times \sum_{\mu, \nu = \pm 1, 0} \sum_{\mathcal{M}} (-1)^{M_f} \begin{pmatrix} J_f & \mathcal{J} & J_i \\ -M_f & \mathcal{M} & M_i \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathcal{J} & 1 & 1 \\ -\mathcal{M} & \mu & \nu \end{pmatrix} \right|^2 \quad (3.34)$$

dargestellt werden kann. Durch Anwendung des Wigner-Eckart-Theorems treten die reduzierten Matrixelemente über  $D^{(\mathcal{J})}$  auf,  $\mathcal{J}$  gibt den Rang des Operators an, hier  $\mathcal{J} = 0, 1, 2$  ( $\mathcal{M} = -\mathcal{J}, \dots, \mathcal{J}$ ). Es bedeuten  $J_f$ ,  $J_i$  und  $M_f$ ,  $M_i$  die Quantenzahlen der Gesamtdrehimpulse und deren Projektionen in  $z$ -Richtung jeweils für den Anfangs- und den Endzustand,  $\gamma$  und  $\delta$  sind Quantenzahlen beliebiger weiterer Observablen. Die Indizes  $\mu$  und  $\nu$  kennzeichnen die Polarisation des ersten und des zweiten Photons, sie können die Werte  $+1$ ,  $-1$  und  $0$  (abhängig von betrachteter  $\sigma^+$ ,  $\sigma^-$  und  $\pi$  Polarisation) annehmen. Für die Wigner 3j-Symbole

Polarisation	
1. Photon, 2. Photon	Verbotene Übergänge
$\sigma^+, \sigma^-$	$\Delta M \neq 0$
$\sigma^+, \pi$	$\Delta J : 0 \rightarrow 0; \Delta M \neq -1$
$\sigma^-, \pi$	$\Delta J : 0 \rightarrow 0; \Delta M \neq 1$
$\pi, \pi$	$\Delta J : 0 \leftrightarrow 1; \Delta M \neq 0$
$\sigma^+, \sigma^+$	$\Delta J : 0 \leftrightarrow 1, 0 \rightarrow 0, 1/2 \rightarrow 1/2; \Delta M \neq -2$
$\sigma^-, \sigma^-$	$\Delta J : 0 \leftrightarrow 1, 0 \rightarrow 0, 1/2 \rightarrow 1/2; \Delta M \neq 2$

Zusätzliche Auswahlregeln für Photonen gleicher Frequenz	
verboten für alle Polarisationen:	$\Delta J : 0 \leftrightarrow 1;$
verboten für alle Polarisationen:	$ \Delta J = 1 ; \Delta M : 0 \rightarrow 0$

Allgemeine Auswahlregeln für erlaubte Übergänge	
alle Polarisationen	gleiche Parität
alle Polarisationen	$ \Delta J  \leq 2$

**Tabelle 3.2.:** Auswahlregeln für Zwei-Photonen erlaubte elektrische Dipolübergänge [98].

$\begin{pmatrix} J_1 & J_2 & J_3 \\ M_1 & M_2 & M_3 \end{pmatrix}$  gelten die Dreiecksregeln

$$J_1 - J_2 \leq J_3, \quad J_2 - J_3 \leq J_1, \quad J_3 - J_1 \leq J_2 \quad (3.35)$$

sowie

$$M_1 + M_2 + M_3 = 0, \quad J_1 + J_2 + J_3 = \text{ganzzahlig} \quad (3.36)$$

und die Symmetriebedingung

$$\begin{pmatrix} J_1 & J_2 & J_3 \\ M_1 & M_2 & M_3 \end{pmatrix} = (-1)^{J_1+J_2+J_3} \begin{pmatrix} J_1 & J_2 & J_3 \\ -M_1 & -M_2 & -M_3 \end{pmatrix}. \quad (3.37)$$

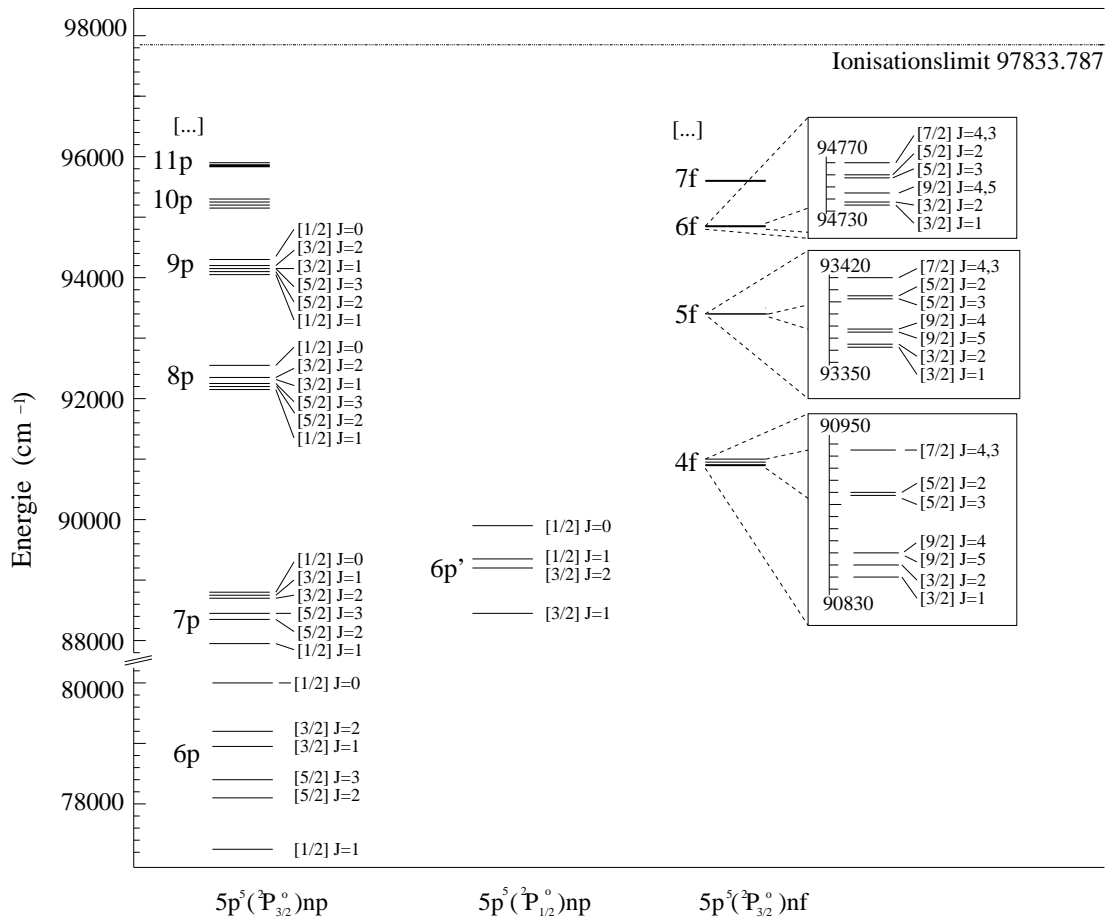
Aus Gleichung (3.34) folgt sofort durch Anwendung von (3.35) und (3.36)

$$\Delta J \equiv J_f - J_i \leq 2 \quad \text{erlaubt.} \quad (3.38)$$

Das in dieser Arbeit verwendete Lasersystem erzeugt linear polarisierte Laserstrahlung, somit ist der Fall der simultanen Absorption zweier  $\pi$ -Photonen der gleichen Frequenz von Bedeutung. Hierfür folgt aus (3.34) [98]

$$\begin{aligned} \sigma_0^{(2)} \propto & \left| \sum_m \sum_{\mathcal{J}=0}^2 \langle \gamma J_f || D^{(\mathcal{J})}(m) || \delta J_i \rangle (-1)^{\mathcal{J}+M_f} (2\mathcal{J}+1)^{1/2} \times \right. \\ & \left. \times \begin{pmatrix} J_f & \mathcal{J} & J_i \\ -M_f & 0 & M_i \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathcal{J} & 1 & 1 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \right|^2 \end{aligned} \quad (3.39)$$

### 3. Grundlagen der laserinduzierten Fluoreszenzspektroskopie mit Zwei-Photonen-Anregung



**Abbildung 3.2.:** Partielles Grotrian-Diagramm neutralen Xenons, nur Zustände gerader Parität.

Mit Hilfe der Beziehungen (3.39) und (3.41) folgt zunächst  $\mathcal{J} \neq 1$  sowie die weiteren Auswahlregeln

$$\Delta J : 0 \leftrightarrow 1 \quad \text{verboten} \quad (3.40)$$

$$\Delta M \neq 0 \quad \text{verboten.} \quad (3.41)$$

Basierend auf dem Ausdruck (3.41) lassen sich weitere Auswahlregeln ableiten (siehe [98]), die für die simultane Absorption zweier Photonen beliebiger Frequenz und Polarisation gelten; sie sind in Tabelle 3.2 zusammengefaßt.

Der Grundzustand neutralen Xenons besitzt die vollständige Bezeichnung  $5p^6 \ ^1S_0$  und ist von gerader Parität. Angeregte Zustände treten in den Hüllkonfigurationen ( $^2P_{3/2}$ ) und ( $^2P_{1/2}$ ) auf. Bei den weiteren Zuständen gerader Parität sind die Bahndrehimpulse des Valenzelektrons ungerade ( $l = 1, 3, \dots$ , d.h. entsprechen den Bezeichnungen  $p, f, \dots$ ). Unter Beachtung des Spins können folglich jeweils sechs  $np$ -Zustände mit der Hüllkonfiguration ( $^2P_{3/2}$ ) und vier  $np'$ -Zustände mit der Hüllkonfiguration ( $^2P_{1/2}$ ) gebildet werden, acht  $nf$ -Zustände mit der Hüllkonfiguration ( $^2P_{3/2}$ ) usw. Ein partielles Grotrian-Diagramm, von Zuständen gerader Parität ist in Abbildung 3.2 gezeigt. Da der Grundzustand den Gesamtdrehimpuls  $J = 0$  aufweist, ist nach den Auswahlregeln also nur die Anregung von Zuständen mit den Gesamtdrehimpulsen  $J = 0$  oder  $J = 2$  durch simultane Absorption zweier identischer Laserphotonen



linearer Polarisation erlaubt.

Eine unmittelbare Folge der Auswahlregeln ist die Tatsache, daß die Zwei-Photonen-Anregung aus dem Grundzustand nur zu Zuständen führen kann, die optisch nicht an den Grundzustand gekoppelt sind (d.h. eine direkte Ein-Photonen-Abregung auf den Grundzustand ist verboten; die Re-Population des Grundzustands durch optische Übergänge muß über mindestens einen weiteren Zwischenzustand erfolgen). Es treten nach der Zwei-Photonen-Anregung somit keine Übergänge auf, die unmittelbar einem *radiation trapping* mit dem Grundzustand unterliegen, d.h. Selbstabsorption (und Re-Emission) von Fluoreszenzphotonen durch Grundzustandsatome entlang der Detektionsrichtung.

## 3.2. Abregungsprozesse und Sättigungsphänomene

Die zeitaufgelöste Messung von TALIF-Signalen ist ein elementarer Bestandteil vieler plasma-diagnostischer Versuchsaufbauten [20–23, 26, 91], da mit ihrer Hilfe aus den gemessenen Abklingkurven der Fluoreszenz der Anteil der laserangeregten Atome bestimmt werden kann, der durch Stoßprozesse strahlungslos entvölkert wird und somit nicht zur detektierten Fluoreszenz beiträgt. Darüberhinaus können zeitaufgelöste TALIF-Messungen Hinweise auf Abweichungen von dem bislang betrachteten Drei-Niveau-Schema geben, etwa durch das Auftreten von Überlagerungen mehrerer exponentieller Abklingkurven. Neben strahlungsloser Deaktivierung angeregter Zustände treten bei Edelgasen bereits bei relativ niedrigen Laserpulsleistungsdichten konkurrierende Prozesse wie verstärkte spontane Emission oder (2+1)-resonante Photoionisation auf, welche zu einer Sättigung des Zwei-Photonen-Signals führen und keine quantitative Zuordnung von Signalintensitäten zu Teilchendichten im Rahmen des in Kapitel 3.1 beschriebenen Ratengleichungsmodells und von Gleichung (3.17) mehr ermöglichen.

### 3.2.1. Fluoreszenz- und Stoßabregungsraten

Die Entvölkerung angeregter atomarer Energiezustände kann entweder durch Emission von Strahlung (hier: spontane Emission) oder durch inelastische Stöße mit weiteren Atomen der gleichen oder unterschiedlicher Spezies geschehen. Die spontane Emission erfolgt vom laserangeregten Zustand auf energetisch niedrigere Zustände, wobei die erlaubten Übergänge durch die elektrischen Dipol-Auswahlregeln festgelegt sind. Die Wahrscheinlichkeit für einen optischen Übergang von einem Zustand  $|i\rangle$  auf einen Zustand  $|j\rangle$  wird durch die Übergangsraten  $A_{ij}$  beschrieben, die natürliche Lebensdauer eines angeregten Zustands  $|i\rangle$  ist durch

$$\tau_i = \frac{1}{A_i} = \frac{1}{\sum_{i>j} A_{ij}} \quad (3.42)$$

gegeben, wobei sich die Summe über alle von  $|i\rangle$  möglichen Fluoreszenzübergänge erstreckt. Die inverse Lebensdauer  $A_i$  wird dabei auch als Fluoreszenzrate bezeichnet.

Für die Erläuterungen zu Stoßabregungsprozessen in diesem Kapitel soll der ausgezeichneten Darstellung in [116] in sehr gekürzter Form gefolgt werden. In Gasen oder Plasmen höherer Drücke kann die strahlungslose Stoßabregung (auch strahlungslose Deaktivierung bzw. Stoßlöschung; im Englischen *collisional quenching* oder *collisional deactivation* genannt) ge-

### 3. Grundlagen der laserinduzierten Fluoreszenzspektroskopie mit Zwei-Photonen-Anregung

genüber der Abregung durch spontane Emission an Einfluß gewinnen. Im allgemeinen ist die Wahrscheinlichkeit eines inelastischen Stoßes abhängig von der Konfiguration der Elektronen, was dazu führt, daß sich die Stoßabregungskoeffizienten einer atomaren Spezies in den verschiedenen angeregten Zuständen bei Stößen mit einem Stoßpartner derselben Spezies unterscheiden, wie auch die Stoßabregungskoeffizienten eines einzelnen angeregten Zustands mit verschiedenen Stoßpartnern [20,31,32,55]. Als Stoßpartner in Gasen und Plasmen werden Atome im Grundzustand betrachtet. Inelastische Stoßprozesse können in eine Vielzahl verschiedener Prozesse unterschieden werden, zu denen neben dem Transfer von kinetischer Energie und Anregungsenergie der Stoßpartner auch Prozesse gezählt werden, bei denen ionisierte molekulare Zwischenprodukte entstehen, wie etwa die assoziative Ionisation [47–49] (siehe Kapitel 3.2.6). Die Theorie und die Behandlung der verschiedenen inelastischen Stoßprozeßarten ist sehr umfangreich [99–102] und soll hier nur in dem im Rahmen dieser Arbeit benötigten Umfang wiedergegeben werden.

Die Gesamtrate strahlungsloser Übergänge von einem angeregten Zustand  $|i\rangle$  auf beliebige weitere Zustände wird durch die Stoßabregungsrate  $Q_i$  beschrieben, sie kann in erster Näherung durch die Dichte der Stoßpartner  $N_q$ , den Stoßquerschnitt  $\sigma_i$  und die mittlere Relativgeschwindigkeit  $\langle v \rangle$  ausgedrückt werden [39,103,104]

$$Q_i = N_q \sigma_i \langle v \rangle, \quad (3.43)$$

wobei die Temperaturabhängigkeit des Stoßquerschnitts meist schwach ist [101,102] und daher nicht weiter beachtet wird. Es ist üblich, den Stoßabregungskoeffizienten durch

$$k_q = \sigma_i \langle v \rangle = \sigma_i \sqrt{\frac{8k_B T}{\pi \mu}} \quad (3.44)$$

zu definieren, wobei die mittlere Relativgeschwindigkeit durch ihren Wert in der Maxwell'schen Geschwindigkeitsverteilung ersetzt wurde, und  $T$  die Temperatur sowie  $\mu$  die reduzierte Masse der Stoßpartner und  $k_B$  die Boltzmann-Konstante bedeuten. Tragen verschiedene Teilchenspezies zur Stoßabregung bei, so sind ihre einzelnen Stoßabregungskoeffizienten zu addieren. In dieser Arbeit wird ausschließlich das sogenannte *self-quenching* betrachtet, d.h. die Stoßabregung eines angeregten Zustands durch Grundzustandsatome derselben atomaren Spezies ( $N_q \equiv N_0$ ).

Eine um  $t = 0$  zeitlich begrenzte, ideal zustands-selektive Anregung mit darauffolgender Abregung des angeregten Zustands durch spontane Emission und Stoßprozesse führt für hinreichend große Zeiten nach der Anregung auf den sehr einfachen Zusammenhang für die Dichte der Atome im Zustand  $|i\rangle$

$$\dot{N}_i(t) = -(A_i + Q_i)N_i(t). \quad (3.45)$$

Die auf einem bestimmten Fluoreszenzübergang mit der optischen Übergangsrate  $A_{ij}$  pro Volumen abgestrahlte Strahlungsleistung folgt zu

$$S(t) = \hbar \omega_{ij} \frac{A_{ij}}{A_i + Q_i} N_i(0) e^{-(A_i + Q_i)t} \quad (3.46)$$

und ist proportional zum Detektorsignal. Aus der exponentiellen Abklingkurve (3.46) läßt sich

in Abhängigkeit der Stoßpartnerdichte die effektive Lebensdauer

$$\tau_{\text{eff}} = \frac{1}{A_i + Q_i} \quad (3.47)$$

bestimmen. Die natürliche Lebensdauer  $\tau$  des Zustands  $|i\rangle$  läßt sich durch Extrapolation für den Druck  $p \rightarrow 0$  ermitteln. Die Auftragung der inversen effektiven Lebensdauer gegen den Druck (unter Verwendung des idealen Gasgesetzes  $p = N_0 k_B T$ )

$$\frac{1}{\tau_{\text{eff}}} = \frac{1}{\tau} + N_0 k_q = \frac{1}{\tau} + \frac{p k_q}{k_B T} \quad (3.48)$$

wird als Stern-Volmer Darstellung bezeichnet [39, 93].

Das Auftreten von Abweichungen von der einfach-exponentiellen Abregung (3.46) eines angeregten Zustands kann ein Indiz dafür sein, daß weitere Niveaus in den Prozeß involviert sind. Der Einfluß von Effekten die auf Kaskaden, *line blending* und inversem Stoßtransfer beruhen, wird in den folgenden Abschnitten beschrieben. Im allgemeinen verkomplizieren Abregungsstöße das auftretende Spektrum nach einer zustands-selektiven Anregung erheblich. Während bei geringen Drücken und damit vernachlässigbarer Stoßdeaktivierung nur Fluoreszenz bei den Wellenlängen der von dem angeregten Zustand ausgehenden optisch erlaubten Übergänge und ihrer weiteren Abregungskanäle zu erwarten ist, kann die Stoßabregung bei hohen Drücken durch *state-to-state collision transfer* zu einer signifikanten Besetzung von Zuständen führen, die nicht durch radiative Abregung besetzt werden [32].

Für angeregte Zustände der Edelgase existieren umfangreiche Studien der Stoßabregungskoeffizienten in Gasmischungen verschiedener Zusammensetzungen, sowie der natürlichen Lebensdauern unter Anwendung laserspektroskopischer Verfahren. In neutralem Xenon wurden die Stoßabregungskoeffizienten für zahlreiche Zustände der  $6p$ ,  $6p'$  und  $7p$  Multipletts durch Ein-Photonen-Anregung aus thermisch besetzten Niveaus in einer Gasentladung bestimmt [33], sowie ebenfalls in Mischungen in Neon und Argon [105]. Arbeiten, die auf Zwei-Photonen-Anregungen beruhen, umfassen insbesondere die Bestimmung von natürlichen Lebensdauern und Stoßabregungskoeffizienten von Xenon in Xenon [36, 107] und Xenon in Argon [31], sowie *state-to-state* Transferraten in Xenon, Argon und Krypton [32, 35, 37]. Es wurden ebenfalls Stoßabregungskoeffizienten angeregter Zustände von Xenon in  $O_2$  und  $N_2$  untersucht [20, 21].

Die experimentelle Bestimmung natürlicher (und effektiver) Lebensdauern umfassen ein beträchtliches Spektrum weiterer Methoden, beispielsweise den Hanle-Effekt [108, 109], magnetische Doppelresonanz [45, 110], verzögerte Koinzidenzen oder HDF (*high deflection frequency*)-Techniken. Viele dieser Methoden benutzen kurze gepulste Elektronenstrahlen als Anregungsmechanismus. Natürliche Lebensdauern einer breiten Anzahl von Zuständen in neutralem Xenon wurden von verschiedenen Autoren gemessen [38, 39, 43–45, 111]. Derartige Methoden sind in der Anregung allerdings nicht in dem Maß zustands-selektiv wie schmalbandige Laseranregungstechniken, was unter Umständen zur Beobachtung von Kaskaden führen kann [43].

### 3.2.2. Abregung mit Kaskaden und line blending

Das Auftreten der laserinduzierten Fluoreszenz in Form einer exponentiellen Abklingkurve (3.46) beschreibt den idealen Fall der ungestörten Abregung des angeregten Zustands durch

### 3. Grundlagen der laserinduzierten Fluoreszenzspektroskopie mit Zwei-Photonen-Anregung

ausschließlich spontane Emission. Es ist jedoch eine Reihe von Effekten möglich, die Abweichungen von einer einfach-exponentiellen Abregung hervorrufen können.

Die Separation der ausgewählten Fluoreszenzlinie in TALIF-Experimenten erfolgt gewöhnlich durch Monochromatoren oder - in plasmadiagnostischen Versuchsaufbauten häufiger - durch schmalbandige Interferenzfilter. Der Vorteil bei der Verwendung von Interferenzfiltern gründet auf ihrem hohen Transmissionsvermögen, zudem erfordert ihr Einsatz praktisch keinen Justieraufwand. Der Nachteil besteht in ihrer Festlegung auf eine bestimmte Wellenlänge, außerdem sind die spektralen Transmissionsbreiten, wie sie typischerweise mit Spektrometern erreicht werden, bei Interferenzfiltern in der Regel größer. Gewöhnlich liegt das Durchlaßvermögen von Interferenzfiltern außerhalb ihres Transmissionsbereichs bei weniger als 0.01%, wobei das Transmissionsvermögen für viele Filtertypen schnell gegen die maximale Blockung strebt<sup>7</sup>.

Die Abregung eines angeregten Zustands  $|i\rangle$  bis zum Erreichen des Grundzustands führt häufig über eine ganze Reihe weiterer angeregter Zustände, die ihrerseits durch spontane Emission oder konkurrierende Prozesse in energetisch niedrigere Anregungszustände übergehen. In der experimentellen Praxis kann es vorkommen, daß die Wellenlänge einer Kaskadenabregung aufgrund ihrer spektralen Nähe zur detektierten Fluoreszenzlinie nicht völlig durch den verwendeten Interferenzfilter unterdrückt werden kann. Daraus resultiert eine Form des *line blendings*, d. h. der unbeabsichtigten Detektion von Fluoreszenzphotonen, die nicht dem ausgewählten Fluoreszenzübergang des Drei-Niveau-Schemas entsprechen. Abbildung 3.3 *links* zeigt eine mögliche Störung durch *line blending*, bei der zwei spektral benachbarte Fluoreszenzlinien einerseits direkt durch Abregung des laserangeregten Zustands, andererseits innerhalb der Abregungskette auftreten. Mit den im Abbildungstext benannten Übergangsraten können die Besetzungszahlen der Zustände  $|2\rangle$  und  $|i\rangle$  unter Ausblendung weiterer Re-Populationsvorgänge durch

$$\begin{aligned}\dot{N}_2(t) &= -(A_{20} + A_{21} + A_{2i})N_2(t) \\ \dot{N}_i(t) &= -(A_{ik} + A_{i0})N_i(t) + A_{2i}N_2(t)\end{aligned}\quad (3.49)$$

beschrieben werden. Die Lösung lautet

$$N_2(t) = N_2(0)e^{-t/\tau_2}\quad (3.50)$$

und

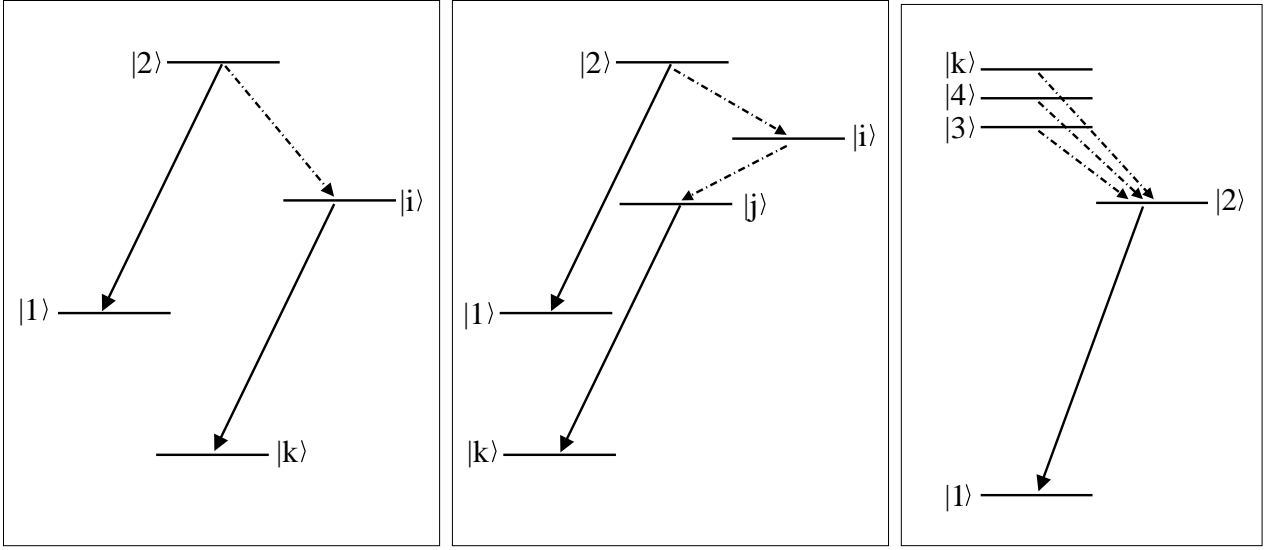
$$N_i(t) = N_2(0)A_{2i}\frac{\tau_2\tau_i}{\tau_2 - \tau_i} [e^{-t/\tau_2} - e^{-t/\tau_i}]\quad (3.51)$$

wobei aus Gründen der Übersichtlichkeit die Lebensdauern  $\tau_2 = (A_{20} + A_{21} + A_{2i})^{-1}$  und  $\tau_i = (A_{i0} + A_{ik})^{-1}$  eingeführt wurden. Die detektierte Kurve folgt nun der (nach dem Transmissionsvermögen des Filters bei den entsprechenden Wellenlängen) gewichteten Summe von  $N_2(t)$  und  $N_i(t)$ . Die detektierte Abklingkurve ist eine Überlagerung zweier Exponentialfunktionen, von denen jede für sich den zeitlichen Verlauf der Zustände  $|2\rangle$  und  $|i\rangle$  beschreibt.

Der nicht wesentlich kompliziertere Fall einer Abregung über ein weiteres Zwischenniveau

---

<sup>7</sup>für viele Filtertypen werden 1% Transmission (normiert auf das Transmissionsmaximum) bei 2.2 bis 3.5 Halbwertsbreiten des Durchlaßbereichs erreicht [112].



**Abbildung 3.3.:** Verschiedene Abregungsschemen, die zu Abweichungen von der erwarteten einfachen exponentiellen Abklingkurve führen können. Links: Ausschnitt aus einer einfachen Abregungskette, ausgehend von dem laserangeregten Zustand  $|2\rangle$ . Der Übergang  $|2\rangle \rightarrow |1\rangle$  sei der detektierte Fluoreszenzübergang des TALIF-Schemas,  $|2\rangle \rightarrow |i\rangle$  ein beliebiger weiterer (nicht-detektierter) Fluoreszenzübergang, und  $|i\rangle \rightarrow |k\rangle$  ein Übergang, der von dem verwendeten Transmissionsfilter nicht völlig unterdrückt werden kann.  $A_{21}$ ,  $A_{2i}$ ,  $A_{ik}$  die jeweiligen Übergangsraten, sowie  $A_{20}$  und  $A_{i0}$  die Summe aller übrigen Übergangsraten ausgehend von den jeweiligen oberen Zuständen. Mitte: Wie die linke Abbildung, jedoch mit einem weiteren Zwischenzustand in der Abregungskette. Rechts: Zur Betrachtung von Kaskaden aus höheren Zuständen. Es sei  $|2\rangle \rightarrow |1\rangle$  der beobachtete Übergang. Neben der Abregung durch spontane Emission wird der Zustand  $|2\rangle$  durch Abregung höherer Zustände mit den Übergangsraten  $A_{k2}$  bevölkert.

erfordert lediglich eine weitere Gleichung, so daß anstelle des Systems (3.49) die Gleichungen

$$\dot{N}_2(t) = -(A_{20} + A_{21} + A_{2i})N_2(t) \quad (3.52)$$

$$\dot{N}_i(t) = -(A_{ij} + A_{i0})N_i(t) + A_{2i}N_2(t) \quad (3.53)$$

$$\dot{N}_j(t) = -(A_{jk} + A_{j0})N_j(t) + A_{ij}N_i(t) \quad (3.54)$$

$$(3.55)$$

zu lösen sind. Für die Besetzungszahlen der Zustände  $N_2(t)$  und  $N_j(t)$  folgt

$$N_2(t) = N_2(0)e^{-t/\tau_2} \quad (3.56)$$

und

$$N_j(t) = N_2(0)A_{2i}A_{ij}\tau_2\tau_i\tau_j \times \frac{[\tau_i(\tau_j - \tau_2)e^{-t/\tau_i} + \tau_2(\tau_i - \tau_j)e^{-t/\tau_2} + \tau_j(\tau_2 - \tau_i)e^{-t/\tau_j}]}{(\tau_i - \tau_2)(\tau_j - \tau_2)(\tau_i - \tau_j)} \quad (3.57)$$

mit den Lebensdauern  $\tau_2$ ,  $\tau_i$  und  $\tau_j$  aller in die Kaskade involvierten Niveaus. Häufig kann der Zustand  $|j\rangle$  auch noch über weitere Zerfallskanäle bevölkert werden, was (im Fall zweier

### 3. Grundlagen der laserinduzierten Fluoreszenzspektroskopie mit Zwei-Photonen-Anregung

Zwischenzustände) durch Addition weiterer Terme berücksichtigt werden muß.

Neben diesen Formen des *line blendings* ist in Abbildung 3.2 ein weiterer, bei Lebensdauer-messungen häufig analysierter Fall gezeigt, in dem Kaskadenprozesse involviert sind. Es wird dabei die Fluoreszenz  $|2\rangle \rightarrow |1\rangle$  beobachtet, wobei der Zustand  $|2\rangle$  durch Abregung energetisch höherer Zustände nachbesetzt wird. Derartige Phänomene können auftreten, wenn der Anregungsmechanismus nicht vollständig zustands-selektiv ist, wie es etwa bei der Elektronenstoßanregung der Fall sein kann, oder wenn Rekombinationsprozesse nach zuvor erfolgter (2+1)-Photoionisation bevorzugt eine solche Kaskade durchlaufen. Für die Nachbesetzung des Zustands  $|2\rangle$  aus höheren Zuständen  $|3\rangle, \dots, |k\rangle$  ergibt sich das Gleichungssystem

$$\begin{aligned} \dot{N}_2(t) &= -A_{20}N_2(t) + \sum_{i>2} A_{i2}N_i(t) \\ \dot{N}_3(t) &= -(A_{30} + A_{32})N_3(t) \\ \dot{N}_4(t) &= -(A_{40} + A_{42})N_4(t) \\ &\dots \\ \dot{N}_k(t) &= -(A_{k0} + A_{k2})N_k(t) \end{aligned} \quad (3.58)$$

Die Lösung für die Besetzungszahl  $N_2(t)$  lautet

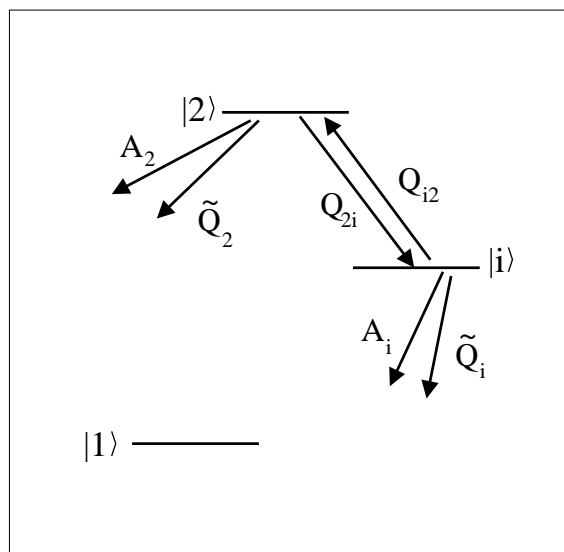
$$N_2(t) = \left[ N_2(0) - \sum_{i>2}^k N_i(0) A_{i2} \frac{\tau_i \tau_2}{\tau_i - \tau_2} \right] \times e^{-t/\tau_2} + \sum_{i>2}^k N_i(0) A_{i2} \frac{\tau_i \tau_2}{\tau_i - \tau_2} \times e^{-t/\tau_i} \quad (3.59)$$

Die letzte Gleichung liefert für den Fall einer Kaskade ausgehend von einem einzelnen energetisch höheren Niveau den von Jimenez und Campos [113] verwendeten Ausdruck zur Analyse von mehrkomponentigen Abklingkurven. Offensichtlich sind auch für diesen Fall der Nachbesetzung von Zuständen durch Kaskaden die auftretenden mehrkomponentigen Abklingkurven gewichtete Überlagerungen von Exponentialfunktionen, deren Abklingkonstanten den radiativen Übergangsraten jeweils *eines* Übergangs entsprechen. Dies ist eine wesentliche Unterscheidung zur Kinetik mit inversem Stoßtransfer, bei der sich die Abklingkonstanten im allgemeinen als nicht-lineare Funktionen *mehrerer* Übergangsraten darstellen.

Aus Gründen der Übersichtlichkeit wurden in den obigen Überlegungen nur radiative Übergangsraten betrachtet. Die Stoßabregung kann, solange kein inverser Stoßtransfer auftritt, durch zusätzliche Terme in  $Q_{ij}$  berücksichtigt werden, wodurch effektive Lebensdauern  $\tau_{\text{eff},i} = (A_i + Q_i)^{-1}$  eingeführt werden. Die zugehörigen Stoßdeaktivierungskoeffizienten wurden in Studien einiger Forschungsgruppen zum *state-to-state-collision transfer* von neutralem Xenon in Xenon für Übergänge, ausgehend von den Zuständen der  $6p$ ,  $6p'$  und  $7p$  Multipletts tabelliert, allerdings sind derartige Mechanismen experimentell sehr anspruchsvoll zu untersuchen und ihre Resultate teilweise mit erheblichen Unsicherheiten behaftet [32, 35].

#### 3.2.3. Prozesse mit inversem Stoßtransfer

Neben Abregungsprozessen, bei denen der obere Zustand des beobachteten Fluoreszenzkanals durch Kaskaden ausgehend von höheren Energieniveaus nachträglich bevölkert wird, oder Beiträgen durch *line blending*, resultierend aus Übergängen zwischen Energieniveaus, deren Fluor-



**Abbildung 3.4.:** Abregung eines angeregten Zustands  $|2\rangle$ , der sich in einem Stoßgleichgewicht (detailed balance) mit einem weiteren Zustand  $|i\rangle$  befindet.  $|2\rangle \rightarrow |1\rangle$  ist der beobachtete Fluoreszenzübergang.  $A_i$  und  $A_2$  bezeichnen die Raten für die Entvölkerung der Niveaus  $|i\rangle$  und  $|2\rangle$  durch Fluoreszenzemission,  $Q_{i2}$  und  $Q_{2i}$  die Stoßdeaktivierungsraten für Stöße  $|i\rangle \rightarrow |2\rangle$  bzw.  $|2\rangle \rightarrow |i\rangle$  sowie  $\tilde{Q}_i$  und  $\tilde{Q}_2$  jeweils die Stoßdeaktivierungsraten aller weiteren Stoßprozesse. Darstellung nach Bruce et al. [31].

reszenz sich nicht vollständig durch Monochromatoren oder Interferenzfilter beseitigen läßt, erfordern Prozesse, bei denen ein Stoßgleichgewicht zwischen zwei benachbarten Energieniveaus auftritt, eine eigenständige Behandlung. Abbildung 3.4 verdeutlicht die konkurrierenden Mechanismen und benennt die auftretenden Übergangsraten. In der Darstellung von Bruce et al. [31] werden die Ratengleichungen für die Besetzungsdichten  $N_1(t)$  und  $N_2(t)$

$$\begin{aligned}\dot{N}_2(t) &= Q_{i2}N_i(t) - (A_2 + \tilde{Q}_2 + Q_{2i})N_2(t) \\ \dot{N}_i(t) &= Q_{2i}N_2(t) - (A_i + \tilde{Q}_i + Q_{i2})N_i(t)\end{aligned}\quad (3.60)$$

mit den folgend definierten Gesamtabregungsraten

$$\begin{aligned}b_2 &\equiv A_2 + \tilde{Q}_2 + Q_{2i} \\ b_i &\equiv A_i + \tilde{Q}_i + Q_{i2}\end{aligned}\quad (3.61)$$

durch die Ausdrücke

$$N_2(t) = \frac{N_2(0)}{\lambda_+ - \lambda_-} \{ [\lambda_+ - b_i] e^{-\lambda_+ t} - [\lambda_- - b_i] e^{-\lambda_- t} \} \quad (3.62)$$

und für den durch Stoßtransfer gekoppelten Zustand

$$N_i(t) = \frac{N_i(0)Q_{2i}}{\lambda_+ - \lambda_-} [e^{-\lambda_- t} - e^{-\lambda_+ t}] \quad (3.63)$$

### 3. Grundlagen der laserinduzierten Fluoreszenzspektroskopie mit Zwei-Photonen-Anregung

mit den Komponenten

$$\lambda_{\pm} = \frac{1}{2}(b_2 + b_i) \pm \frac{1}{2}\sqrt{(b_2 - b_i)^2 + 4Q_{i2}Q_{2i}}. \quad (3.64)$$

gelöst.

Beide Abklingkurven (3.62) und (3.63) stellen Überlagerungen aus zwei Exponentialfunktionen dar, deren Parameter  $\lambda_{\pm}$  offensichtlich nichtlineare Funktionen der Übergangsraten sind. Lediglich für  $p \rightarrow 0$  streben  $\lambda_{\pm}$  gegen die inversen natürlichen Lebensdauern der beteiligten Zustände.

Zur Ableitung der Übergangsraten aus der Druckvariation der Abklingkurve (3.61) werden das Amplitudenverhältnis der darin enthaltenen überlagerten Exponentialfunktionen sowie  $\lambda_{\pm} = \lambda_{\pm}(p)$  experimentell bestimmt. Unter Annahme eines Stoßgleichgewichts (*detailed balance*) zwischen den Zuständen  $|2\rangle$  und  $|i\rangle$

$$\frac{Q_{i2}}{Q_{2i}} = \frac{g_2}{g_i} e^{-\Delta E_{2i}/k_B T}, \quad (3.65)$$

worin  $\Delta E_{2i}$  die Energiedifferenz zwischen den Zuständen  $|2\rangle$  und  $|i\rangle$ , und  $g_2$  bzw.  $g_i$  ihre jeweiligen Entartungen bedeuten, können schließlich die Terme  $A_2 + \tilde{Q}_2$ ,  $A_i + \tilde{Q}_i$  und  $Q_{i2}$ ,  $Q_{2i}$  eindeutig bestimmt werden, woraus mit Stern-Volmer Darstellungen die Deaktivierungskonstanten  $\tilde{k}_2$ ,  $\tilde{k}_i$  und durch Extrapolation die Lebensdauern der beteiligten Zustände folgen, und insbesondere die *state-to-state* Übergangskoeffizienten  $k_{21}$ ,  $k_{12}$ .

Bruce et al. [31] verwendeten dieses Modell zur Deutung mehrkomponentiger Zerfallskurven des  $6p[1/2]_0$  Zustands neutralen Xenons in Argon, wobei ein Stoßgleichgewicht mit dem energetisch eng benachbarten Zustand  $5d[1/2]_1$  neutralen Xenons auftritt. Der energetische Abstand beider Zustände beträgt  $132 \text{ cm}^{-1}$ . Whitehead et al [32] beobachteten Stoßtransfer zwischen zwei  $5p$  Zuständen in neutralem Krypton, die um  $13 \text{ cm}^{-1}$  getrennt sind. Auch der Austausch zwischen drei Energieniveaus wurde untersucht [105].

#### 3.2.4. Mehr-Photonen-Photoionisation

Zur Berechnung der laserinduzierten Fluoreszenzintensität wurden in den Ratengleichungen (3.9), (3.10) nur die Terme der Zwei-Photonen-Anregung und der Abregung durch spontane Emission bzw. der strahlungslosen Stoßabregung berücksichtigt. Bei hinreichend hohen Laserintensitäten kann, während des Laserpulses, die Entvölkerung des laserangeregten Zustands  $|2\rangle$  durch Absorption eines dritten Laserphotons, welches zur Ionisation des durch Zwei-Photonen-Absorption angeregten Zustands führt, nicht mehr vernachlässigt werden. Da die erzeugten Ionen nicht mehr zur spontanen Emission beitragen, beschreibt dieser Vorgang eine Sättigung der laserinduzierten Fluoreszenz, worunter hier die Abweichung von der quadratischen Abhängigkeit des Fluoreszenzsignals von der Laserpulsenergie  $S \propto E^2$  verstanden werden soll. Die Ionisation der durch Zwei-Photonen-Übergänge angeregten Zustände durch Absorption eines dritten Laserphotons stellt allerdings nur eine Möglichkeit dar, eine Sättigung der laserinduzierten Fluoreszenz hervorzurufen; ein weiterer, insbesondere bei Edelgasen wichtiger Mechanismus, der in den Ratengleichungen (3.9), (3.10) nicht enthalten ist, besteht im Auftreten der richtungsabhängigen verstärkten spontanen Emission, die im nachfolgenden Kapitel



### 3.2. Abregungsprozesse und Sättigungsphänomene

	Xe I 6p [1/2] <sub>0</sub>	Xe I 6p [3/2] <sub>2</sub>	O I <sup>3</sup> P <sub>2</sub>
Bamford et al [91]			0.28-0.71
Kröll und Bischel [53]	4.3 ± 0.7 <sup>a</sup>	3.7 ± 0.7 <sup>a</sup>	
Kröll und Bischel [53]	1.9 ± 0.7 <sup>b</sup>	1.8 ± 0.5 <sup>b</sup>	

**Tabelle 3.3.:** Photoionisationsquerschnitte für einige angeregte Zustände in Xe I und O I (in 10<sup>-18</sup> cm<sup>2</sup>).

<sup>a</sup> bei 248 nm

<sup>b</sup> bei 193 nm, Anregung durch separaten XeCl-Excimerlaser

erörtert wird.

In diesem Abschnitt sollen zunächst die um die Terme der resonanten (2+1) Photoionisation erweiterten Ratengleichungen erörtert werden. Die Übergangsrate vom laserangeregten Zustand |2⟩ ins Kontinuum kann durch den Ausdruck  $\sigma_{pi}\Phi$  beschrieben werden, worin  $\sigma_{pi}$  den Photoionisations-Querschnitt (in cm<sup>2</sup>) des angeregten Zustands bedeutet. Die Ratengleichungen lauten [91]

$$\begin{aligned}
 \dot{N}_0(r, z, t) &= -\sigma^{(2)}\Phi^2 N_0(r, z, t) \\
 \dot{N}_2(r, z, t) &= \sigma^{(2)}\Phi^2 N_0(r, z, t) - (A + Q)N_2(r, z, t) - \sigma_{pi}\Phi(r, z, t)N_2(r, z, t) \\
 \dot{N}_+(r, z, t) &= \sigma_{pi}\Phi(r, z, t)N_2(r, z, t),
 \end{aligned} \tag{3.66}$$

wobei gegenüber den bisher betrachteten Ratengleichungen noch die Produktionsrate  $\dot{N}_+(r, z, t)$  der Ionen durch (2+1) resonante Photoionisation als dritte Gleichung ergänzt ist.

Die Lösung dieser Gleichungen erfolgt wie zuvor; für die Besetzung des Zustands |2⟩ zur Zeit  $t$  ergibt sich [91]

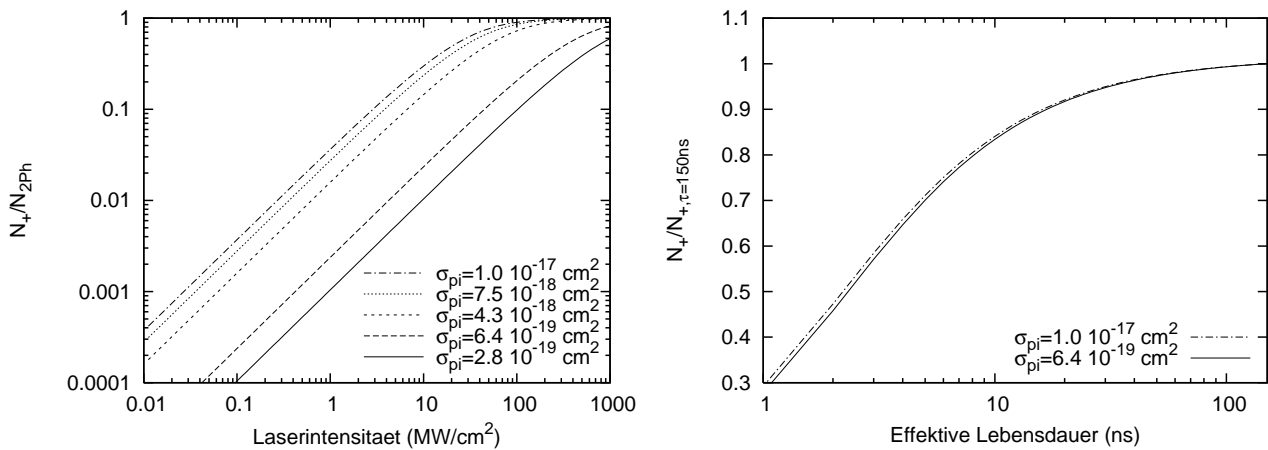
$$\begin{aligned}
 N_2(r, z, t) &= \sigma^{(2)}N_0 e^{-(A+Q)t + \sigma_{pi}\Phi(r, z, t)} \\
 &\quad \times \int_{-\infty}^t \Phi^2(r, z, t') e^{(A+Q)t' + \sigma_{pi}\Phi(r, z, t') - \sigma^{(2)}\Omega(r, z, t')} dt'
 \end{aligned} \tag{3.67}$$

und für die Anzahl der bis zur Zeit  $t$  erzeugten Ionen

$$\begin{aligned}
 N_+(r, z, t) &= \sigma_{pi} \int_{-\infty}^t \Phi(r, z, t') N_2(r, z, t') dt' = \\
 &= \sigma^{(2)}\sigma_{pi}N_0 \int_{-\infty}^t e^{-(A+Q)t' + \sigma_{pi}\Phi(r, z, t')} \int_{-\infty}^{t'} \Phi^2(r, z, t'') e^{(A+Q)t'' + \sigma_{pi}\Phi(r, z, t'') - \sigma^{(2)}\Omega(r, z, t'')} dt'' dt'
 \end{aligned} \tag{3.68}$$

Zur Abschätzung des Einflusses der Photoionisation in Abhängigkeit der Leistungsdichten des Laserpulses wurde in Abbildung 3.5 die Anzahldichte der durch Photoionisation entlang der Strahlachse erzeugten Ionen  $N_+(r = 0, z, t \rightarrow \infty)$  berechnet und mit der Anzahldichte der über den gesamten Zeitraum induzierten Zwei-Photonen-Übergänge  $N_{2Ph} \equiv N_0 \int_{-\infty}^t \sigma^{(2)}\Phi^2(r =$

### 3. Grundlagen der laserinduzierten Fluoreszenzspektroskopie mit Zwei-Photonen-Anregung



**Abbildung 3.5.:** Links: Verhältnis aus (2+1)-ionisierten- und Zwei-Photonen-angeregten Spezies in Abhängigkeit der Laserintensität für  $(A + Q)^{-1} = 30 \text{ ns}$ . Den Rechnungen liegt ein zeitlich gaußverteilt Profil der Laserpulse zugrunde. Die Anregungswelle beträgt  $2 \times 249 \text{ nm}$  ( $6p [1/2]_0$  Resonanz). Die Auftragung erfolgte in mittleren Leistungsdichten  $E/\pi a_0^2 \tau_p$ . Rechts: Zum Einfluß der effektiven Lebensdauer auf die Berechnung von  $N_+$ . Die Normierung bezieht sich auf die Zahl der photoionisierten Atome bei einer effektiven Lebensdauer des angeregten Zustands von 150 ns.

$0, z, t') dt'$  für  $t \rightarrow \infty$  skaliert. Die räumlichen und zeitlichen Profile sind wie in den Gleichungen (3.2)-(3.4) definiert,  $F(t)$  entspricht einer normierten Gaußfunktion mit der Halbwertsbreite von 4.9 ns.

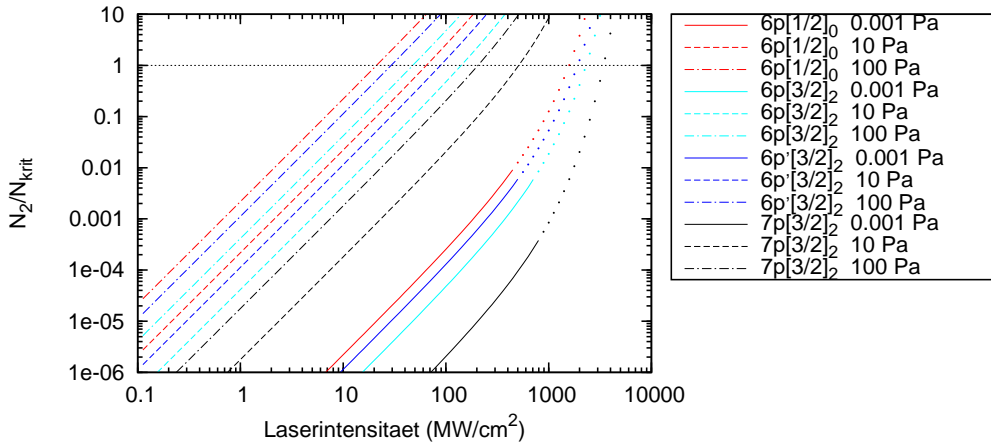
Das Verhältnis  $N_+/N_{2Ph}$  ist im Rahmen der Näherung  $e^{-\sigma^{(2)}\Omega(r,z,t)} \approx 1$  unabhängig vom Zwei-Photonen-Wirkungsquerschnitt  $\sigma^{(2)}$ , damit gehen Linienform und spektrale Breite des Lasers nicht mehr explizit in die Rechnung mit ein, wobei der Photoionisationsquerschnitt als konstant über die spektrale Breite des Lasers angenommen darf. Die Photoionisationsquerschnitte einiger Spezies sind in Tabelle 3.3 gegeben. In Abbildung 3.5 links erfolgt die Berechnung für fünf verschiedene Photoionisationsquerschnitte<sup>8</sup> (unter Verwendung der Werte aus Tabelle 3.3) bei einer effektiven Lebensdauer  $(A + Q)^{-1} = 30 \text{ ns}$ . Die effektive Lebensdauer hat allerdings nur einen schwachen Einfluß auf die relative Zahl photoionisierter Atome (Abbildung 3.5 rechts). Für hinreichend kleine Laserintensitäten können zur Abschätzung des photoionisierten Anteils und für die Entleerung des Grundzustands ebenfalls die Ausdrücke

$$\frac{N_+}{N_2} = \frac{\sigma_{pi} I \tau_p}{\hbar \omega} \quad (3.69)$$

und

$$\frac{N_2}{N_0} = \frac{\sigma^{(2)} I^2 \tau_p}{(\hbar \omega)^2} \quad (3.70)$$

<sup>8</sup>Da die Photonenflußdichte  $\Phi = I/\hbar\omega$  als Produkt mit dem Photoionisationsquerschnitt in den jeweiligen Exponenten auftritt, gibt Abbildung 3.5 strenggenommen nur den hier berechneten Fall der Anregung mit Laserphotonen der Wellenlänge  $2 \times 249 \text{ nm}$  wieder. Die in dieser Arbeit relevanten Anregungswellenlängen umspannen jedoch einen Bereich lediglich zwischen  $2 \times 210$  bis  $2 \times 250 \text{ nm}$  und erfordern damit für verschiedene Wellenlängen nur eine kleine Änderung der Skalierung der Abszisse.



**Abbildung 3.6.:** Besetzungsdichten im Zentrum des anregenden Laserstrahls  $N_2(r=0, z=0, t=0)$  in Einheiten der Schwellwertdichte  $N_{krit}$  für verschiedene angeregte Zustände unter Variation der Teilchendichten (Drücke) bei  $T=300\text{ K}$ ,  $L=1\text{ cm}$ . Es werden die Übergänge mit den jeweils größten branching ratios betrachtet;  $6p[1/2]_0$  bei  $828\text{ nm}$ ;  $6p[3/2]_2$  bei  $823\text{ nm}$ ;  $6p'[3/2]_2$  bei  $834\text{ nm}$ ;  $7p[3/2]_2$  bei  $462\text{ nm}$ . Die benötigten branching ratios stammen aus Horiguchi et al. [33], die Zwei-Photonen Absorptionsquerschnitte/ $2+1$  Photoionisationsquerschnitte aus Kröll und Bischel [53], für Lebensdauern und Stoßdeaktivierungsraten wurden eigene Werte (Kapitel 4) verwendet. Die angenommene spektrale Halbwertsbreite des Absorptionsprofils ist  $0.4\text{ cm}^{-1}$  (gaußförmig). Die Entleerung des Grundzustands übersteigt bei Drücken von  $0.001\text{ Pa}$  einen Wert von  $10\%$  der Gesamteilchendichte, weshalb aufgrund der Ungültigkeit der Ratengleichungen die berechneten Verhältnisse in diesem Regime keine Aussagekraft besitzen (gepunkteter Bereich).

herangezogen werden [91].

### 3.2.5. Verstärkte spontane Emission (ASE)

Nach der laserinduzierten Anregung kann eine Besetzungsinversion zwischen dem angeregten Zustand und niedrigeren, thermisch gering besetzten Niveaus vorliegen, die direkt durch erlaubte Fluoreszenzübergänge (d.h. spontane Emission) bevölkert werden können. Wird dabei eine bestimmte Besetzungsdichte des laserangeregten Zustands überschritten, kann sogenannte verstärkte spontane Emission (*amplified spontaneous Emission*, ASE) auftreten. Der Schwellwert für das Einsetzen von ASE kann aus der Bedingung abgeleitet werden, daß die Produktionsrate von Photonen eines Fluoreszenzübergangs (charakterisiert durch die Übergangsrate  $A_{21}$  und die Dichte der laserangeregten Atome) die Rate der aus dem Gebiet abwandernden Photonen übertreffen muß. Es ergibt sich als kritische Grenzdichte [115, 116]

$$N_{krit} \geq \frac{8\pi}{\lambda^2 A_{21} L} \left( \frac{\sqrt{\pi} \Delta\omega_D}{2\sqrt{\ln 2}} \right) \quad (3.71)$$

oberhalb der ASE auftritt, worin  $L$  die effektive Länge des Anregungsvolumens und jeweils  $\lambda$  die Wellenlänge,  $A_{21}$  die optische Übergangsrate und  $\Delta\omega_D$  die Dopplerbreite des Fluores-

zenzübergangs bezeichnen.

Kritische Leistungsdichten der anregenden Laserstrahlung können mit Hilfe von Ausdruck (3.71) (grob) abgeschätzt werden; Abbildung 3.6 zeigt das Verhältnis zwischen der Besetzungsdichte einiger ausgewählter Zustände  $N_2(r = 0, z = 0, t = 0)$  und der Schwellwertdichte  $N_{\text{krit}}$ . Bei hinreichend hohen Besetzungsdichten  $N_2$  kann die Bedingung (3.71) für mehrere Fluoreszenzübergänge erfüllt sein. Die Berechnung unterliegt zusätzlich der Annahme, daß eine relevante Kleinsignalverstärkung erst bei Verstärkungskoeffizienten  $G > 30$  auftritt [114], wodurch für die Schwellwertdichte

$$N_{\text{krit}} \geq 7.5 \times 10^2 \frac{\Delta\omega_D}{\lambda^2 A_{21} L} \quad (3.72)$$

folgt [116].

Die Abstrahlung des ASE-Anteils erfolgt bevorzugt in und entgegen der Ausbreitungsrichtung des anregenden Laserstrahls; im Experiment können die Grenzbedingungen für das Auftreten von ASE durch Verwendung eines zusätzlichen Detektors in Richtung des Laserstrahls bei Blockung der Laserwellenlänge bestimmt werden [32]. Für die Messung von Teilchendichten ist das Auftreten von ASE wenn möglich zu vermeiden, da die quantitative Behandlung weitere Zusatzterme in den Ratengleichungen erfordert. Aufgrund ihrer kleineren Dopplerbreiten neigen schwere Spezies bei vergleichbaren Anregungsbedingungen und Übergangsraten stärker zu ASE als leichte. In neutralem Xenon wurde ASE für eine Vielzahl von Zuständen von Miller [46] beschrieben. Aufgrund des schnellen Abbaus von Inversionsdichten durch stimulierte Prozesse eignet sich ASE zudem als Mechanismus zur Besetzung von Zuständen, die durch Zwei-Photonen-Anregung nicht anregbar sind [117].

### 3.2.6. Assoziative Ionisation und Dissoziative Rekombination

Bei der Erzeugung hochangeregter Zustände in neutralem Xenon können Phänomene wie die assoziative Ionisation gefolgt von dissoziativer Rekombination an Wichtigkeit gewinnen. Formuliert für neutrales Xenon bedeutet assoziative Ionisation einen Prozeß der Form [49]



d.h. die Erzeugung eines  $\text{Xe}_2^+$  Dimermoleküls als Kollisionsprodukt (laser-)angeregter Atome  $\text{Xe}^*(n)$  mit der Grundzustandsspezies  $\text{Xe}(^1S_0)$ , worin  $n$  stellvertretend für alle den jeweiligen Zustand beschreibenden Quantenzahlen steht. Die Zeitskala der dissoziativen Rekombination



wird neben dem Rekombinationkoeffizienten durch die Elektronentemperatur und -dichte festgelegt [118].

Während die assoziative Ionisation als Prozeß strahlungsloser Deaktivierung angeregter Zustände verstanden werden kann, führt die dissoziative Rekombination bevorzugt zur Bildung angeregter Zustände  $n'$  in  $6p$  (siehe [118, 119]), aber auch  $5d$  und  $5d'$  Konfigurationen [47], und möglichen Fluoreszenzemissionen ausgehend von diesen Zuständen. Hu et al. [47] schlossen für ihre experimentellen Bedingungen durch Untersuchung der Photoelektronenspektren

nach (2+1) resonanter Photonenionisation hochenergetischer Zustände in neutralem Xenon auf eine bevorzugtes Auftreten assoziativer Ionisation bei laserangeregten  $nf$  Konfigurationen ( $n = 4-8$ ) gegenüber  $np$  Konfigurationen ( $n = 8-11$ ). Die Messungen wurden bei der gepulsten Expansion eines  $\sim 8$  MPa Xe/He-Gemischs im Verhältnis 1:10 in eine auf  $10^{-4}$  Pa evakuierte Kammer durchgeführt. Lipson et al. [48] begründen das zustands-selektive Auftreten der assoziativen Ionisation mit der erhöhten Aufenthaltsdauer eines  $nf$ -Valenzelektrons in Kernabständen, die aufgrund des höheren Beitrags des Zentrifugalterms des effektiven Potentials bei  $nf$  Zuständen die assoziative Ionisation begünstigen.

### 3.3. Bestimmung der Teilchendichte und Kalibriermethoden

Sind die Ratengleichungen (3.9), (3.10) erfüllt, können mit Hilfe des Ausdrucks (3.17) lokale Grundzustandsdichten bestimmt werden,

$$N_0 = S \frac{A + Q}{A_{21}} \frac{4\pi^2 a_0^2 (\hbar\omega)^2}{\sigma^{(2)} D E^2 \int F^2(t) dt} \quad (3.75)$$

oder, in Abhängigkeit des räumliche Laserprofils,

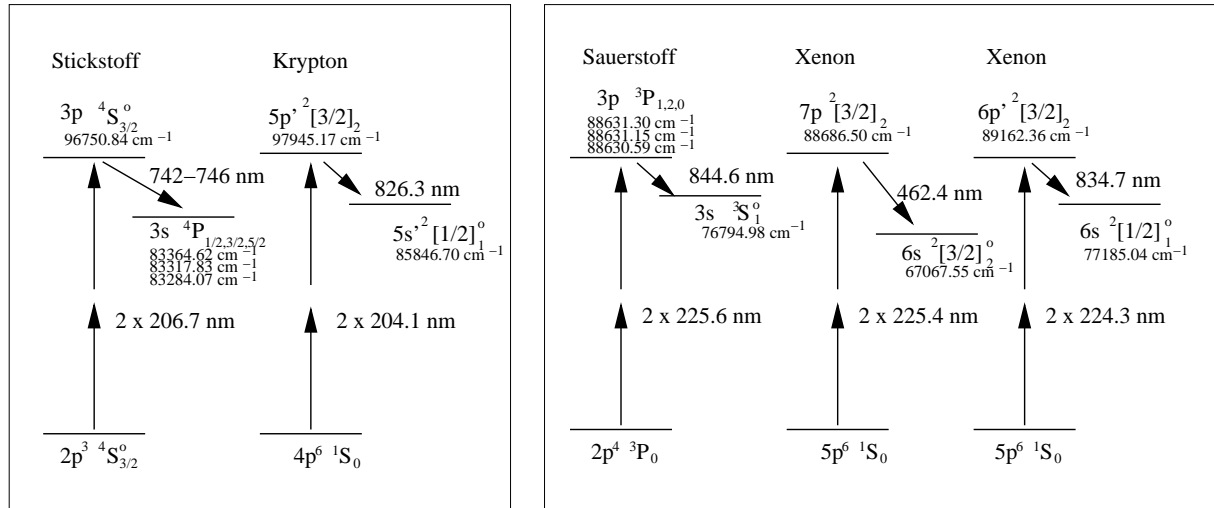
$$N_0 = S \frac{A + Q}{A_{21}} \frac{4\pi (\hbar\omega)^2 L}{\sigma^{(2)} D \int \int F^2(t) U^2(\mathbf{r}) dt dV} \quad (3.76)$$

wobei die Änderung der Leistungsdichteverteilung des Laserstrahls über die Länge  $L$  des Detektionsvolumens vernachlässigt wurde.  $N_0$  hat dabei die Bedeutung einer über die charakteristischen Abmessungen des Detektionsvolumens gemittelten Teilchendichte. Die Voraussetzung für die Berechnung von  $N_0$  nach Gleichung (3.76) ist, neben den atomspezifischen Größen  $\sigma^{(2)}$  und  $A_{21}/(A+Q)$ , die Kenntnis der Kalibrierkonstanten  $D$ , vgl. Gleichung (3.16), sowie der den Laserstrahl charakterisierenden Verteilungen  $F(t)$  und  $U(\mathbf{r})$ .

Eine Kalibrierung eines TALIF-Experiments ohne Änderung empfindlicher Einflußgrößen wie etwa der Versuchsgeometrie (und zur Vermeidung der aufwendigen Bestimmung der in  $D$  enthaltenen Größen) ist grundsätzlich durch eine Referenzmessung in derselben Spezies bei bekannten Dichten  $N_0$  möglich. Für Plasmaspezies, die als Radikale vorliegen, wie atomarer Stickstoff, atomarer Sauerstoff oder atomarer Wasserstoff, kann zur Messung eines solchen Referenzsignals eine Referenzzelle in den eigentlichen TALIF-Versuchsaufbau integriert werden, in der am Ort des Detektionsvolumens die entsprechende Spezies mit bekannter Teilchendichte erzeugt wird. Es werden hierzu häufig mikrowellengenerierte Plasmen verwendet, bei denen die Teilchendichte der betrachteten Atome durch Titration bestimmt wird [91]. Für Edelgase als Referenzatome vereinfacht sich eine solche Kalibriermessung erheblich, da diese Spezies unter Normalbedingungen nicht erst erzeugt werden muß und die Bestimmung der Referenzteilchendichte einfach über eine Messung des Drucks erfolgen kann.

Ein effizienter Weg, TALIF-Signale zu kalibrieren wurde von Goehlich et al. [30] und Niemi et al. [20] entwickelt. Dabei erfolgt die Messung eines Referenzsignals mittels TALIF-Schemen in Edelgasen (hier Xenon und Krypton), deren Zwei-Photonen-Resonanzen spektral nahe den angewandten Zwei-Photonen-Übergängen der jeweils zu untersuchenden Spezies (in diesem Fall die Zwei-Photonen-Resonanzen in atomarem Stickstoff und atomarem Sauerstoff) liegen. Die

### 3. Grundlagen der laserinduzierten Fluoreszenzspektroskopie mit Zwei-Photonen-Anregung



**Abbildung 3.7.:** TALIF-Schemen für atomaren Stickstoff (links) und atomaren Sauerstoff (rechts) mit von Goehlich et al. [30] und Niemi et al. [20, 21] charakterisierten, spektral benachbarten Zwei-Photonen-Resonanzen in Xenon und Krypton, siehe auch [182].

Wahl spektral eng benachbarter Zwei-Photonen-Übergänge minimiert den Aufwand der Referenzmessung: Bei kleinen Wellenlängenverschiebungen können die Änderungen der Verteilungen  $F(t)$  und  $U(\mathbf{r})$  des Laserstrahls gering gehalten werden, so daß eine explizite Kenntnis der Verteilungen bzw. ihrer Integrale nicht notwendig ist. Des weiteren können durch chromatische Aberration bedingte Korrekturen in der räumlichen Lage des Detektionsvolumenelements klein gehalten werden.

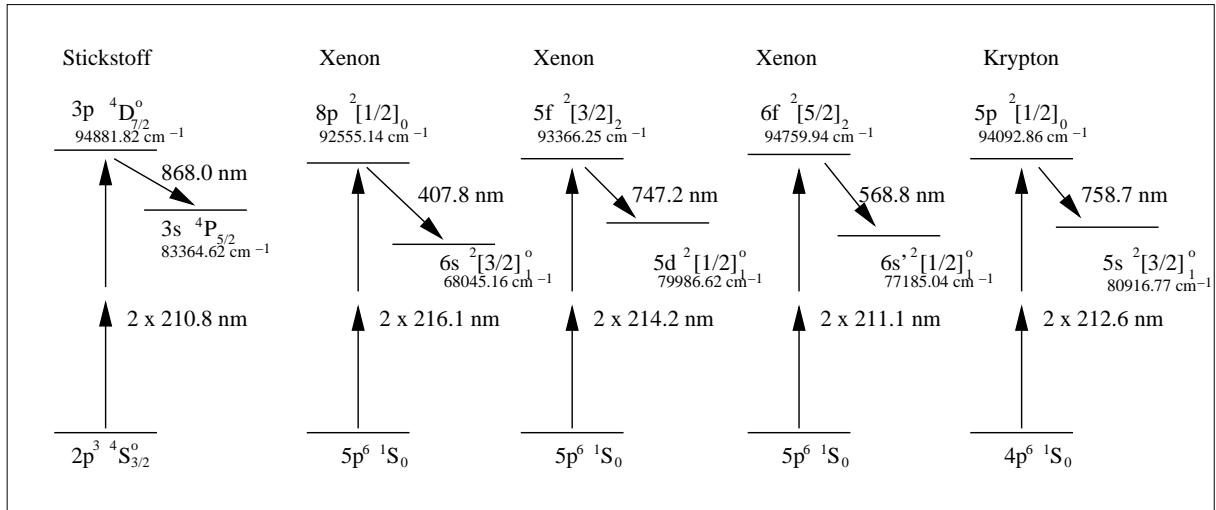
Die Berechnung der gesuchten mittleren Teilchendichte  $N_0$  unter Anwendung von Gleichung (3.75) reduziert sich nach zwei TALIF-Messungen mit  $\omega \approx \omega_{\text{ref}}$  unter obigen Annahmen auf [30]

$$N_0 = \gamma \frac{S}{S_{\text{ref}}} \left( \frac{A + Q}{A_{21}} \right) \left( \frac{A_{21}}{A + Q} \right)_{\text{ref}} \frac{\sigma_{\text{ref}}^{(2)} E^2}{\sigma^{(2)} E_{\text{ref}}^2} N_{0,\text{ref}} \quad (3.77)$$

worin die gemessenen Signalintensitäten der zu untersuchenden Spezies  $S$  und der Referenzmessung  $S_{\text{ref}}$ , die bekannte Teilchendichte der Referenzspezies  $N_{0,\text{ref}}$  sowie die Laserpulsenergien eingehen. Der Faktor  $\gamma$  enthält unkritisch zu quantifizierende, aber unvermeidbare Änderungen in der Versuchsgeometrie zwischen den zwei TALIF-Experimenten, etwa die Transmissionsunterschiede verschiedener Interferenzfilter zur Selektion der jeweiligen Fluoreszenzübergänge oder die unterschiedlichen Sensitivitäten des Photomultipliers bei unterschiedlichen Fluoreszenzwellenlängen. Insbesondere ist die Kenntnis der für die jeweiligen atomaren Übergänge spezifischen Größen  $A$ ,  $Q$ ,  $A_{21}$  und  $\sigma^{(2)}$  notwendig. Mögliche Unterschiede in der Linienform der Absorptionslinie sind im Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitt gemäß den Relationen (3.18) und (3.27) zu berücksichtigen.

Abbildung 3.7 zeigt zwei ausgewählte, von Goehlich et al. [30] und Niemi et al. [20], [21] angewandte TALIF-Übergänge in atomarem Stickstoff und atomarem Sauerstoff sowie die benutzten Referenzübergänge für die Absolutkalibrierung in Edelgasen. Ein weiteres, in der Plasmediagnostik angewandtes Anregungsschema in atomarem Stickstoff bei  $2 \times 211 \text{ nm}$  [25], sowie mögliche Referenzübergänge sind in Abbildung 3.8 dargestellt. Obwohl das TALIF-Schema bei

### 3.4. Einige Bemerkungen zur laserinduzierten Fluoreszenzspektroskopie an ionisiertem Xenon



**Abbildung 3.8.:** TALIF-Schema für atomaren Stickstoff in der Region  $2 \times 211$  nm mit spektral benachbarten Zwei-Photonen-Resonanzen in Xenon und Krypton.

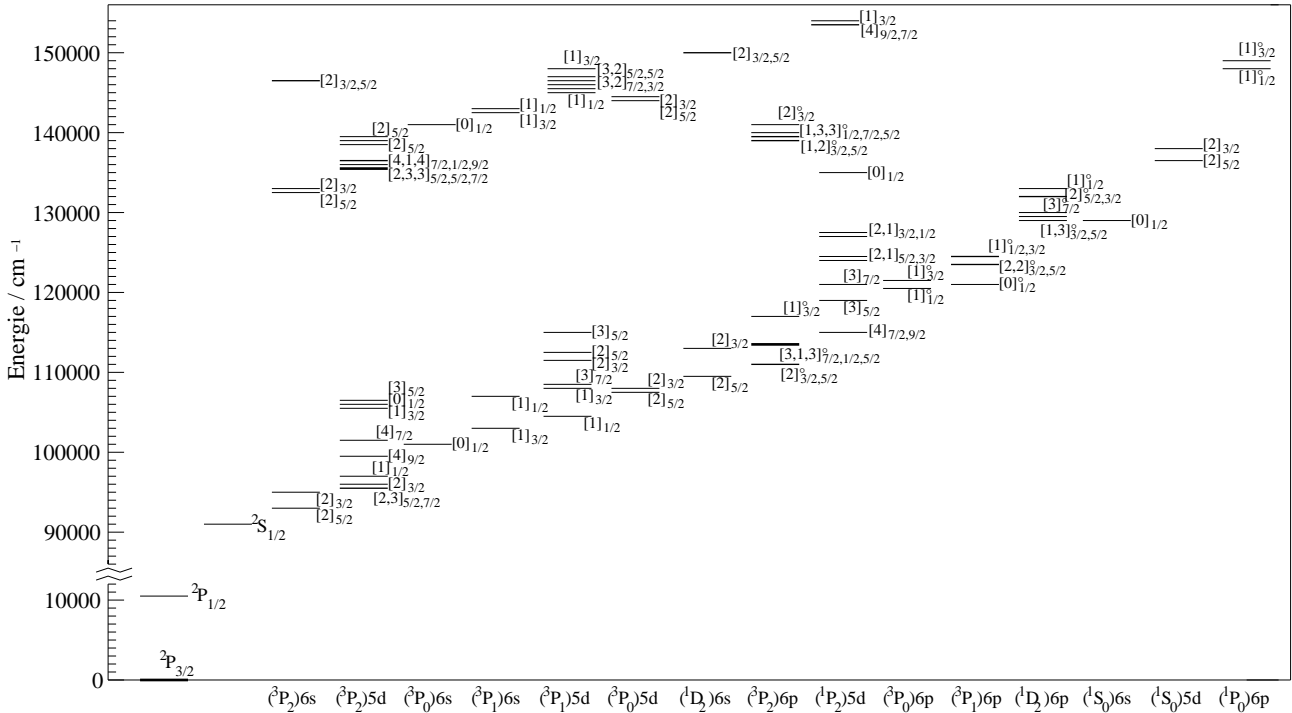
$2 \times 207$  nm gegenüber demjenigen bei  $2 \times 211$  nm Vorzüge durch einen höheren Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitt und einen geringeren Stoßabregungskoeffizienten besitzt [24], ist die Verwendung des in Abbildung 3.8 gezeigten Schemas eine wünschenswerte Alternative, zumal einige Lasersysteme wie das in dieser Arbeit zur Verfügung stehende *Scanmate 2E*-Lasersystem bzw. ihre Frequenzverdopplungseinheiten die Wellenlänge des Kalibrierübergangs bei  $2 \times 204$  nm nicht ohne weiteren Aufwand erreichen können<sup>9</sup>. Für Xenon liegt allerdings ein deutlicher Mangel an Daten zu Übergangsraten für höherenergetische Zustände  $> 90000$   $\text{cm}^{-1}$  vor, zudem ein Defizit an Zwei-Photonen-Untersuchungen in diesem Bereich. Die Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitte sind - nach bestem Wissen - für keinen der in Abbildung 3.8 gezeigten Referenzübergänge in Xenon bekannt.

## 3.4. Einige Bemerkungen zur laserinduzierten Fluoreszenzspektroskopie an ionisiertem Xenon

Im Vergleich zur TALIF-Spektroskopie an neutralem Xenon sind Zwei-Photonen-Anregungen in einfach ionisiertem Xenon aufgrund der großen energetischen Abstände zwischen dem Grundzustand und niedrig angeregten Zuständen mit durchstimmbaren Lasersystemen nur mit deutlich größerem Aufwand zu realisieren. Abbildung 3.9 zeigt einen Ausschnitt des Termdiagramms einfach ionisierten Xenons. Der niedrigere der beiden Grundzustände liegt in der Konfiguration  $5s5p^2 P_{3/2}$  vor und besitzt ungerade Parität. Nach den Auswahlregeln der für die Zwei-Photonen-Absorption erlaubten Übergänge erfordert die Anregung nicht-metastabiler Zustände Laserwellenlängen kleiner  $2 \times 180$  nm. Die Frequenzverdopplung durch optisch nichtlineare Kristalle ist jedoch aufgrund deren Absorptionseigenschaften auf die Erzeugung von Wellenlängen größer als 190 nm beschränkt [89]. Kürzere Wellenlängen können grundsätzlich durch Frequenz-

<sup>9</sup>für das hier verwendete Lasersystem ist der Frequenzverdopplungskristall BBO1 auf Wellenlängen  $> 205$  nm beschränkt

### 3. Grundlagen der laserinduzierten Fluoreszenzspektroskopie mit Zwei-Photonen-Anregung



**Abbildung 3.9.:** Partielles Grotrian-Diagramm einfach ionisierten Xenons (nur  $ns$ ,  $np$  und  $nd$ -Zustände  $< 154000 \text{ cm}^{-1}$ ; Bezeichnungen in der  $jK$ -Kopplung. Zustände ungerader Parität sind mit  $^\circ$  gekennzeichnet. Eine denkbare TALIF-Schema benutzt die Anregung des Zustands  $(^3P_2)6p[1]_{3/2}$  ( $LS$ -Notation  $(^3P)6p \ ^2P_{3/2}$ , [126]), mit Detektion der Fluoreszenz bei  $460.3 \text{ nm}$ . Ein mögliches Drei-Photonen-Schema beinhaltet die Anregung des Zustands  $^1(D_2)6d[4]_{9/2}$  ( $LS$ -Notation  $(^1D)6d \ ^2G_{9/2}$ ) mit Detektion der Fluoreszenz bei  $439.6 \text{ nm}$ .

mischung oder Vierwellenmischung in Gasen erzeugt werden [93], erfordern jedoch komplexe Versuchsaufbauten.

Mit durchstimmbaren Lasern können auch kohärente Strahlungsquellen, die auf der stimulierten Raman-Streuung beruhen, realisiert werden. Im UV-Bereich kann durch Ausnutzung der stimulierten Raman-Emission in geeigneten Gasen der Wellenlängenbereich lückenlos bis minimal etwa  $130 \text{ nm}$  abgedeckt werden [120–123]. Derartige Methoden erlauben damit etwa die Ein-Photonen Anregung atomaren Sauerstoffs aus dem Grundzustand [124], oder die Untersuchung höherenergetischer Zwei-Photonen-Übergänge in atomarem Sauerstoff [125]. Neben der größeren Komplexität solcher Strahlungsquellen muß zusätzlich die Absorption kurzwelliger Laserphotonen in Luft unterdrückt werden. In einfach ionisiertem Xenon umfaßt ein mögliches TALIF-Schema die Anregung des Zustands  $(^3P_2)6p[1]_{3/2}$  ( $LS$ -Notation  $(^3P)6p \ ^2P_{3/2}$ , [126]), mit anschließender Detektion des Fluoreszenzübergangs auf  $(^3P_2)6s[2]_{3/2}$  ( $LS$ -Notation  $(^3P)6s \ ^2P_{3/2}$ ) bei  $460.3 \text{ nm}$ , der hinsichtlich der Übergangsraten gut untersucht ist (siehe [127] und Referenzen hierin).

Die Schwierigkeiten verbunden mit der Erzeugung von Laserwellenlängen kleiner als  $200 \text{ nm}$  können in der Grundzustandsdiagnostik von ionisiertem Xenon prinzipiell durch Anregung mit Drei-Photonen-Prozessen umgangen werden.  $N$ -Photonen-Anregungen mit  $N \geq 3$  sind Bestandteil zahlreicher Untersuchungen. In neutralem Xenon wurde ein Drei-Photonen-Übergang erstmals durch Faisal et al. [128], mit der Anregung des Zustands  $6s[3/2]_1^o$  bei  $3 \times 440 \text{ nm}$  und



### 3.4. Einige Bemerkungen zur laserinduzierten Fluoreszenzspektroskopie an ionisiertem Xenon

Beobachtung der Fluoreszenz zu Grundzustand bei 147 nm nachgewiesen und wurde in der Folge detaillierter untersucht [129–131].

Aufgrund der erheblich geringeren Übergangswahrscheinlichkeiten bei Drei-Photonen-Prozessen sind, im Vergleich zu TALIF-Spektroskopie, wesentlich sensitivere Versuchsaufbauten für die Detektion der induzierten Fluoreszenzen notwendig. Das Verhältnis der Übergangsraten

$$\frac{W^{(3)}}{W^{(2)}} = \frac{\sigma^{(3)}}{\sigma^{(2)}} \bar{I} \frac{(\hbar\omega|_{2Ph})^2}{(\hbar\omega|_{3Ph})^3} \quad (3.78)$$

ist linear abhängig von der mittleren Leistungsdichte  $\bar{I}$  (vorausgesetzt beide Übergänge werden bei derselben Leistungsdichte angeregt).

Für eine Abschätzung der zu erwartenden Signalintensitäten sollen die Ratengleichungen

$$\dot{N}_0(r, z, t) = -\sigma^{(3)}\Phi^3(r, z, t)N_0(r, z, t) \quad (3.79)$$

$$\dot{N}_2(r, z, t) = \sigma^{(3)}\Phi^3(r, z, t)N_0(r, z, t) - (A + Q)N_2(r, z, t). \quad (3.80)$$

betrachtet werden. Mit der Lösung

$$N_2(r, z, t) = \sigma^{(3)}N_0e^{-(A+Q)t} \int_{-\infty}^t \Phi^3(r, z, t')e^{(A+Q)t' - \sigma^{(3)}\Xi(r, z, t')} dt' \quad (3.81)$$

und unter Vernachlässigung der Größe  $e^{-\sigma^{(3)}\Xi(r, z, t)} \approx 1$  mit  $\Xi(r, z, t) = \int_{-\infty}^t \Phi^3(r, z, t') dt'$  folgt analog zu Beziehung (3.13)

$$\begin{aligned} N_{\hbar\omega}(r, z, t \rightarrow \infty) &= A_{21}\sigma^{(3)}N_0 \int_{-\infty}^{\infty} e^{-(A+Q)t'} \int_{-\infty}^{t'} \Phi^3(r, z, t'')e^{(A+Q)t''} dt'' dt' \\ &\approx A_{21}\sigma^{(3)}N_0 \int_0^{\infty} e^{-(A+Q)t} dt \times \int_{-\infty}^{\infty} \Phi^3(r, z, t) dt \\ &= \frac{A_{21}\sigma^{(3)}N_0U^3(r, z)}{(A + Q)(\hbar\omega)^3} \int_{-\infty}^{\infty} F^3(t) dt \end{aligned} \quad (3.82)$$

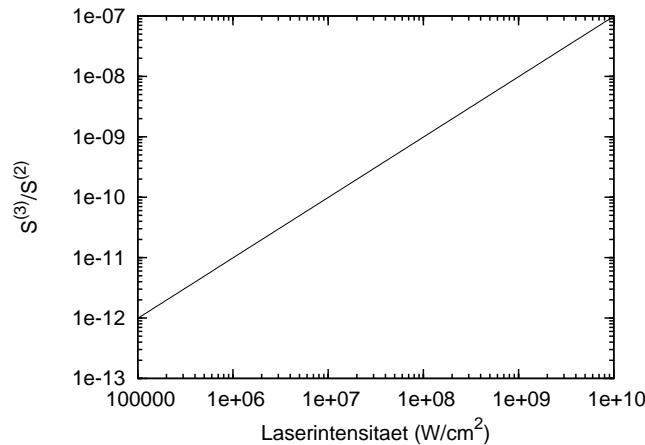
und schließlich, nach Volumenintegration für  $U(r, z)$  wie in Gleichung (3.4)

$$S^{(3)} = \frac{A_{21}}{A + Q} \frac{\sigma^{(3)}N_0DE^3}{3\pi^3 a_0^4 (\hbar\omega)^3} \int_{-\infty}^{\infty} F^3(t) dt. \quad (3.83)$$

Der Drei-Photonen-Absorptionsquerschnitt

$$\sigma^{(3)}(\omega) = \sigma_0^{(3)}g(\omega)G^{(3)} \quad (3.84)$$

### 3. Grundlagen der laserinduzierten Fluoreszenzspektroskopie mit Zwei-Photonen-Anregung



**Abbildung 3.10.:** Hypothetisches Verhältniß der nach den Formeln (3.17) und (3.83) zu erwartenden Signalstärken eines Zwei-Photonen und eines Drei-Photonen-Prozesses für die Übergänge  $2 \times 225$  nm (Fluoreszenz bei 462.4 nm,  $A_{21}/(A + Q) = 0.37$ ) und  $3 \times 440$  nm (Fluoreszenz bei 147 nm,  $A_{21}/(A + Q) \equiv 1$ ), keine Berücksichtigung unterschiedlicher Detektorsensitivitäten. Abschätzung für eine gaußförmige spektrale Laserlinienbreite von  $0.1 \text{ cm}^{-1}$ . Die Darstellung dient der Illustration der Wahrscheinlichkeiten, das tatsächliche Verhältniß wird stark durch Sättigungseffekte des TALIF-Vorgangs sowie das radiation trapping der Fluoreszenz auf 147 nm beeinflusst.

enthält neben dem von der Linienform unabhängigen Anteil  $\sigma_0^{(3)}$  das Linienprofil

$$g = g_D * g_L * g_L * g_L \quad (3.85)$$

sowie den photonenstatistischen Faktor  $G^{(3)}$ , der für phasenunkorrelierte Multi-Moden-Laserstrahlungsfelder den Wert 6 annimmt [92].

Salamero et al. [129] fanden für die Anregung des Zustands  $6s[3/2]_1^o$  bei  $3 \times 440$  nm in neutralem Xenon für den Absorptionsquerschnitt  $\sigma^{(3)} = 2 \times 10^{-89} \text{ cm}^6 \text{ s}^2$ . Die Linienbreite betrug 20 pm (allerdings bei einem nichtsymmetrischen Absorptionsprofil; für die folgende Abschätzung wird dennoch eine gaußförmige Linienform verwendet). Abbildung 3.10 zeigt das hypothetische Verhältniß  $S^{(3)}/S^{(2)}$  in Abhängigkeit der Laserleistungsdichte (mit der Bezeichnung  $S^{(2)} \equiv S$  aus Beziehung 3.17), wobei die Zwei-Photonen-Anregung des Zustands  $7p[3/2]_2$   $\sigma_0^{(2)} = 6.8 \times 10^{-36} \text{ cm}^4$ , [20], in neutralem Xenon zugrunde gelegt wurde. Das tatsächliche Verhältniß wird bei hohen Leistungsdichten aufgrund der einsetzenden Sättigung des TALIF-Signals niedrigere Werte annehmen. Nicht berücksichtigt wurde ebenfalls die Selbstabsorption der Fluoreszenz bei 147 nm (*radiation trapping*), die durch eine möglichst nahe Positionierung des Detektionsvolumens am Detektionsfenster unterdrückt werden kann.

Eine weitere Komplikation der Drei-Photonen-Spektroskopie erwächst aus der Tatsache, daß die direkte Ein-Photonen-Abregung eines Drei-Photonen-angeregten Zustands auf den Grundzustand nach der Paritätsauswahlregel nicht verboten ist. Die Auswahlregeln für elektrische Dipol-Übergänge bei Drei-Photonen-Absorption erfordern Drehimpulsänderungen  $|\Delta J| \leq 3$  sowie den Übergang zwischen zwei Zuständen unterschiedlicher Parität; in der Russel-Saunders-Kopplung kommt noch die Regel  $|\Delta L| = 1, 3$  hinzu<sup>10</sup>. Direkte Fluoreszenzübergänge auf den Grundzustand liegen weit im vuv-Bereich und treten wegen  $A_{21} \propto \omega_{21}^3$  bevorzugt auf. Neben

<sup>10</sup>Für eine tiefergehende Betrachtung der Auswahlregeln siehe z.B. [132]

### 3.4. Einige Bemerkungen zur laserinduzierten Fluoreszenzspektroskopie an ionisiertem Xenon

der Schwierigkeit der Detektion der Fluoreszenzstrahlung in diesem Bereich kann diese massiver Selbstabsorption im Detektionsstrahlengang (*radiation trapping*) unterliegen [133, 134]. Das Phänomen führt bereits auf kurzen Strecken zum völligen Verschwinden der Fluoreszenz und muß gesondert modelliert werden [128, 131]. Dieses Problem kann prinzipiell durch Anregung eines Zustands umgangen werden, der nach den Ein-Photonen-Auswahlregeln nicht an den Grundzustand gekoppelt ist. Nach den o.g. Auswahlregeln ist etwa die Drei-Photonen-Anregung des Zustands  $^1(D_2)6d[4]_{9/2}$  (*LS*-Notation  $(^1D)6d\ ^2G_{9/2}$ ) bei  $3 \times 196.5$  nm möglich, der wegen  $|\Delta J| = 3$  nicht direkt in den Grundzustand übergehen kann und für den ein entsprechender Übergang auch nicht beobachtet wird [126]. Für den Einstein-Koeffizienten des Fluoreszenzübergang zum Zustand  $^1(D_2)6p[3]_{7/2}$  (*LS*-Notation  $(^1D)6p\ ^2F_{7/2}$ ) bei 439.6 nm liegen gemessene Werte vor [137]; womit sich das (reduzierte) branching ratio in der zeitaufgelösten Messung der Fluoreszenz bestimmen läßt.

Die Mehr-Photonen-Spektroskopie ionisierten Xenons ist aus den dargelegten Gründen grundsätzlich als schwierig einzuschätzen. Des weiteren sind für Übergänge in ionisiertem Xenon - nach bestem Wissen - keinerlei Zwei- bzw. Drei-Photonen-Absorptionsquerschnitte bekannt. Unter der Annahme, daß die Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitte in neutralem und in ionisiertem Xenon von ähnlicher Größenordnung sind, erscheint die TALIF-Spektroskopie auch für ionisierte Spezies im Vergleich zur Drei-Photonen-Spektroskopie trotz den Beschränkungen der maximal erreichbaren Laserpulsleistungen in diesem Spektralbereich aussichtsreicher, zumal die ohnehin niedrigen Sättigungsgrenzen für TALIF-Signale in neutralem Xenon auch in ionisiertem Xenon auftreten sollten.



## 4. TALIF-Studie an neutralem Xenon in einer statischen Kaltgaszelle

Die in plasmadiagnostischen Untersuchungen des Freistrahls eines Ionentriebwerks zu erwartenden sehr niedrigen Dichten neutralen Xenons erfordern die Anwendung eines möglichst effizienten TALIF Schemas. Die Effizienz wird dabei im wesentlichen durch den Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitt sowie durch das *branching ratio* des beobachteten Fluoreszenzübergangs bestimmt. Absolute Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitte in neutralem Xenon wurden für Übergänge vom Grundzustand zur den  $J = 0, 2$  Zuständen der  $6p$  Konfiguration gemessen [50, 53], weiterhin für den  $6p'[3/2]_2$  und den  $7p[3/2]_2$  Zustand [20, 21, 30].

In diesem Abschnitt wird eine Vielzahl möglicher TALIF Schemen in neutralem Xenon in einer für die Plasmadiagnostik im Freistrahlelektrischer Weltraumantriebe erforderlichen experimentellen Versuchsgeometrie realisiert und quantitativ diskutiert. Messungen in neutralem Xenon bekannter Dichte werden in einer statischen Kaltgaszelle durchgeführt. Relative Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitte werden für Zustände der  $6p$  und  $6p'$  Multipletts experimentell bestimmt und hinsichtlich ihrer Fehlerquellen diskutiert. Die TALIF-Messungen werden erweitert auf  $8p$ ,  $9p$ ,  $4f$ ,  $5f$ ,  $6f$  Zustände, für die in der Literatur ein Mangel an Daten hinsichtlich der Lebensdauern und der Stoßdeaktivierung solcher Zustände existiert. Diese Zustände können als potentielle Kandidaten für die Kalibrierung von TALIF Messungen an neutralem Stickstoff aufgefaßt werden.

### 4.1. Experimenteller Aufbau

#### 4.1.1. Aufbau zur TALIF-Spektroskopie

In der vorliegenden Arbeit werden laserinduzierte Zwei-Photonen-Übergänge aus dem Grundzustand neutralen Xenons in angeregte Zustände mit Wellenzahlen zwischen  $78000$  und  $95000 \text{ cm}^{-1}$  untersucht, die daraus resultierenden Anregungswellenlängen liegen zwischen  $2 \times 210$  und  $2 \times 255 \text{ nm}$ . Für die Zwei-Photonen-Spektroskopie steht ein laserspektroskopischer Aufbau zur Verfügung, welcher im Rahmen früherer Arbeiten eingerichtet und erweitert wurde [139, 140]. Die Messungen erfolgen in einer räumlichen Versuchsanordnung, wie sie an den Versuchsanlagen zur Plasmadiagnostik des Freistrahls elektrischer Weltraumantriebe oder von Plasmawindkanälen erforderlich ist; sämtliche optische Komponenten des Versuchsaufbaus befinden sich dabei außerhalb des jeweiligen zylinderförmigen Vakuumteststands mit typischen Durchmessern zwischen  $160$  und  $200 \text{ cm}$ . Für die Experimente in diesem Kapitel wurde die Versuchsanordnung am Tank 9 im Labor des IRS installiert, der für Untersuchungen von Wiedereintrittsplasmen, welche an dieser Versuchsanlage mit induktiv beheizten Plasmageneratoren erzeugt werden, genutzt wird [148–150].

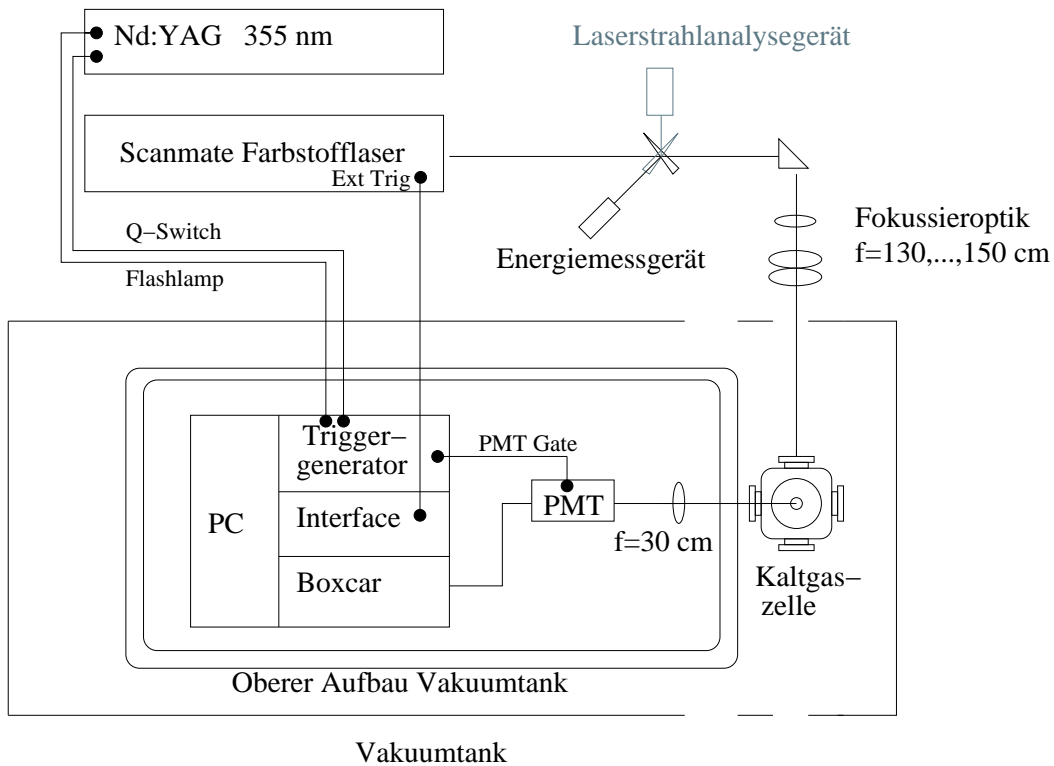
#### 4. TALIF-Studie an neutralem Xenon in einer statischen Kaltgaszelle

Die gepulste Laserstrahlung wird von einem durchstimmbaren Farbstofflaser (Scanmate 2, Lambda Physics/Coherent) erzeugt. Im Unterschied zu vorangegangenen Arbeiten [139, 140] wird der Farbstofflaser durch einen im Gehäuse integrierten Nd:YAG-Laser (Quantel Brilliant B) auf der dritten Harmonischen bei 355 nm optisch gepumpt. Die Pumpenergie des Nd:YAG-Lasers beträgt 200 mJ bei einer Pulsdauer (FWHM) von 4.9 ns. Die Repetitionsrate beträgt 10 Hz. Abhängig von den verwendeten Farbstoffen und der Wellenlänge werden (im nicht frequenzverdoppelten Regime) Laserpulsenergien von maximal 25 mJ erreicht. Das Laserlicht des Farbstofflasers wird an einer unmittelbar am Ausgang des Farbstofflasers anschließenden Frequenzverdoppelungseinheit (Lambda Physics/Coherent Inc.) durch ein  $\beta$ -Bariumborat Kristall (Bezeichnungen BBO1 für  $410 > \lambda > 440$  nm und BBO2 für  $440 > \lambda > 590$  nm) erzeugt. Nach Korrektur des Strahlengangs durch einen Kompensatorkristall wird der frequenzverdoppelte Anteil von der Grundwellenlänge durch eine geeignete Anordnung von vier Pellin-Broca Prismen unter Minimierung von Reflexionsverlusten räumlich getrennt. Die Pulsenergien der frequenzverdoppelten Strahlung liegen in den Experimenten zur TALIF-Spektroskopie zwischen 10 und 500  $\mu$ J. Für die spektrale Auflösung einer Absorptionslinie lassen sich die Grundwellenlänge des Farbstofflasers mit einer Schrittweite von 1 pm, die frequenzverdoppelte Wellenlänge mit einer Schrittweite von 0.5 pm durchstimmen.

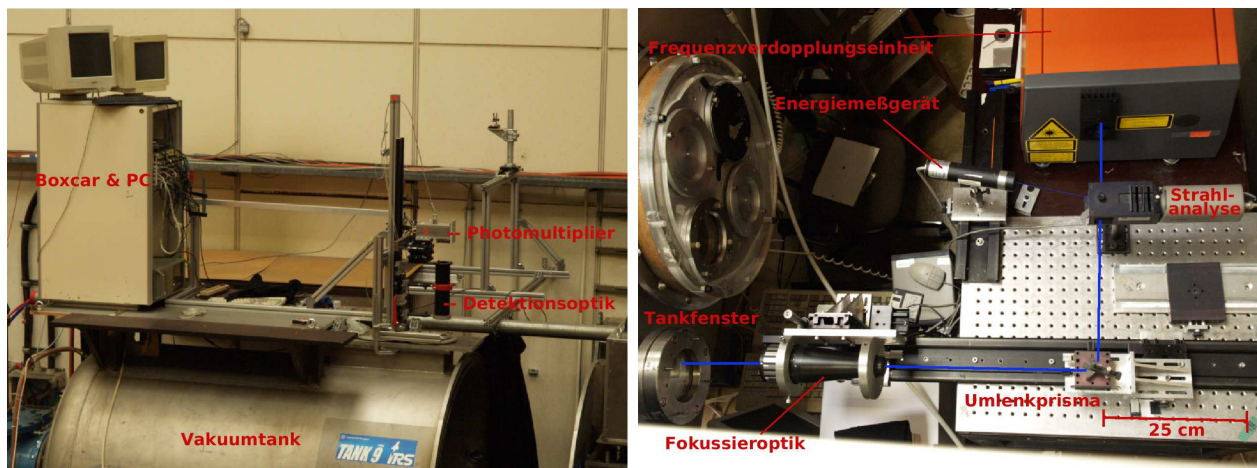
Abbildung 4.1 zeigt schematisch die weitere Versuchsanordnung. Zur Messung der Pulsenergie werden durch einen Strahlteiler 3% der Laserintensität aus dem Strahlengang ausgekoppelt und auf ein Energiemeßgerät (RjP 735, Laser Probe Inc.) gelenkt. Eine zweite, um neunzig Grad gedrehte Stellung des Strahlteilers ermöglicht die Bestimmung des räumlichen Laserprofils mittels eines CCD-Analysegeräts (Spiricon). Der Hauptstrahl wird durch ein Reflexionsprisma um neunzig Grad abgelenkt und durch ein dreikomponentiges Linsensystem zunächst aufgeweitet und anschließend in eine Kaltgaszelle fokussiert. Die Brennweite der Fokussierungsoptik beträgt etwa 130 cm bei einer Wellenlänge von 225 nm. Infolge der Vergrößerung der Brennweiten mit größeren Wellenlängen werden oberhalb von 230 nm zwei weitere Reflexionsprismen zur Verlängerung des Strahlengangs verwendet, um eine ausreichend variable Wegstrecke für die Fokussieroptik zu gewährleisten.

Die laserinduzierte Fluoreszenz wird senkrecht zur Ausbreitungsrichtung des Laserstrahls, in der vorliegenden Versuchsanordnung in vertikaler Richtung, durch ein Fenster in der Deckenwand des Vakuumtanks, detektiert. Das Detektionsvolumen wird in einem Abstand von etwa 110 cm durch eine achromatische Linse mit einer Brennweite von 30 cm auf einen Spalt (Ausrichtung in Laserstrahlrichtung) abgebildet, der sich unmittelbar vor der Photokathode eines Photomultipliers (Hamamatsu R636-10) befindet. Einen Eindruck von den Größenverhältnissen soll in Abbildung 4.2 gegeben werden. Die Separation der beobachteten Fluoreszenzwellenlänge erfolgt durch das Einsetzen geeigneter schmalbandiger Interferenzfilter.

Das Signal des Photomultipliers wird abhängig von der Signalstärke in ein bis drei nacheinander angeordneten Vorverstärkerstufen verstärkt und anschließend in einem Boxcar Averager (Stanford Research SR240) über ein definiertes Zeitintervall (Gate) integriert und über ein Computer-Interface (Stanford Research SR 245) an einen Computer weitergeleitet. Die Speicherung und Visualisierung der Meßdaten erfolgen durch ein LabView-Programm [139, 140]. Für die Darstellung des zeitabhängigen Fluoreszenzsignals wird ein 1 GHz-Oszilloskop (Gagescope 82C) verwendet. Die zeitliche Abfolge aus Aktivierung der Blitzlampe (Flashlamp) und dem Q-Switch des Nd:YAG PumpLasers erfolgt durch einen Triggeregenerator (DG 535, Stanford Re-



**Abbildung 4.1.:** Experimenteller Aufbau zur TALIF-Spektroskopie. Die Fluoreszenzzelle wird für alle Meßreihen in der Mitte des Vakuumentanks installiert; die Detektion der laserinduzierten Fluoreszenz erfolgt in vertikaler Richtung durch ein Fenster an der Oberseite des Vakuumentanks.



**Abbildung 4.2.:** Links: Anordnung zur Detektion der laserinduzierten Fluoreszenz senkrecht zur Ausbreitungsrichtung des Laserstrahls auf dem Vakuumentank. Rechts: Einkopplung der Laserstrahlung in den Vakuumentank über ein Reflexionsprisma.

#### 4. TALIF-Studie an neutralem Xenon in einer statischen Kaltgaszelle

Zustand	Anregungswellenlänge	Farbstoff	Verdopplungskristall
$6p[5/2]_2$	$2 \times 256.0$ nm	Coumarin 307	BBO2
$6p[3/2]_2$	$2 \times 252.5$ nm	Coumarin 307	BBO2
$6p[1/2]_0$	$2 \times 249.6$ nm	Coumarin 307	BBO2
$6p'[3/2]_2$	$2 \times 224.3$ nm	Coumarin 120 (Coumarin 47)	BBO2
$6p'[1/2]_0$	$2 \times 222.6$ nm	Coumarin 120	BBO2
$7p[5/2]_2$	$2 \times 226.4$ nm	Coumarin 120 (Coumarin 47)	BBO2
$7p[3/2]_2$	$2 \times 225.5$ nm	Coumarin 120 (Coumarin 47)	BBO2
$7p[1/2]_0$	$2 \times 225.1$ nm	Coumarin 120	BBO2
$4f[3/2]_2$	$2 \times 220.1$ nm	Coumarin 120	BBO2
$4f[5/2]_2$	$2 \times 220.0$ nm	Coumarin 120	BBO1
$8p[5/2]_2$	$2 \times 216.9$ nm	Stilbene 3	BBO1
$8p[3/2]_2$	$2 \times 216.5$ nm	Stilbene 3	BBO1
$8p[1/2]_0$	$2 \times 216.1$ nm	Stilbene 3	BBO1
$5f[3/2]_2$	$2 \times 214.2$ nm	Stilbene 3	BBO1
$5f[5/2]_2$	$2 \times 214.1$ nm	Stilbene 3	BBO1
$9p[5/2]_2$	$2 \times 212.5$ nm	Stilbene 3	BBO1
$9p[3/2]_2$	$2 \times 212.3$ nm	Stilbene 3	BBO1
$9p[1/2]_0$	$2 \times 212.1$ nm	Stilbene 3	BBO1
$6f[3/2]_2$	$2 \times 211.1$ nm	Stilbene 3	BBO1
$6f[5/2]_2$	$2 \times 211.1$ nm	Stilbene 3	BBO1

**Tabelle 4.1.:** Übersicht der zur Anregung der jeweiligen Energieniveaus verwendeten Laserfarbstoffe.

search Systems), ebenso wie die Aktivierung des sensitiven Zeitfensters des Photomultipliers, welches  $7 \mu\text{s}$  in allen Experimenten beträgt.

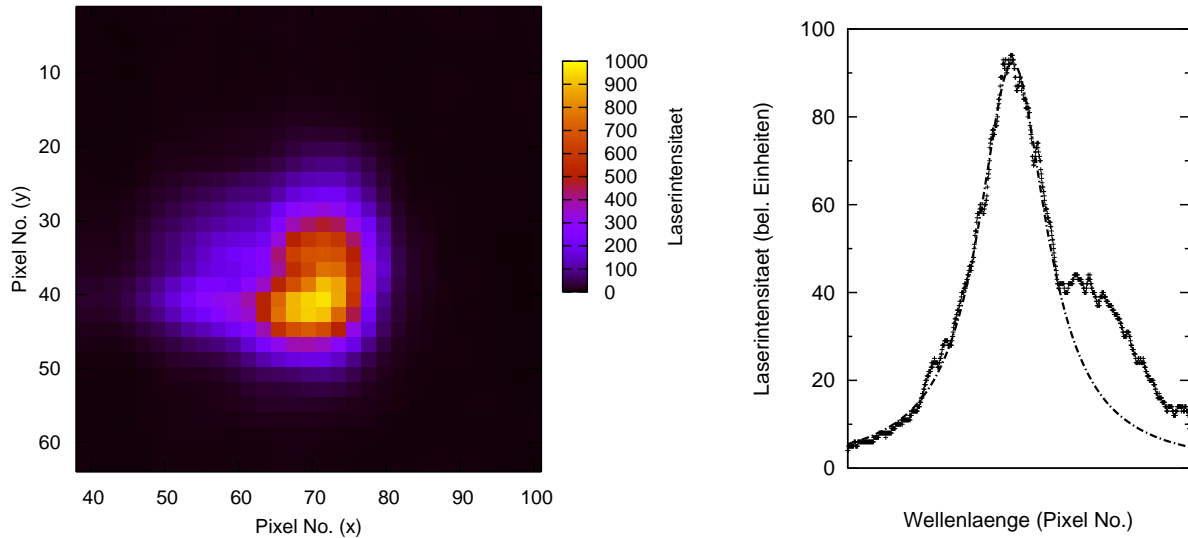
Die Kaltgaszelle wird durch eine Turbomolekularpumpe (Balzers/Pfeiffer Vacuum) mit vorgeschalteter Drehschieberpumpe bis zu einem Druck der Größenordnung von etwa  $5 \times 10^{-4}$  Pa evakuiert und anschließend über einen Massendurchflußregler bis zum gewünschten Druck mit Xenon mit einer Reinheit von 99.99% (Linde) befüllt. Der Eingang der Laserstrahlung, sowie die Detektion der Fluoreszenz, erfolgen durch zwei Suprasil-Fenster. Für die Druckmessung sind zwei Meßköpfe (MKS Instruments 122A, Pfeiffer Full Range Gauge 250) angeschlossen.

Um den zur Anregung der oben genannten Zustände erforderlichen Spektralbereich abzudecken, werden je nach benötigter Anregungswellenlänge des Lasers entsprechende Farbstoffe verwendet. Ein Überblick über die in dieser Arbeit benutzten Farbstoffe wird in Tabelle 4.1 gegeben. In allen Fällen dient Methanol als Lösungsmittel, die Mischungsverhältnisse folgen den Angaben in [151].

#### 4.1.2. Charakterisierung des experimentellen Aufbaus

Aus den Gleichungen (3.17) und (3.76) ist ersichtlich, daß das räumliche, spektrale und zeitliche Profil der einen atomaren Übergang anregenden Laserpulse einen wesentlichen Einfluß auf die Übergangsraten des Zwei-Photonen Prozesses und damit der detektierten Fluoreszenzintensität nimmt. Insbesondere bei der Messung relativer Fluoreszenzintensitäten für unterschiedliche Anregungswellenlängen können kleine Modifikationen in der Justierung, beispielsweise der





**Abbildung 4.3.:** Links: Räumliches Profil eines frequenzverdoppelten Laserpulses. Rechts: Messung des spektralen Laser-Profiles.

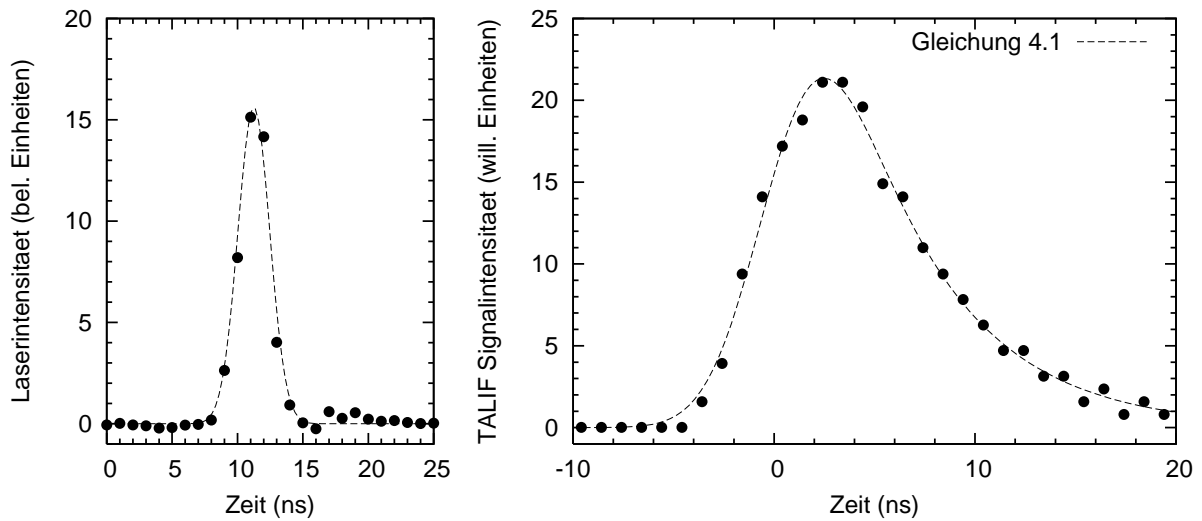
Frequenzverdopplungskristalle, unterschiedliche Effizienzen des verwendeten Laserfarbstoffs bei den jeweiligen Wellenlängen, oder die Korrektur von Strahlversätzen bedingt durch chromatische Aberration, zu veränderten Absorptionsbedingungen im Anregungsvolumen führen.

Das räumliche Profil des frequenzverdoppelten Laserpulses ist sehr sensitiv gegenüber der räumlichen Justierung der Nd:YAG-Pumpstrahlung in die Küvetten des Farbstofflasers, darüber hinaus wurden Veränderungen des Profils bei der Rotation des  $\beta$ -Bariumborat BBO2 Kristalls in der Frequenzverdopplungseinheit, welche zur Erfüllung der *Phase-Matching* Bedingung der Frequenzverdopplung vorgenommen wird, festgestellt. Die Profilveränderungen sind möglicherweise auf eine sehr leichte, altersbedingte Trübung des Kristalls zurückzuführen. Bei Messungen, welche die Fluoreszenzintensitäten unterschiedlicher Anregungswellenlängen ins Verhältnis setzen, werden die räumlichen Profile daher vor jeder Relativmessung angeglichen, eine numerische Integration des räumlichen Profils wird jedoch nicht durchgeführt.

Die linke Seite von Abbildung 4.3 zeigt das räumliche Profil des Lasers am Ausgang der Frequenzverdopplung vor den fokussierenden Optikelementen. Es ist eine deutliche Abweichung von einem gaußförmigen Profil erkennbar, allerdings ergab sich eine gute Reproduzierbarkeit dieses Profils bei Variation der Wellenlänge innerhalb des Spektralbereichs des jeweiligen Laserfarbstoffs, was für die Genauigkeit relativer Messungen von Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitten ein wichtiges Kriterium darstellt.

Gegenüber der Vakuumwellenlänge muß die tatsächliche Wellenlänge der Laseranregung eines spektralen Übergangs brechzahlbedingt korrigiert werden, wenn das verwendete Lasersystem für die jeweilige Wellenlänge in Luft kalibriert ist. Mit der Berechnung der Brechzahlen nach [138] ergibt sich eine Verschiebung von 58 pm bei  $\lambda = 252.500$  nm (nahe der Anregungswellenlänge des  $6p[3/2]_2$  Zustands) bzw. 67 pm bei  $\lambda = 214.100$  nm (nahe der Anregung des  $5f[3/2]_2$  Zustands). Zusätzlich wurde die Wellenlänge gegenüber einem interner Offset in der Wellenlängenkalibrierung des Gitters von 270 pm festgestellt. Die Wellenlänge des nicht-frequenzverdoppelten Lasers wurde anhand der Kryptonlinien bei 446.369 und 450.235 nm eines Linienstrahlers (Pen Ray Line, LOT-Oriel) unter Verwendung eines hochauflösenden Spektro-

#### 4. TALIF-Studie an neutralem Xenon in einer statischen Kaltgaszelle



**Abbildung 4.4.:** Links: Mit einer schnellen Photodiode gemessenes zeitliches Laserprofil nach der Frequenzverdoppelung des Farbstofflasers. Rechts: Zeitlicher Verlauf der Rayleigh-Streuung in Luft bei einem Druck von 1500 Pa.

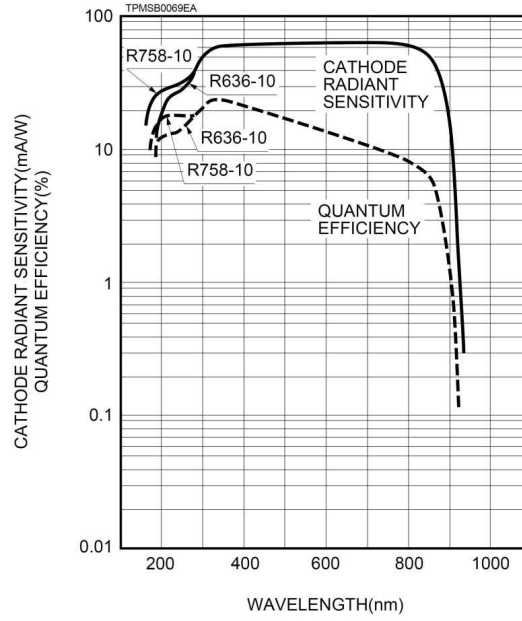
meters (Acton Pro 2750, 3600 1/mm Grating) mit einer Genauigkeit von 15 pm überprüft.

Die spektrale Linienbreite des Lasers wurde mit einem spektralen Profilmeßgerät (LM-007, Cluster Ltd) untersucht. Das Gerät besteht aus vier thermostabilisierten neongefüllten Fizeau Interferometern und erreicht eine spektrale Auflösung von  $0.01 \text{ cm}^{-1}$ . Das spektrale Profil einer Interferenzordnung ist auf der rechten Seite von Abbildung 4.3 bei einer Wellenlänge von 212 nm (Stilbene-3) gezeigt. Es zeigt eine gute Übereinstimmung mit einer Lorentzfunktion. Die gemessene Linienbreite beträgt  $0.15 \text{ cm}^{-1}$ , ist jedoch aufgrund der bei diesen Wellenlängen schwierig justierbaren Einkopplung der Strahlung in das Gerät, der ausreichenden Ausleuchtung aller vier Interferometer und Unsicherheiten bei der Trennung der Interferenzordnungen mit einem geschätzten Fehler von 50% behaftet. Diese Linienbreite ist ausreichend schmal zur Auflösung aller in dieser Arbeit untersuchten angeregten Zustände. Aufgrund der wesentlich kleiner angegebenen Apparateverbreiterung der Interferometeranordnung wird im folgenden davon ausgegangen, daß das spektrale Laserprofil einen dominierenden Lorentz-verbreiterten Anteil enthält. Die Lorentzform ist möglicherweise auf die wenigen Umläufe der Laserstrahlung im Laserresonator des Farbstofflasers während der kurzen Pumpdauer von 4.9 ns zurückzuführen<sup>1</sup>. Die Laserlinienbreite ist zusätzlich vom verwendeten Laserfarbstoff abhängig. Die bei den TALIF-Messungen erhaltenen Linienbreiten werden in den folgenden Abschnitten diskutiert.

Das zeitliche Laserprofil wurde mit Hilfe einer schnellen Photodiode (Thorlabs, Anstiegszeit 1 ns) bestimmt. Für den frequenzverdoppelten Laserstrahl wurde das Signal ohne Verstärkung unter Umgehung des Boxcar-Integrators direkt auf das Oszilloskop geleitet. Abbildung 4.4 zeigt links eine Messung bei der Wellenlänge  $\lambda = 249.6 \text{ nm}$  (Coumarin 307), die Halbwertsbreite der Pulsdauer beträgt etwa 3 ns.

Das zeitaufgelöste detektierte Signal eines Vorgangs wie der der laserinduzierten Fluoreszenz stellt eine Faltung aus der tatsächlichen Zeitabhängigkeit und der instrumentell bedingten Verbreiterung des Signals (*response function*) dar. Die Aufweitung des Meßsignals wird in der

<sup>1</sup>Diese Argumentation wird auch in den Messungen von Niemi et al. [21] angeführt



**Abbildung 4.5.:** Die spektrale Sensitivität des Photomultipliers PMT 636-10 nach dem Datenblatt von Hamamatsu [153].

vorliegenden Versuchsanordnung durch die Eigenschaften des Photomultipliers (insbesondere der zeitlichen Aufweitung der ausgelösten Elektronenlawine zwischen der Photokathode und der Anode, *electron transit time spread*) und sämtlichen Komponenten der Meßelektronik festgelegt. Die zeitliche Antwortfunktion der gesamten Detektionsapparatur kann grundsätzlich durch die Messung von kurzen Lichtpulsen bestimmt werden [31, 106]. Zur Charakterisierung des Zeitverhaltens wurde die Rayleigh-Streuung des Laserlichts an Luft untersucht, welche für nicht zu kleine Zeitskalen der augenblicklichen zeitlichen Amplitude der anregenden Strahlung folgt [152]. Für einen zeitlich gaußförmigen Laserpuls  $F(t) \propto e^{-t^2/2\sigma_p^2}$  mit dem die Pulsdauer beschreibenden Parameter  $\sigma_p$  ergibt sich als erwartete Signalform (siehe Anhang A)

$$S(t) = \text{const.} \times e^{-t/\tau_*} e^{(\sigma^2 + \sigma_p^2)/2\tau_*^2} \left( \text{erf} \left[ \frac{t}{\sqrt{2}\sqrt{\sigma^2 + \sigma_p^2}} - \frac{\sqrt{\sigma^2 + \sigma_p^2}}{\sqrt{2}\tau_*} \right] + 1 \right). \quad (4.1)$$

Hier bezeichnen  $\sigma$  den gaußförmigen und  $\tau_*$  den exponentiell abklingenden Anteil der zeitlichen Aufweitung.

Zur Messung der zeitaufgelösten Rayleigh-Streuung wurde Tank 9 zunächst evakuiert und anschließend langsam belüftet. Abbildung 4.4 *rechts* zeigt das zeitaufgelöste Profil der Rayleigh-Streuung bei einem Druck von etwa 1500 Pa. Mit der zuvor bestimmten Laserpulsdauer von  $\sigma_p = 1.3$  ns folgen als Mittelwerte über acht Messungen  $\tau_* = 4.8$  ns und  $\sigma = 2.0$  ns. Für den hier verwendeten Photomultiplier stehen keine Angaben des Herstellers für die Standardabweichung des *electron transit time spreads* zur Verfügung, allerdings ist der gemessene Wert für  $\sigma$  groß verglichen mit anderen Aufbauten zur laserinduzierten Fluoreszenz [31]. Möglicherweise wird die in Abbildung 4.4 gemessene Laserpulsdauer aufgrund der Anstiegszeit der Photodiode unterschätzt. Der ebenfalls relativ hohe Wert der Zeitkonstanten  $\tau_*$  ist auf die Elektronik der Boxcar- und Vorverstärkerstufen zurückzuführen.

#### 4. TALIF-Studie an neutralem Xenon in einer statischen Kaltgaszelle

Für die Bestimmung relativer Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitte ist die Kenntnis der relativen spektralen Sensitivitäten des Photomultipliers bei den Fluoreszenzwellenlängen der jeweiligen TALIF-Schemen notwendig. In dieser Arbeit sind zur Untersuchung der Größen  $\sigma_{6p[1/2]_0}^{(2)}/\sigma_{6p[3/2]_2}^{(2)}$  und  $\sigma_{6p'[1/2]_0}^{(2)}/\sigma_{6p'[3/2]_2}^{(2)}$  die Verhältnisse der Quanteneffizienzen  $\eta_{828.0\text{nm}}/\eta_{823.2\text{nm}}$  und  $\eta_{788.7\text{nm}}/\eta_{834.7\text{nm}}$  zu berücksichtigen. Für die Berechnung der Querschnitte werden im folgenden Abschnitt die Daten der relativen Detektorsensitivitäten des Herstellers (Abbildung 4.5) zugrunde gelegt. Die Quanteneffizienzen werden aus der spektralen Sensitivität  $\mathcal{S}_{\text{PMT}}$  der Photokathode nach dem Zusammenhang  $\eta = 124 \times (\mathcal{S}_{\text{PMT}}/(\text{mA} \times \text{W}^{-1})) / (\lambda/\text{nm})$  berechnet [154].

In der Arbeit von Niemi et al. [116] wurde auf mögliche herstellungsbedingte Abweichungen der spektralen Sensitivitäten von den Spezifikationen des Herstellers am Beispiel des Photomultiplier Modells R955 (Hamamatsu) hingewiesen. Ein Aufbau zur Untersuchung der spektralen Sensitivitäten stand in der vorliegenden Arbeit nicht zur Verfügung. Aufgrund der relativ nahe beieinanderliegenden Fluoreszenzwellenlängen und der moderaten Änderung der Sensitivität des Photomultipliers in diesem Wellenlängenbereich wird davon ausgegangen, daß eventuelle Abweichungen in der Sensitivität des Photomultipliers für die Gesamtunsicherheit in der Bestimmung der Absorptionsquerschnitte quantitativ von untergeordneter Bedeutung sind.

## 4.2. Ergebnisse der Untersuchung verschiedener TALIF-Schemen

### 4.2.1. 6p und 6p' Multiplett

Innerhalb des 6p Multipletts sind die Zustände  $6p[1/2]_0$ ,  $6p[3/2]_2$  und  $6p[5/2]_2$ , innerhalb des 6p' Multipletts die Zustände  $6p'[1/2]_0$ ,  $6p'[3/2]_2$  nach den Auswahlregeln für linear polarisiertes Licht durch Zwei-Photonen-Absorption anregbar. Die jeweiligen TALIF-Schemen sind in Abbildung 4.6 gezeigt. Die Selektion der Fluoreszenzwellenlängen erfolgt mittels schmalbandiger Interferenzfilter mit den Zentralwellenlängen 791.8 nm (FWHM 9.1 nm, Thorlabs), 820.2 nm (FWHM 9.5 nm, Thorlabs), 831.8 nm (FWHM 9.5 nm, LOT-Oriel) und 905.8 nm (FWHM 8.2 nm, Edmund Optics). Eine Überprüfung des Transmissionsverhaltens der meisten in dieser Arbeit verwendeten Interferenzfilter ist in Anhang C gegeben. Einige Ergebnisse dieses Kapitels sind in Eichhorn et al. [189] zusammengefaßt.

### Natürliche Lebensdauern

Zur Bestimmung der natürlichen Lebensdauern und Stoßdeaktivierungsraten wurde die zeitlich aufgelöste Fluoreszenz im spektralen Maximum der Zwei-Photonen-Resonanzen in Abhängigkeit des Drucks analysiert. Es wurden die Fluoreszenzsignale von 200 bis 900 Laserpulsen akkumuliert. Zur Korrektur von periodischen elektronischen Störungen wurde für jedes Fluoreszenzsignal die zeitaufgelösten Meßsignale bei blockiertem Fluoreszenzstrahlengang aufgezeichnet und von den detektierten Fluoreszenzkurven subtrahiert. Abbildung 4.7 zeigt exemplarisch das zeitlich aufgelöste Fluoreszenzsignal nach Anregung des  $6p[1/2]_0$  Zustands bei einem Druck von 2.7 Pa.

Die zugehörigen Stern-Volmer-Plots sind in Abbildung 4.8 dargestellt. Die natürlichen Lebensdauern und Stoßdeaktivierungsraten der Zustände der 6p und 6p' Multipletts wurden von

## 4.2. Ergebnisse der Untersuchung verschiedener TALIF-Schemen

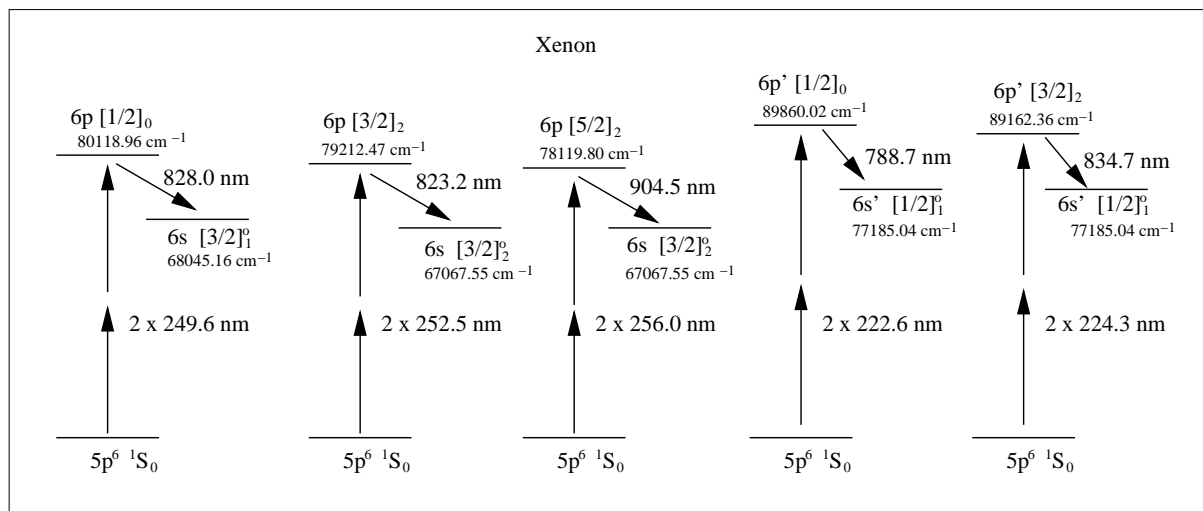


Abbildung 4.6.: TALIF Schemen für die  $6p$  und  $6p'$  Multipletts.

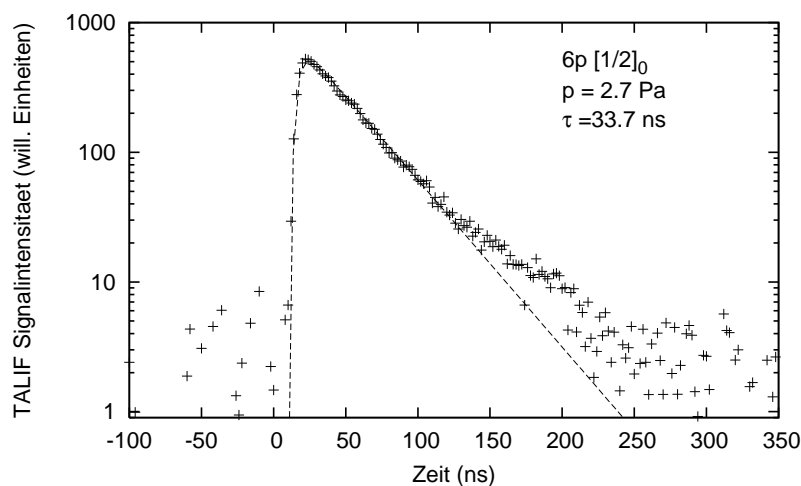


Abbildung 4.7.: Zeitaufgelöste laserinduzierte Fluoreszenz nach Anregung des  $6p[1/2]_0$  Zustands.

einer Reihe von Forschungsgruppen durch Zwei-Photonen laserinduzierte Fluoreszenz und durch gepulste Elektronenstoßanregung untersucht. Die Tabellen 4.2 und 4.3 stellen die in dieser Arbeit erhaltenen Lebensdauern und Stoßdeaktivierungsraten den Ergebnissen anderer Forschungsgruppen gegenüber. Mit Ausnahme der natürlichen Lebensdauer des  $6p[5/2]_2$  Zustands liegen alle Werte in akzeptabler Übereinstimmung mit der Spanne an Literaturwerten<sup>2</sup>. Die offensichtlich sehr kleine Stoßdeaktivierungsrate des  $6p[1/2]_0$  Zustands kann erst durch Messungen in einem deutlich höheren als dem hier untersuchten Druckbereich zuverlässig reproduziert werden und wird daher nicht angegeben.

Eine Auffälligkeit besteht in der systematischen Abweichung zu höheren Lebensdauern gegenüber Bruce et al. [31] und Whitehead et al. [32], deren Daten sehr kleine Fehlerintervalle besitzen. Im Unterschied zur vorliegenden Arbeit konnte in diesen Arbeiten ein höherer Druckbereich (bis 200 Torr) abgedeckt werden. Einen weiteren Einfluß können in der vorliegenden Arbeit Effekte durch Re-Absorption (*radiation trapping*) der Fluoreszenzstrahlung entlang der

<sup>2</sup>Einige Daten wurden gegenüber [189] neu analysiert, führen aber nicht zu signifikanten Abweichungen

4. TALIF-Studie an neutralem Xenon in einer statischen Kaltgaszelle

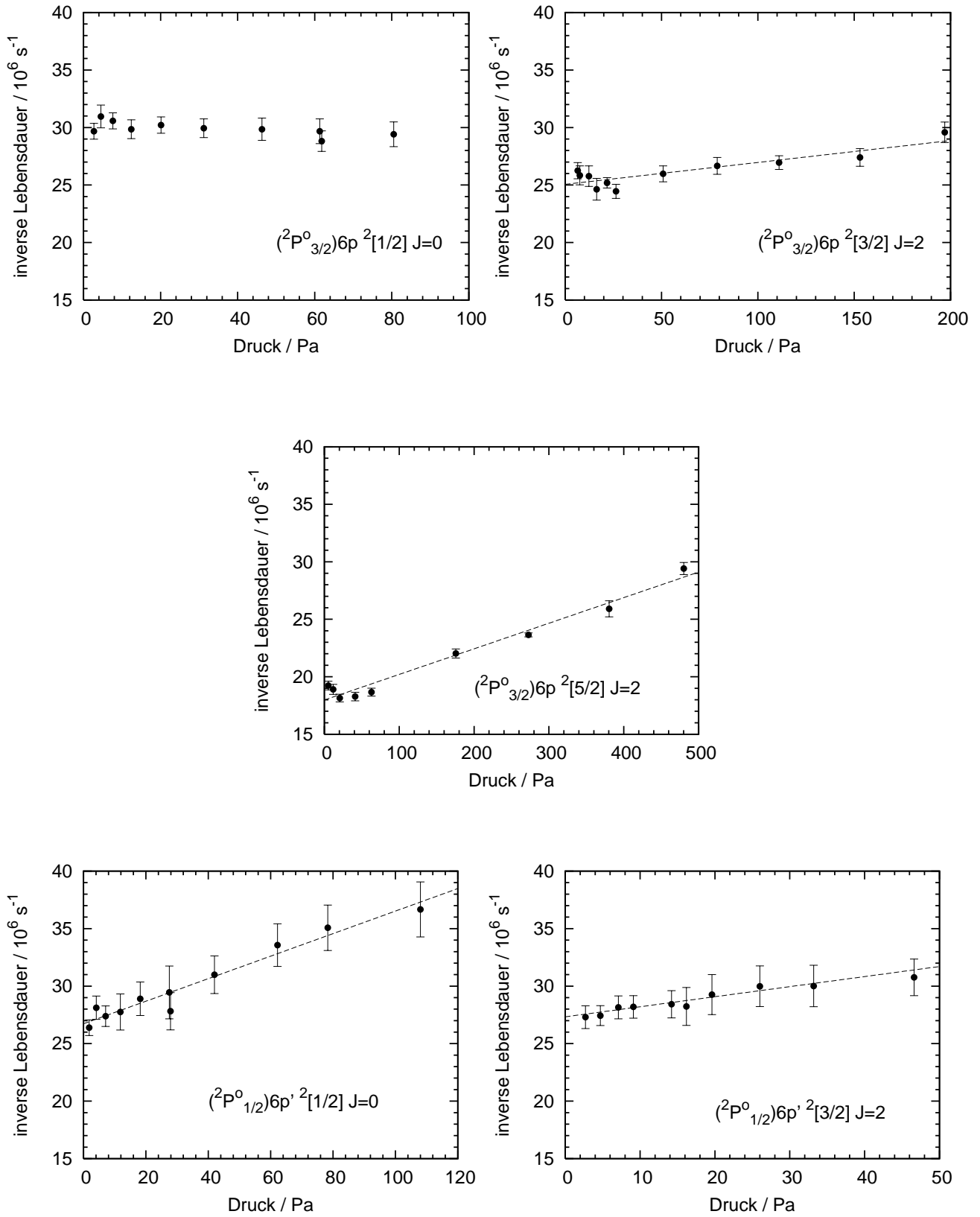


Abbildung 4.8.: Stern-Volmer Plots der  $J = 0, 2$  Zustände der  $6p$  und  $6p'$  Multipletts.

## 4.2. Ergebnisse der Untersuchung verschiedener TALIF-Schemen

	$6p[1/2]_0$	$6p[3/2]_2$	$6p[5/2]_2$	$6p'[1/2]_0$	$6p'[3/2]_2$
<i>Experimentelle Werte</i>					
Diese Arbeit	$33 \pm 2$	$40 \pm 2$	$56 \pm 3$	$38 \pm 2$	$37 \pm 2$
<sup>a</sup> Niemi et al [21]					$40.8 \pm 2.0$
<sup>a</sup> Alekseev & Setser [55]					$40 \pm 6$
<sup>a</sup> Bruce et al [31]	$26.8 \pm 0.8$	$31.3 \pm 1.8$	$36.0 \pm 2.8$	$34.1 \pm 0.8$	$32.1 \pm 0.8$
<sup>a</sup> Whitehead et al [32]	$25.9 \pm 0.7$	$28.0 \pm 1.2$	$37.7 \pm 1.9$	$33.1 \pm 1.2$	$31.2 \pm 1.1$
<sup>a</sup> Böwering et al [36]	$28 \pm 1$	$35 \pm 3$	$36 \pm 4$		
<sup>a</sup> Ku & Setser [34]	$32.6 \pm 1.0$	$36.0 \pm 3.0$	$39.3 \pm 1.0$		
<sup>b</sup> Inoue et al [105]		$31 \pm 1$	$39 \pm 2$	$38 \pm 2$	$37 \pm 2$
		$31 \pm 2$	$39 \pm 2$	$40 \pm 2$	
<sup>b</sup> Horiguchi et al [33]		$38 \pm 2$	$40 \pm 2$		
<sup>c</sup> Allen et al [39]	$40 \pm 12$	$33 \pm 20$		$38.5 \pm 1.5$	$39.0 \pm 1.5$
<sup>a</sup> McCown et al [183]	$29 \pm 4$				
<sup>c</sup> Verolainen & Osherovic [40]	$30 \pm 4$	$48 \pm 6$		$30 \pm 3$	$34 \pm 2$
<sup>c</sup> Jimenez et al [38]				$31 \pm 1$	$31 \pm 3$
<sup>c</sup> Karimov & Klimkin [178]				$33 \pm 3$	$33 \pm 3$
<sup>b</sup> Moutard et al [184]	$28.2 \pm 0.5$	$28.2 \pm 0.5$			
<sup>d</sup> Husson & Margerie [185]		$38.8 \pm 1.3$			$38.1 \pm 1.3$
<i>Theoretische Werte</i>					
<sup>e</sup> Aymar & Coulombe [41]	22.4	28.1	33.0	28.4	27.7
<sup>f</sup> Aymar & Coulombe [41]	33.2	31.5	36.9	36.9	36.0
Loginov & Gruzdev [42]	24.5	34.5	39.5	18.4	26.5

**Tabelle 4.2.:** Natürliche Lebensdauer (*ns*) der  $J = 0, 2$  Zustände der  $6p$  und  $6p'$  Multipletts, im Vergleich mit anderen Forschungsgruppen.

<sup>a</sup> gemessen durch Zwei-Photonen laserinduzierte Fluoreszenz

<sup>b</sup> gemessen durch Ein-Photonen laserinduzierte Fluoreszenz

<sup>c</sup> gemessen durch gepulste Elektronenstoßanregung (delayed coincidence)

<sup>d</sup> gemessen durch Hanle-Effekt

<sup>e</sup> berechnet in räumlicher Darstellung

<sup>f</sup> berechnet in Geschwindigkeitsdarstellung

Detektionsachse spielen, welche aufgrund der Geometrie der hier verwendeten Kaltgaszelle mit etwa 20 cm deutlich länger ist als in den Arbeiten von [31, 32].

Hinsichtlich möglicher Fehlerquellen durch Sättigungseffekte sind folgende Bemerkungen zu machen. Während der vorliegenden Messungen mußte der Bereich der Laserenergie zur Anregung der jeweiligen Übergänge so gewählt werden, daß einerseits in dem vorliegenden Aufbau zeitaufgelöste Fluoreszenzsignale bei Drücken von wenigen Pa neutralen Xenons in ausreichender Qualität detektiert werden konnten, andererseits mit der laserinduzierten Fluoreszenz konkurrierende Prozesse wie (2+1) REMPI noch nicht dominieren. Hierfür wurde das Detektorvolumen einige Zentimeter vor den Brennpunkt der Fokussierungsoptik verschoben, so daß der Querschnitt des Laserstrahls  $\sim 800 \mu\text{m}$  beträgt, die geschätzten Leistungsdichten liegen bei einer Pulsdauer von 3 ns einem Bereich von etwa 10 bis 20 MW/cm<sup>2</sup>. Hieraus ergibt sich

#### 4. TALIF-Studie an neutralem Xenon in einer statischen Kaltgaszelle

	$6p[1/2]_0$	$6p[3/2]_2$	$6p[5/2]_2$	$6p'[1/2]_0$	$6p'[3/2]_2$
Diese Arbeit		$79 \pm 32$	$92 \pm 13$	$344 \pm 76$	$412 \pm 127$
Bruce et al [31]	$5.9 \pm 0.5$	$101 \pm 3$	$116 \pm 3$	$423 \pm 8$	$426 \pm 10$
Niemi et al [21]					$360 \pm 40$
Alekseev & Setser [55]					$420 \pm 50$
Allen et al [39]				$262 \pm 170$	$262 \pm 170$
Böwering et al [36]	$5.9 \pm 3.3$	$92 \pm 5$	$87 \pm 6$		
Ku & Setser [34]	$5.8 \pm 1$	$82 \pm 5$	$96 \pm 3$		
Moutard et al [184]	$4.2 \pm 0.5$	$85 \pm 5$			
McCown et al [183]	$400 \pm 100$				

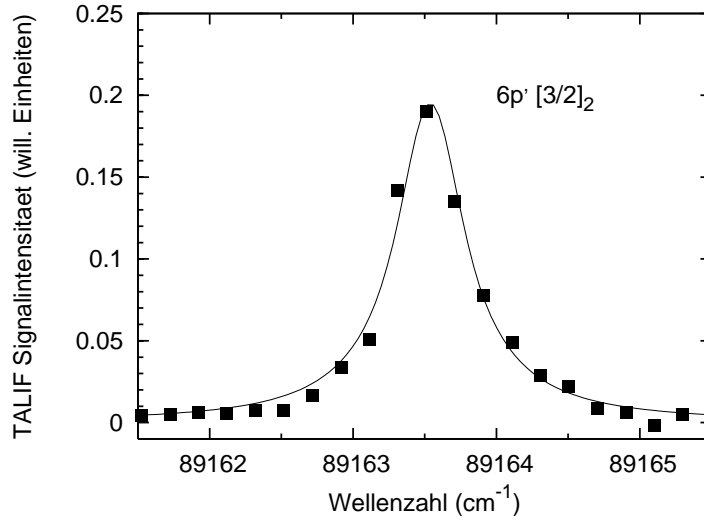
**Tabelle 4.3.:** Bimolekulare Stoßdeaktivierungsraten ( $T = 300$  K) der  $J = 0, 2$  Zustände der  $6p$  und  $6p'$  Multipletts in Xenon ( $10^{-12} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ ).

für den  $6p[1/2]_0$  Zustand mit  $\sigma_{pi} = 4.3 \times 10^{18} \text{ cm}^2$ , [53], auf der Achse  $r = 0$  des Laserstrahls ein Anteil photoionisierter Spezies von  $\sim 15 - 25\%$  (vgl. Gleichung 3.69 und Abbildung 3.5). Möglicherweise führt eine langsame dissoziative Rekombination  $\text{Xe}_2^+ + e^- \rightarrow \text{Xe} + \text{Xe}^*(6p)$  des als Zwischenprodukt gebildeten  $\text{Xe}_2^+$ -Dimers zur Besetzung angeregter Zustände des  $6p$  Multipletts zur Entstehung der in Abbildung 4.7 sichtbaren langsamen Komponente [37].

Zur Abschätzung der zeitlichen Entwicklung der Elektronendichte  $n_e(t)$  im Nachglimmen einer Plasmaentladung wird gewöhnlich der Ausdruck  $n_e(t)^{-1} = n_{e,0}(t)^{-1} + \alpha t$  verwendet, worin  $\alpha$  den Rekombinationskoeffizienten für die dissoziative Rekombination angibt [118]. Nach Gleichung (3.70) ergibt sich für eine Laserleistungsdichte von  $20 \text{ MW/cm}^2$ ,  $\tau_p = 3 \text{ ns}$  und  $\sigma^{(2)} = \sigma_0^{(2)} g(0) G^{(2)} = 1 \times 10^{-53} \text{ m}^4 \text{ s}^{-1}$  ( $G^{(2)} = 2$ , Absorptionslinienbreite  $0.5 \text{ cm}^{-1}$ ) eine Entleerung des Grundzustands  $(N_2/N_0) = 10^{-3}$ , womit für Xenon bei  $1 \text{ Pa}$  eine mittlere Elektronendichte der Größenordnung  $\mathcal{O}(N_e = N_+) = 10^{17} \text{ m}^{-3}$  folgt, und somit die dissoziative Rekombination für  $\mathcal{O}(\alpha) = 10^{-12} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$  im Bereich von  $1$  bis  $100 \text{ Pa}$  auf Zeitskalen zwischen  $\sim 10 \mu\text{s}$  und  $100 \text{ ns}$  abläuft. Die Amplitude der Komponente hängt neben dem Verhältnis  $N_e/N_2$  noch von den Besetzungszahlverteilungen der durch die Rekombination besetzten Zustände des  $6p$  Multipletts sowie von der hier nicht berücksichtigten Diffusion von Elektronen aus dem Detektionsvolumen ab und kann nur schwer abgeschätzt werden. Aufgrund des späten Auftretens der zweiten Komponente, dem daraus resultierenden geringen Einfluß, und den Schwierigkeiten des nach der obigen Darstellung erwarteten nicht-exponentiellen Verlaufs wurde von einer weiteren Analyse abgesehen, und es wurden für alle Zustände nur die schnellen Komponenten bei der Bestimmung der Lebensdauern berücksichtigt.

Ein schwerwiegenderes Problem stellt das mögliche Auftreten von ASE in dem vorliegenden Versuchsaufbau dar. Aufgrund der verhältnismäßig großen Dimensionen der zur Verfügung stehenden Kaltgaszelle mit einer Weglänge von etwa  $20 \text{ cm}$  vom Detektionsvolumen zu den jeweiligen optischen Ausgängen kann auch bei niedrigen Drücken und defokussierten Einstellungen die Verstärkungslänge für den Schwellwert zum Entstehen von ASE nach Gleichung (3.72) überschritten werden. Um das Fokusvolumen der höchsten auftretenden Laserpulsleistungsdichten auszublenden, wurde der Laserstrahl etwa  $5 \text{ cm}$  nach dem Detektionsvolumen blockiert. Alekseev und Setser [55] weisen darauf hin, daß in ihren Experimenten mit Laserleistungen von nur  $20 \text{ kW}$  bei Drücken von etwa  $7 \text{ Torr}$  bereits in nicht-fokussierten Versuchsgeometrien





**Abbildung 4.9.:** Absorptionsprofil bei Anregung des  $6p'[3/2]_2$  Zustands bei einem Xenon Druck von 25 Pa.

noch ASE bei Anregung einiger Zustände des  $6p'$  und  $7p$  Multipletts nachzuweisen war. Eine experimentelle Untersuchung der Schwellwerte der Laserpulsleistungsdichten für das Auftreten von ASE, welche eine zusätzliche Detektion der Fluoreszenzstrahlung kollinear zur Anregungsrichtung erfordert [32, 46, 55] war mit den Mitteln der vorliegenden Arbeit nicht möglich. In der Untersuchung der Übergangsraten für *state-to-state* Stöße wurden von Whitehead et al. [32], in ihren Messungen geringere Leistungsdichten von  $\sim 4 \text{ MW/cm}^2$  zur Vermeidung von ASE Effekten verwendet, wobei allerdings weitaus größere Druckbereiche (typischerweise 5 – 50 Torr) abgedeckt wurden. Aufgrund der Komplexität der Thematik ist nicht auszuschließen, daß ASE noch einen Einfluß auf die hier bestimmten Übergangsraten besitzt.

### Relative Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitte

Zur Beurteilung der Effizienz eines TALIF-Schemas sind der Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitt und das *branching ratio* des selektierten Fluoreszenzübergangs entscheidende Größen. Die Stoßdeaktivierung zwischen angeregten- und Grundzustandsatomen ist bei der Anwendung im Freistrahls des RIT-10 Triebwerks aufgrund der geringen Teilchendichten nicht von Bedeutung, währenddessen kann die Eigenemission des Freistrahlasplasmas als Fluoreszenzhintergrund eine Rolle spielen [56].

Im folgenden wurden für jeweils ein Paar von Zuständen des  $6p$  und des  $6p'$  Multipletts die Verhältnisse der Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitte bestimmt. Ändert sich die Querschnittsfläche des Detektionsvolumens zwischen den jeweiligen Messungen nicht, dann folgt unter Beachtung von Gleichung (3.17) für das Verhältnis der Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitte zweier Übergänge

$$\frac{\sigma_{0,I}^{(2)}}{\sigma_{0,II}^{(2)}} = \frac{g(\omega)_{II} \left( \frac{A_{21}}{A+Q} \right)_{II} S_I D_{II} \omega_I^2 E_{II}^2}{g(\omega)_I \left( \frac{A_{21}}{A+Q} \right)_I S_{II} D_I \omega_{II}^2 E_I^2}. \quad (4.2)$$

#### 4. TALIF-Studie an neutralem Xenon in einer statischen Kaltgaszelle

wobei die Indizes  $I$  und  $II$  die entsprechenden Größen der jeweiligen Übergänge bezeichnen. Werden weiterhin keine Veränderungen an der Meßelektronik vorgenommen, so reduzieren sich die Korrekturen im Verhältnis der Kalibrierkonstanten  $D$  auf die Quanteneffizienzen des Photomultipliers für die verschiedenen Fluoreszenzwellenlängen sowie das Verhältnis der Transmissionen der jeweiligen Interferenzfilter [22, 30].

Für die Untersuchungen in diesem Abschnitt wurde die Laserpulsleistungsdichte durch eine weitere Verschiebung des Detektionsvolumens vom Fokuspunkt der anregenden Laserstrahlung reduziert. Der Durchmesser des Laserstrahls im Detektionsvolumen beträgt etwa  $1400 \mu\text{m}$  bei Laserpulsenergien von  $\sim 50 \mu\text{J}$ . Der Druckbereich neutralen Xenons in der Kaltgaszelle lag zwischen 12 und 25 Pa.

Durch die verhältnismäßig lange Wegstrecke vom Ausgang des Farbstofflasers zum Detektionsvolumen von mehreren Metern trat bei der Verschiebung der Wellenlängen zwischen den jeweiligen Anregungswellenlängen ein leichter Versatz des Strahlengangs auf, der zusammen mit der chromatischen Aberration bei jeder Messung durch Nachjustierung korrigiert wurde. Zudem wurde die mittige Position des Detektionsvolumens im Ausgangsfenster der Kaltgaszelle überprüft, um eventuelle Fehler durch Abschattungseffekte zu minimieren.

Die in Tabelle 4.4 angegebenen gemessenen relativen Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitte sind die Mittelwerte von sieben für  $\sigma_{0,6p[1/2]_0}^{(2)}/\sigma_{0,6p[3/2]_2}^{(2)}$  bzw. zehn für  $\sigma_{0,6p'[1/2]_0}^{(2)}/\sigma_{0,6p'[3/2]_2}^{(2)}$  unabhängigen paarweisen Messungen der zugehörigen Fluoreszenzen. Eine einzelne paarweise Messung wurde in den Schritten

- Einstellung des Drucks in der Kaltgaszelle auf 12 bis 25 Pa neutralen Xenons
- Einstellung der Wellenlänge  $\lambda_I$ , Überprüfung des räumlichen Profils des Laserstrahls
- Einstellung der Defokussierung des Detektionsvolumens
- Einsetzen des Interferenzfilters, räumliche Justierung der Detektionsoptik auf die Position maximaler Fluoreszenzintensität
- Spektrale Messung der laserinduzierten Fluoreszenz  $S_I$
- Einstellung der Wellenlänge  $\lambda_{II}$ , Überprüfung des räumlichen Profils des Laserstrahls
- Korrektur der chromatischen Aberration zwischen den Wellenlängen  $\lambda_I$  und  $\lambda_{II}$  im Abstand zwischen Laserfokussierungsoptik und Detektionsvolumen
- Einsetzen des Interferenzfilters, räumliche Justierung der Detektionsoptik auf die Position maximaler Fluoreszenzintensität
- Spektrale Messung der laserinduzierten Fluoreszenz  $S_{II}$
- Entleerung der Zelle für die folgende Messung

durchgeführt.

Abbildung 4.9 zeigt das spektrale Absorptionsprofil bei Anregung des  $6p'[3/2]_2$  Zustands, jeder Wellenlängenschritt entspricht einer Akkumulierung von 30 Einzelpulsen. Es wird eine gute Übereinstimmung mit einem Voigt-Profil beobachtet. Die Dopplerverbreiterung beträgt für die

## 4.2. Ergebnisse der Untersuchung verschiedener TALIF-Schemen

hier untersuchten Zwei-Photonen-Übergänge nur etwa  $0.09 \text{ cm}^{-1}$ , daher wird der lorentzförmige Anteil als Beitrag der spektralen Linienbreite des Lasers gedeutet. Bereits im vorangegangenen Abschnitt wurde festgestellt, daß der Farbstofflaser in der vorliegenden Konfiguration einer lorentzverbreiterten Profilform genügt. Dies steht im Gegensatz zu früheren Arbeiten [22, 139], in denen ein Excimer-Laser als Pump laser ( $\tau_p = 13.9 \text{ ns}$ ) verwendet wurde. Niemi et al. [21], äußern in ihren Experimenten die Vermutung, daß eine deutlich reduzierte Pulsdauer des Pump lasers, verbunden mit einer reduzierten Anzahl an Umläufen des Laserpulses im Resonator des Farbstofflasers, der Grund für die Ausprägung eines lorentzförmigen Laserprofils ist. Es kann jedoch nicht ausgeschlossen werden, daß auch Sättigungsphänomene in Zusammenhang mit Abweichungen vom quadratischen Regime zwischen der Fluoreszenz und der Laserpulsenergie zu einer Beeinflussung der Linienform führen, wie weiter unten erläutert wird.

Zum Fit der Meßdaten wird ein empirischer analytischer Ausdruck [95]

$$g(\omega) = c_L \frac{1}{\pi} \frac{\Delta\omega_V/2}{(\omega - \omega_0)^2 + (\Delta\omega_V/2)^2} + c_G \frac{2\sqrt{\ln 2}}{\sqrt{\pi}\Delta\omega_V} e^{-\frac{4 \ln 2 (\omega - \omega_0)^2}{\Delta\omega_V^2}} \quad (4.3)$$

für die Auswertung der detektierten spektralen Linienformen verwendet, worin der lorentz- und der gaußförmige Anteil mit den Koeffizienten

$$c_L = 0.68188 + 0.61293d - 0.18384d^2 - 0.11568d^3 \quad (4.4)$$

und

$$c_G = 0.32460 - 0.61825d + 0.17681d^2 + 0.12109d^3 \quad (4.5)$$

mit dem Parameter

$$d = \frac{\Delta\omega_L - \Delta\omega_D}{\Delta\omega_L + \Delta\omega_D} \quad (4.6)$$

gewichtet werden.  $\Delta\omega_V$  bedeutet hier die volle Halbwertsbreite (FWHM) des Profils, ihr Zusammenhang zu den Dopplerbite  $\Delta\omega_D$  des Absorptionsübergangs und der Laserbreite  $\Delta\omega_L$  nach [135] durch

$$\Delta\omega_V = 0.5346\Delta\omega_L + \sqrt{0.2166\Delta\omega_L^2 + \Delta\omega_D^2} \quad (4.7)$$

gegeben. Aufgrund der Addition der Linienbreiten bei der Faltung zweier Lorentzprofile des Terms  $g_L * g_L$  aus Gleichung (3.22) entspricht die Linienbreite des frequenzverdoppelten Lasers  $\Delta\omega_L/2$ .

Eine wichtige Voraussetzung zur quantitativen Ermittlung von Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitten ist die Unterdrückung von Effekten, die mit der laserinduzierten Fluoreszenz konkurrieren, was durch die Einhaltung der quadratischen Abhängigkeit des laserinduzierten Fluoreszenzsignals von der Laserpulsenergie,  $S \propto E^2$  (Gleichung 3.17), sichergestellt werden kann.

Die gemessenen Abhängigkeiten  $S(E)$  für die  $6p[1/2]_0$  und  $6p[3/2]_2$  Zustände sind in Abbildung 4.10 in doppelt-logarithmischer Darstellung gezeigt. Die Variation der Laserenergie

#### 4. TALIF-Studie an neutralem Xenon in einer statischen Kaltgaszelle

	$\sigma_{0,6p[1/2]_0}^{(2)}/\sigma_{0,6p[3/2]_2}^{(2)}$	$\sigma_{0,6p'[3/2]_2}^{(2)}/\sigma_{0,7p[3/2]_2}^{(2)}$	$\sigma_{0,6p'[1/2]_0}^{(2)}/\sigma_{0,6p'[3/2]_2}^{(2)}$
Diese Arbeit	3.5 <sup>a</sup>		1.1 <sup>b</sup>
Kröll und Bischel [53]	2.9 <sup>c</sup>		
Gornik et al [50]	9 <sup>d</sup>		
Raymond et al [51]	9.6 <sup>a</sup>		
Alekseev & Setser [55]	2	1.7	1.2
Niemi et al [21]		5.3 <sup>e</sup>	

**Tabelle 4.4.:** Relative Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitte, verglichen mit den Resultaten anderer Forschungsgruppen.

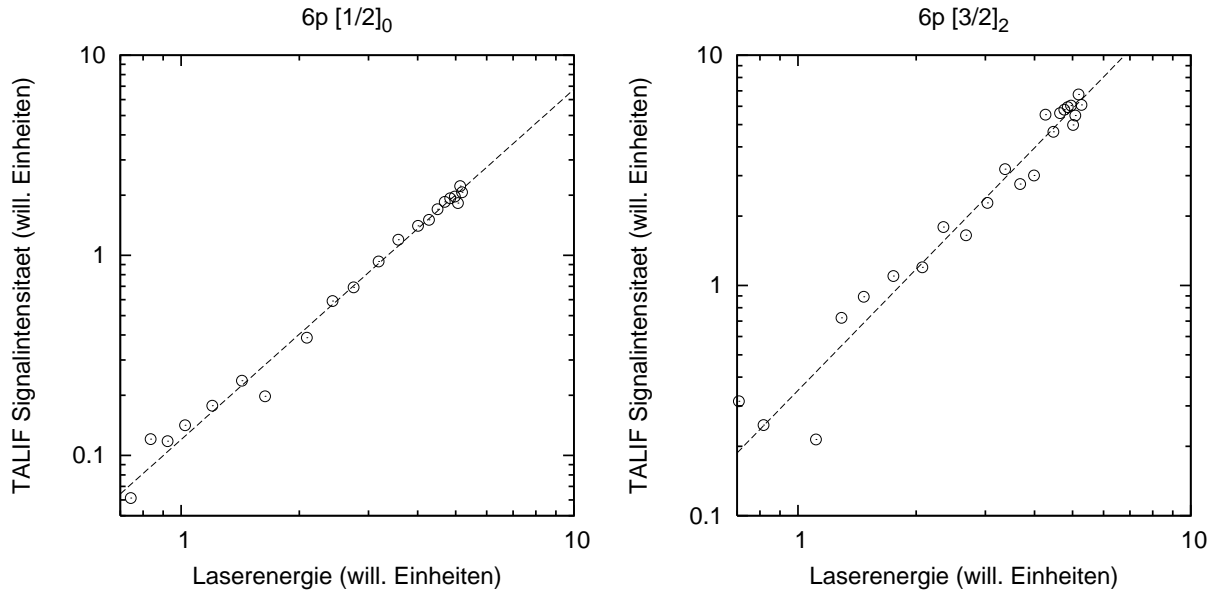
<sup>a</sup> Unsicherheit 50%

<sup>b</sup> Unsicherheit Faktor 2-3

<sup>c</sup> Unsicherheit 30%

<sup>d</sup> Unsicherheit 20%

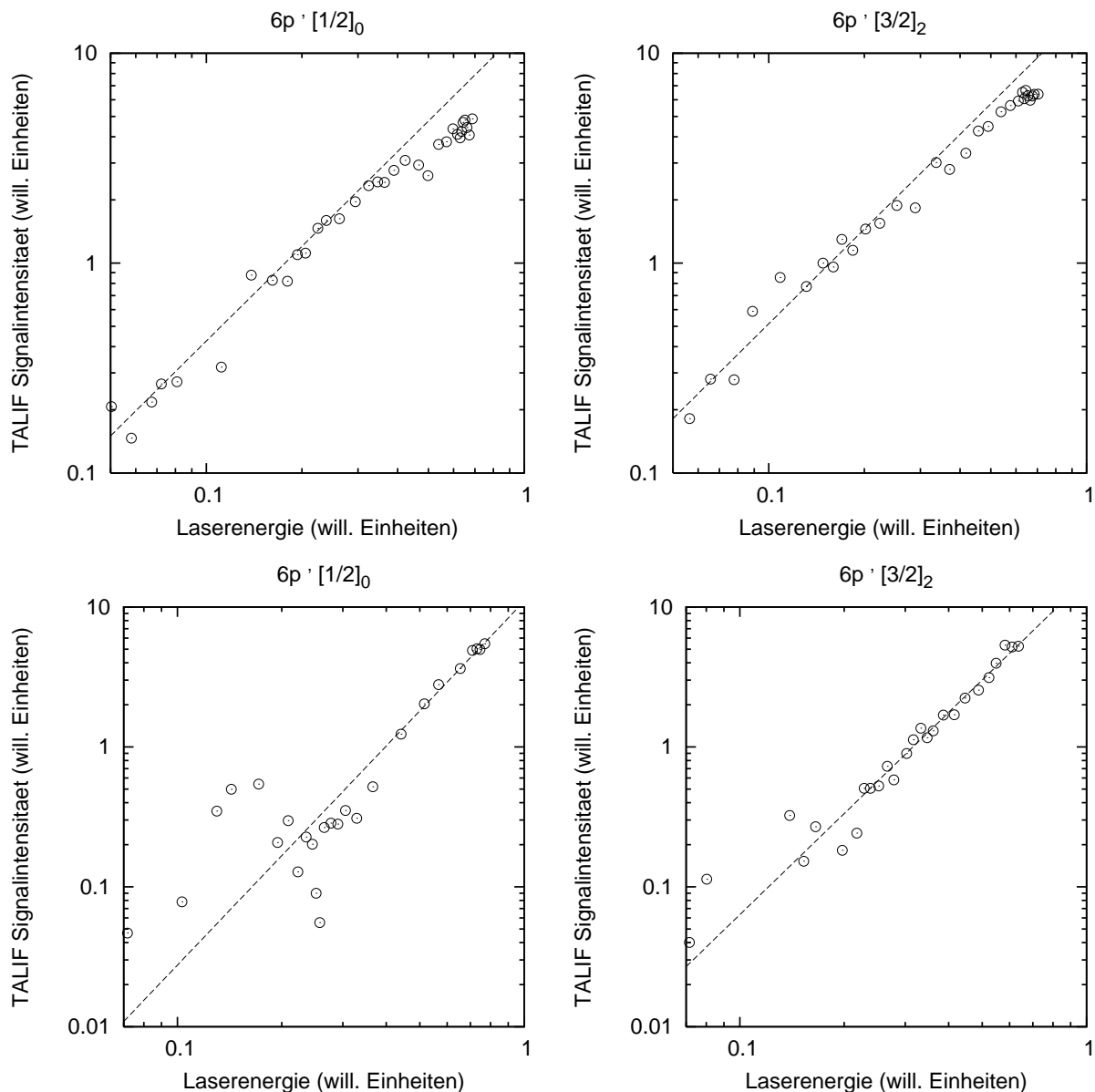
<sup>e</sup> berechnet aus den Daten in [20] und [21]



**Abbildung 4.10.:** Messung der  $S(E)$  Abhängigkeit für die Zustände  $6p[1/2]_0$  (links) und  $6p[3/2]_2$  (rechts). Die eingezeichneten Geraden entsprechen einem Zusammenhang  $S \propto E^{1.75}$ .

wurde durch eine variable Blockung von Teilen des Pumpstrahls des Nd:YAG Lasers in die Hauptverstärkerküvette des Farbstofflasers erzeugt. Jeder Punkt entspricht einer Mittelung der Fluoreszenz von 40 Einzelpulsen auf dem spektralen Maximum der jeweiligen Zwei-Photonen-Resonanz. Die geschätzte maximale mittlere Laserpulsleistungsdichte liegt in diesem Experiment bei  $4 \text{ MW/cm}^2$ . Die Steigung der eingezeichneten Geraden beträgt 1.75 anstelle von 2, was einen möglichen systematischen Fehler in der Bestimmung der Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitte zur Folge hat. Die Messung der relativen Absorptionsquerschnitte erfolgt bei einer geschätzten Laserpulsleistungsdichte von  $2 \text{ MW/cm}^2$ . Dies ist vergleichbar mit der in Gornik et al. verwendeten Laserpulsleistungsdichte von  $1.8 \text{ MW/cm}^2$ , welche für ihre Experimente eine Laserlinienbreite von  $1.8 \text{ GHz}$  angeben [50]. Kröll und Bischel [53] finden bei

## 4.2. Ergebnisse der Untersuchung verschiedener TALIF-Schemen



**Abbildung 4.11.:** Messung der  $S(E)$ -Abhängigkeit für die Zustände  $6p'[1/2]_0$  (links) und  $6p'[3/2]_2$  (rechts), durch partielle Blockung des Nd:YAG Pumpstrahls in die Hauptverstärkerküvette des Farbstofflasers (oben) und partieller Dejustierung (Rotation) der Frequenzverdopplungskristalle (unten). Die eingezeichneten Geraden entsprechen einem Zusammenhang  $S \propto E^{1.5}$  (oben),  $S \propto E^{2.4}$  (unten links) und  $S \propto E^{2.6}$  (unten rechts).

einer Anregungsenergie von  $100 \mu\text{J}$  und einem Querschnittsdurchmesser von  $1600 \mu\text{m}$  bei der Untersuchung der Zustände des  $6p$  Multipletts die korrekte Potenz 2 mit einer Abweichung von maximal 5%, geben aber die in ihrem Experiment vorhandene Laserpulsdauer nicht explizit an.

Unter Verwendung der *branching ratios* von 0.998 für die Fluoreszenz bei  $828.0 \text{ nm}$  und 0.70 bei  $823.2 \text{ nm}$  nach Horiguchi et al. [33], wird im vorliegenden Experiment das Verhältnis  $\sigma_{0,6p[1/2]_0}^{(2)}/\sigma_{0,6p[3/2]_2}^{(2)} = 3.5$  ermittelt. Dabei wurde über die jeweiligen Absorptionslinien spektral integriert. Dieser Wert liegt nahe der Messung von Kröll und Bischel; für die Diskrepanz der Werte zwischen Kröll und Bischel, und Gornik et al. gibt es keine zufriedenstellende Er-

#### 4. TALIF-Studie an neutralem Xenon in einer statischen Kaltgaszelle

klärung [53]. Die ermittelten frequenzverdoppelten Laserbreiten betragen  $0.27 \text{ cm}^{-1}$  für den  $6p[1/2]_0$  und  $0.29 \text{ cm}^{-1}$  für den  $6p[3/2]_2$  Zustand. Dieser kleine Unterschied ist möglicherweise eine spektrale Eigenschaft des verwendeten Farbstoffs (Coumarin 307). Kröll und Bischel beobachteten eine Verbreiterung der Absorptionslinie um 15% zur längeren Anregungswellenlänge des  $6p[5/2]_2$  Zustands, verwendeten jedoch Frequenzmischung in einem langwelligeren Spektralbereich [53]. Das Transmissionsverhältnis der verwendeten Filter wurde mit Hilfe einer Xenon Pen-Ray Lampe (LOT-Oriel) und eines Spektrometers direkt für beide Wellenlängen gemessen. Der Fehler (statistischer Fehler der Einzelmessungen, Unsicherheiten in der Transmission der Filter) wird auf 50% geschätzt. Eine Abschätzung des systematischen Fehlers aus der Abweichung von der  $S \propto E^2$ -Relation erfordert die Kenntnis der Grenzwerte der Laserpulsleistungsdichte für die Sättigung beider Zustände und ist daher nicht möglich. Der Unterschied im Energieterm  $(E_I/E_{II})^n$  beträgt in den vorliegenden Messungen nur etwa 1% für eine Anpassung von  $n = 2.0$  auf  $n = 1.75$ .

Für das Verhältnis  $\sigma_{0,6p'[1/2]_0}^{(2)}/\sigma_{0,6p'[3/2]_2}^{(2)}$  wurde ein Wert von 1.1 ermittelt, wobei *branching ratios* von 0.62 für die Detektion der Fluoreszenz bei 788.7 nm und 0.73 bei 834.7 nm zugrunde gelegt wurden [33]. Die Verwendung der Werte aus Sommerville et al. [59] führt nur zu vernachlässigbaren Änderungen. Der obere Teil der Abbildung 4.11 verdeutlicht die mögliche Beeinflussung dieses Resultats durch Sättigungsphänomene. Trotz der untersuchten geringen Laserpulsleistungsdichte im Bereich von maximal  $4 \text{ MW/cm}^2$  wurde für  $S(E)$  eine deutlich kleinere als die quadratische Abhängigkeit gemessen. Es wurde alternativ versucht, die  $S(E)$ -Relation durch Dejustierung (Rotation) der Frequenzverdopplungskristalle (BBO und Strahlversatzkompensation) zu überprüfen. Wie der untere Teil von Abbildung 4.11 zeigt, tritt hierbei eine Potenz deutlich größer 2 auf, welche jedoch vermutlich von Änderungen im räumlichen Profil des Laserstrahls beeinflusst ist und daher nicht verlässlich erscheint. Das unter den vorgegebenen Bedingungen bestimmte Verhältnis liegt in guter Übereinstimmung dem Wert von Alekseev und Setser [55] (Tabelle 4.4), welche jedoch die Messung der quadratischen Abhängigkeit in ihrer Publikation nicht beschreiben. Die frequenzverdoppelten Laserbreiten liegen mit  $0.30 \text{ cm}^{-1}$  für die Anregungswellenlänge des  $6p'[1/2]_0$  Zustands und  $0.32 \text{ cm}^{-1}$  für die Anregungswellenlänge des  $6p'[3/2]_2$  Zustand etwas höher als für die Zustände des  $6p$  Multipletts, für eine Anpassung der Potenz von  $n = 2.0$  auf  $n = 1.5$  variiert der oben genannte Wert des relativen Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitts um 10%. Der gesamte Fehler des relativen Absorptionsquerschnitts wird, aufgrund der Unsicherheiten in Zusammenhang mit Sättigungsphänomenen, auf einen Faktor 2 – 3 geschätzt.

Es ist möglich, daß trotz der kleinen hier verwendeten Laserpulsleistungsdichten ASE zu den dargestellten Abweichungen von der  $S \propto E^2$  Beziehung führt, da die komplette Wegstrecke des Laserstrahls in der Zelle zur Verstärkungslänge in Gleichung (3.72) beiträgt, wobei aufgrund der Fokussierung die Leistungsdichte entlang des Weges nicht konstant ist. Für künftige Experimente ist es vorteilhaft, eine möglichst kleine Fluoreszenzzelle zu verwenden (vgl. auch die Untersuchungen in [55]). Möglicherweise trägt ASE auch zu einer Veränderung bzw. Verbreiterung der hier gemessenen Absorptionslinienprofile bei. Bemerkenswerterweise wurde von Alekseev und Setser [55] festgestellt, daß in ihren Messungen ASE auf die relativen Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitte innerhalb des  $6p$  Multipletts nur einen verhältnismäßig kleinen Einfluß hatte, wobei eine Verallgemeinerung dieses Umstandes auf andere Energieniveaus jedoch fragwürdig ist.

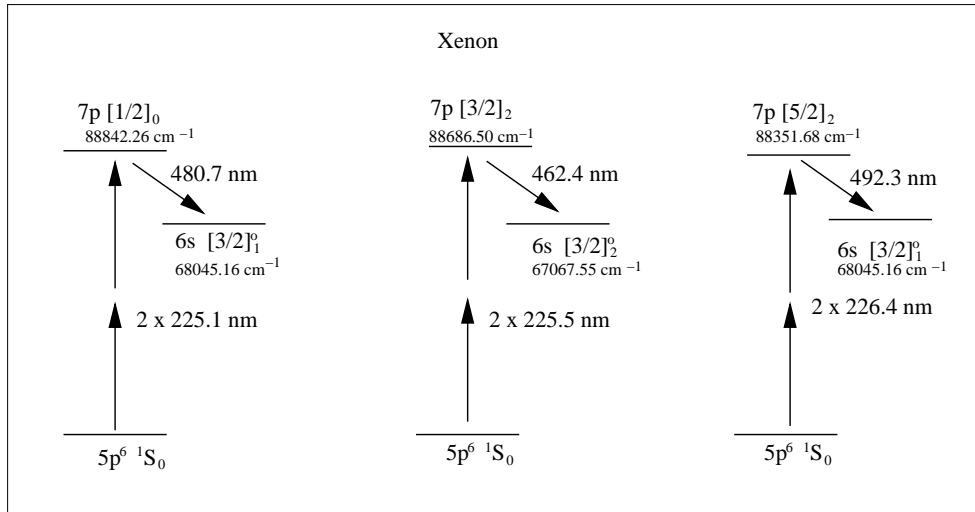


Abbildung 4.12.: TALIF Schemen für die Anregung der  $J = 0, 2$  Zustände des  $7p$  Multipletts.

Hinsichtlich der Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitte und der *branching ratios* der jeweils betrachteten Fluoreszenzübergänge sind die TALIF Schemen unter Verwendung der Anregung der  $6p'[1/2]_0$  und  $6p'[3/2]_2$  Zustände in ihrer Effizienz gleichberechtigt. Eine Bevorzugung eines Schemas kann sich nach der Eigenemission des untersuchten Plasmas auf der jeweiligen Fluoreszenzwellenlänge, sowie den Effizienzen der verwendeten Detektoren und der Transmission und Bandbreite der zur Verfügung stehenden Interferenzfilter richten. Gegenüber dem von Crofton [56], verwendeten TALIF Schema mit Anregung des  $7p[3/2]_2$  Zustands läßt sich mit den Daten aus Niemi et al. [20, 21] das Verhältnis  $\sigma_{0,6p'[3/2]_2}^{(2)}/\sigma_{0,7p[3/2]_2}^{(2)} = 5.3$  bestimmen, wobei Alekssev und Setser unter ihren experimentellen Bedingungen allerdings einen niedrigeren Wert von 1.7 finden [55]. Beide Schemen sind daher als vorteilhaft gegenüber der von Crofton verwendeten Anregung des  $7p[3/2]_2$  Zustands zu betrachten. Die Anwendung beider Schemen im Freistrahlfeld des RIT-10 wird im Kapitel 5.3 beschrieben. Es wird noch angemerkt, daß die Anregung des  $6p[1/2]_0$  Zustands eine weitere sinnvolle Alternative darstellt, so läßt sich das Verhältnis  $\sigma_{0,6p[1/2]_0}^{(2)}/\sigma_{0,6p'[3/2]_2}^{(2)} \sim 2$  indirekt aus den Werten in [21, 53, 91] ableiten, wird aber aufgrund der deutlich höheren Eigenemission des Freistrahls bei 828.0 nm gegenüber 788.7 nm für die in dieser Arbeit betrachteten Testbedingungen des RIT-10 nicht weiter verfolgt.

### 4.2.2. $7p$ Multiplett

Die Fluoreszenzen nach Anregung des  $7p[1/2]_0$  Zustands wurde unter Verwendung von Interferenzfiltern bei 480.7 nm (ZWL 481.4 nm, FWHM 9.1 nm), nach Anregung des  $7p[3/2]_2$  Zustands bei 462.4 nm (ZWL 460.7 nm, FWHM 9.7 nm) detektiert. Die zugehörigen Stern-Volmer Plots sind in Abbildung 4.13 gezeigt. Die natürlichen Lebensdauern und Stoßdeaktivierungskoeffizienten liegen in akzeptabler Übereinstimmung mit Literaturwerten (Tabelle 4.5), wobei bei den natürlichen Lebensdauern wiederum eine systematische Erhöhung gegenüber Vergleichsmessungen mit laserinduzierter Fluoreszenz beobachtet wird (siehe vorangegangener Abschnitt). Es treten keine eindeutigen Hinweise auf eine zweite Komponente auf (Abbildung 4.14), allerdings sind Bereiche  $> 2\tau_{\text{eff}}$  von elektronischen Störungen überlagert und eine quantitative Analyse sehr schwierig.

#### 4. TALIF-Studie an neutralem Xenon in einer statischen Kaltgaszelle

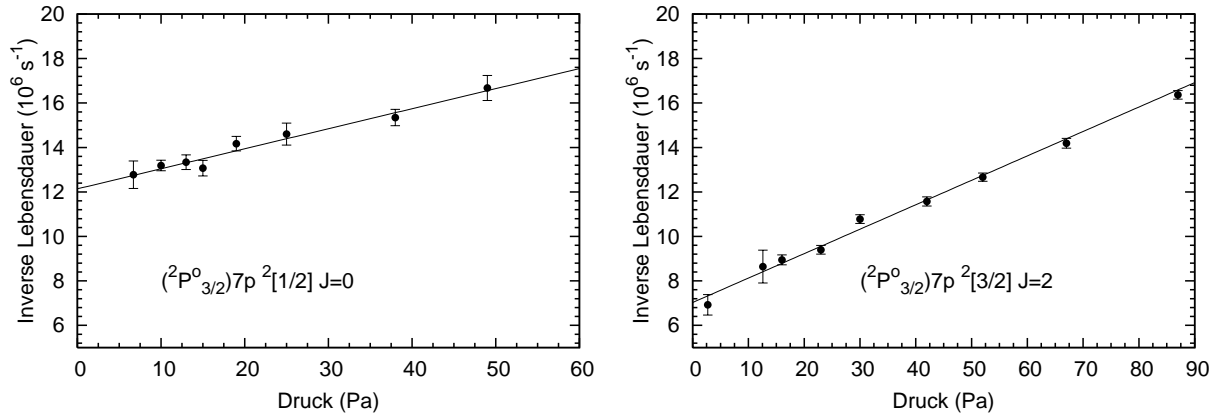


Abbildung 4.13.: Stern-Volmer Plots für zwei angeregte Zustände des 7p Multipletts.

	$7p[1/2]_0$	$7p[3/2]_2$	$7p[1/2]_0$	$7p[3/2]_0$
<i>Experimentelle Werte</i>				
Diese Arbeit	$82 \pm 4$	$142 \pm 7$	$373 \pm 64$	$454 \pm 51$
<sup>a</sup> Bruce et al [31]	$69.1 \pm 1.3$	$105.3 \pm 2.9$	$493 \pm 8$	$522 \pm 8$
<sup>a</sup> Whitehead et al [32]	$63.6 \pm 4.9$	$108.0 \pm 2.1$		
<sup>a</sup> Niemi et al [20]		$105.6 \pm 7.7$		$505 \pm 18$
<sup>a</sup> Goehlich et al [30]		123		630
<sup>a</sup> Alekseev & Setser [55]		$100 \pm 10$		$450 \pm 50$
<sup>b</sup> Inoue et al [105]	$62 \pm 3$			
	$65 \pm 2$	$115 \pm 3$		
<sup>a</sup> McGee et al [107]	$61 \pm 3$	$92 \pm 4$	$210 \pm 20$	$210 \pm 20$
<sup>b</sup> Horiguchi et al [33]		$120 \pm 12$		
<sup>c</sup> Allen et al [39]	$87 \pm 5$	$152 \pm 12$	$417 \pm 108$	$282 \pm 70$
<sup>c</sup> Das & Karmakar [44]	$67.8 \pm 5.1$	$114.1 \pm 8.5$		
<sup>c</sup> Verolainen & Osherovic [40]	$115 \pm 9$	$203 \pm 15$		
<sup>c</sup> Jimenez et al [38]	$107 \pm 8$	$107 \pm 9$		
<sup>d</sup> Chenevier & Nguyen [45]		$155 \pm 5$		
<sup>c</sup> Karimov & Klimkin [178]	$77 \pm 3$	$150 \pm 10$		
<i>Theoretische Werte</i>				
<sup>e</sup> Aymar & Coulombe [41]	60.1	75.0		
<sup>f</sup> Aymar & Coulombe [41]	74.6	115		
Loginov & Gruzdev [42]	153	100		

Tabelle 4.5.: Natürliche Lebensdauern (in ns, linke Seite) und bimolekulare Stoßdeaktivierungskoeffizienten ( $T = 300$  K) für Zustände des 7p Multipletts in Xenon ( $10^{-12} \text{cm}^3 \text{s}^{-1}$ , rechte Seite), im Vergleich mit anderen Forschungsgruppen.

<sup>a</sup> gemessen durch Zwei-Photonen laserinduzierte Fluoreszenz

<sup>b</sup> gemessen durch Ein-Photonen laserinduzierte Fluoreszenz

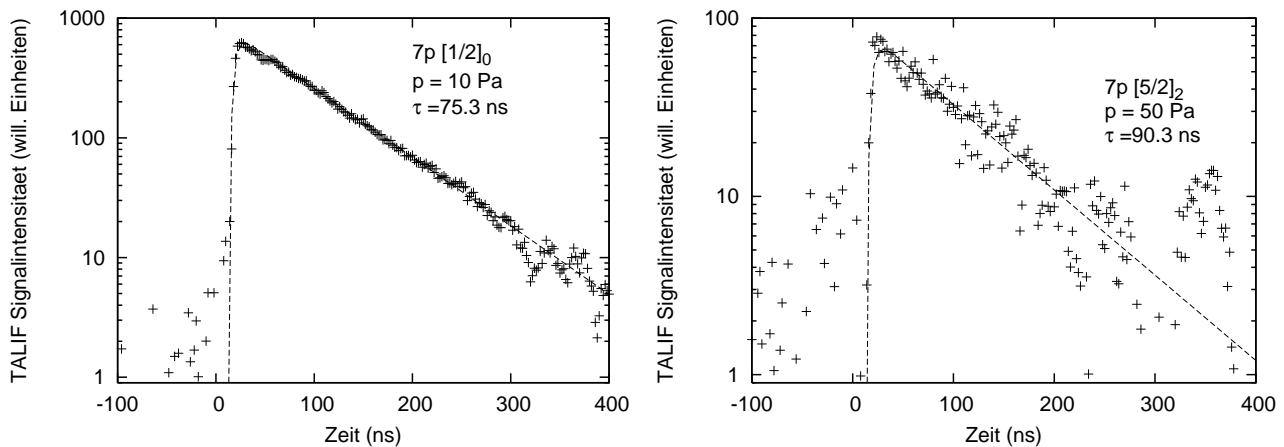
<sup>c</sup> gemessen durch gepulste Elektronenstoßanregung (delayed coincidence)

<sup>d</sup> gemessen durch gepulste Elektronenstoßanregung/Brosel Effekt

<sup>e</sup> berechnet in räumlicher Darstellung

<sup>f</sup> berechnet in Geschwindigkeitsdarstellung





**Abbildung 4.14.:** Zeitaufgelöste laserinduzierte Fluoreszenz nach Anregung des  $7p[1/2]_0$  Zustands (links) und des  $7p[5/2]_2$  Zustands (rechts).

Die Fluoreszenz nach Anregung des  $7p[5/2]_2$  Niveaus wurde bei 492.3 nm detektiert (Interferenzfilter ZWL 488.3 nm, FWHM 8.9 nm, Thorlabs), wurde aber nur in einem Druckbereich  $> 50 \text{ Pa}$  untersucht. Aufgrund der kleinen *branching ratios* für die von diesem Zustand ausgehenden Fluoreszenzkanäle im sensitiven Bereich des hier verwendeten Photomultipliers und der damit verbundenen geringen Fluoreszenzintensitäten erscheint dieser Zustand für die plasmadiagnostischen Ziele dieser Arbeit eher ungeeignet und wurde daher nicht weiter analysiert.

Der quantitative Vergleich der TALIF-Signalintensitäten zwischen Zuständen des  $7p$ -Multipletts zur Bestimmung relativer Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitte erwies sich als problematisch. Einige Versuche, das  $S \propto E^2$ -Regime nach Anregung des  $7p[3/2]_2$  Zustands nachzuweisen, waren nicht erfolgreich, die dabei gemessenen Potenzen waren deutlich kleiner als für die  $6p$  und  $6p'$  Zustände. Qualitativ wurden bei vergleichbaren Laserpulsleistungsdichten kleinere TALIF-Signalintensitäten gegenüber den Zuständen des  $6p'$  Multipletts beobachtet, dies legt entweder den früheren Eintritt des  $7p[3/2]_2$  Zustands in die Sättigung nahe oder kann durch den von Niemi et al. [20, 21] gemessenen höheren Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitt des  $6p'[3/2]_2$  Zustands begründet werden. Beide Fälle stellen die Verwendung eines TALIF Schemas mit Anregung des  $7p[3/2]_2$  Zustands nachteilig gegenüber der Anregung der  $6p'$ -Zustände dar, weswegen die plasmadiagnostischen Untersuchungen im Freistrahls des RIT-10 auf die Zustände des  $6p'$  beschränkt wurden.

### 4.2.3. $8p$ und $5f$ Multipletts

Die energetische Lage der  $np, n \geq 8$  und  $nf, n \geq 5$  Multipletts erfordert Zwei-Photonen-Anregungen in einem Wellenlängenbereich  $< 2 \times 218 \text{ nm}$ . Der Vielzahl an Untersuchungen der natürlichen Lebensdauern und Stoßtransferraten der Zustände der  $6p$ ,  $6p'$  und  $7p$  Multipletts steht eine vergleichsweise geringe Zahl insbesondere an laserspektroskopischen Untersuchungen dieser Niveaus gegenüber. Das Auftreten von ASE nach Anregung von  $J = 0, 2$  Zuständen der  $8p$  und  $4f$  Multipletts wird qualitativ in [46] behandelt, weitere Arbeiten umfassen Prozesse in Verbindung mit assoziativer Ionisation nach der Zwei-Photonen-Anregung hochenergetischer Zustände in neutralem Xenon [47, 49] und REMPI über  $nf$ -Zustände [141]. Im Vordergrund

#### 4. TALIF-Studie an neutralem Xenon in einer statischen Kaltgaszelle

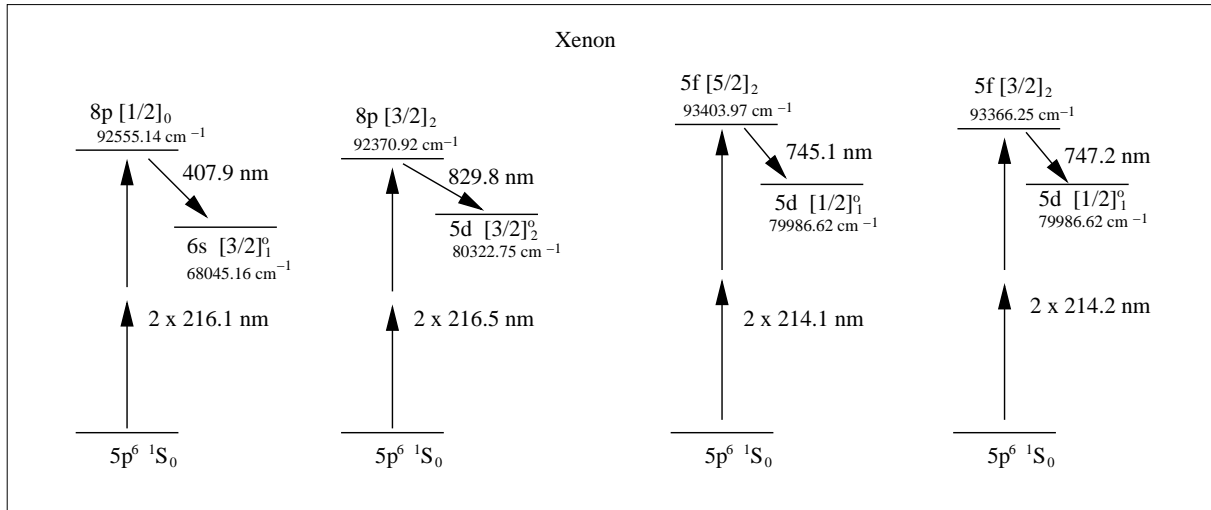


Abbildung 4.15.: TALIF Schemen für einige Zustände der 8p und 5f Multipletts.

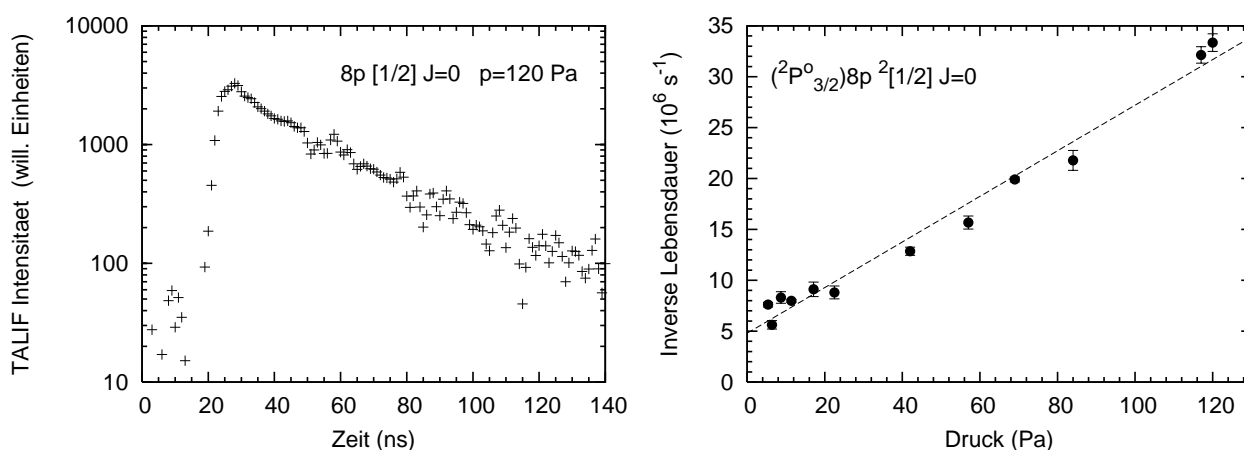
des Interesses der hier dargelegten Untersuchungen steht hingegen die Frage, inwieweit sich diese Zustände als mögliche Kandidaten zur Kalibrierung der Zwei-Photonen-Resonanzen des  $3p \ ^4D_{1/2, \dots, 7/2}^o$  Multipletts in atomarem Stickstoff nahe  $2 \times 211$  nm eignen (siehe Abbildung 3.8).

Eine Schwierigkeit für die Zwei-Photonen-Spektroskopie an hochliegenden Energieniveaus in neutralem Xenon ergibt sich aus den geringen energetischen Abständen der Energielevel der jeweiligen Multipletts; so liegen der niedrigste und der höchste der acht Zustände des 5f Multipletts nur etwa  $60 \text{ cm}^{-1}$  voneinander getrennt. Die in der Folge spektral eng benachbarten Fluoreszenzlinien können bei der Detektion zu gegenseitiger Überlagerung durch *line blending* führen, da trotz zustandselektiver Anregung durch Laserstrahlung mit hinreichend kleiner spektraler Bandbreite Stoßtransferreaktionen in der Bevölkerung benachbarter Zustände resultieren können. Aufgrund des Mangels in der Datenlage der zur Verfügung stehenden *branching ratios* der jeweiligen Fluoreszenzkanäle kann der quantitative Einfluß störender *line blendings* vielfach nicht abgeschätzt werden. Im folgenden wurde versucht, durch den Einsatz möglichst schmalbandiger Interferenzfilter Einflüsse durch *line blending* so weit wie möglich zu minimieren.

Für alle in diesem Abschnitt besprochenen TALIF-Schemen sind die detektierten Fluoreszenzintensitäten sehr schwach im Vergleich zu den besprochenen Signalstärken der TALIF-Schemen der vorangegangenen Kapitel. Um analysierbare TALIF-Signale zu erhalten, wurden Fluoreszenzen von typischerweise 800 – 2500 Laserpulsen akkumuliert, die Messung der zeitaufgelösten Fluoreszenz erfolgte im spektralen Maximum eines zuvor durchgeführten spektralen Scans. Einige Ergebnisse der Kapitel 4.2.3 und 4.2.4 werden auch in Eichhorn et al. [187] gezeigt.

Die Fluoreszenz nach Anregung des  $8p[1/2]_0$  Zustands wurde bei der Wellenlänge von 407.9 nm detektiert, hierfür stand ein schmalbandiger Interferenzfilter bei der Zentralwellenlänge von 408.2 nm und einer Halbwertsbreite der Transmission von 3.4 nm (LOT-Oriel) zur Verfügung. Es existieren keine weiteren Übergänge in neutralem Xenon innerhalb der Halbwertsbreite der Transmission des Filters [136]. Einige Fluoreszenzkurven zeigen, wie auf der linken Seite von Abbildung 4.16 zu erkennen, einen schmalen, mit Variation des Drucks unveränderlichen Peak während und kurz nach dem Zeitpunkt der Laseranregung, der auf eine Wechselwirkung mit

## 4.2. Ergebnisse der Untersuchung verschiedener TALIF-Schemen



**Abbildung 4.16.:** Links: Zeitlich aufgelöste Fluoreszenz nach Anregung des  $8p[1/2]_0$  Zustands. Rechts: Stern-Volmer Plot für den  $8p[1/2]_0$  Zustand.

	$8p[1/2]_0$	$5f[3/2]_2$	$5f[5/2]_2$
<i>Experimentelle Werte</i>			
Diese Arbeit	$207 \pm 28$	$94 \pm 20$	$78 \pm 13$
<sup>a</sup> Verdugo et al [43]		$105 \pm 6, 99 \pm 6$	$103 \pm 7$
<sup>a</sup> Jimenez et al [38]	$171 \pm 9$		
<sup>a</sup> Verolainen & Osherovich [40]	$212 \pm 19$		
<i>Theoretische Werte</i>			
Eichhorn et al [187]	188.4	114.3	95.6
Verdugo et al [43]		91.3	98.6
Jimenez et al [38]	238		

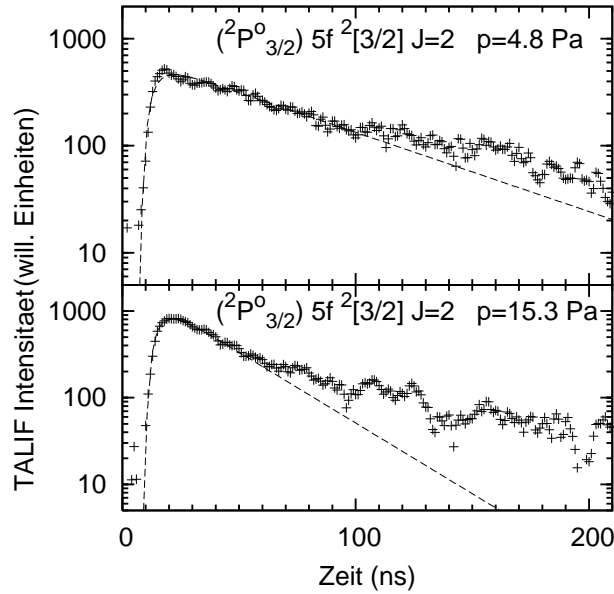
**Tabelle 4.6.:** Natürliche Lebensdauer (ns) für drei  $J = 0, 2$  Zustände der  $8p$  und  $5f$  Multipletts, im Vergleich mit anderen Forschungsgruppen.

<sup>a</sup> gemessen durch gepulste Elektronenstoßanregung (delayed coincidence)

dem Laserpuls zurückgeführt und nicht als eigenständige Komponente aufgefaßt wurde. Der zugehörige Stern-Volmer Plot ist auf der rechten Seite von Abbildung 4.16 gezeigt. Die extrapolierte natürliche Lebensdauer beträgt  $207 \pm 28$  ns, nahe dem Wert von Verolainen und Osherovich [40], siehe Tabelle 4.6. Die ermittelte Stoßabregungsrate ist  $900 \pm 240 \times 10^{-12} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ .

Eine komplizierte Situation stellt sich für die beiden untersuchten  $J=2$  Zustände des  $5f$  Multipletts dar. Abbildung 4.17 zeigt die zeitaufgelöste Fluoreszenz nach Anregung des  $5f[3/2]_2$  Zustands bei zwei verschiedenen Drücken. Die Detektion der Fluoreszenz erfolgte bei 747.2 nm und wurde mit einem schmalbandigen Interferenzfilter (ZWL 747.8 nm, FWHM 3.9 nm) separiert. Es sind deutlich zwei Komponenten zu erkennen. Eine zuverlässige Modellierung der langsamen Komponente erwies sich jedoch aufgrund der großen Unsicherheiten aufgrund ihrer schwachen Intensität als sehr schwierig und wurde nicht durchgeführt. Unter der Annahme, daß die schnelle Komponente bei vollständiger Vernachlässigung der langsamen Komponente die jeweils effektiven Lebensdauern des  $5f[3/2]_2$  Zustands näherungsweise wiedergibt, wird bei

#### 4. TALIF-Studie an neutralem Xenon in einer statischen Kaltgaszelle



**Abbildung 4.17.:** Zeitlich aufgelöste Fluoreszenzen nach Anregung des  $5f[3/2]_2$  Zustands.

linearer Extrapolation eine natürliche Lebensdauer von  $93 \pm 20$  ns ermittelt (Abbildung 4.18), in guter Übereinstimmung mit Verdugo et al. [43], (Tabelle 4.6), bei einem Stoßdeaktivierungskoeffizienten von  $6300 \pm 400 \times 10^{-12} \text{cm}^3 \text{s}^{-1}$ .

Für das Auftreten von mehrkomponentigen Abklingkurven der Fluoreszenz kommen einige Phänomene in Betracht, welche gleichzeitig systematische Fehlerquellen der dargelegten Messungen darstellen.

(1) Der Einfluß von Kaskaden aus höheren Zuständen wurde in den Experimenten mit Elektronenstoßanregung durch Verdugo et al. [43], nach Anregung einiger Zustände des  $4f$  Multipletts beschrieben. Die hier vorliegende Zwei-Photonen-Anregung ist zustandsselektiv, jedoch kann eine kaskadenartige Bevölkering der  $5f$  Zustände aus höherliegenden Energieniveaus durch Rekombination (2+1) photoionisierter Spezies nicht ausgeschlossen werden. Ein Beitrag durch *line blending* bei 750.1 nm durch Abregung des  $5d'[3/2]_2^o$  Zustands innerhalb der möglichen Kaskade  $5f[3/2]_2 \rightarrow 5d'[3/2]_2^o \rightarrow 6p[5/2]_2$  ist aufgrund der zahlreichen Verzweigungen wahrscheinlich nicht von Bedeutung.

(2) Trotz zustandsselektiver Anregung des  $5f[3/2]_2$  Zustands können energetisch benachbarte Zustände durch strahlungslosen Stoßtransfer bevölkert werden, wobei insbesondere für diesen Zustand ein außerordentlich hoher Stoßdeaktivierungskoeffizient gemessen wird. Innerhalb des Transmissionsbereichs des verwendeten Interferenzfilters werden die Linien der Übergänge  $5f[3/2]_1 \rightarrow 5d[1/2]_1^o$  bei 747.4 nm und  $5d'[5/2]_2^o \rightarrow 6p[5/2]_3$  bei 749.2 nm nahezu 1:1 mit dem gewünschten Fluoreszenzübergang  $5f[3/2]_2 \rightarrow 5d[1/2]_1^o$  bei 747.2 nm detektiert, die Übergänge  $5f[5/2]_2 \rightarrow 5d[1/2]_1^o$  bei 745.1 nm und  $5d'[3/2]_2^o \rightarrow 6p[5/2]_2$  bei 750.1 nm liegen in den steiler abfallenden Flanken und werden jeweils  $\sim 2:1$  bzw.  $6:1$  unterdrückt. Aufgrund der nicht bekannten Übergangsraten von *state-to-state-collision*-Prozessen und der - nach bestem Wissen - nicht bekannten *branching ratios* der involvierten optischen Übergänge ist eine quantitative Abschätzung der Beiträge aus *line blending* o.g. Übergänge nicht möglich. Es wird allerdings erwartet, daß sich die Stoßdeaktivierung noch auf die Bevölkering einer Vielzahl weiterer

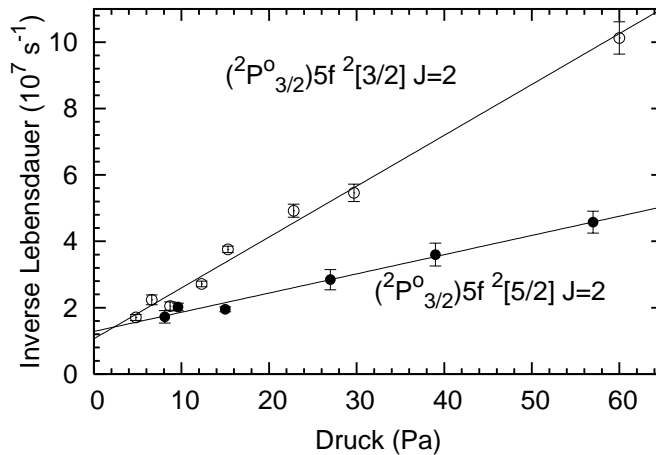
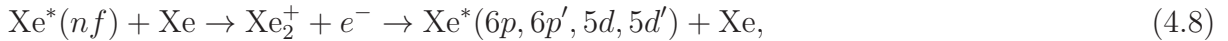


Abbildung 4.18.: Stern-Volmer Plots für die  $5f[3/2]_2$  und  $5f[5/2]_2$  Zustände.

Zustände erstreckt, und so die Beiträge obiger Übergänge zum *line blending* verringert.

(3) Hu et al. [47] und Lipson et al. [49] fanden Evidenz für ausgeprägte assoziative Ionisation nach Anregung von Zuständen des  $nf$  Multipletts mit anschließender dissoziativer Rekombination in Zustände der  $6p$ ,  $6p'$ ,  $5d$  und  $5d'$  Multipletts,



durch die Analyse der Photoelektronenspektren nach (2+1) resonanter Photoionisation. Ihre Experimente umfaßten Messungen im Freistrahlsystem der gepulsten Entspannung eines 10%igen Xe/He-Gemischs bei einem Vordruck von 0.8 MPa in eine auf  $10^{-4}$  Pa evakuierte Kammer. Die Laseranregung erfolgte im Abstand von 20 mm zur Öffnung des gepulst betriebenen Ventils. Es wurde dabei, neben einer Zahl weiterer Zustände, nach der  $5f[3/2]_2$  Anregung die Rekombination des Zustands  $5d'[3/2]_2^o$  beobachtet (siehe Tabelle II in Ref. [47]). Aufgrund der in der vorliegenden Arbeit bereits genannten nicht effektiven Unterdrückung der mit dem Übergang  $5d'[3/2]_2^o \rightarrow 6p[5/2]_2$  assoziierten Linie bei 750.1 nm kann dadurch ein verstärktes *line blending* auftreten, sofern der Prozeß (4.8) auch unter den vorliegenden Bedingungen eine wichtige Rolle einnehmen sollte.

(4) Die Bevölkerung des durch Zwei-Photonen-Absorption angeregten Zustands durch reziproken Stoßtransfer unter Einbeziehung energetisch eng benachbarter Zustände ist angesichts der extrem kleinen Abstände der Zustände des  $5f$  Multipletts ein wahrscheinlicher Grund für die Ausbildung von zusätzlichen Komponenten in der zeitaufgelösten Fluoreszenz. Möglicherweise muß eine größere Zahl an Zuständen in eine Modellierung der Abklingkurve mit einbezogen werden (vgl. [31]). Da eine detaillierte Untersuchung der langsamen Komponente nicht durchgeführt werden konnte, ist der Einfluß daraus resultierender Fehler nicht bekannt.

(5) Aufgrund der Schwäche der Fluoreszenzen bei allen untersuchten TALIF-Schemen hoher Multipletts konnten im relevanten Druckbereich von 4 bis 120 Pa nur nahe dem minimalen Fokusvolumen größter Laserleistungsdichte die zeitaufgelöste Fluoreszenzsignale mit ausreichender Intensität detektiert werden. Die Bestimmung der Querschnittsfläche des Detektorvolumens ist hier mit sehr großen Unsicherheiten behaftet. Nachträgliche Betrachtungen zur Fokussierungs- und Detektionsgeometrie haben ergeben, daß die hier verwendeten Leistungs-

#### 4. TALIF-Studie an neutralem Xenon in einer statischen Kaltgaszelle

dichten zur Anregung hoher Zustände jedoch höher liegen als die in Eichhorn et al. [187], genannten 5 bis 30 MW/cm<sup>2</sup>. Der Einfluß von ASE auf die zeitliche Entwicklung der Fluoreszenz nach Anregung des  $7p[3/2]_2$  Zustands bei zu hohen Laserpulsleistungsdichten und zu großen Verstärkungslängen wurde in [117] ansatzweise beschrieben. Möglicherweise werden Effekte durch ASE in den vorliegenden Untersuchungen aufgrund der erschwerten Ausbildung der kritischen Dichte durch kleine Zwei-Photonen-Anregungsquerschnitte und konkurrierende Prozesse wie 2+1 resonanter Photoionisation und assoziativer Ionisation teilweise unterbunden.

Für den  $5f[5/2]_2$  Zustand, mit detektierter Fluoreszenz bei 745.1 nm (Interferenzfilter der ZWL 746.9 nm, FWHM 4.9 nm) wurde eine Lebensdauer der schnellen Komponente von  $78 \pm 13$  ns ermittelt, mit deutlicher Abweichung von dem Wert von Verdugo et al. [43], sowie einem Stoßdeaktivierungskoeffizienten von  $2400 \pm 200 \times 10^{-12} \text{cm}^3 \text{s}^{-1}$ . Aufgrund möglichen line blendings durch die Linien bei 747.2 und 747.4 nm innerhalb der Halbwertsbreite des Filters gilt die Diskussion der Punkte (1) und (2), sowie davon unabhängig (4) und (5) für die Untersuchungen an diesem Zustand ebenso als systematische Fehlerquellen. Für eine quantitative Diskussion der Phänomene (1) - (5) scheint es erforderlich, Aufbauten mit hochauflösenden spektral durchstimmbaren Monochromatoren (anstelle von Interferenzfiltern) zur möglichst effizienten Unterdrückung von *line blending* einzusetzen, sowie eine Detektion der Fluoreszenzstrahlung kollinear zur Ausbreitungsrichtung des Laserlichts, um Sättigungsschwellen für den störenden Einfluß von ASE zu ermitteln [32]. In jedem Fall sind Untersuchungen der langsamen Komponenten zum besseren Verständnis der Stoßkinetik für die Anwendung detaillierterer Modelle zur Bestimmung der Übergangsraten notwendig. Aufgrund des beträchtlichen Aufwands und der Schwierigkeiten bei der Detektion und der Analyse der Fluoreszenzen nach Anregung der Zustände des  $5f$  Multipletts wurde ihre weitere Untersuchung, abzielend auf plasmadiagnostische Anwendungen wie der Kalibrierung energetisch benachbarter Zwei-Photonen-Resonanzen, zurückgestellt.

Zu den vorliegenden Messungen sind Berechnungen der natürlichen Lebensdauern der jeweiligen angeregten Zustände in der Arbeitsgruppe von Prof. Fritzsche, Universität Oulu, durchgeführt worden. Zur Methode kann an dieser Stelle nur ein kurzer Überblick gegeben werden. Für eine tiefergehende Erörterung soll an dieser Stelle auf die Fachliteratur [142–145] verwiesen werden.

Der Berechnung von atomaren Eigenschaften angeregter Zustände wie den natürlichen Lebensdauern oder Oszillatorstärken müssen für schwere Atome relativistische Wellenfunktionen als Lösungen der Dirac-Gleichung zugrunde gelegt werden. Bei Viel-Elektronensystemen muß insbesondere die Breit-Wechselwirkung berücksichtigt werden, welche die magnetische Wechselwirkung der Elektronen und die Retardierung der vermittelnden Felder beschreibt [146]. Die benötigten Wellenfunktionen können unter Anwendung der *multi-configuration Dirac Fock* (MCDF)-Methode gefunden werden. Dabei werden die sogenannten *configuration state functions* (CSF) als Basisfunktionen eines Systems aus  $N$  Elektronen aus der Slater-Determinante der relativistischen Ein-Elektron-Wellenfunktionen  $u_k$

$$|U_{\{u_k\}}\rangle = \frac{1}{\sqrt{N!}} \det\{u_1, \dots, u_N\} \quad (4.9)$$

gebildet. Die Konstruktion der Wellenfunktionen eines Zustands  $|\Psi_\alpha\rangle$ , charakterisiert durch die

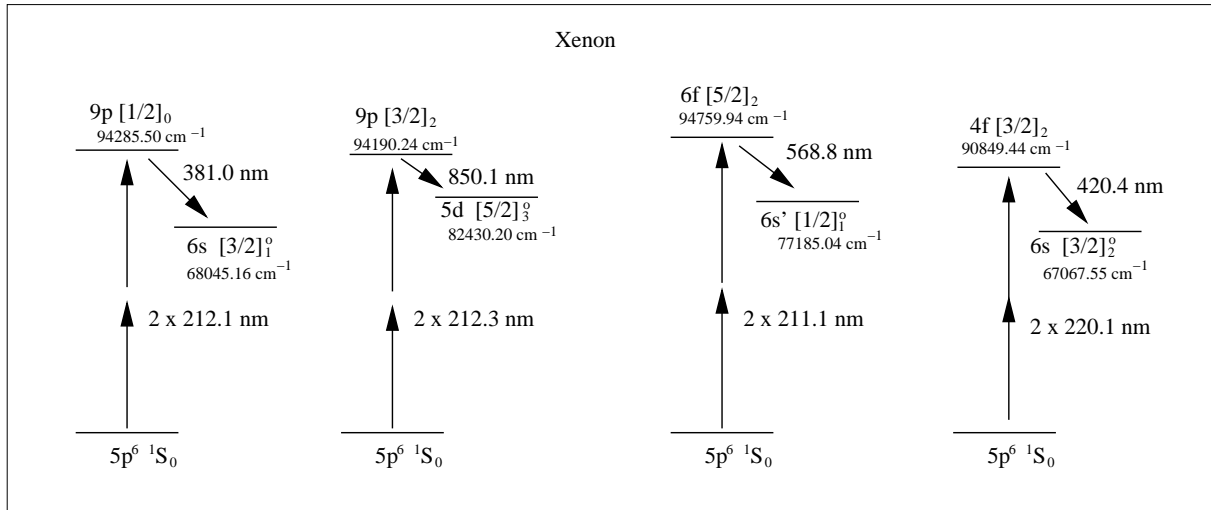


Abbildung 4.19.: TALIF Schemen für einige Zustände der 9p, 6f und 4f Multipletts.

Quantenzahlen  $J, M$  erfolgt durch die Bildung von Linearkombinationen aus  $|U_{\{u_k\}}\rangle$  gleicher Symmetrie (Parität)  $P$

$$|\Psi_\alpha(PJM)\rangle = \sum_r^{n_c} d_r(\alpha) |U_{\{u_k\}}^r\rangle \quad (4.10)$$

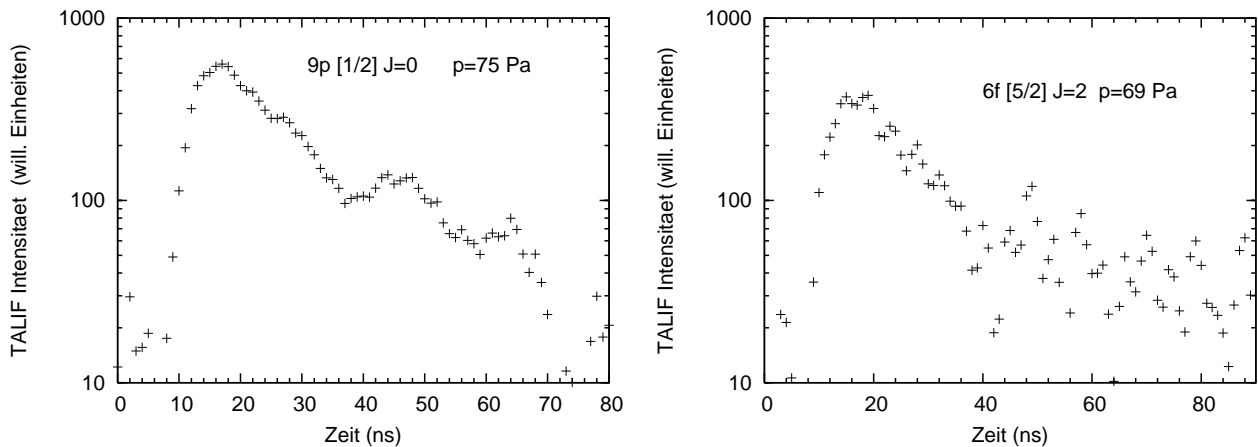
wobei die Bestimmung der Koeffizienten  $d_r(\alpha)$  in der Weise geschieht, daß die  $|\Psi_\alpha\rangle$  Eigenfunktionen des Dirac-Coulomb-Breit-Hamilton Operators sind. Bei der Berechnung von Übergangsamplituden können in dieser Darstellung insbesondere Relaxationseffekte in der Elektronenkonfiguration berücksichtigt werden, was sich in der nicht notwendigen Orthogonalität zweier (angeregter) Zustände  $|\Psi_\alpha\rangle, |\Psi_\beta\rangle$  widerspiegelt. Für die Berechnung solcher Wellenfunktionen und daraus gebildeter Übergangsamplituden sind Programme verfügbar [143–145].

Die Ergebnisse der numerischen Rechnungen sind in Tabelle 4.6 zusammengefaßt. Für den  $8p[1/2]_0$  Zustand wurde eine gute Übereinstimmung mit dem experimentell gemessenen Wert gefunden. Die numerisch ermittelten Lebensdauern der beiden untersuchten  $5f$  Zustände liegen etwa 20% über den experimentell ermittelten Werten, die jedoch, wie oben beschrieben, mit einer Reihe systematischer Unsicherheiten behaftet sein können.

#### 4.2.4. 9p, 4f und 6f Multipletts

Bei der Untersuchung der  $J = 0, 2$  Zustände des  $9p$  Multipletts wurde ein vergleichsweise intensives Fluoreszenzsignal nach Anregung des  $9p[1/2]_0$  Zustands bei spektral breiter Detektion unter Verwendung eines optischen Kantenfilters (GG 375, Schott) beobachtet. Das dabei detektierte Signal enthält die Fluoreszenzen der Kaskadenübergänge sowohl des laserangeregten wie auch der durch Stoßabregung bevölkerten Zustände. Aufgrund der eingeschränkten Verfügbarkeit optischer Bandpassfilter und der mangelnden Datenlage für die *branching ratios* zur Identifizierung geeigneter Fluoreszenzkanäle wurden weitere Versuche auf die Detektion des Fluoreszenzübergangs bei 381.0 nm nach Anregung des  $9p[1/2]_0$  Zustands reduziert (Abbildung 4.19). Die mit einem Interferenzfilter (ZWL 381 nm, FWHM 9 nm) spektral isolierte Fluoreszenz

#### 4. TALIF-Studie an neutralem Xenon in einer statischen Kaltgaszelle



**Abbildung 4.20.:** Zeit aufgelöste Fluoreszenz nach Anregung der  $9p[1/2]_0$  (links) und  $6f[5/2]_2$  Zustände (rechts).

ist in Abbildung 4.20 gezeigt, wobei allerdings *line blending* durch eine Reihe möglicherweise stoßaktivierter Zustände benachbarter Multiplettzustände enthalten sein kann. Die detektierte Fluoreszenz war außerordentlich schwach, möglicherweise existiert eine hohe Stoßtransferrate zwischen den  $9p[1/2]_0$  und  $8d[3/2]_2^o$  Niveaus, welche energetisch nur  $0.15 \text{ cm}^{-1}$  voneinander getrennt liegen [136]. Eine nach der Paritätsauswahlregel verbotene Zwei-Photonen-Anregung von Zuständen des  $5d$  Multipletts wurde von Gornik et al. [147], berichtet. Da beide Zustände aufgrund der Linienbreite des in dieser Arbeit verwendeten Lasers nicht getrennt werden können, wurde eine paritätsverbotene Anregung des  $8d[5/2]_2^o$  Zustands versucht. Es konnte jedoch auch unter Verwendung spektral breiter Kantenfilter keine Fluoreszenz detektiert werden, womit davon ausgegangen wird, daß die Zwei-Photonen verbotene Anregung des  $8d[3/2]_2^o$  Zustands keinen Beitrag zur Fluoreszenz nach Anregung des  $9p[1/2]_0$  Niveaus stellt.

Ebenfalls sehr schwache Fluoreszenzsignale wurden nach Anregung des  $6f[5/2]_2$  Zustands bei einer Wellenlänge von 568.9 nm (Interferenzfilter ZWL 569.5 nm, FWHM 2 nm) detektiert. Abbildung 4.20 zeigt rechts das detektierte Signal bei 69 Pa Druck neutralen Xenons. Es sind zwei Komponenten angedeutet, eine tiefergehende Analyse war jedoch nicht möglich, da Detektionsversuche bei niedrigeren Drücken aufgrund der kleinen Signale für die Bestimmung effektiver Lebensdauern zu keinen quantitativ analysierbaren Resultaten führten. Schwache Fluoreszenzsignale wurden nach Anregung des  $4f[3/2]_2$  Zustands bei 420.4 nm (Interferenzfilter ZWL 421 nm, FWHM 10 nm) nachgewiesen, sind jedoch trotz hoher Akkumulierung an Laserpulsen von nicht ausreichender Qualität für eine weitere Analyse. Die Kleinheit der Signale ist hier mit hoher Wahrscheinlichkeit durch ein sehr kleine *branching ratio* bestimmt, welches mit den Übergangsraten aus Sabbagh und Sadeghi [174] und Verdugo et al. [43], zu 0.007 berechnet wird.



# 5. Untersuchungen im Freistrahle des Radiofrequenz-Iontriebwerks RIT-10

In diesem Kapitel werden emissionsspektroskopische Untersuchungen und TALIF-Experimente im Freistrahle des Radiofrequenz-Iontriebwerks RIT-10 vorgestellt. Das Triebwerk wurde von dem Unternehmen *EADS-Astrium* zur Verfügung gestellt; sämtliche Versuche wurden an einem im Rahmen des DLR-Projekts „Plasmadiagnostik an Iontriebwerken“ vor Beginn dieser Arbeit eingerichteten Vakuumteststand (Tank 7) in den Laboranlagen des Instituts für Raumfahrtssysteme (IRS) durchgeführt.

Nachdem die Funktionsweise des RIT-10 sowie die Vakuumtestanlage bereits in Kapitel 2 erläutert wurden, gibt Kapitel 5.1 zunächst einen Überblick der verwendeten Testbedingungen des Triebwerks. Die emissionsspektroskopischen Untersuchungen werden in Abschnitt 5.2 nach einer Beschreibung des Aufbaus (Abschnitt 5.2.1) sowie der Erläuterung des in der folgenden Diskussion verwendeten Modells (Abschnitt 5.2.2) präsentiert und weiterhin hinsichtlich ihrer Aussagekraft zur Bewertung geeigneter TALIF-Schemen diskutiert.

Schließlich erfolgt in Abschnitt 5.3 die Darstellung der TALIF-Untersuchungen im Kaltgasstrom und im Plasma des Freistrahls des mit Xenon betriebenen RIT-10 Triebwerks. Der hier verwendete Laserspektroskopische Versuchsaufbau wird im Abschnitt 5.3.1 dargelegt; der anschließende Teil (Abschnitt 5.3.2) diskutiert die Resultate der TALIF-Spektroskopie unter Anwendung zweier TALIF-Schemen.

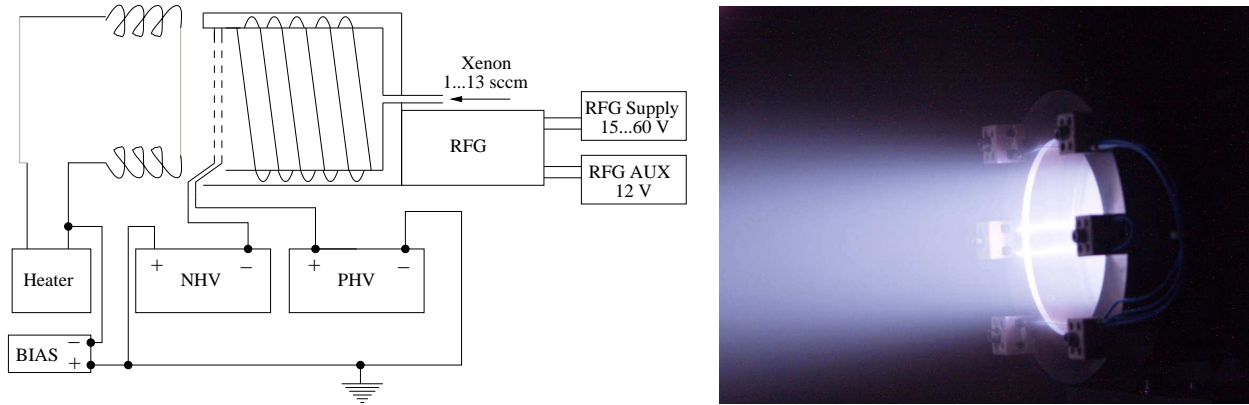
## 5.1. Testbedingungen für das RIT-10

In der vorliegenden Arbeit werden an einem Radiofrequenz-Iontriebwerk der Firma EADS-Astrium (Typ RIT-10) plasmadiagnostische Untersuchungen durchgeführt. Gegenüber den in [78] beschriebenen Modellen liegen geringfügige geometrische Abweichungen vor. Tabelle 5.1 faßt die wesentlichen geometrischen Größen zusammen. Die Ausbildung des Ionenstrahls erfolgt bei der hier verwendeten Konfiguration unter Verwendung von zwei Gittern. Ein Bremsgitter ist nicht vorhanden.

Durchmesser Entladungskammer (mm)	100
Anzahl der Löcher	253
Durchmesser der Gitterfläche (mm)	90
Gitterabstand (mm)	0.7
Lochdurchmesser des Extraktionsgitters (mm)	3.8
Lochdurchmesser des Beschleunigungsgitters (mm)	1.6

*Tabelle 5.1.: Einige geometrische Größen des hier untersuchten Triebwerks*

## 5. Untersuchungen im Freistrahlfeld des Radiofrequenz-Iontriebwerks RIT-10



**Abbildung 5.1.:** Links: Verschaltung des RIT-10 am Tank 7 des IRS. Rechts: RIT-10 im Betrieb. Die in der Mitte sichtbaren Glühdrähte wurden für die Versuchskampagne entfernt, die Zündung der RF-Entladung erfolgte über die am oberen und unteren Rand erkennbaren Drähte.

Die Verschaltung des Triebwerks ist in Abbildung 5.1 *links* gezeigt. Die Spannungsquellen des Extraktionsgitters und des Beschleunigungsgitters werden mit PHV und NHV bezeichnet. In vielen Testbedingungen wird das Extraktionsgitter auf +913 V, das Beschleunigungsgitter auf -200 V gelegt. Der Radiofrequenzgenerator (RFG) wird von zwei Gleichspannungsquellen gespeist, die erste stellt eine konstante Spannung von 12 V (AUX) bereit, der Ausgang der zweiten Spannungsquelle wird je nach Betriebsbedingung für Experimente mit unterschiedlichen Ionisationseffizienzen zwischen 15 und 60 V (in der vorliegenden Arbeit bis maximal 37 V) variiert.

In der vorliegenden Konfiguration stand kein Neutralisator zur Verfügung. Eine negative elektrostatische Aufladung des Triebwerks wird durch den Abtransport der Elektronen durch die Spannungsregelung des Extraktionsgitters unterbunden. Die Zündung der selbsterhaltenden Hochfrequenz-Ringentladung in der Entladungskammer erfolgt durch zwei etwa sieben Zentimeter abseits der Strahlachse befestigte Glühdrähte (Heater), welche die zum Einsetzen der Stoßionisation benötigten Primärelektronen durch Glühemission bereitstellen. Zunächst wird das Beschleunigungsgitter geerdet und das Extraktionsgitter auf positives Potential gesetzt. Während des Startvorgangs werden die Glühdrähte langsam auf eine Stromstärke von  $\sim 17$  A hochgeregelt und auf ein negatives Potential von 30 V (BIAS) gegenüber der Erde gelegt, um den Elektronenfluß der Glühemission in die Entladungskammer zu erhöhen. Eine alternativ mögliche Vorgehensweise, das Beschleunigungsgitter während des Einschaltvorgangs auf positives Potential zu legen [78], wurde nicht angewendet. Unmittelbar nach Einsetzen der Entladung werden die Glühdrähte und die BIAS Spannung abgeschaltet.

Eine detaillierte Übersicht der untersuchten Betriebsbedingungen ist in Tabelle 5.2 gegeben. Hierin bezeichnen  $\dot{V}$  den zugeführten Volumenstrom neutralen Xenons in Standardkubikzentimetern pro Minute,  $U_{PHV}$ ,  $U_{NHV}$ ,  $I_{PHV}$  und  $I_{NHV}$  die Gitterspannungen des Extraktions- und des Beschleunigungsgitters sowie jeweils deren zugehörige Gitterströme,  $U_{RFG}$ ,  $I_{RFG}$ ,  $P_{RFG}$  jeweils die eingestellten Spannungs- und Stromwerte und daraus errechnete Leistung des Radiofrequenzgenerators.  $p_\infty$  gibt den Hintergrunddruck im Vakuumteststand unter der Voraussetzung an, daß sich ausschließlich Xenon im Tank befindet (bei Verwendung des entsprechenden gasartabhängigen Korrekturfaktors 2.5 an der Druckmeßdose). Unter der Annahme, daß während der Experimente ein Partialdruck von etwa  $1 \times 10^{-3}$  Pa aufgrund der relativ hohen Leckrate

Bedingung	1	2a	3a	4	3b	3c	3d	3e	3f
$\dot{V}$ (sccm)	2.9	4.3	5.7	7.1	5.7	5.7	5.7	5.7	5.7
$U_{PHV}$ (V)	913	913	913	913	913	913	913	913	913
$U_{NHV}$ (V)	-200	-200	-200	-200	-200	-200	-200	-200	-200
$I_{PHV}$ (mA)	172	192	172	167	58	90	131	203	225
$I_{NHV}$ (mA)	-1.3	-2.5	-4.9	-7.0	-2.3	-3.1	-4.5	-4.9	-6.0
$U_{RFG}$ (V)	29.97	29.97	29.97	29.97	14.99	19.99	24.98	33.02	34.96
$I_{RFG}$ (A)	3.15	2.48	1.95	1.87	1.62	1.77	1.79	2.11	2.28
$P_{RFG}$ (W)	94.4	74.3	58.4	56.0	24.3	35.4	44.7	69.7	79.7
$\eta_M$	0.83	0.61	0.42	0.31	0.14	0.22	0.32	0.50	0.55
$p_\infty$ ( $10^{-3}$ Pa)	1.3	1.6	2.1	2.7	2.2	2.2	2.2	2.2	2.2
$p_{Xe}$ ( $10^{-3}$ Pa)	0.9	1.2	1.7	2.3	1.8	1.8	1.8	1.8	1.8

Bedingung	2b	2c	2d	5a	5b	5c	5d	6a	6b	6c	6d
$\dot{V}$ (sccm)	4.3	4.3	4.3	4.3	4.3	4.3	4.3	4.3	4.3	4.3	4.3
$U_{PHV}$ (V)	913	913	913	1100	1100	1100	1100	1200	1200	1200	1200
$U_{NHV}$ (V)	-200	-200	-200	-200	-200	-200	-200	-200	-200	-200	-200
$I_{PHV}$ (mA)	55	93	236	61	133	172	242	60	94	205	256
$I_{NHV}$ (mA)	-1.3	-1.9	-2.8	-1.4	-2.2	-2.6	-2.5	-1.5	-1.8	-2.4	-2.9
$U_{RFG}$ (V)	14.99	19.99	36.07	14.99	23.04	30.25	37.18	14.99	19.15	29.97	35.52
$I_{RFG}$ (A)	1.67	1.82	3.18	1.61	1.95	2.63	3.26	1.67	1.77	2.60	2.91
$P_{RFG}$ (W)	25.0	36.4	114.7	24.1	44.9	79.6	121.2	25.0	33.9	77.9	103.4
$\eta_M$	0.18	0.30	0.75	0.20	0.43	0.56	0.78	0.19	0.30	0.68	0.83
$p_\infty$ ( $10^{-3}$ Pa)	1.7	1.7	1.7	1.6	1.6	1.6	1.6	1.7	1.7	1.7	1.7
$p_{Xe}$ ( $10^{-3}$ Pa)	1.3	1.3	1.3	1.2	1.2	1.2	1.2	1.3	1.3	1.3	1.3

**Tabelle 5.2.:** Übersicht über die Parameter der einzelnen in dieser Arbeit untersuchten Testbedingungen des RIT-10.

des Teststands als Luft (Korrekturfaktor 1.0) vorliegt, werden noch die korrigierten Werte  $p_{Xe}$  für den Partialdruck neutralen Xenons angegeben.

Es werden ferner die Ionisationseffizienzen (*mass utilization efficiencies*)

$$\eta_M = \frac{I_{PHV}}{e\dot{m}/m_{Xe}} \quad (5.1)$$

angegeben,  $m_{Xe}$  bezeichnet die Atommasse Xenons. Für den idealisierten Fall, daß während des Ionisationsprozesses nur einfach geladene Ionen gebildet werden, gibt sie den Anteil ionisierter Xenon Atome, bezogen auf die zugeführte Teilchenzahl an, jedoch nicht das Verhältnis der Dichten im Freistrah, welches von den lokalen Geschwindigkeiten neutraler und ionisierter Spezies abhängt.

Der Betrieb des Triebwerks ohne Neutralisator weicht vom Nominalfall ab, hierzu werden noch einige Bemerkungen gemacht: Grundsätzlich ist die Neutralisation neben der Sicherstellung der Ladungsneutralität des Gesamtsystems auch zur Minimierung der durch den Ionenstrahl erzeugten Raumladungsdichte im Freistrah von Bedeutung. In der Konsequenz der Lösung der

## 5. Untersuchungen im Freistrahlfeld des Radiofrequenz-Ionentriebwerks RIT-10

Poisson-Gleichung ist die Raumladungsdichte auch im Freistrahlfeld begrenzt. Im Fall eines nicht neutralisierten und ins Unendliche propagierenden Ionenstrahls führt der aus den Raumladungen resultierende Potential- und Feldverlauf zu einer Reduktion der Ionenstromdichte und einer erhöhten Strahlaufweitung [4]. Die Reduktion der Ionenstromdichte erklärt sich aus der (partiellen) Reflexion der Ionen an einer sogenannten virtuellen Elektrode, welche einem Maximum des Potentialverlaufs zwischen dem Beschleunigungsgitter und dem Unendlichen entspricht<sup>1</sup>.

Es existiert ein realer Fall für eine in den Beträgen der Ströme unvollständige Neutralisation *eines einzelnen* Triebwerksystems. Während der ARTEMIS Mission [80] kam es zu einer Fehlfunktion des Neutralisators eines der beiden RIT-Triebwerke, der damit für den weiteren Missionsablauf nicht mehr zur Verfügung stand. Der zur Ladungsneutralität des Satelliten erforderliche Elektronenausstoß wurde daraufhin von einem oder mehreren Neutralisatoren der übrigen (insgesamt vier) Ionentriebwerke gedeckt. Die Zündung und der Betrieb des betroffenen RIT-Triebwerks erfolgte über den Neutralisator eines Kaufman-Triebwerks, der etwa 25 cm entfernt zum RIT installiert war. Während der Anhebung der Umlaufbahn des Satelliten wurde etwa 70% des zur vollständigen Neutralisation erforderlichen Stroms durch eine zum betroffenen RIT räumlich noch wesentlich weiter entfernte Elektronenquelle bereitgestellt, ohne daß Abweichungen der Nominalbedingungen in Schub, Strahlstrom etc. berichtet wurden [80].

Es ist zweckmäßig, die raumladungsbegrenzten Ionenströme im Freistrahlfeld mit der Sättigungsstromdichte zwischen Extraktions- und dem Beschleunigungsgitter

$$j_0 = \frac{4\varepsilon_0}{9} \left( \frac{2e}{m_{Xe}} \right)^{1/2} \frac{U_{eb}^{3/2}}{d_{eb}^2}. \quad (5.2)$$

zu skalieren. Im eindimensionalen Fall ist die Stromdichte an einer Kollektorelektrode im Abstand  $\sigma$ , welche das gleiche Potential wie das letzte Gitter der Ionenquelle trägt, durch die implizite Beziehung [4]

$$\frac{\sigma}{d_{eb}} = \frac{\sqrt{j/j_0} + \sqrt{2 - j/j_0}}{\sqrt{2j/j_0 - (j/j_0)^2}} \quad (5.3)$$

gegeben. Eine weitere charakteristische Größe ist das *aspect ratio*  $R$ ,

$$R = \frac{3}{\sqrt{\pi\varepsilon_0}} \left( \frac{I}{U_{eb}^{3/2}} \right)^{1/2} \left( \frac{m_{Xe}}{2e} \right)^{1/4}, \quad (5.4)$$

worin  $I$  den Ionenstrom im Freistrahlfeld bedeutet.

Die vereinfachte, eindimensionale Fallbetrachtung führt nach Gleichung (5.3) für anwachsende  $\sigma/d_{eb} \gg 1$  zu einem raschen Versiegen der Ionenstromdichte  $j/j_0 \rightarrow 0$ . In phänomenologischer Betrachtung unter Einbeziehung der Strahlaufweitung ergibt sich nach Stuhlinger [4]  $\mathcal{O}(R) \sim 1$  für  $\sigma/d_{eb} \rightarrow \infty$ , was zu einer beträchtlichen Reduktion des Strahlstroms und damit des Schubs des Triebwerks führt.

<sup>1</sup>Die mathematische Behandlung erfolgt in gleicher Weise wie bei der Herleitung des Child-Langmuir Gesetzes (Gleichung 5.2). In einer eindimensionalen Betrachtung wird die Poisson-Gleichung zwischen zwei unendlich ausgedehnten, planparallelen Platten gleichen Potentials gelöst. Die Abnahme der Stromdichte durch Strahlaufweitung muß gesondert behandelt werden. Siehe [4] und Referenzen hierin.

Testbedingung	3a	3b	3f	5d
$d_{eb}$ (mm)	0.7	0.7	0.7	0.7
$j$ (mA/cm <sup>2</sup> )	2.2	0.73	2.9	3.1
$j_0$ (mA/cm <sup>2</sup> )	36	36	36	46
$j/j_0$	0.061	0.020	0.079	0.068
$U_{eb}$ (V)	1113	1113	1113	1300
$R$	35	20	40	37

**Tabelle 5.3.:** Einige Ionenstrahlparameter für einige Testbedingungen in dieser Arbeit, berechnet für einen Ionenstrahldurchmesser von 10 cm.

Eine reale Betrachtung dieser Phänomene erfordert neben der mehrdimensionalen Berechnung des Problems unter geeigneten Randbedingungen auch eine Betrachtung der Stabilität der zu lösenden Gleichungen. Im allgemeinen ist dann insbesondere  $R$  nicht notwendigerweise eine Skalierungsgröße für  $\sigma/d_{eb}$ . Eine mögliche Neutralisation des Ionenstrahls durch thermische Emission von Elektronen von Triebwerkskomponenten oder der Vakuumkammer ist bei Raumtemperatur nicht zu erwarten, ebenso ist die Freisetzung von Elektronen durch Stoßprozesse mit dem Hintergrundgas ( $p_\infty \sim 2 \times 10^{-3}$  Pa) bei den vorliegenden Beschleunigungsenergien von  $\sim 1$  keV nicht zu erwarten. Im Rahmen dieser Arbeit wurden keine Schubmessungen durchgeführt, die Gitterströme zeigten infolge der fehlenden Neutralisation keine essentiellen Abweichungen von den Normalbedingungen, allerdings traten bei Testbedingungen hin zu höherer Ionisationseffizienz mit zunehmender Häufigkeit unregelmäßige Entladungen außerhalb des Triebwerks auf. Es ist denkbar, daß diese auf die fehlende Neutralisation zurückzuführen sind. Für die Testbedingungen mit niedrigerer Ionisationseffizienz wurden keine Entladungen beobachtet. Möglicherweise sind in der vorliegenden Triebwerksgeometrie bei Ionenstromdichten  $j/j_0 < 0.1$  Effekte durch Raumladungsbegrenzungen im Freistrahls noch unterdrückt. In Tabelle 5.3 werden für einige Testbedingungen die Strahlströme in Einheiten der Sättigungsstromdichte  $j/j_0$  und die *aspect ratios*  $R$  angegeben.

Im weiteren Teil der vorliegenden Arbeit steht die Erprobung der TALIF-Methode in dünnen Xenon Plasmen wie im Freistrahls des RIT-10 Triebwerks gegenüber einer quantitativen Charakterisierung von Testbedingungen im Vordergrund. Auf eine detaillierte Erörterung der komplexen Problematik der Strahlneutralisation unter den hier beschriebenen Testbedingungen wird daher im folgenden verzichtet.

## 5.2. Emissionsspektroskopie im Freistrahls des RIT-10

Im Vorfeld der TALIF-Untersuchungen wurde der Freistrahls des RIT-10 emissionsspektroskopisch analysiert. Von vorrangigem Interesse ist dabei die Charakterisierung der Eigenemission des Plasmas in den spektralen Bandbreiten der Fluoreszenzdetektion der TALIF-Spektroskopie. Die Verhältnisse der Intensitäten einiger Emissionslinien werden untersucht und mit den erwarteten Intensitätsverhältnissen basierend auf den Querschnitten für Ionenstoßanregung von Sommerville et al. [59] und dem Stoß-Strahlungsmodell nach Karabadzhak et al. [10], verglichen.

### 5.2.1. Das Stoß-Strahlungsmodell nach Karabadzhak

In Plasmen mit geringen Teilchendichten entfallen unter Anwendung selektiver Heizmechanismen (z. B. durch Elektronenstöße in induktiv beheizten Plasmen) die Voraussetzungen für das thermische Gleichgewicht zwischen Elektronen und atomaren bzw. molekularen Spezies. Bei hinreichend kleiner Elektronendichte, d.h. wenn die mittlere Stoßzeit für die Abregung eines atomaren Zustands wesentlich größer als die Lebensdauer des angeregten Zustands ist, kann der Plasmazustand häufig durch das sogenannte Korona-Modell beschrieben werden, worin die Anregung eines atomaren Zustands durch Elektronenstöße, die Abregung ausschließlich durch Strahlungsemission erfolgt [155, 156]. Die Anwendung des Modells zur Bestimmung von Elektronentemperaturen aus den Intensitätsverhältnissen geeigneter Emissionslinien in Edelgasen als dominierende- und als Tracerspezies ist weit verbreitet [157, 158]. Aufgrund der großen Anregungsquerschnitte für elektronenstoßinduzierte Übergänge zwischen angeregten und metastabilen Zuständen ist es oft notwendig, die Anregung aus metastabilen Zuständen neben der Anregung aus dem Grundzustand zu berücksichtigen [158–161].

Neben der Elektronenstoßanregung ist im Freistrahlfeld von Iontriebwerken auch die Anregung durch Kollisionen zwischen Neutralteilchen und beschleunigten Ionen als Anregungsmechanismus von Bedeutung. Ein Stoß-Strahlungsmodell unter Einbeziehung der Neutralteilchen-Ion-Anregung und schrittweiser elektronenstoßinduzierter Anregung aus metastabilen Zuständen wurde von Karabadzhak et al. [10] für dünne Xenon-Plasmen vorgeschlagen und seine Gültigkeit im Parameterbereich (wie etwa der Elektronendichte, -temperaturen) repräsentativer Plasmabedingungen in der Entladung und im Freistrahlfeld eines Halliontriebwerks diskutiert.

Karabadzhak et al. berücksichtigen in ihrem Stoß-Strahlungsmodell folgende dominante Prozesse für die Anregung atomarer Zustände



Der Prozeß (5.5) beschreibt die Bildung eines angeregten Zustands (\*) neutralen Xenons durch Elektronenstoß, der Index  $p$  steht für langlebige Konfigurationen des Stoßpartners vor dem Stoß wie dem Grundzustand sowie metastabilen Zuständen mit hinreichend hoher Besetzungsdichte. Der Prozeß (5.6) bedeutet die Elektronenstoßionisation mit Erzeugung eines angeregten Ions  $q$ -ter Stufe, (5.7) entsprechend die Elektronenstoßionisation einfach geladener Ionen aus dem Grundzustand oder metastabilen Zuständen. Die im Freistrahlfeld auftretende Bildung angeregter Zustände durch Ionenstöße ist auf die Grundzustandsanregungen (5.8) - (5.10) beschränkt.

Als Maß für die Intensität einer Emissionslinie wird im folgenden der spektral integrierte Emissionskoeffizient  $J^\lambda$  benutzt, welcher sich aus  $dE = J^\lambda dV dt d\Omega$  bei isotroper Abstrahlung der Energie  $dE$  aus dem Volumen  $dV$  während der Zeit  $dt$  in das Raumwinkelelement  $d\Omega$  definiert. Unter Voraussetzung der Quasineutralität  $N_e = N_1 + 2N_2$  und der Vernachlässigung

sämtlicher Prozesse der Stoßabregung schreiben Karabadzhak et al. für eine Emissionslinie neutralen Xenons bei der Wellenlänge  $\lambda$

$$J_\lambda = \frac{hc}{4\pi\lambda} N_0 N_e \left( k_{e0}^\lambda + \frac{N_m}{N_0} k_{em}^\lambda + \alpha k_1^\lambda + \frac{1-\alpha}{2} k_2^\lambda \right), \quad (5.11)$$

worin die Grundzustandsdichte neutralen Xenons  $N_0$ , die Dichten einfach- und zweifach geladener Ionen  $N_1$  und  $N_2$ , die Elektronendichte  $N_e$ , die Dichte der Atome neutralen Xenons in metastabilen Zuständen  $N_m$  und das Verhältnis  $\alpha \equiv N_1/N_e$  auftritt;  $h$  und  $c$  bedeuten jeweils das Plancksche Wirkungsquantum und die Lichtgeschwindigkeit. Die Größe  $\alpha = (1+2N_2/N_1)^{-1}$  ist ein Maß für das Verhältnis der Dichten einfach und zweifach geladener Ionen.

Die die Wahrscheinlichkeit eines Übergangs bei der Wellenlänge  $\lambda$  enthaltenden Übergangsratenkoeffizienten sind für die elektronenstoßinduzierte Anregung aus dem Grundzustand und aus metastabilen Zuständen durch

$$k_{ep}^\lambda = \int_0^\infty 2E_e \sqrt{\frac{2}{m_e \pi (k_B T_e)^3}} e^{-E_e/k_B T_e} \sigma_{ep}^\lambda(E_e) dE_e \quad (5.12)$$

und für die Ionenstoßanregungen (5.8) - (5.9) jeweils durch

$$k_1^\lambda = \sigma_1^\lambda(E_{Xe^+}) \sqrt{\frac{2E_{Xe^+}}{m_{Xe}}}, \quad k_2^\lambda = \sigma_2^\lambda(E_{Xe^{2+}}) \sqrt{\frac{2E_{Xe^{2+}}}{m_{Xe}}} \quad (5.13)$$

gegeben. Es bedeuten  $E_e$ ,  $E_{Xe^+}$  und  $E_{Xe^{2+}}$  die kinetischen Energien der jeweiligen Spezies,  $m_e$  und  $m_{Xe}$  die Elektronen- und Atommasse Xenons sowie  $T_e$  die Elektronentemperatur. Die Größen  $\sigma_{ep}^\lambda$ ,  $\sigma_1^\lambda$  und  $\sigma_2^\lambda$  bezeichnen die optischen Querschnitte für die Anregung eines Zustands durch die Prozesse (5.5)-(5.10) und der anschließenden Abregung desselben Zustands durch Emission der Wellenlänge  $\lambda$  eines zugeordneten Fluoreszenzübergangs. Gleichung (5.12) enthält die Maxwell-Boltzmann-Verteilung als Energieverteilungsfunktion der Elektronen und beschreibt somit ausschließlich die Elektronenstoßanregung durch thermische Stöße. Die Ionenstoßinduzierte Anregung vernachlässigt die thermische Anregung und setzt eine quasi-monoenergetische Energieverteilung der Ionenspezies voraus, welche durch die Änderung der kinetischen Energie nach dem Durchlaufen der Beschleunigungsspannung  $E_{Xe^{q+}} = qeU_e$  bestimmt ist.

Im Stoßgleichgewicht finden Karabadzhak et al. für die Dichte metastabiler Zustände

$$N_m = N_0 N_e \frac{[k_{e0}^\lambda + \alpha k_1^\lambda + [(1-\alpha)/2]k_2^\lambda] K^\lambda(T_e, \alpha)}{\nu_{cm} + \nu_{dm}} \quad (5.14)$$

worin  $\nu_{cm}$  und  $\nu_{dm}$  die Verlustraten (in  $s^{-1}$ ) metastabiler Zustände  $m$  jeweils durch Stoßtransfer in andere, nicht-metastabile Energieniveaus und den räumlichen Abtransport metastabiler Spezies durch Diffusion bedeuten. Die Abkürzung

$$K^\lambda(T_e, \alpha) = \frac{\sum_i [k_{e0}^i + \alpha k_1^i + [(1-\alpha)/2]k_2^i]}{k_{e0}^\lambda + \alpha k_1^\lambda + [(1-\alpha)/2]k_2^\lambda} \quad (5.15)$$

enthält die Summe über alle Zustände  $i$ , die an den metastabilen Zustand  $m$  durch die optischen

## 5. Untersuchungen im Freistrahlfeld des Radiofrequenz-Ionentriebwerks RIT-10

Auswahlregeln für Dipol-Übergänge gekoppelt sind. Unter der Annahme, daß die Entvölkerung metastabiler Zustände ausschließlich durch Elektronenstöße erfolgt und die Entvölkerung nicht-metastabiler Zustände ausschließlich durch optische Übergänge, lautet der Ansatz für den Verlustterm

$$\nu_{cm} = N_e \sum_i P_{r_i} T_i \gg \nu_{dm} \quad (5.16)$$

wobei  $T_i$  die (unbekannte) Übergangsrate für den Stoßtransfer in einen Zustand  $i$  beschreibt, sowie  $P_{r_i} \equiv 1 - P_{m_i}$  das *branching ratio* für alle Fluoreszenzkanäle von  $i$ , die nicht auf den metastabilen Zustand  $m$  zurückführen. Die Vernachlässigung des Diffusionsterms  $\nu_{dm}$  folgt aus umfangreichen kinematischen Überlegungen und ist für nicht zu kleine Elektronendichten und -temperaturen gerechtfertigt [10].

Unter Berücksichtigung der Gleichungen (5.11), (5.13) und (5.15) folgt schließlich [10]

$$J_\lambda = \frac{hc}{4\pi\lambda} N_0 N_e \left( k_{e0}^\lambda + \alpha k_1^\lambda + \frac{1-\alpha}{2} k_2^\lambda \right) \left[ 1 + \frac{k_{em}^\lambda K^\lambda(T_e, \alpha)}{\sum_i P_{r_i} T_i} \right] \quad (5.17)$$

$$= \frac{hc}{4\pi\lambda} N_0 N_e \left( k_{e0}^\lambda + \alpha k_1^\lambda + \frac{1-\alpha}{2} k_2^\lambda \right) \left[ 1 + \frac{K^\lambda(T_e, \alpha)}{\zeta^\lambda} \right]. \quad (5.18)$$

Hierbei wurde noch die Größe

$$\zeta^\lambda \equiv \frac{\sum_i P_{r_i} T_i}{k_{em}^\lambda} = \frac{\sum_i P_{r_i} T_i}{P_\lambda T_i} \approx \frac{\sum_i P_{r_i} (2J_i + 1)}{P_\lambda (2J_i + 1)} \quad (5.19)$$

eingeführt, worin die Übergangskoeffizienten für die Emission bei der Wellenlänge  $\lambda$  durch Anregung aus dem metastabilen Zustand  $m$  dem einfachen Ansatz  $k_{em}^\lambda = P_\lambda T_i$  genügen. Es bedeutet hierin  $P_\lambda$  das *branching ratio* des bei der Wellenlänge  $\lambda$  beobachteten Übergangs. Für die unbekanntes Übergangsraten  $T_i$  führen Karabadzak et al. weiter den Ansatz

$$T_i = \text{const.} \times (2J_i + 1) \quad (5.20)$$

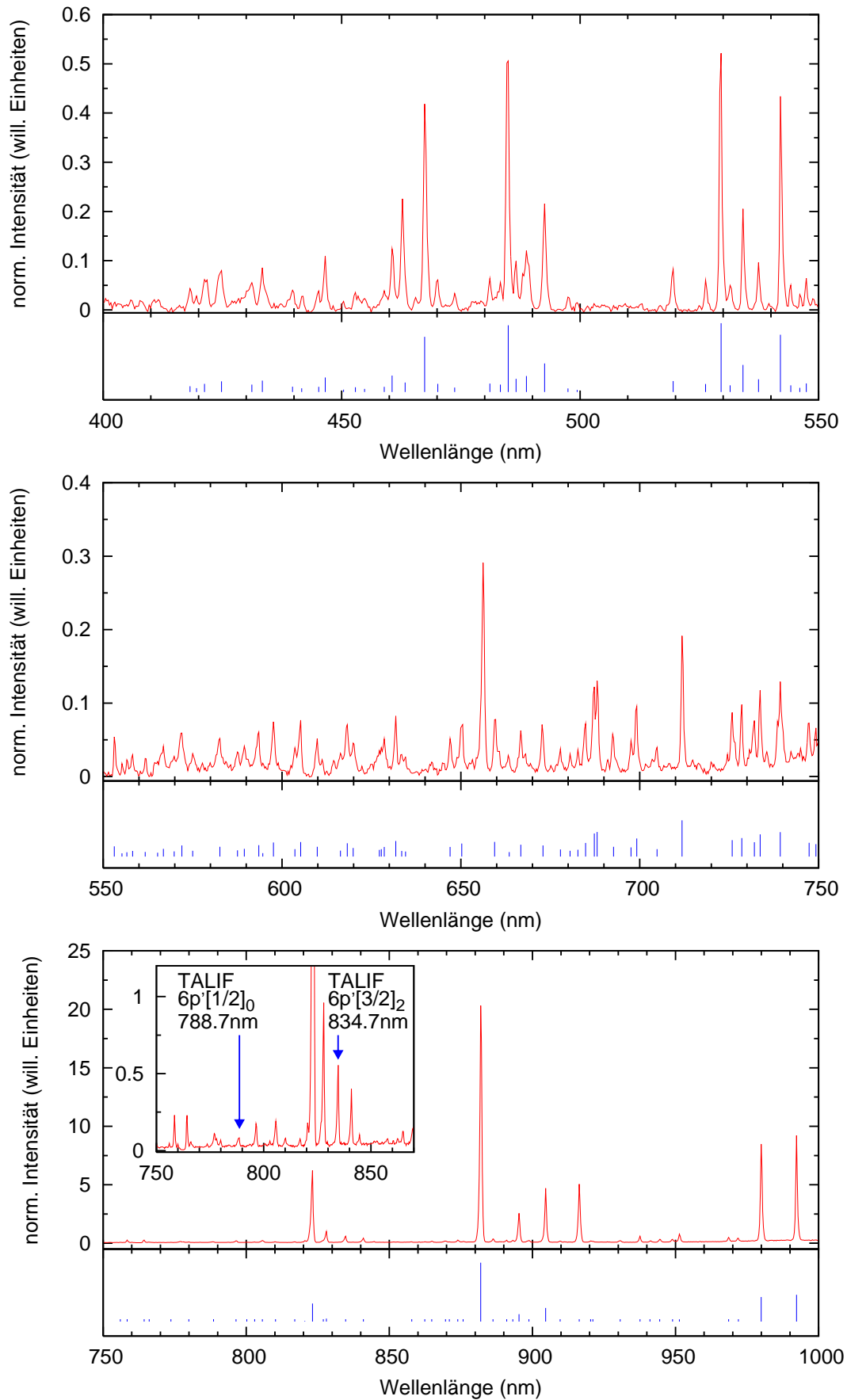
ein, worin  $J_i$  den Gesamtdrehimpuls des  $i$ -ten Zustands bedeutet. Dem letzten Ausdruck liegt die Annahme zugrunde, daß sich die Stoßtransferaten aus metastabilen in nicht-metastabile Zustände nur durch die  $(2J_i + 1)$ -fache Entartung der Zustände, in die der Stoßtransfer stattfindet, unterscheidet. Die Kenntnis der Konstante in (5.20) wird somit bei der Berechnung von Intensitätsverhältnissen nicht benötigt. Diese sehr vereinfachte, qualitative Annahme, begründet für Energieniveaus nicht zu großer energetischer Separation, kann allerdings unter Verwendung der Querschnitte für Anregung aus metastabilen Zuständen, publiziert in Jung et al. [163] umgangen werden.

### 5.2.2. Messungen im Freistrahlfeld des RIT-10

Für die emissionsspektroskopischen Messungen (siehe auch [191]) wurde ein  $f=300$  mm Spektrometer (Acton Pro 300i) in Czerny-Turner Anordnung mit einer  $1024 \times 256$  Pixel CCD-Kamera (Andor DU920N-OE) als Detektor benutzt. Das Detektionsvolumen wurde durch eine An-

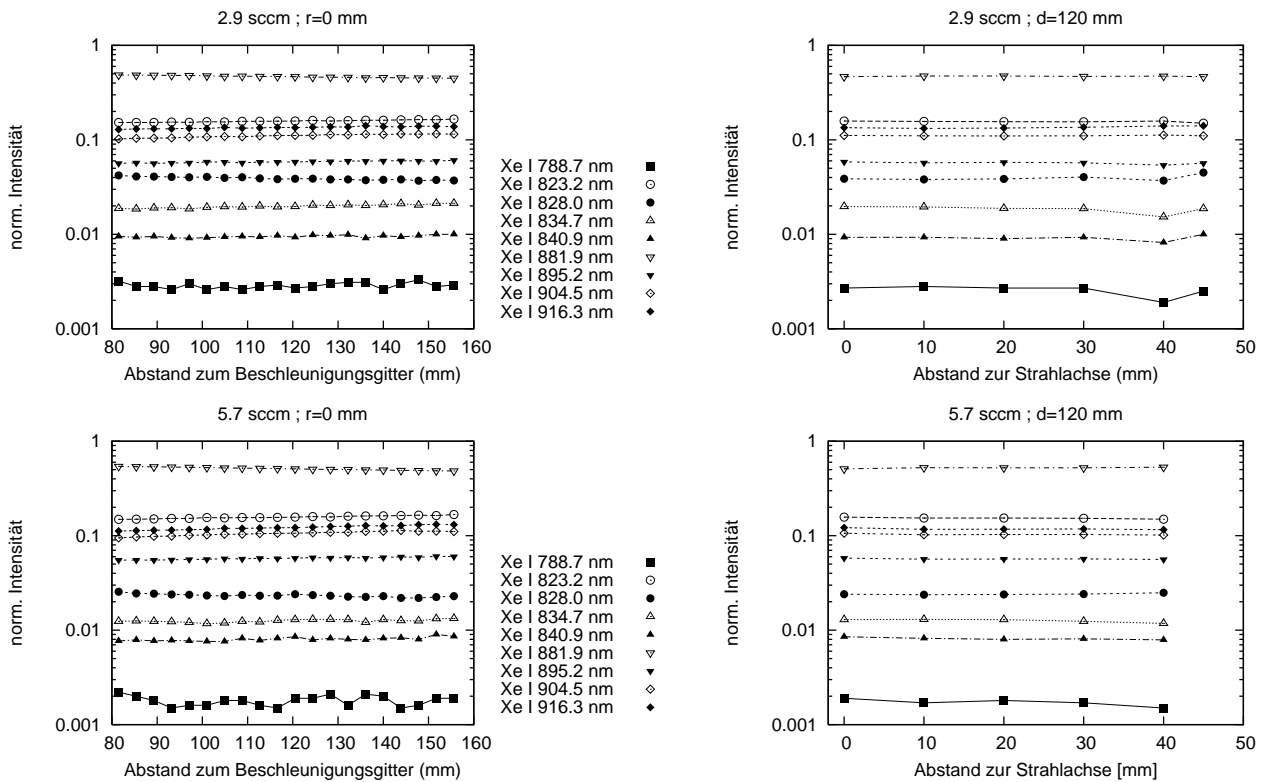


5.2. Emissionsspektroskopie im Freistrahldes RIT-10



**Abbildung 5.2.:** Übersichtsspektrum der Emissionslinien bei einem Volumenstrom von 5.7 sccm an der Position  $d = 120$  mm auf der Plasmaachse.

## 5. Untersuchungen im Freistrahlfeld des Radiofrequenz-Ionentriebwerks RIT-10



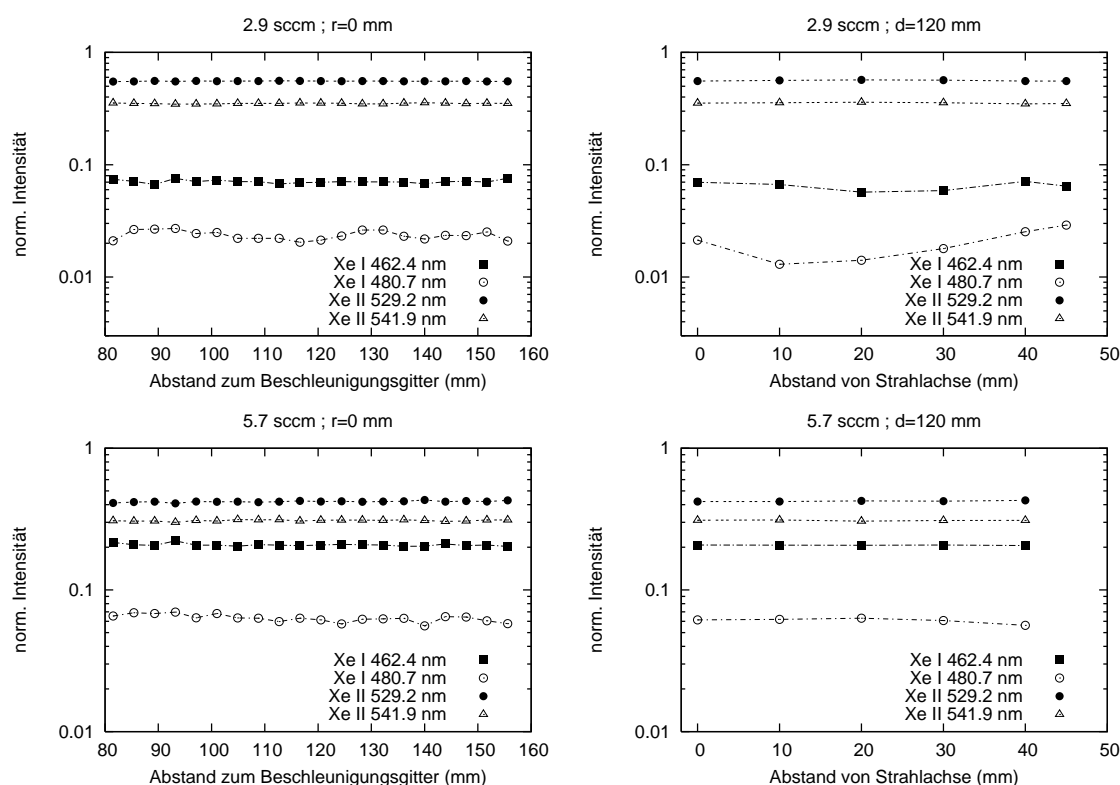
**Abbildung 5.3.:** Spektral integrierte Linienintensitäten einiger Emissionslinien im Bereich  $750 < \lambda < 950$  nm, für die Volumenströme 2.9 sccm (Testbedingung #2a, oben) und 5.7 sccm (Testbedingung #3a, unten), axialer Verlauf auf der Plasmaachse ( $r = 0$ , links) und für verschiedene radiale Positionen im Abstand  $d = 120$  mm vom Beschleunigungsgitter (rechts). Alle Intensitäten sind auf ihre lokalen Gesamtintensität  $\sum_1^9 J^{\lambda_j}$  normiert. Die Meßgenauigkeit einschließlich Unsicherheiten in der Kalibrierung beträgt 35% für die Linie bei 788.7 nm und 15% für alle übrigen.

ordnung eines Plan- und eines Hohlspiegels mit der Brennweite  $f=125$ mm und der Blendenzahl  $f/d=5.2$  auf den Eingangspalt des Spektrometers abgebildet. Die Ausrichtung des Spalts erfolgte parallel zur Plasmaachse, die Detektion der Emissionsspektren rechtwinklig zur Strömungsrichtung. Durch Verwendung eines 300 l/mm Gitters wurde der Spektralbereich  $400 < \lambda < 1000$  nm in drei Intervallen abgedeckt, wobei in den jeweiligen Bereichen Linien unerwünschter Ordnungen durch geeignete optische Kantenfilter (Schott) unterdrückt wurden. Die Belichtungszeit betrug 30 s bei allen Spektren. Die spektrale Sensitivität des Aufbaus wurde mit einem Kalibrierstandard (Ulbrichtkugel-Lichtquelle) bestimmt. Der experimentelle Aufbau orientiert sich an früheren Arbeiten zur Emissionsspektroskopie [162].

Emissionsspektren wurden an 25 axialen Positionen im Abstand  $60 < d < 150$  mm vom Beschleunigungsgitter bei fünf radialen Positionen im Abstand  $0 < d < 45$  mm von der Plasmaachse gemessen. Aufgrund des großen Durchmessers des Ionenstrahls ermöglichte der Aufbau keine Messungen im Randbereich des Freistrahls. Eine zuverlässige Abel-Inversion war dadurch nicht möglich, die Intensitäten aller Emissionslinien sind somit über die Sichtlinie integriert. Im Rahmen der Untersuchungen in diesem Kapitel stellt dies jedoch keine entscheidende Einschränkung dar, wie weiter unten begründet wird.

Abbildung 5.2 zeigt ein Übersichtsspektrum für die Testbedingung #3a. Die Intensität wurde

## 5.2. Emissionsspektroskopie im Freistrah des RIT-10



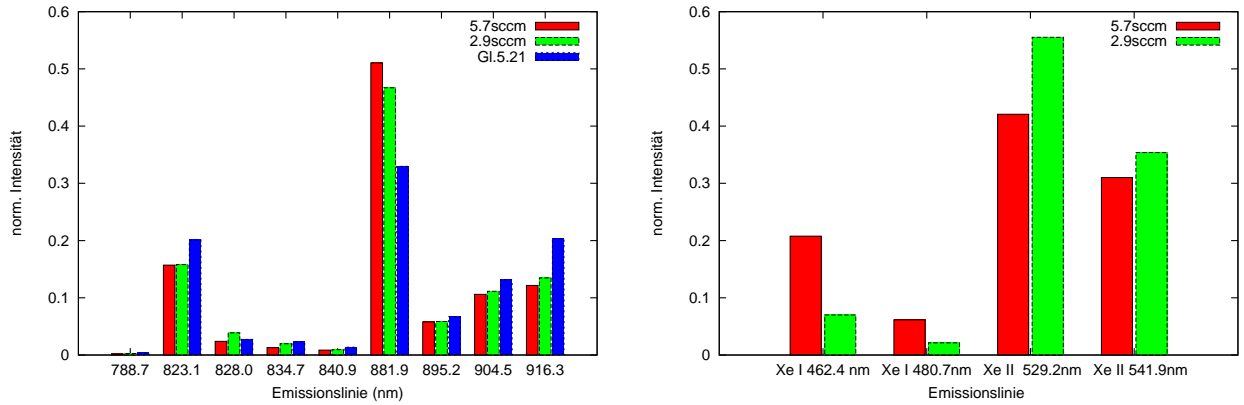
**Abbildung 5.4.:** Wie Abbildung 5.3, jedoch für einige Emissionslinien im Bereich  $400 < \lambda < 550$  nm. Alle Intensitäten sind auf ihre lokale Gesamtintensität  $\sum_1^4 J^{\lambda_j}$  normiert. Die Meßgenauigkeit einschließlich Unsicherheiten in der Kalibrierung beträgt 40% für die Linie bei 480.7 nm und 15% für alle übrigen.

auf die Linie des  $6s [3/2]_1^o \leftarrow 6p [1/2]_0$  (Paschen  $1s_4 \leftarrow 2p_5$ ) Übergangs in neutralem Xenon bei 828.0 nm normiert. Es zeigt kräftige Emissionslinien neutralen Xenons im nahen Infrarot (vorwiegend Übergänge der Multipletts  $6p - 6s$ ) sowie schwächere Linien neutralen Xenons im sichtbaren blauen Bereich (vorwiegend Übergänge zwischen den Multipletts  $7p - 6s$ ). Die Linien einfach ionisierten Xenons liegen im sichtbaren Blau. Eine Zuordnung der Linien ist in der Tabelle in Anhang gegeben.

Die Abbildungen 5.3 und 5.4 zeigen die Intensitäten einiger ausgewählter Emissionslinien neutralen Xenons integriert über die Sichtlinie, für verschiedene axiale Positionen entlang der Plasmaachse (*links*) und für verschiedene radiale Positionen (d. h. verschiedene Abstände von der Plasmaachse) im Abstand  $d = 120$  mm vom Beschleunigungsgitter (*rechts*) für jeweils zwei Testbedingungen, die sich in ihrem Massenstrom unterscheiden.

Bei beiden emissionsspektroskopisch untersuchten Bedingungen #2a und #3a wurden bei fester axialer Position bis zu einem radialen Abstand von 40 mm (5.7 sccm) bzw. 45 mm (2.9 sccm) keine signifikanten Änderungen einzelner Linienverhältnisse gemessen. Die Variation der sehr schwachen Linie bei 480.7 nm bei 2.9 sccm ist auf die Unsicherheiten bei der Korrektur des Untergrunds zurückzuführen. Es wurde zudem im Bereich sichtbaren Lichts für axiale Abstände  $d < 150$  mm nur eine geringe Strahlaufweitung beobachtet. Unter der Annahme, daß wesentliche Beiträge zur Emissionsintensität außerhalb eines Abstands von 60 mm zur Plasmaachse nicht mehr zu erwarten sind, scheint die Folgerung gerechtfertigt, daß die Linienverhältnisse auch

## 5. Untersuchungen im Freistrahlfeld des Radiofrequenz-Iontriebwerks RIT-10



**Abbildung 5.5.:** Normierte Linienintensitäten im Abstand  $d=120$  mm vom Beschleunigungsgitter auf der Plasmaachse ( $r=0$  mm). Links: Vergleich zwischen gemessenen und berechneten Linienintensitäten von Übergängen in neutralem Xenon unter Ausschluß elektronenstoßinduzierter Anregung. Rechts: Vergleich der gemessenen Linienintensitäten neutralen Xenons und einfach ionisierten Xenons.

für die äußeren radialen Positionen entweder konstant bleiben oder nur geringe Beiträge zu den Verhältnissen der über die Sichtlinie integrierten Intensitäten für  $r < 40$  mm bilden. In diesem Fall ist der quantitative Einfluß einer Abel-Inversion der Linienintensitäten für die Linienverhältnisse von untergeordneter Bedeutung.

Im Grenzfall der Abwesenheit von Elektronen im Freistrahlfeld reduziert sich Gleichung (5.11) für ein zu untersuchendes Linienverhältnis zweier Übergänge in neutralem Xenon auf

$$\frac{J_{\lambda_1}}{J_{\lambda_2}} = \frac{\lambda_2}{\lambda_1} \frac{k_1^{\lambda_1} + \beta k_2^{\lambda_1}}{k_1^{\lambda_2} + \beta k_2^{\lambda_2}} \quad (5.21)$$

mit dem Verhältnis der Dichten zweifach und einfach geladener Ionen  $\beta \equiv N_2/N_1$ , was einer Beschränkung des Modells auf die Anregungsmechanismen (5.8)-(5.9) entspricht. Im allgemeinen ist  $\beta = \beta(\mathbf{r})$ . Da die Querschnitte für den Anregungsmechanismus (5.9) teilweise erheblich kleiner sind als für die Anregung (5.8), [58, 59], dominieren für  $\mathcal{O}(\beta) < 0.1$  die  $k_1^\lambda$ -Terme.

Abbildung 5.5 zeigt einen Vergleich zwischen den auf die Gesamtintensität der jeweils betrachteten Linien normierten Linienintensitäten bei beiden Testbedingungen an der Axialposition  $d = 120$  mm, und den nach Gleichung (5.21) berechneten Intensitäten für  $\beta = 0.1$  unter Benutzung der Anregungsquerschnitte von Sommerville et al. [59]. Die Anregungsquerschnitte für die Stoßanregungen  $\text{Xe} + \text{Xe}^+$  und  $\text{Xe} + \text{Xe}^{2+}$  werden dort bei den Stoßenergien von 900 eV bzw. 1800 eV mit einer Unsicherheit von 40% angegeben<sup>2</sup>. Innerhalb dieser Fehlergrenzen wird das beobachtete Spektrum bei der Testbedingung für beide Massenströme befriedigend wiedergegeben, mit Ausnahme der Linie bei 881.9 nm, bei der eine Abweichung zwischen den gemessenen und der nach Gleichung (5.21) berechneten Intensität von  $\sim 50\%$  beobachtet wird.

Die wesentlichen Schwierigkeiten bei der Modellierung des Emissionsspektrums der hier un-

<sup>2</sup>Diese Energien entsprechen im idealisierten Fall den kinetischen Energien der jeweiligen Ionen in großen Abständen zum Beschleunigungsgitter. In der Nähe des Beschleunigungsgitters sind die Energien höher, da das Beschleunigungsgitter eine negative Spannung trägt (der Potentialabfall beträgt 1100 V zwischen beiden Gittern bei den Testbedingungen #2a und #3a)

untersuchten Testbedingungen gründen auf der Tatsache, daß im vorliegenden Fall keine lokale Quasineutralität vorausgesetzt werden kann. Während im Karabadzak-Modell die Stoßabregung metastabiler Zustände ausschließlich durch Elektronenstöße erfolgt, müssen bei Abwesenheit oder deutlich reduzierten Dichten von Elektronen andere Mechanismen für deren Abregung verantwortlich sein<sup>3</sup>. Mit der Anwendung von Gleichung (5.21) wird davon ausgegangen, daß diese Abregungsmechanismen dieselben sind wie bei der Messung der Anregungsquerschnitte in [58,59], da hierin keine Angaben über eine Neutralisation der dort verwendeten  $\text{Xe}^+$  und  $\text{Xe}^{2+}$  Strahlen durch Beigabe von Elektronen gemacht werden. Weiterhin führt das Eigenfeld eines nicht- oder unvollständig neutralisierten Ionenstrahls zu einem komplizierten Potentialverlauf entlang der Plasmaachse, was die Einführung lokaler Koeffizienten  $k_{1,2}^\lambda = k_{1,2}^\lambda(\mathbf{r})$  erfordert.

Ein eindeutiger Hinweis, daß weitere Prozesse als (5.8)-(5.9) für die Plasmaemission der vorliegenden Testbedingungen eine Rolle spielen, zeigt sich beim Vergleich der untersuchten Testbedingungen. Beide Bedingungen unterscheiden sich in ihren Massenströmen, und, aufgrund der verschiedenen Ionisationseffizienzen bei Vernachlässigung veränderter axialer Potentialverläufe durch die unvollständige Neutralisation, in den radial gemittelten Verhältnissen der Dichten von Neutralteilchen und einfach geladener Ionen. Da Teilchendichten nicht in Gleichung (5.21) eingehen, sind identische Linienverhältnisse bei beiden Testbedingungen zu erwarten. Interessanterweise treten, wie in Abbildung 5.5 gezeigt, die normierten Intensitäten der Emissionslinien bei 788.7 nm, 828.0 nm und 834.7 nm bei 5.7 sccm gegenüber der über alle neun Linien summierten Intensität um etwa 40% zurück, während die normierten Intensitäten der anderen Linien eine deutlich geringere Änderung erfahren. Erstgenannte Linien sind durch optische Übergänge nur schwach an den metastabilen  $6s\ [3/2]_2^o$  (Paschen  $1s_5$ ) Zustand gekoppelt, während die allen anderen Linien zugewordneten oberen Zustände deutlich größere *branching ratios* für die optische Abregung auf diesen metastabilen Zustand besitzen. Da in [58, 59] keine Druckabhängigkeit der Anregungsquerschnitte bei ionenstoßinduzierter Anregung gefunden wurde, bleibt der Ursprung dieser Beobachtung in der Beschränkung auf die Reaktionen (5.8)-(5.9) unklar. Ähnliche Schwierigkeiten treten für die auf der rechten Seite von Abbildung 5.5 gezeigten normierten Intensitäten jeweils zweier Linien neutralen und einfach ionisierten Xenons im sichtbaren Bereich auf. Für den Volumenstrom von 2.9 sccm nehmen die Intensitäten der Linien einfach geladenen Xenons gegenüber den Intensitäten der Linien neutralen Xenons zu, beispielsweise wird  $J^{541.9} : J^{462.4}|_{5.7\text{sccm}} = 1.5$  und  $J^{541.9} : J^{462.4}|_{2.9\text{sccm}} = 4.8$  gemessen.

Ein möglicher Erklärungsversuch für die erhöhten Intensitäten der Linien ionisierten Xenons bei 2.9 sccm kann von der Wichtigkeit der bislang nicht berücksichtigten möglichen Anregungsreaktion



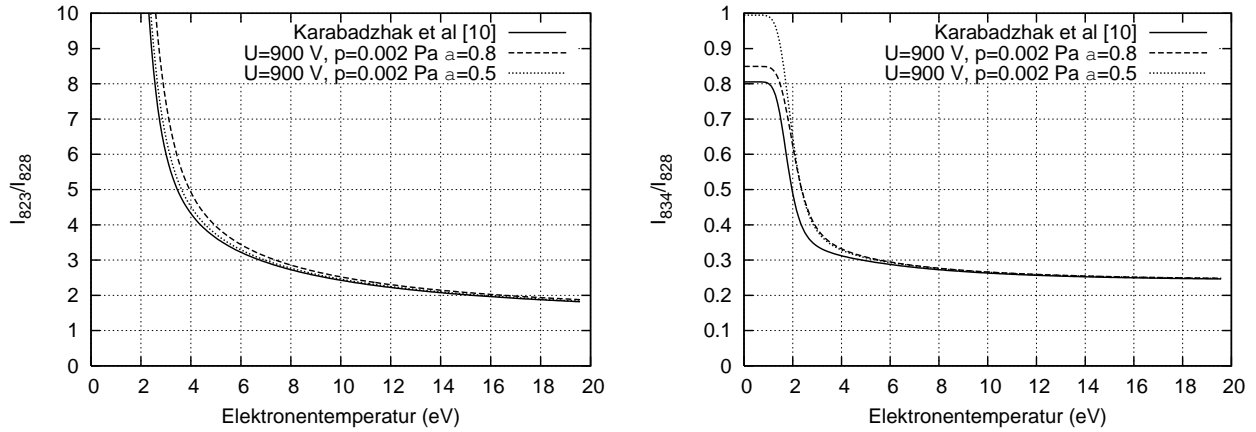
ausgehen. In diesem Fall wird der Anteil der Emission einer Linie einfach ionisierten Xenons äquivalent zu den Termen in Gleichung (5.21) durch

$$J^\lambda(\text{XeII}) \propto N_0 N_1 [k_1^\lambda + \beta k_2^\lambda + (N_2/N_0) k_3^\lambda] \quad (5.23)$$

---

<sup>3</sup>Es ist zu beachten, daß die Beschränkung des Modells auf elektronenstoßinduzierte Abregung metastabiler Zustände durch den Ansatz in Gleichung (5.16) gegeben ist. In der Konsequenz führt Gleichung (5.11) für  $N_e = 0$  auf Gleichung (5.21), nicht jedoch Gleichung (5.18).

## 5. Untersuchungen im Freistrahlfeld des Radiofrequenz-Iontriebwerks RIT-10



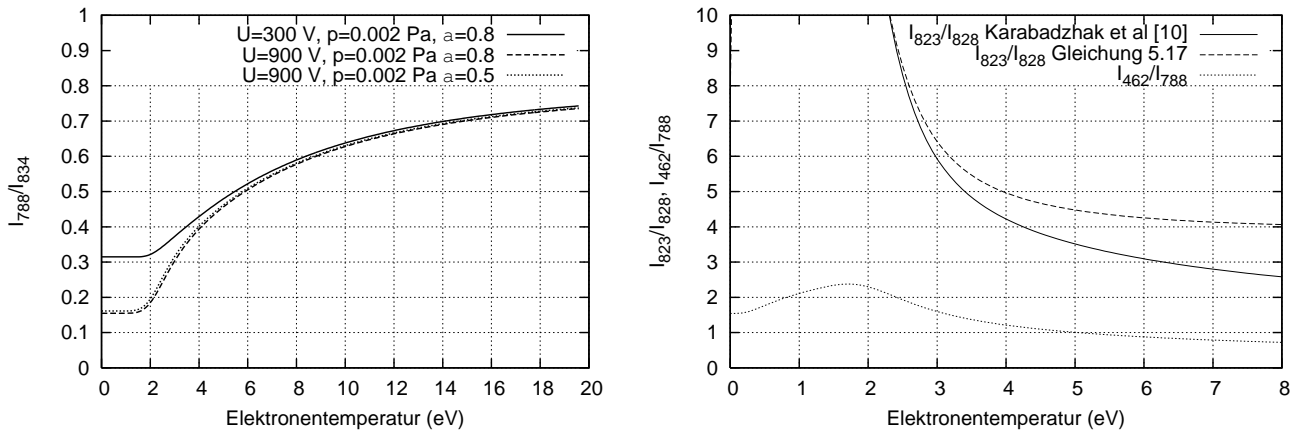
**Abbildung 5.6.:** Intensitätsverhältnisse der Eigenemission des Plasmas im Freistrahlfeld für zwei Übergänge, gerechnet für die Ionenenergien von 300 eV mit den Anregungsquerschnitten aus Chiu et al. [58] und für 900 eV aus Sommerville et al. [59]. Die Daten für die Anregungsquerschnitte der Rechnung von Karabadzhak et al. [10] entstammen ebenfalls [58].

mit den unbekanntenen Übergangsratenkoeffizienten  $k_3^\lambda$  beschrieben. Aufgrund der Kleinheit der Größen  $N_2/N_1$  und  $N_2/N_0$  erscheint die starke Zunahme der Emission einfach geladenen Xenons bei 541.9 nm trotz der Unkenntnis von  $k_3^\lambda$  jedoch nicht wahrscheinlich. Eine weitere mögliche Erklärung der Variation der Linienverhältnisse besteht in der Erzeugung von Elektronen in dem ursprünglich nicht neutralisierten Ionenstrahl durch einen hier nicht bekannten Mechanismus. Da nicht in jedem Fall davon ausgegangen werden kann, daß die Quasineutralitätsbedingung erfüllt ist, ist zur Modifikation von Gleichung (5.18) die Einführung eines weiteren Parameters  $\gamma N_e = N_1 + 2N_2$  erforderlich, der die Abweichung von der Quasineutralität beschreibt. Bei ungeänderter Bedeutung der übrigen Größen wird Gleichung (5.18) zu

$$J_\lambda(T_e, \alpha, \gamma) = \frac{hc}{4\pi\lambda} N_0 N_e \left( k_{e0}^\lambda + \alpha k_1^\lambda + \frac{\gamma - \alpha}{2} k_2^\lambda \right) \left[ 1 + \frac{K^\lambda(T_e, \alpha, \gamma)}{\zeta^\lambda} \right]. \quad (5.24)$$

Bei Vernachlässigung der Beiträge der Reaktionen (5.9) und (5.10) ist für eine Analyse eine akkurate Bestimmung der Größe  $\alpha$  notwendig, was im Rahmen dieser Arbeit nicht möglich war. Es muß zusätzlich beachtet werden, daß infolge der Näherung (5.16) Gleichung (5.24) für kleine Elektronendichten keine Gültigkeit besitzt. Da eine Abweichung von der lokalen Ladungsneutralität möglicherweise auch in RIT-Konfigurationen mit Neutralisation auftritt, (beachte hierzu die Stromdichteverteilungen in [166]), ist die Beschreibung des Freistrahls mit Modellen unter Voraussetzung von Quasineutralität möglicherweise grundsätzlich fragwürdig.

Bei der Auswahl geeigneter TALIF-Schemen zur Anwendung im Freistrahlfeld eines mit Xenon betriebenen elektrischen Triebwerks sind grundsätzlich Fluoreszenzübergänge mit möglichst geringer Eigenemission des Plasmas von Interesse. Grundsätzlich läßt sich die über den Integrationszeitraum akkumulierte Eigenemission während eines TALIF-Experiments durch Aufnahme eines zeitlich um wenige Lebensdauern des angeregten Zustands verschobenen Integrationsfensters subtrahieren. Es besteht jedoch die Möglichkeit, daß bei zu großen zeitlichen Fluktuationen des Hintergrundes das laserinduzierte Fluoreszenzsignal nicht mehr hinreichend aufgelöst werden kann. Unter Annahme der Gültigkeit der Poisson-Statistik für die zeitliche Schwankung der



**Abbildung 5.7.:** Links: Intensitätsverhältnis der Eigenemission des Plasmas im Freistrahls für zwei Übergänge, die als Fluoreszenzübergänge in den TALIF-Schemen der  $J = 0, 2$  Zustände des  $6p'$  Multipletts benutzt werden können. Die Anregungsquerschnitte für ionenstoßinduzierte Emission bei Stoßenergien von 300 V sind entnommen aus [58], für 900 V aus [59], für elektronenstoßinduzierte Emission in beiden Fällen aus [58]. Rechts: Vergleich der Berechnung der Intensitätsverhältnisse  $J_{823}/J_{828}$  und  $J_{462}/J_{788}$  mit (gestrichelte Linien) und ohne (durchgezogene Linie) Verwendung von direkten Anregungsquerschnitten aus metastabilen Niveaus.

Eigenemission ist die Varianz ihrer Intensität gleich ihrem Mittelwert. Die Standardabweichung als Maß für die Fluktuation skaliert somit mit der Quadratwurzel der Intensität,  $\sqrt{J\lambda}$ .

Die in dieser Arbeit diskutierten TALIF-Schemen für die Anwendung in der Diagnostik des Freistrahls des RIT-10 Triebwerks besitzen Fluoreszenzübergänge bei den Wellenlängen 788.7 nm ( $6s' [1/2]_1^o \leftarrow 6p' [1/2]_0$ ), 834.7 nm ( $6s' [1/2]_1^o \leftarrow 6p' [3/2]_2$ ) und 462.4 nm ( $6s [3/2]_2^o \leftarrow 7p [3/2]_2$ ). Für Testbedingung #3a (5.7 sccm) wurde im Experiment ein Intensitätsverhältnis  $J_{462.4} : J_{788.7} : J_{834.7}$  von 3 : 1 : 7 gefunden. Nach Gleichung (5.21) wird ein Verhältnis  $J_{788.7} : J_{834.7}$  von 1 : 6 berechnet ( $\beta = 0.1$ ), das Verhältnis  $J_{462.4} : J_{788.7}$  läßt sich nur mit den Anregungsquerschnitten bei 300 V in [58] angeben; es beträgt 2.5 : 1.

Auf Grundlage des Karabadzhak-Modells ist es möglich, Aussagen über Linienverhältnisse in lokal quasineutralen, dünnen Xenon-Plasmen in Abhängigkeit der Elektronentemperatur und des Parameters  $\alpha$  zu treffen. In Abbildung 5.6 werden die durch Gleichung (5.18) bestimmten Linienverhältnisse  $J_{823.2} : J_{828.0}$  und  $J_{834.7} : J_{828.0}$  über der Elektronentemperatur dargestellt. Zur Überprüfung der Berechnung werden zunächst die in Karabadzhak et al. gezeigten Verläufe unter Verwendung der Anregungsquerschnitte in [58] reproduziert. Die Summe bei der Berechnung von  $K^{823.2}(T_e, \alpha)$  läuft hierbei über alle Linien des  $6p$  Multipletts, die optisch an den metastabilen  $6s [3/2]_2^o$  ( $1s_5$ ) Zustand gebunden sind. Aufgrund der kleinen *branching ratios* für die optische Abregung auf den metastabilen  $6s [3/2]_2^o$  ( $1s_5$ ) Zustand wird  $K^{828.0}(T_e, \alpha) = K^{834.7}(T_e, \alpha) \equiv 0$  gesetzt [10]. Für die ionenstoßinduzierte Anregung wurden einige Anregungsquerschnitte in Abhängigkeit von der Stoßenergie durch Sommerville et al. [59], gemessen. Wie aus Abbildung 5.6 ersichtlich wird, ergeben sich quantitative Unterschiede beider Linienverhältnisse für Beschleunigungsspannungen von 900 V. Im Hinblick auf TALIF-Untersuchungen ist insbesondere das Verhältnis  $J_{788.7} : J_{834.7}$  von Bedeutung. Die linke Seite von Abbildung 5.7 zeigt, daß für die hier untersuchten Testbedingungen die berechnete Emission des Plasmas bei 834.7 nm die bei 788.7 nm für niedrige Elektronentemperaturen  $< 5$  eV, wie sie im Freistrahls auftreten, mit

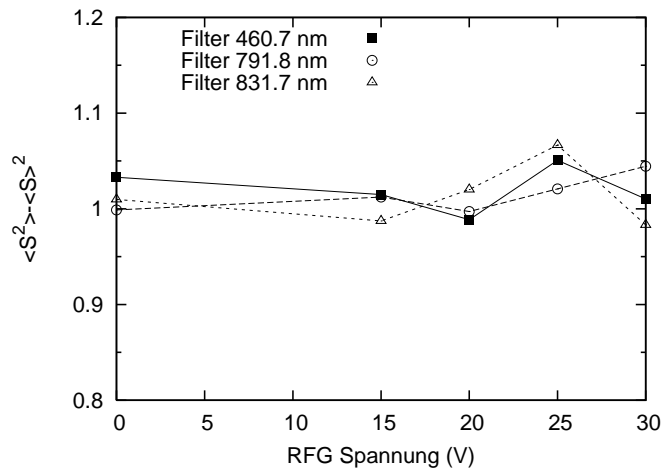
einem Faktor 2–5 übertrifft.

Etwas aufwendiger ist die Berechnung des Linienverhältnisses  $J_{462.4}:J_{788.7}$ . Die Fluoreszenzlinie bei 462.4 nm wurde in einem TALIF-Anregungsschema von Crofton benutzt [56]. Die Anregungsquerschnitte für elektronen- und ionenstoßinduzierte Emission wurden in Chiu et al. [58] bestimmt. Da der Übergang aus dem  $7p$  Multiplett erfolgt, ist aufgrund des großen energetischen Abstands zu den Niveaus des  $6p$  Multipletts die Näherung (5.16) nicht anwendbar. Eine interessante Möglichkeit der Berechnung des Linienverhältnisses ergibt sich ausgehend von Gleichung (5.17), da die Querschnitte für die elektronenstoßinduzierte Anregung aus metastabilen Zuständen in die  $6p$ - und  $7p$  Multipletts kürzlich durch Jung et al. [163, 164] gemessen wurden, was eine direkte Berechnung der Größen  $T_i$  erlaubt. Die rechte Seite von Abbildung 5.7 zeigt die so berechneten Intensitätsverhältnisse über der Elektronentemperatur. Für die elektronenstoßinduzierte Anregung aus dem Grundzustand wurden aus Konsistenzgründen die Datensätze von Fons und Lin verwendet [165]. Die scheinbaren Anregungsquerschnitte wurden mittels der *branching ratios* in [33] in die jeweiligen optischen Querschnitte umgerechnet [164]. Die Berechnung erfolgte bei einem Gasdruck von  $1.3 \times 10^{-1}$  Pa; eine Extrapolation zu niedrigeren Drücken ist aufgrund der verfügbaren Daten in [163, 164] nicht möglich. Die Summe beinhaltet die  $J = 1, 1, 2, 2, 3$  Zustände des  $6p$  Multipletts und die zwei Zustände  $7p[3/2]_2$  (Paschen  $3p_6$ ) und  $7p[5/2]_3$  ( $3p_8$ ) des  $7p$  Multipletts. Die übrigen werden infolge ihrer schwachen optischen Kopplung an den  $1s_5$  Zustand vernachlässigt. Die ionenstoßinduzierten Anregungsquerschnitte entstammen [58] (bei 300 V). Der Vergleich der Berechnungen des  $J_{834.7}:J_{828.0}$  Verhältnisses zeigt deutliche Unterschiede, eine Annäherung beider Kurven ergibt sich für Variationen der Anregungsquerschnitte innerhalb der in [163–165] angegebenen Fehlerbalken. Die dargestellten Verläufe stellen qualitative Rechnungen dar, da die Anregungsquerschnitte aus dem metastabilen Zustand für einige Übergänge nur im Bereich von Elektronenenergien von 0 – 10 eV bekannt sind. Auf Grundlage dieser Berechnungen erscheint die Eigenemission bei 788.7 nm sowohl gegenüber den Linien bei 462.4 nm als auch bei 834.7 nm in einem Bereich niedriger Elektronentemperaturen wenigstens moderat reduziert, was bei der Detektion von schwachen TALIF-Signalen vorteilhaft sein kann.

Um den Einfluß zeitlicher Fluktuationen der Eigenemission des Plasmas auf das laserinduzierte Fluoreszenzsignal während des TALIF-Meßprozesses für den verwendeten experimentellen Aufbau abzuschätzen, wurde für die Testbedingungen #3a bis #3d die Eigenemission des Plasmas mit der Detektionsapparatur des TALIF-Aufbaus gemessen. Hierfür wurde der Laserstrahl vor Eintritt in den Vakuumteststand blockiert. Die übrigen Einstellungen der Meßelektronik sind vollkommen identisch mit denjenigen während eines TALIF-Experiments. Die Integrationszeit des Meßsignals beträgt wie in den später diskutierten TALIF-Versuchen 100 ns, während dieses Zeitraums wurde die Eigenemission im spektralen Transmissionsbereich des jeweiligen Interferenzfilters aufgenommen.

In Abbildung 5.8 sind die Schwankungsquadrate  $(\Delta s)^2 = \langle s^2 \rangle - \langle s \rangle^2$ , für verschiedene Testbedingungen über jeweils 500 Pulse dargestellt, wobei  $s$  für das akkumulierte Meßsignal  $S$  eines Einzelpulses steht. Das Schwankungsquadrat zeigt keine eindeutige Veränderung mit Variation der Testbedingungen; die Schwankungsquadrate der einzelnen spektralen Bereiche unterscheiden sich unwesentlich. Somit wird für die vorliegenden Sensitivitätsparameter der Anordnung die Güte des TALIF-Signals nicht erkennbar durch die Eigenemission des Plasmas in den jeweiligen Spektralbereichen beeinflusst.





**Abbildung 5.8.:** Mittleres Schwankungsquadrat der Einzelmessung bei 500 Pulsen für den transmittierten Spektralbereich der jeweiligen Interferenzfilter. 0 V entsprechen dem Kaltgasstrom, die übrigen Generatorspannungen den Testbedingungen #3b, #3c, #3d und #3a.

## 5.3. TALIF-Untersuchungen im Freistrahls des RIT-10

### 5.3.1. Versuchsaufbau und -durchführung

Während der TALIF-Experimente im Freistrahls des RIT-10 Triebwerks wurde das Lasersystem aus technischen Gründen am Vakuumteststand Tank 9 installiert. Der geringe energetische Abstand zwischen den  $6p'[1/2]_0$  und  $6p'[3/2]_2$  Zuständen erlaubt die Anregung beider Zwei-Photonen Resonanzen unter Verwendung eines Laserfarbstoffs (Coumarin 102). Die Laserstrahlung wurde mittels eines Reflexionsprismas zunächst um 90 Grad in vertikaler Richtung umgelenkt und anschließend durch ein weiteres Reflexionsprisma in einer Höhe von etwa 4 Metern durch die Laborhalle auf ein Eingangsfenster von Tank 7, dem in Kapitel 2.3 beschriebenen Teststand mit integriertem Ionentriebwerk RIT-10, ausgerichtet, wo der Strahl durch ein drittes Reflexionsprisma in vertikaler Richtung in den Vakuumteststand gelenkt wurde. Aufgrund der Strahlaufweitung des Laserstrahls erfolgte die Fokussierung auf das Detektionsvolumen anstelle des dreikomponentigen Linsensystems durch eine einfache Linse der Brennweite  $f = 130$  cm. Die Plasmaachse des Freistrahls des RIT-10 und die Ausbreitungsrichtung des Laserstrahls bilden somit einen Winkel von 90 Grad, die Detektion der Fluoreszenzstrahlung erfolgte in der dritten senkrechten Achse. Die Abbildung des Detektionsvolumens auf den in der Ausbreitungsrichtung des Laserstrahls ausgerichteten Spalt vor dem Photomultiplier erfolgte durch die bereits im vorangegangenen Kapitel verwendete achromatische Linse der Brennweite  $f = 30$  cm im Abbildungsverhältnis von etwa 3:1 bei einer Positionierung außerhalb des Vakuumtanks. Während sämtlicher Messungen befindet sich der Schwerpunkt des Detektionsvolumens auf der zentralen Plasmaachse des Freistrahls in einem Abstand von 12 cm vom Beschleunigungsgitter.

Die Integrationszeit des Boxcar Averagers beträgt 100 ns, die Korrektur des Hintergrunds erfolgt über ein 300 ns verschobenes Integrationsintervall von ebenfalls 100 ns Dauer. Für die in dieser Arbeit untersuchten Testbedingungen und Integrationszeiten sind die Beiträge der Hintergrundemission des Plasmas zum gesamten integrierten Fluoreszenzsignal vernachlässigbar gering; die Korrektur des TALIF Signals durch Subtraktion des Hintergrunds wurde dennoch

für jede Messung durchgeführt.

Aufgrund der kleinen zu erwartenden Dichten neutralen Xenons im Freistrahlfeld des RIT-10 von der Größenordnung  $10^{17}$  bis  $10^{18} \text{ m}^{-3}$  und den damit verbundenen Schwierigkeiten der Justierung der Detektionsoptik wurde der Teststand zunächst auf einen Hintergrunddruck von etwa 1.5 Pa evakuiert und mit einem Partialdruck von 1 – 2 Pa Xenon befüllt. Anschließend wurden die Detektionsoptik und die Position des Photomultipliers auf das bei diesem Xenongehalt deutlich erkennbare laserinduzierte Fluoreszenzsignal ausgerichtet. Gegenüber den Messungen im Freistrahlfeld bei erheblich geringeren Dichten neutralen Xenons wurde keine durch räumliche Verschiebung der Versuchsgeometrie bedingte Veränderung der Position des Detektionsvolumens beobachtet.

### 5.3.2. Diskussion der Resultate

Die Auswahl der  $6p'[1/2]_0$  und  $6p'[3/2]_2$  Zustände für die TALIF-Untersuchungen im Freistrahlfeld des RIT-10 ist auf den Resultaten der Emissionsspektroskopie sowie den in Kapitel 4.2 diskutierten Werten für die jeweiligen Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitte begründet. In Kapitel 4.2 wurde das Verhältnis der Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitte für die Grundzustandsanregung der obigen Zustände mit 1.1 bestimmt. Es wurde dabei nur ein geringer Unterschied in der natürlichen Lebensdauer beider angeregter Zustände gefunden. Für die *branching ratios* fanden Horiguchi et al. [33], mit LIF-Methoden jeweils die Werte 0.62 und 0.73 für die Linien bei 788.7 und 834.7 nm, in vernünftiger Übereinstimmung mit neueren Messungen der Elektronenstoßspektroskopie [59].

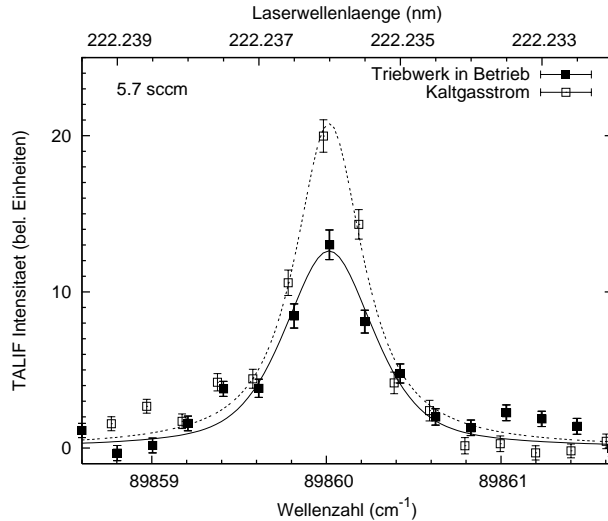
Die Zwei-Photonen Anregung des  $6p'[3/2]_2$  Niveaus mit Beobachtung der Fluoreszenz bei 834.7 nm wurde von Aanesland et al. [57] in der plasmadiagnostischen Untersuchung eines Helicon-Plasmas verwendet, und von Niemi et al. [21] als Kalibrierübergang für TALIF-Messungen in atomarem Sauerstoff benutzt. Teile der Ergebnisse dieses Kapitels werden in eigenen Veröffentlichungen besprochen [186, 188, 189].

### Messungen mit Anregung des $6p'[1/2]_0$ Zustands

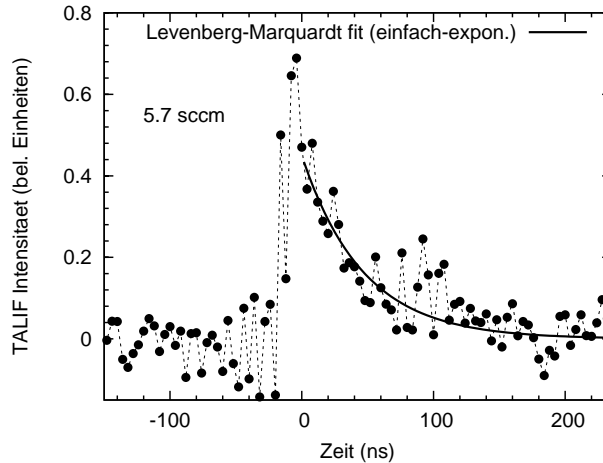
Sämtliche Messungen im Freistrahlfeld des Triebwerks wurden als spektrale Scans von 12 – 20 Wellenlängenschritten durchgeführt. Die Schrittweite beträgt 0.5 pm im frequenzverdoppelten Regime. Die Intensität des TALIF-Signals bei jedem Wellenlängenschritt entspricht der akkumulierten Fluoreszenz von 500 Einzelpulsen. Abbildung 5.9 zeigt die spektralen Absorptionsprofile nach Anregung des  $6p'[1/2]_0$  Zustands, die Isolation der Fluoreszenzstrahlung bei 788.7 nm in diesem TALIF Schema erfolgte wie im vorangegangenen Kapitel mit einem Interferenzfilter mit ZWL 791.8 nm unter einer Halbwertsbreite der Transmission von 9.1 nm.

Eine zeitlich aufgelöste Fluoreszenzmessung, aufgenommen für die Testbedingung #3a, ist in Abbildung 5.10 gezeigt. Es liegen die Fluoreszenzsignale von 500 Einzelmessungen im spektralen Maximum des Absorptionsprofils zugrunde. Die Lebensdauer des Fluoreszenzsignals beträgt  $46 \pm 13$  ns. Die Messung weist aufgrund der schwachen Intensitäten eine beträchtliche Meßunsicherheit auf, liegt jedoch in akzeptabler Übereinstimmung mit dem in Kapitel 4.2.1 bestimmten Wert der natürlichen Lebensdauer des  $6p'[1/2]_0$  Zustands von  $38 \pm 2$  ns. Mit dem ebenfalls in Kapitel 4.2.1 gemessenen Stoßdeaktivierungskoeffizienten von  $k_q = 344 \pm 76 \times 10^{-12} \text{ cm}^3/\text{s}$  ist

### 5.3. TALIF-Untersuchungen im Freistrah des RIT-10



**Abbildung 5.9.:** Spektrale Profile der TALIF Signale im Kaltgasstrom und während der Testbedingung #3a, bei Anregung des  $6p'[1/2]_0$  Zustands mit Detektion der Fluoreszenz bei 788.7 nm. Die Verschiebung der Anregungswellenlänge gegenüber den Wellenzahlen ist durch die Brechzahländerung und einen Offset in der Kalibrierung des Gratings des Farbstofflasers bedingt.



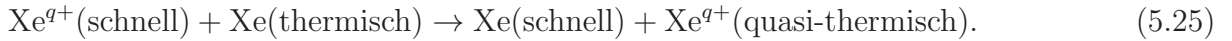
**Abbildung 5.10.:** Zeitaufgelöstes laserinduziertes Fluoreszenzsignal bei Anregung des  $6p'[1/2]_0$  Zustands mit Detektion der Fluoreszenz bei 788.7 nm während der Testbedingung #3a.

für Grundzustandsdichten der Größenordnung  $N_0 \lesssim 10^{18} \text{ m}^{-3}$  für die Stoßdeaktivierung eines angeregten neutralen Xenon Atoms durch Zweikörperstöße mit Atomen neutralen Xenons im Grundzustand das Verhältnis der Stoßabregungsrate zur inversen natürlichen Lebensdauer  $A$  des  $6p'[1/2]_0$  Zustands von der Größenordnung  $\mathcal{O}(N_0 k_q / A) \sim 10^{-5}$  und damit vernachlässigbar.

Weitere mögliche Stoßabregungsmechanismen gehen aus der Anwesenheit ionisierter Spezies hervor. Im Freistrah von Ionentriebwerken können sogenannte Ladungsaustausch (*charge exchange transfer*, CEX)-Prozesse auftreten; bei diesem Vorgang wird die Ladung eines Atoms einer ionisierten Spezies auf einen neutralen Stoßpartner übertragen, wobei neben dem La-

## 5. Untersuchungen im Freistrahlfeld des Radiofrequenz-Iontriebwerks RIT-10

dungsaustausch annähernd kein Impulsübertrag auftritt. Der Prozeß ist von der Form [60]



Durch dieses Phänomen entstehen Populationen langsamer Ionen auf Trajektorien unter großen Winkeln zur Plasmaachse; die Wechselwirkung mit lokalen Feldern (unter anderem des Beschleunigungsgitters) kann einen schädlichen Rückfluß auf die Gitter oder sensitive Teile des Raumfahrzeugs bewirken [8, 9, 29]. Wirkungsquerschnitte für Ladungsaustauschreaktionen sind für Stöße zwischen Grundzustandsatomen neutralen und ionisierten Xenons experimentell bestimmt worden, für Stoßenergien zwischen 0.1 und 1 keV sind sie von der Größenordnung  $\sigma_{CEX} \sim 5 \times 10^{-15} \text{ cm}^2$  [60, 167]. In elementarer Betrachtung läßt sich unter Berücksichtigung der Kontinuitätsgleichung das Dichteverhältnis aus ionisiertem und neutralem Xenon im Freistrahlfeld mit dem Ausdruck

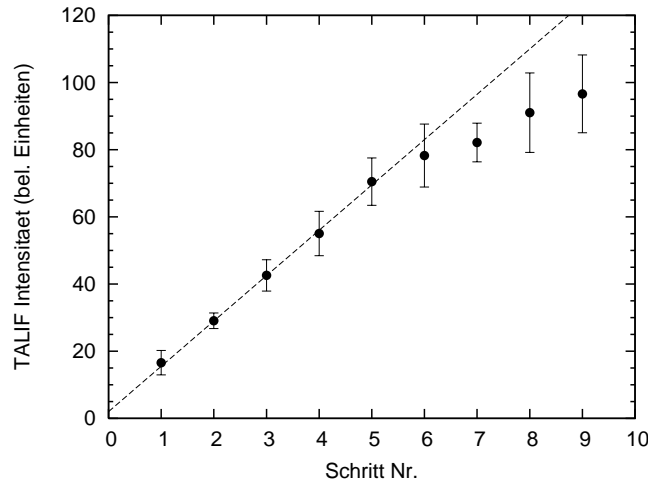
$$\frac{N_1}{N_0} = \frac{\eta_M v_0}{1 - \eta_M v_1} \quad (5.26)$$

abschätzen. Wird  $v_0$  gleich der thermischen Geschwindigkeit neutralen Xenons bei  $T = 300 \text{ K}$  gesetzt, sowie  $v_1 \sim 30 \text{ km/s}$  der Austrittsgeschwindigkeit der einfach geladenen Ionen nahe dem Beschleunigungsgitter, dann folgt mit  $\eta = 0.8$  für  $N_1/N_0 \sim 10^{-2}$ . Die Raten für den Ladungsaustausch und Abregung durch spontane Emission stehen für  $N_0 \lesssim 10^{18} \text{ m}^{-3}$  im Verhältnis  $\mathcal{O}(N_1 v_1 \sigma_{CEX}/A) \sim 10^{-5}$ . Eine genaue Berechnung der Raten für Ladungsaustauschprozesse setzt die Kenntnis der  $\sigma_{CEX}$  für Ladungsaustausch mit *angeregten* Atomen neutralen Xenons voraus. Aufgrund des kleinen obigen Verhältnisses ist die Entvölkerung eines angeregten Zustands durch Ladungsaustausch als Konkurrenzprozeß zur Abregung durch Fluoreszenzabstrahlung mit hoher Wahrscheinlichkeit vernachlässigbar. Für die Stoßabregung neutralen Xenons durch ionisierte Spezies ohne Ladungsaustausch liegen in der Literatur keine Daten für Stoßquerschnitte vor. Solche Prozesse sind, nach den eben erläuterten Betrachtungen, allerdings ebenso nur im Fall extrem großer Stoßquerschnitte relevant.

Die Stoßdeaktivierung zwei-Photonen angeregter Atome durch freie Elektronen wurde von Mazouffre et al. [26], in der TALIF-Untersuchung einer atomaren Stickstoffströmung berichtet. Der Stoßdeaktivierungskoeffizient für den hier betrachteten  $6p'[1/2]_0$  Zustand neutralen Xenons lautet in der Näherung von [26, 168]

$$k_e = 4\pi a_0^2 n^4 \sqrt{\frac{3k_B T_e}{m_e}} \Big|_{T_e=5\text{eV}} \approx 7 \times 10^{-5} \text{ cm}^3/\text{s} \quad (5.27)$$

worin  $n$  die Hauptquantenzahl des angeregten Zustands und  $a_0$  den Bohrradius beschreiben. Unter Beachtung lokaler Quasineutralität, bei einer Austrittsgeschwindigkeit von 30 km/s, einem Volumenstrom von 8 sccm und einer Ionisationseffizienz von 0.42 liegt die über den (nicht aufgeweiteten) Querschnitt des RIT-10 gemittelte Elektronendichte bei  $5 \times 10^{15} \text{ m}^{-3}$ . Somit ist  $\mathcal{O}(N_e k_e/A) \sim 10^{-2}$ . Da in der vorliegenden Arbeit keine Neutralisation des Freistrahls erfolgte, wird im vorliegenden Experiment eine noch niedrigere Elektronendichte erwartet. Aufgrund der Kleinheit sämtlicher diskutierter strahlungsloser Deaktivierungsraten kann davon ausgegangen werden, daß die strahlungslose Abregung durch die hier genannten Prozesse keine signifikante Beeinflussung der Fluoreszenzintensität darstellt, und Stoßabregungsprozesse im folgenden



**Abbildung 5.11.:** Intensität der TALIF Signale aufgetragen gegenüber der Teilchendichte neutralen Xenons, gemessen im Vakuumteststand unter statischen Bedingungen. Jeder Schritt steht für eine Anhebung der Teilchendichte neutralen Xenons um  $4 \times 10^{17} \text{ m}^{-3}$ . Die Abweichung vom gleichzeitigen Nulldurchgang auf Abszisse und Ordinate gründet auf einer kleinen Dichte neutralen Xenons, welche sich zu Beginn der Meßreihe im Tank befindet ( $\sim 1 \times 10^{17} \text{ m}^{-3}$ .)

vernachlässigt werden können.

Eine beträchtliche Schwierigkeit stellt in der vorliegenden experimentellen Anordnung die laserinduzierte Anregung mit ausreichend niedrigen Laserpulsleistungsdichten für Messungen im ungesättigten TALIF Regime  $S \propto E^2$  dar. Sofern (2+1) resonante Photoionisation REM-PI, verstärkte spontane Emission ASE oder weitere mit der laserinduzierten Fluoreszenz konkurrierende Prozesse auftreten, verliert Gleichung (3.17) ihre Gültigkeit und es müssen die vollständigen Ratengleichungen (3.10) unter Berücksichtigung weiterer Terme gelöst werden. Die langen Meßzeiten für spektrale Scans bei der Überlagerung von 500 Einzelpulsen aufgrund der schwachen Fluoreszenzintensitäten ließen keine verlässliche Untersuchung der  $S \propto E^2$ -Statistik bei hinreichend großer Variation der Laserpulsenergie zu. Im Fall einer Abweichung von der  $S \propto E^2$  Relation ist die Durchführung von Messungen bei konstanter Laserenergie eine notwendige, aber unter Umständen nicht hinreichende Bedingung, daß die Linearität zwischen der detektierten TALIF-Intensität und der Grundzustandsdichte neutralen Xenons,  $S \propto N_0$  erfüllt ist, da beispielsweise die Schwellwertteilchendichte für das Auftreten von ASE selbst von der Teilchendichte der angeregten Atome, sowie von der Dopplerbite des Fluoreszenzübergangs und damit von der Temperatur abhängt.

Anstelle der Verifikation der  $S \propto E^2$  Relation zeigt Abbildung 5.11 eine Überprüfung des Verhaltens  $S(N_0)$  bei einer konstanten Laserpulsenergie. Hierzu wurde der Vakuumteststand auf einen Druck von etwa  $8 \times 10^{-4} \text{ Pa}$  evakuiert und anschließend, bei abgeschaltetem Pumpsystem, während jedem „Schritt“ mit einer über einen Massendurchflußregler definierten Gasmenge neutralen Xenons befüllt. Während der Messung des TALIF Signals bleibt der Massendurchflußregler geschlossen. Da bei geschlossenem Massendurchflußregler während der Scandauer des TALIF-Signals ein kleiner Gasstrom neutralen Xenons in den Vakuumtank nicht ausgeschlossen werden konnte, wurde die Prozedur vom Öffnen des Massendurchflußreglers, der darauffolgenden Durchführung des spektralen Scans bis zum Öffnen des Massendurchflußreglers

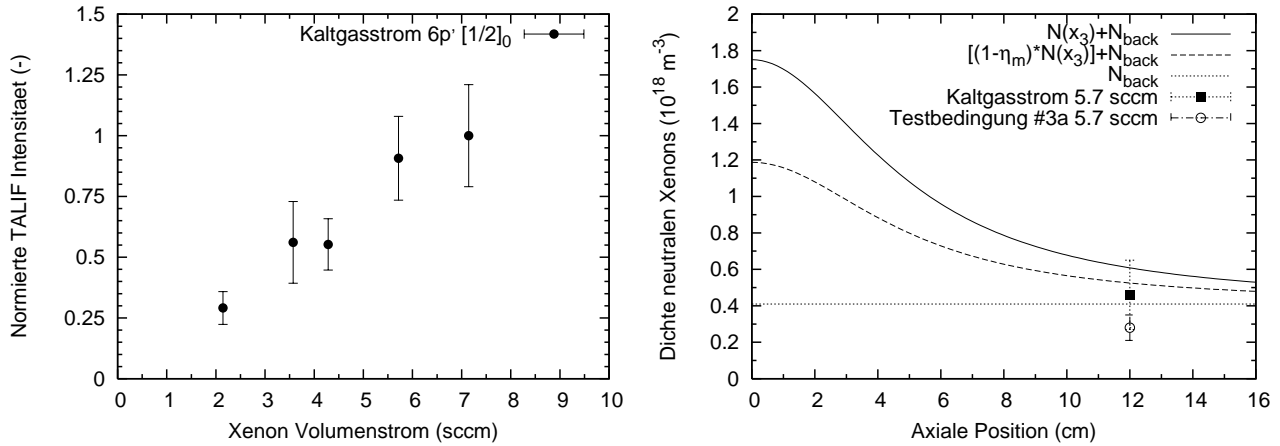
## 5. Untersuchungen im Freistrahlf des Radiofrequenz-Iontriebwerks RIT-10

im darauffolgenden „Schritt“, in gleichen Zeitintervallen durchgeführt. Auf diese Weise wird gewährleistet, daß, auch bei Unkenntnis der genauen partiellen Xenondichte im Vakuumteststand die Erhöhung der Xenondichte um jeweils den gleichen Betrag erfolgt und somit die Linearität mit der Teilchendichte nachgewiesen werden kann, da die Leckrate des Vakuumtanks bei abgeschaltetem Pumpsystem eine direkte Bestimmung des Partialdrucks neutralen Xenons im Bereich weniger  $10^{-2}$  Pa verhindert.

Die auf diese Weise während eines „Schritts“ in den Tank gefüllte Anzahl an Xenon Atomen beträgt etwa  $4 \times 10^{17} \text{ m}^{-3}$ , was bei  $T = 300 \text{ K}$  einem Partialdruck neutralen Xenons von  $\sim 2 \times 10^{-3} \text{ Pa}$  entspricht. Wie aus Abbildung 5.11 erkenntlich, liegt ein lineares Regime  $S \propto N_0$  bis zu einer Teilchendichte von  $\sim 2 \times 10^{18} \text{ m}^{-3}$  vor. Für höhere Teilchendichten werden Abweichungen von dieser Relation gemessen, deren genaue Ursache nicht eindeutig geklärt werden konnte. Möglicherweise führen durch Photoionisation erzeugte Elektronen zu einer Stoßabregung, die jedoch hier nicht mit ausreichender Genauigkeit untersucht werden konnte. Unmittelbar vor Aufnahme der Meßdaten aus Abbildung 5.11 wurde eine Messung bei der Testbedingung #3a unter identischen Anregungsparametern durchgeführt. Die zugehörige Messung im Kaltgasstrom liegt im linearen Bereich von Abbildung 5.11, woraus geschlossen werden kann, daß für Variationen der Massenströme im Kaltgasstrom im folgenden die Messung relativer Grundzustandsdichten keiner Verfälschung durch Sättigungseffekte unterliegt.

Die Messung relativer Grundzustandsdichten neutralen Xenons erscheint damit im Kaltgasstrom verläßlich. Für Messungen im Plasma des Freistrahls ist allerdings weiter zu beachten:

1. Die Anwesenheit von Sättigungseffekten kann zu Abweichungen von der berechneten Linienform des Absorptionsübergangs führen, da mit der laserinduzierten Fluoreszenz konkurrierende Prozesse wie 2+1 REMPI in den Flanken und am Maximum des spektralen Profils mit unterschiedlichem quantitativen Einfluß auftreten. Aufgrund der Unsicherheiten der einzelnen Meßpunkte in den spektralen Profilen, insbesondere in den Flanken, wie in Abbildung 5.9 gezeigt, sind die resultierenden Verzerrungen des Linienprofils in den vorliegenden Experimenten quantitativ nicht zu erfassen. Die aus dem spektralen Profil aus Abbildung 5.9 extrahierte Linienbreite des frequenzverdoppelten Lasers beträgt  $0.24 \pm 0.03 \text{ cm}^{-1}$ , unter Vorbehalt einer Verbreiterung durch Sättigungseffekte. Die bei der eingestellten Laserpulsenergie von  $120 \mu\text{J}$  erreichten geschätzten Leistungsdichten liegen im Detektionsvolumen im Bereich weniger hundert  $\text{MW}/\text{cm}^2$  und übertreffen die in Gornik et al. [50] bei der Bestimmung der Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitte verwendeten Leistungsdichten um etwa zwei Größenordnungen. Es liegen keine Daten für die Photoionisationsquerschnitte der Niveaus des  $6p'$  Multipletts vor. Unter der Annahme, daß der Photoionisationsquerschnitt für den  $6p'[1/2]_0$  Zustand von der gleichen Größenordnung wie die des  $6p$  Multipletts sind, wird mit Hilfe von Gleichung (3.69) ein sehr hoher Anteil photoionisierter Atome auf der Symmetrieachse des Detektionsvolumens  $N_+(z=0)/N_2(z=0) > 50\%$  für die vorliegenden Leistungsdichten abgeschätzt. Der über das komplette Detektionsvolumen gemittelte Anteil photoionisierter Spezies liegt allerdings niedriger, da zur gemessenen Fluoreszenzintensität  $S$  auch die weniger stark gesättigten Randbereiche beitragen. Eine Sättigung der vorliegenden Messungen durch 2+1 REMPI ist unter diesen Umständen wahrscheinlich. Nach den Gleichungen (3.67) und (3.68) ist das Verhältnis  $N_+/N_2$  nicht von der Dichte  $N_0$  abhängig, weswegen im Rahmen des Modells der Gleichungen (3.10) die Relation  $S \propto N_0$  erhalten bleibt.

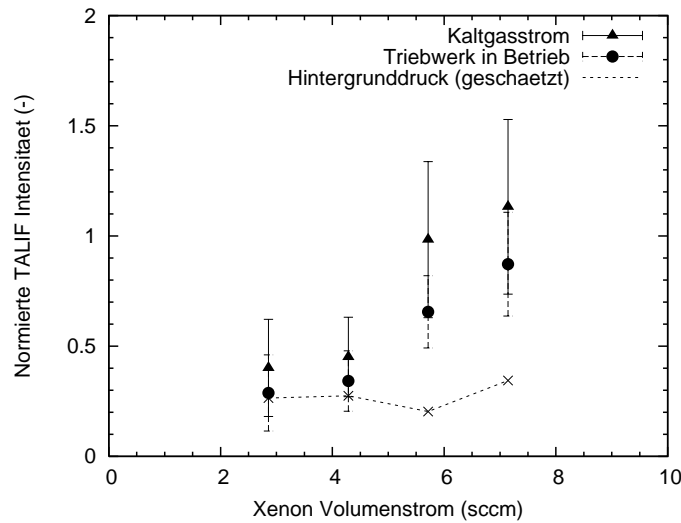


**Abbildung 5.12.:** Links: Relative Teilchendichten im Kaltgasstrom unter Variation des Massenstroms, normiert auf die TALIF-Signalintensität von 7.1 sccm. Rechts: Gemessene Teilchendichten neutralen Xenons an der Stelle  $x_3 = 12$  cm im Vergleich zu berechneten Teilchendichten entlang der Plasmaachse für eine Austrittsapertur an der Stelle  $x_3=0$  mit Radius  $R=5$  cm bei einem Volumenstrom von 5.7 sccm für den Kaltgasstrom (durchgezogene Linie) und für die Testbedingung #3a.

- Es wird weiterhin angenommen, daß die in Abbildung 5.11 gezeigte lineare Abhängigkeit bei von  $T = 300$  K verschiedenen Temperaturen (wie sie im Plasma des Freistrahls aufgrund erhöhter Wand- und Gittertemperaturen auftreten können) Gültigkeit besitzt. Der Schwellwert für ASE hängt nach Gleichung (3.72) von der Dopplerbreite des Fluoreszenzübergangs und damit von der Temperatur des Gasanteils neutralen Xenons ab. Eine Änderung des Sättigungsregimes durch ASE führt somit zu Abweichungen von der in Abbildung 5.11 gemessenen  $S \propto N_0$ -Relation. Eine genaue Berechnung des Schwellwerts für das Auftreten von ASE ist sehr kompliziert, da der Dichtegradient neutralen Xenons und die durch die Fokussierung bedingte Änderung der Laserpulsleistungsdichte entlang der Ausbreitungsrichtung des Laserstrahls berücksichtigt werden müssen. Unter Beachtung von Gleichung (3.72) entspricht bei den vorliegenden geringen Gasdichten der Grenzwert der Dichte für das Auftreten von ASE erst ab einer Verstärkungslänge von  $L \sim 30$  cm der Gasdichte neutralen Xenons. Da die Defokussierung des Laserstrahls bereits bei geringeren Abständen zum Detektionsvolumen zu einer vernachlässigbaren Grundzustandsentleerung führt, ist das Auftreten von ASE trotz des langen optischen Weges unwahrscheinlich.

Die relativen Teilchendichten für fünf verschiedene Massenströme im Kaltgasstrom des RIT-10 an der vorgegebenen Meßposition sind auf der linken Seite von Abbildung 5.12 dargestellt. Es wird, wie erwartet, ein Anstieg der Teilchendichte für höhere Gasflüsse beobachtet. Die gemessenen Dichten neutralen Xenons setzen sich aus zwei Anteilen zusammen, (1) dem Beitrag aus der Ionenquelle und (2) der Hintergrunddichte in der Vakuumkammer. Für die freie Expansion des Neutralgasanteils wurden einfache analytische Modelle vorgeschlagen, welche die Austrittsfläche des Triebwerks als isotrope Partikelquelle behandeln [9, 169]. Die Formeln für die lokale Verteilung der Stromdichte außerhalb eines isotropen, scheibenförmigen Emitters wurde zuerst von Lozgachev [170] in Analogie zu verwandten Problemstellungen in der Strahlungstheorie abgeleitet, und auf Neutralpartikelverteilungen in Triebwerksanordnungen übertragen [56, 169].

## 5. Untersuchungen im Freistrahlf des Radiofrequenz-Iontriebwerks RIT-10



**Abbildung 5.13.:** Relative Teilchendichten für die Testbedingungen #1, #2a, #3a, #4 und die zugehörigen Kaltgasströme. Aus der Ionisationseffizienz  $\eta_M$  abgeschätzte Beiträge des Xenon-Anteils des Hintergrunddrucks sind durch die mit der gestrichelten Linie verbundenen Kreuze angegeben. Die Fehlerbalken geben  $2\sigma$ -Unsicherheiten an, resultierend aus den Fehlergrenzen der spektralen Fits und den Schwankungen der Laserenergie.

Für die Dichteverteilung entlang der Plasmaachse ergibt sich der Ausdruck

$$N_0(x_3) = \frac{1}{2}(1 - \eta_M) \frac{\dot{m}}{R^2 \pi v_0} \left[ 1 - \frac{(x_3/R)^2 - 1}{(x_3/R)^2 + 1} \right] \quad (5.28)$$

worin  $\dot{m}$  den homogen über den Austrittsquerschnitt  $R^2\pi$  verteilten Massenfluß und  $v_0$  die thermische Geschwindigkeit der Neutralgaspartikel an der Austrittsfläche bezeichnen. Die Koordinate  $x_3$  gibt den Abstand zur Austrittsfläche des Triebwerks in axialer Richtung auf der Plasmaachse an.

Auf der rechten Seite von Abbildung 5.12 sind die durch Gleichung (5.28) abgeschätzten Dichten neutralen Xenons auf der zentralen Plasmaachse für die Testbedingung #3a für die vorliegenden Triebwerksparameter dargestellt. Die homogen über das Tankvolumen angenommene Hintergrunddichte  $N_{back}$  wurde für den in Tabelle 5.2 angegebenen partiellen Hintergrunddruck neutralen Xenons von  $1.7 \times 10^{-3}$  Pa bei Raumtemperatur  $T = 300$  K ermittelt<sup>4</sup>. Die experimentell bestimmten Teilchendichten im Kaltgasstrom und bei der Testbedingung #3a wurden mit den in Abbildung 5.11 dargestellten Fluoreszenzintensitäten kalibriert. Die so experimentell bestimmten absoluten Teilchendichten geben die Größenordnung der erwarteten Teilchendichten richtig an, sind gegenüber der berechneten Restgasdichte neutralen Xenons aber deutlich zu klein. Der Fehler der Absolutkalibrierung aufgrund einer Reihe schwer quantifizierbarer Fehlerquellen, insbesondere der Unkenntnis der exakten absoluten Teilchendichte neutralen Xenons während des in Abbildung 5.11 dargestellten Vorgangs, muß allerdings we-

<sup>4</sup>Man beachte, daß die Addition der Teilchendichten der Hintergrund- und der Freistrahlspezies (z.B. [7,27]) nur im Regime der freien Molekularströmung sinnvoll ist. Hierin stellt die Annahme einer homogenen, isothermen Hintergrunddichte eine Vereinfachung dar, in Wirklichkeit kann es allerdings zur Ausbildung komplizierter Hintergrundströmungen kommen [28].



nigstens mit einem Faktor zwei angegeben werden. Weitere Unsicherheiten werden durch die in den vorliegenden Experimenten veränderte Austrittsapertur des RIT-10 durch die Halterungen für die Glühdrähte eingeführt.

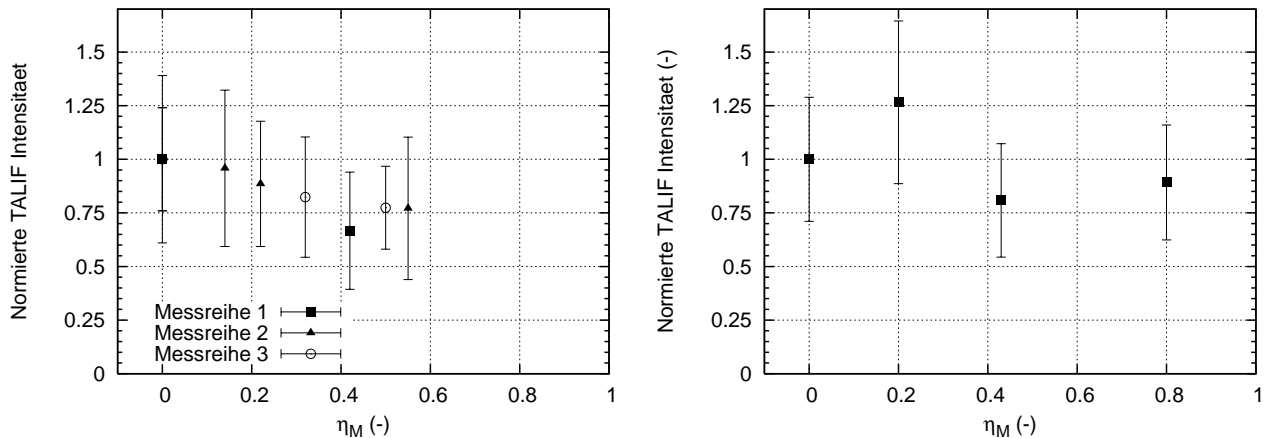
Eine alternative Abschätzung des Beitrags der Hintergrunddichte neutralen Xenons zur TALIF-Signalintensität ist in Abbildung 5.13 versucht. Die Fluoreszenzintensitäten sind auf den Kaltgasstrom bei 5.7 sccm normiert. Für den Kaltgasstrom wie für den Freistrahls während der jeweiligen Testbedingungen zeigt sich eine stete Verringerung der relativen lokalen Dichten neutralen Xenons zu niedrigeren Gasflüssen. Für sämtliche Testbedingungen wird ein Abfall der Fluoreszenzintensität im Freistrahlsplasma gegenüber den jeweiligen Messungen im Kaltgasstrom beobachtet, wodurch belegt wird, daß trotz der hohen Hintergrunddichten im Vakuumteststand die Freistrahlspezies einen meßbaren Anteil zur Gesamtintensität des TALIF-Signals beiträgt. Der aus dieser Signaldifferenz unter Berücksichtigung der Ionisationseffizienzen  $\eta_M$  (Gleichung 5.1) berechnete Anteil der Xenon-Hintergrunddichte wurde ebenfalls eingezeichnet. Der monotone Abfall des Hintergrunddrucks hin zu niedrigeren Gasflüssen, wie aus Tabelle 5.2 ersichtlich, kann allerdings im Rahmen der Meßgenauigkeit und der Beachtung der vielfältigen Fehlerquellen nicht korrekt wiedergegeben werden, ebenso sind die aus Abbildung 5.13 erhaltenen Hintergrunddichten gegenüber den in Tabelle 5.2 abgeschätzten Xenon-Partialdrücken um einen Faktor 3–4 zu klein.

Die Inkonsistenz der Daten in Bezug auf eine verlässliche Subtraktion der Hintergrunddichte stellt somit noch eine wesentliche Einschränkung des verwendeten Versuchsaufbaus, jedoch kein grundsätzliches Hindernis für die Anwendung der TALIF-Methode und der hier angewandten Übergänge dar. Künftige Messungen erfordern, zur Trennung von Freistrahls- und Hintergrundspezies eine möglichst genaue Einstellung partieller Xenondichten zur Absolutkalibrierung bei niedrigen Drücken. Alternativ können *in situ*-TALIF-Messungen an Raumpunkten mit vernachlässigbarem Beitrag von Atomen des Freistrahls, wie sie durch eine verfahrenbare Triebwerkstestanordnung realisiert werden können, von hohem Nutzen sein.

Weitere Meßreihen umfassen eine Variation der Leistung des Radiofrequenzgenerators bei konstantem Massenstrom. Die Erhöhung der Leistung des Radiofrequenzgenerators resultiert für die in Tabelle 5.2 genannten Testbedingungen in einer Erhöhung des Strahlstroms (hier gleichgesetzt dem Gitterstrom  $I_{PHV}$ ) und damit der Ionisationseffizienz  $\eta_M$ . Nach Gleichung (5.28) ist unter der vereinfachten Annahme einer radial homogenen Ionisation in der Entladungskammer der Rückgang des Fluoreszenzsignals ein direktes Maß für  $\eta_M$ . Abbildung 5.14 zeigt links die gemessenen Signalintensitäten für eine Reihe von Testbedingungen bei einem konstanten Volumenstrom von 5.7 sccm. Die jeweiligen Werte für  $\eta_M$  bewegen sich zwischen 0% (Kaltgasstrom) und 55% (Testbedingung #3f). Mit der Abnahme der TALIF-Signale für höhere  $\eta_M$  wird qualitativ das erwartete Verhalten beobachtet, der reduzierte Abfall auf etwa 70-75% gegenüber der Intensität im Kaltgasstrom für Testbedingungen nahe  $\eta_M = 0.5$  ist wiederum auf die Beiträge der neutralen Hintergrundspezies zurückzuführen. Eine weiterführende quantitative Analyse, einschließlich der Quantifizierung möglicher Veränderungen der räumlichen Dichteprofile neutralen Xenons mit Variation der Testbedingungen, erfordert jedoch wie bereits in der Diskussion der Abbildungen 5.12 und 5.13 hervorgegangen, eine verlässliche Bestimmung der lokalen Hintergrunddichten.

Für die auf der rechten Seite von Abbildung 5.14 gezeigte Untersuchung wurde der Volumenstrom auf 4.3 sccm reduziert und die Extraktionsgitterspannung auf 1100 V erhöht. Bei diesen

## 5. Untersuchungen im Freistrahlf des Radiofrequenz-Iontriebwerks RIT-10



**Abbildung 5.14.:** Links: Relative Teilchendichten für die Testbedingungen #3a, #3b, #3c, #3d, #3e, #3f sowie den zugehörigen Kaltgasstrom bei 5.7 sccm. Verschiedene Meßreihen stehen für unabhängig voneinander durchgeführte TALIF-Messungen. Rechts: Relative Teilchendichten für die Testbedingungen #5a, #5b, #5c, #5d sowie den zugehörigen Kaltgasstrom bei 4.3 sccm. Die Normierung erfolgt jeweils auf die TALIF-Signalintensität des Kaltgasstroms.

Testparametern konnten höhere Effizienzen  $\eta_M$  erreicht werden, allerdings sind die detektierten TALIF Signale hier bereits im Kaltgasstrom sehr schwach. Der Abfall der TALIF-Signale mit zunehmender Ionisationseffizienz ist hier nicht so klar ausgeprägt wie zuvor zu beobachten. Ein eindeutigeres Bild bei diesem Massenfluß wird im folgenden Abschnitt bei nochmals leicht erhöhter Extraktionsgitterspannung diskutiert.

### Messungen mit Anregung des $6p'[3/2]_2$ Zustands

Für TALIF-Messungen mit Anregung des  $6p'[3/2]_2$  Zustands waren nur kleine geometrische Änderungen in der Strahlführung notwendig. Die Versuche dienen der Überprüfung der zuvor erhaltenen Resultate, ergänzend wurde eine Triebwerkstestbedingung mit einer erhöhten Extraktionsgitterspannung bei 1200 V untersucht.

Die Linearität des Fluoreszenzsignals mit der Teilchendichte neutralen Xenons  $S \propto N_0$  wurde in der gleichen Weise wie zuvor für den  $6p'[1/2]_0$  Zustand überprüft. Die Fluoreszenzintensitäten bei schrittweiser Erhöhung des Partialdrucks neutralen Xenons sind in Abbildung 5.15 dargestellt; wie bei der bereits zuvor untersuchten Anregung des  $6p'[1/2]_0$  Zustands liegen die TALIF-Messungen im Kaltgasstrom für alle untersuchten Massenströme im linearen Teil der gemessenen  $S \propto N_0$  Beziehung.

Die relativen Grundzustandsdichten neutralen Xenons sind für fünf verschiedene Massenströme in Abbildung 5.16 dargestellt und mit der Messung auf der linken Seite von Abbildung 5.12 verglichen. Bei einer Normierung auf die Intensität bei 7.1 sccm liegen alle Messungen im Bereich überlappender Fehlerbalken, die Abweichungen der Messungen bei Anregung des  $6p'[3/2]_2$  Zustands gegenüber des  $6p'[1/2]_0$  Niveaus betragen 10-30%. In Abbildung 5.17 sind zwei Messreihen bei einem Volumenstrom von 4.3 sccm unter Variation des Strahlstroms gezeigt. Sowohl für die Extraktionsgitterspannung bei 913 V (links) als auch bei 1200 V (rechts) werden reduzierte Grundzustandsdichten mit zunehmender Ionisationseffizienz  $\eta_M$  gemessen, wobei wiederum die Beiträge der Hintergrunddichte beachtet werden müssen.

### 5.3. TALIF-Untersuchungen im Freistrahldes RIT-10

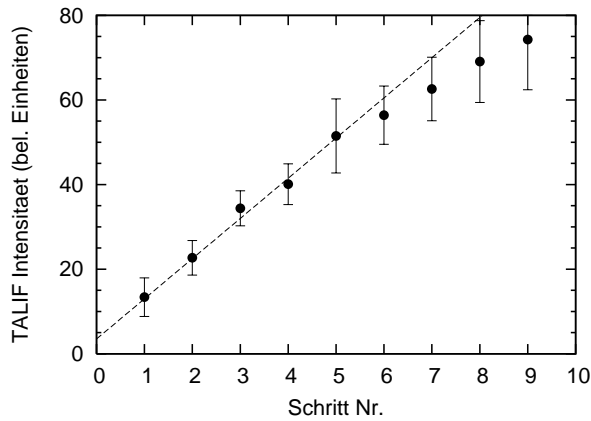


Abbildung 5.15.: Wie Abbildung 5.11, für Anregung des  $6p'[3/2]_2$  Zustands.

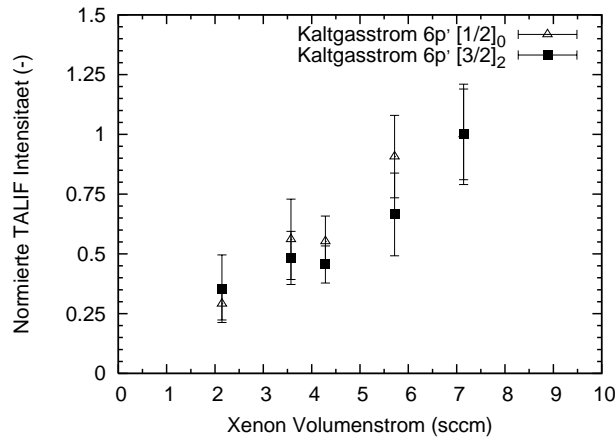


Abbildung 5.16.: Relative Teilchendichten im Kaltgasstrom unter Variation des Massenstroms unter Benutzung der Anregung des  $6p'[3/2]_2$  Zustands (Quadrate) und des  $6p'[1/2]_0$  Zustands (Dreiecke), jeweils normiert auf die TALIF Signalintensität bei 7.1 sccm.

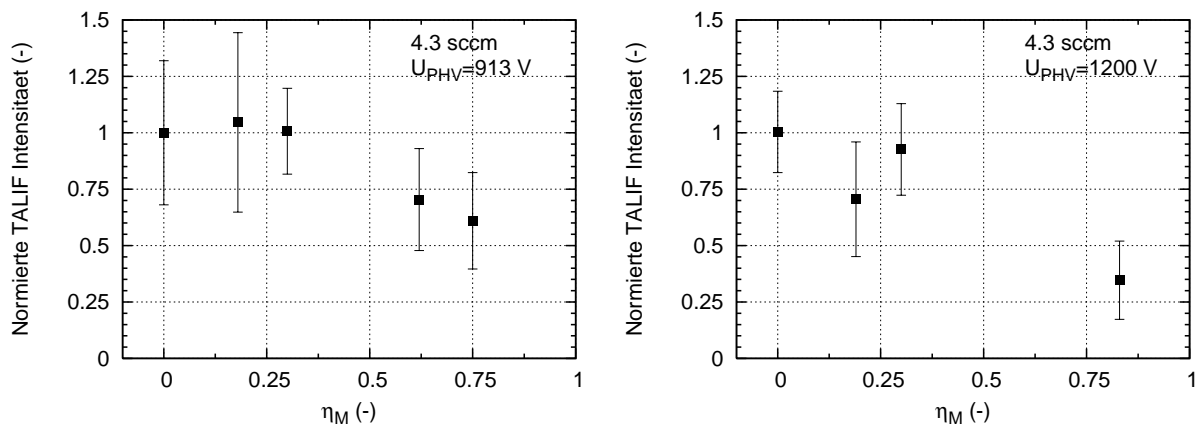


Abbildung 5.17.: TALIF Messungen unter Anregung des  $6p'[3/2]_0$  Niveaus. Links: Relative Teilchendichten für die Testbedingungen #2a, #2b, #2c, #2d ( $U_{PHV}=913$  V) sowie den zugehörigen Kaltgasstrom bei 4.3 sccm. Rechts: Relative Teilchendichten für die Testbedingungen #6a, #6b, #6d ( $U_{PHV}=1200$  V) sowie den zugehörigen Kaltgasstrom bei 4.3 sccm.

## 5. Untersuchungen im Freistrahls des Radiofrequenz-Iontriebwerks RIT-10

Zusammenfassend ergeben sich aus den TALIF-Untersuchungen dieses Kapitels folgende Resultate: Sowohl unter Verwendung des  $6p'[1/2]_0$  als auch  $6p'[3/2]_2$  Zustands führen Messungen relativer Grundzustandsdichten neutralen Xenons im Kaltgasstrom sowie im Freistrahls des Radiofrequenz-Iontriebwerks RIT-10 in der vorliegenden experimentellen Anordnung zu sinnvollen Ergebnissen. Die gemessenen relativen Teilchendichten werden unter Variation des Massenstroms und der Ionisationseffizienz qualitativ richtig wiedergegeben, aufgrund der Schwäche der detektierten Signale liegt die Meßgenauigkeit der TALIF-Signalamplituden typischerweise zwischen 15 und 40%. Der nicht vollständig ausschließbare Einfluß von Sättigungseffekten der Zwei-Photonen-Absorption, in erster Linie das mögliche Auftreten (2+1) resonanter Photoionisation, stellt eine, allerdings schwer zu quantifizierende, Fehlerquelle dar. Für eine akkurate Subtraktion der Hintergrundspezies im Hinblick auf eine künftige Charakterisierung des Freistrahls des RIT-10 müssen höhere Genauigkeiten in den TALIF-Signalintensitäten, als auch bei der Messung des Xenon (Partial-)Drucks möglichst nahe dem Detektionsvolumen erreicht werden. Aufgrund der schwierigen Diskussion der Sättigungseffekte ist eine Verbesserung der Detektionsapparatur, insbesondere durch Erhöhung des Detektionsraumwinkels durch Verlagerung von optischen Komponenten in den Vakuumtank, einer Erhöhung der Laserleistungsdichte vorzuziehen.

## 6. Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wurde die Zwei-Photonen laserinduzierte Fluoreszenz (TALIF-)Spektroskopie an neutralem Xenon behandelt. Auf der Grundlage der Untersuchung einer Vielzahl von TALIF-Übergängen in einer Kaltgaszelle und der Anwendung zweier TALIF-Schemen zur Bestimmung relativer Teilchendichten im Freistrahls des Radiofrequenz-Ionentriebwerks RIT-10, leistet die Arbeit einen Beitrag zur Erweiterung der TALIF-Spektroskopie für ihre Anwendung in der Grundzustandsdiagnostik dünner Xenon-Plasmen, wie sie in der Entladungskammer und im Freistrahls von Ionenantrieben vorliegen.

Neutrales Xenon tritt als Bestandteil des Freistrahlsplasmas von Ionentriebwerken wie dem RIT-10 nach allgemeinem Verständnis durch unvollständige Ionisation in der Entladungskammer, durch Rekombination ionisierter Spezies an den Wänden oder Gittern, durch die Einspeisung der Neutralisatorströmung in den Freistrahls sowie als Hintergrundgas im Vakuumteststand auf [7]. Aufgrund der bei Ionentriebwerken zur Schuberzeugung charakteristisch kleinen Massenströme und der damit verbundenen geringen Teilchendichten neutralen Xenons in der Größenordnung von  $\sim 10^{18} \text{ m}^{-3}$  ist die Auswahl eines effizienten TALIF-Schemas im Hinblick auf möglichst große optische Übergangsraten der involvierten Anregungs- und Fluoreszenzübergänge von besonderem Interesse.

In einer systematischen Studie wurden in dieser Arbeit Zwei-Photonen-Übergänge aus dem Grundzustand neutralen Xenons in Niveaus der  $6p$ ,  $6p'$ ,  $7p$ ,  $8p$ ,  $9p$ ,  $4f$ ,  $5f$  und  $6f$  Multipletts in einer statischen Kaltgaszelle hinsichtlich ihrer Eignung zur Grundzustandsdiagnostik dünner Xenon-Plasmen, sowie als Referenzübergänge zur Kalibrierung von TALIF-Messungen mit spektral eng benachbarten Zwei-Photonen-Resonanzen [30] untersucht. Dabei wurden alle Messungen in einer experimentellen Versuchsgeometrie durchgeführt, wie sie zur Diagnostik des Freistrahls elektrischer Antriebe oder von Plasmawindkanalströmungen erforderlich ist.

Die natürlichen Lebensdauern und Stoßdeaktivierungskoeffizienten der untersuchten Zustände der  $6p$ ,  $7p$  und  $6p'$  Multipletts liegen in guter Übereinstimmung mit Literaturwerten. Relative Zwei-Photonen-Anregungsquerschnitte wurden für jeweils zwei Zustände der  $6p$  und  $6p'$  Multipletts gemessen. Das Verhältnis  $\sigma_{6p'[1/2]_0}/\sigma_{6p'[3/2]_2}$  wurde in dieser Arbeit mit 1.1 bestimmt. Unter Beachtung der branching ratios geeigneter Fluoreszenzkanäle und auf Grundlage des von Niemi et al. [21] bestimmten absoluten Zwei-Photonen-Absorptionsquerschnitts für den  $6p'[3/2]_2$  Zustand sind TALIF-Schemen mit Anregung der  $6p'[1/2]_0$  oder  $6p'[3/2]_2$  Zustände als vorteilhaft gegenüber des von Crofton [56] benutzten TALIF-Schemas unter Verwendung der Anregung des  $7p[3/2]_2$  Zustands zu betrachten.

Die energetisch höherangeregten Niveaus der  $8p$ ,  $9p$ ,  $4f$ ,  $5f$  und  $6f$  Multipletts wurden als potenzielle Kandidaten zur Kalibrierung von TALIF-Messungen der Zwei-Photonen-Resonanzen atomaren Stickstoffs der  $3p$   $4D^o$   $J = 1/2 \dots 7/2$  Konfigurationen untersucht. Für die  $8p[1/2]_0$ ,  $5f[3/2]_2$  und  $5f[5/2]_2$  Zustände wurden die natürlichen Lebensdauern bestimmt, in akzeptabler Übereinstimmung mit Dirac-Fock Berechnungen [187]. Die zeitlich aufgelösten Fluores-

## 6. Zusammenfassung

zenzen der betrachteten  $5f$  Zustände zeigten mehrkomponentige Abklingkurven, welche vermutlich auf reziproken Stoßtransfer oder Effekte in Zusammenhang mit assoziierter Ionisation zurückzuführen sind.

TALIF Messungen an neutralem Xenon wurden sowohl im Kaltgas- als auch im Freistrahls des RIT-10 Triebwerks bei verschiedenen Betriebsbedingungen durchgeführt. Auf Grundlage emissionspektroskopischer Untersuchungen einiger Emissionslinien im UV-Bereich sowie im nahen Infrarot wurden die TALIF-Schemen mit Anregung der  $6p'[1/2]_0$  und  $6p'[3/2]_2$  Zustände unter Verwendung der Fluoreszenzen bei 788.7 und 834.7 nm wegen der geringen Eigenemission des Plasmas in diesen Spektralbereichen angewendet. Insbesondere aufgrund der relativ geringen Intensität der Plasmaemission bei 788.7 nm stellt das angewandte TALIF-Schema mit Anregung des  $6p'[1/2]_0$  Niveaus eine sinnvolle Ergänzung zu dem von Aanesland et al. [57] in einer Untersuchung eines magnetisierten Helicon-Plasmas angeregten  $6p'[3/2]_2$  Zustands dar, sofern die Eigenemission des Plasmas die Detektion der Fluoreszenz hier limitiert.

Für Messungen im Kaltgasstrom wurde der lineare Zusammenhang zwischen der Intensität der detektierten laserinduzierten Fluoreszenz und der Dichte neutralen Xenons für die untersuchten Massenströme für beide TALIF-Schemen nachgewiesen. Während aufgrund der schwachen TALIF-Signalintensitäten und der damit verbundenen langen Meßzeiten keine ausreichende Statistik zum Nachweis des sättigungsfreien TALIF-Regimes möglich war, ist aufgrund der in der vorliegenden Versuchsgeometrie notwendigen hohen Laserpulsleistungsdichten die Sättigung der TALIF-Messungen durch mit der induzierten Fluoreszenz konkurrierende Effekte, wie der  $(2+1)$  resonanten Photoionisation, zwar wahrscheinlich, beeinträchtigt jedoch nicht die Messung relativer Grundzustandsdichten.

Es wurden sowohl Kaltgas- als auch Freistrahlsuntersuchungen bei Variation des Massenstroms und der RF-Generatorleistung bei verschiedenen Extraktionsgitterspannungen durchgeführt. Die Resultate belegen, daß eine verlässliche Bestimmung von relativen lokalen Grundzustandsdichten in der vorliegenden Anwendung als Diagnostikmethode zur Untersuchung des Freistrahls des RIT-10 Triebwerks, im Rahmen der diskutierten Phänomene, möglich ist.

Die hier vorgestellten Bestimmungen lokaler Dichten enthalten neben der Freistrahlspezies die Hintergrunddichten neutralen Xenons als überlagernde Komponente. Für eine akkurate Subtraktion des Hintergrunds durch Referenzmessungen in einem Medium bekannter Dichte sind wesentlich höhere Meßgenauigkeiten der TALIF-Messungen erforderlich, einschließlich der Kenntnis der Temperatur der Freistrahlspezies. Aufgrund der niedrigen Grenzen der Laserpulsleistungsdichten für das Auftreten von Sättigungsphänomenen sind für eine Verbesserung der Signalqualitäten eine Erhöhung der Sensitivität der Detektionsanordnung einer Erhöhung der Laserleistungsdichten in jedem Fall vorzuziehen. Dies kann etwa durch eine Verlegung von Detektionskomponenten näher an den Freistrahlspezies, d. h. in den Vakuumtank erfolgen. In Plasmapbedingungen mit schwacher Eigenemission des Plasmas kann die Anwendung eines TALIF-Schemas unter Anregung des  $6p'[1/2]_0$  Zustands mit Detektion der Fluoreszenz bei 828.0 nm in Bezug auf das Sättigungsverhalten ebenfalls sehr gut geeignet sein, zumal dieser Fluoreszenzübergang ein noch größeres branching ratio im Vergleich zu den hier untersuchten TALIF-Übergängen aufweist.

# Summary

Within this work, measurements using two-photon absorption laser induced fluorescence (TALIF) in neutral xenon are reported, with respect to the application of this method for plasmadiagnostics of the plume of electric thrusters. Based on both an examination of a variety of TALIF transitions in a static cold gas cell and the application of two selected TALIF schemes aiming at the determination of relative ground state densities in the plume of the radio-frequency ion thruster RIT-10, the work presented here contributes to the extension of TALIF spectroscopic measurements for non-intrusive diagnostics of thin xenon plasmas.

As a component of the plasma species in the plume of ion thrusters such as the RIT-10, it is generally recognized that neutral xenon atoms occur mainly due to the following mechanisms [7]: (1) the incomplete ionization of the xenon propellant in the discharge chamber, (2) recombination of xenon ions in grid/wall collisions, (3) as part of the neutralizer flow or (4) as a background species in the vacuum test facility. Since, for ion thrusters, small mass flows resulting in particle densities  $\sim 10^{18} \text{ m}^{-3}$  are characteristic, the selection of an efficient TALIF scheme, with respect to possibly large optical transition rates of both the two-photon excitation and the fluorescence transitions involved, is of particular interest.

Within a systematic study, two-photon ground state excitation of neutral xenon into levels of the  $6p$ ,  $6p'$ ,  $7p$ ,  $8p$ ,  $9p$ ,  $4f$ ,  $5f$  and  $6f$  multiplets is investigated in a static cold gas cell with regard to the applicability of the respective transitions for ground state diagnostics of thin xenon plasmas, as well as their suitability as reference transitions to calibrate TALIF measurements following the method of Goehlich et al. [30]. Here, all measurements are carried out in an experimental geometry that is needed for plasmadiagnostics of the plume of electric thrusters for space propulsion, or high enthalpy plasma flows simulating atmospheric re-entry conditions.

Natural lifetimes and collisional deactivation coefficients of the investigated levels of the  $6p$ ,  $7p$  and  $6p'$  multiplets have been found in reasonable agreement with literature. Relative two-photon absorption cross sections have been measured for two pairs of levels of the  $6p$  and  $6p'$  multiplets, the ratio  $\sigma_{6p'[1/2]_0}/\sigma_{6p'[3/2]_2}$  was determined to be 1.1, representing the transitions of interest for application in the diagnostics of the ion thruster plume. With regard to the branching ratios of appropriate fluorescence channels and the absolute two-photon absorption cross section of the  $6p'[3/2]_2$  level measured by Niemi et al. [21], both excitation of the  $6p'[1/2]_0$  and  $6p'[3/2]_2$  levels may be considered advantageous, compared to the scheme including the  $7p[3/2]_2$  state used by Crofton [56], in the present application.

Some high energetic levels of the  $8p$ ,  $9p$ ,  $4f$ ,  $5f$  and  $6f$  multiplets have been investigated as potential candidates for the calibration of TALIF measurements involving the two-photon resonances  $3p \ 4D^o_J \ J = 1/2 \dots 7/2$  in atomic nitrogen. For the  $8p[1/2]_0$ ,  $5f[3/2]_2$  and  $5f[5/2]_2$  levels, natural lifetimes have been found in acceptable agreement with Dirac-Fock calculations [187]. In particular, time resolved fluorescence detected after excitation of the  $5f$  levels

revealed a non-single exponential decay character, which may be associated to phenomena such as reciprocal collision transfer or associative ionization.

TALIF measurements of neutral xenon are reported both in the cold gas flow and in the plume of the RIT-10 thruster for a variety of operating conditions. Based on an emission spectroscopic study in the uv and near-infrared, TALIF schemes using excitation of the  $6p'[1/2]_0$  and  $6p'[3/2]_2$  levels, including fluorescence transitions at 788.7 and 834.7 nm respectively, have been applied due to comparably low plasma emission in the spectral vicinity of these wavelengths. For the case that the self-emission of the plasma causes disturbance of the detected TALIF signals, excitation of the  $6p'[1/2]_0$  level seems to be a useful extension to the scheme involving the  $6p'[3/2]_2$  level applied by Aanesland et al. [57], in their investigation of a magnetized helicon plasma, in particular with regard to the low emission intensity at 788.7 nm for the operating conditions within this work.

Due to the low particle densities and the special experimental geometry required to examine the plume of electric thrusters, comparably large laser power densities have to be applied to obtain analyzable TALIF signals, and weak signal intensities also result in a highly time consuming measurement procedure. With respect to measurements in the cold gas flow, the linear dependency between the TALIF intensity and the density of neutral xenon atoms has been verified for both TALIF schemes at particle densities comparable to those expected in the investigated mass flow range. Thus, although no sufficient statistics to investigate the degree of saturation of the two-photon absorption process due to 2+1 resonant multiphoton ionization, the determination of relative ground state densities is reasonable.

TALIF measurements have been carried out both in the cold gas flow and in the plume during thruster operation with variation of the xenon flow rates and the power of the radiofrequency generator at different screen grid voltages. Results show the feasibility of the selected TALIF schemes with respect to the determination of relative ground state densities in the plume of the RIT-10 ion thruster.

Within this work, the measurements of relative local ground state densities of neutral xenon propagating in the plume are affected by the contribution of xenon background atoms in the vacuum chamber. In order to reliably subtract the background species, a higher accuracy in the TALIF measurements is required, including an absolute density calibration of the TALIF signal intensity. Due to the low thresholds of laser pulse power densities for the occurrence of saturation effects of the TALIF process, an improvement of the signal quality relies on an improvement of the sensitivity of the detection apparatus rather than an increased laser energy. This might be achieved by the installation of components of the detection optics in the vacuum chamber. With respect to ion thruster operating conditions with small plasma emission contributions, a TALIF scheme including excitation of the  $6p[1/2]_0$  level (allowing fluorescence detection at 828.0 nm) is potentially interesting to be used in future applications due to its even higher branching ratios compared to the TALIF schemes investigated in the present study.



# A. Responsefunktionen der Detektionsapparatur

Bei zeitaufgelösten Messungen von laserinduzierten Fluoreszenzsignalen tragen aufgrund der endlichen Signalerfassungs- und Signalverarbeitungsgeschwindigkeiten der Komponenten der Detektionsapparatur verschiedene Effekte zur Verbreiterung der Signalkurven in der zeitlichen Entwicklung bei. Die gemessene Form der zeitaufgelösten Fluoreszenzkurve entspricht dann einer Faltung aus dem ursprünglichen Signal und den elektronisch- und detektorbedingt auftretenden Verbreiterungsmechanismen.

Die Abklingkurve eines angeregten Zustandes ist durch

$$z(t) = Z_0 e^{-t/\tau} \quad t > 0 \quad (\text{A.1})$$

gegeben. Die zeitliche Verbreiterung des Meßsignals sei durch eine exponentielle Dehnung

$$g_1(t) = \frac{1}{\tau_*} e^{-t/\tau_*} \quad t > 0. \quad (\text{A.2})$$

sowie durch eine gaußförmigen Aufweitung

$$g_2(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} e^{-t^2/2\sigma^2}, \quad (\text{A.3})$$

hervorgerufen durch die Anstiegszeit und Zeitaufweitung der detektierten Signale im Photomultiplier sowie des Zeitverhaltens der Meßelektronik, bestimmt. Der Term  $z * g_1 * g_2$  kann analytisch angegeben werden. Aufgrund des Definitionsbereichs von  $z, g_1$  gilt zunächst für die einseitige Faltung

$$\tilde{z}(t) \equiv z * g_1 = \frac{Z_0}{(\tau_*/\tau) - 1} (e^{-t/\tau_*} - e^{-t/\tau}), \quad t > 0 \quad (\text{A.4})$$

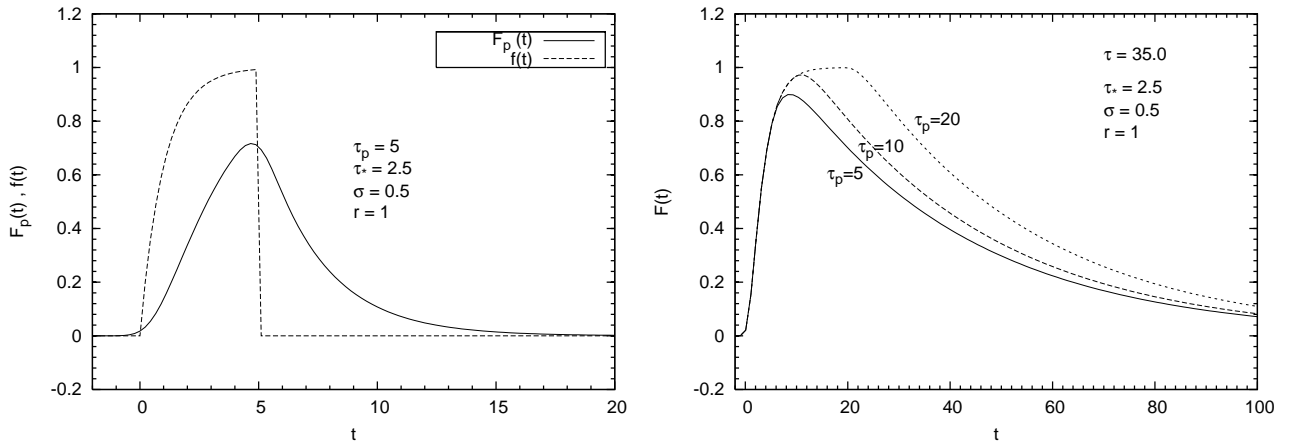
Nach kurzer Rechnung folgt

$$F_s(t) \equiv \tilde{z} * g_2 = \frac{Z_0}{2} \frac{1}{(\tau_*/\tau) - 1} \left[ e^{-t/\tau_*} e^{\sigma^2/2\tau_*^2} \left( \operatorname{erf} \left[ \frac{t}{\sqrt{2}\sigma} - \frac{\sigma}{\sqrt{2}\tau_*} \right] + 1 \right) - e^{-t/\tau} e^{\sigma^2/2\tau^2} \left( \operatorname{erf} \left[ \frac{t}{\sqrt{2}\sigma} - \frac{\sigma}{\sqrt{2}\tau} \right] + 1 \right) \right] \quad (\text{A.5})$$

mit den Parametern  $\tau_*$  (Abklingkonstante der Meßanordnung) und  $\sigma$  (Zeitaufweitung des Signals)<sup>1</sup>.

<sup>1</sup>Ein ähnlicher Ausdruck wird von Keto et al, [106], für eine Detektionsapparatur zur Messung zeitaufgelöster

## A. Responsefunktionen der Detektionsapparatur



**Abbildung A.1.:** Links: Vergleich zwischen Fluoreszenzemission während des Laserpulses nach Gleichung (A.6) und unter Berücksichtigung der Verbreiterung durch die Antwortfunktion des Versuchsaufbaus. Rechts: Berechnete vollständige Fluoreszenzkurven, gefaltet mit fester Antwortfunktionen unter Variation der Laserpulsdauer.

Obige Betrachtung gilt lediglich für einen zeitlich unendlich schmalen,  $\delta$ -förmigen Laserpuls. Um das zu detektierende Signal während der Zeitdauer eines rechteckförmigen Laserpulses zu beschreiben, gehe man von dem häufig verwendeten Zusammenhang

$$f(t) = f_0(1 - e^{-rt}) \quad 0 < t < \tau_p \quad (\text{A.6})$$

aus. Der Parameter  $r$  beschreibt hier eine charakteristische Zeitskala, auf der eine Sättigung der Besetzung des laserangeregten Zustands eintritt.

Unter Benutzung der Faltung

$$\tilde{g}(t) \equiv g_1 * g_2 = \frac{1}{2\tau_*} e^{-t/\tau_*} e^{\sigma^2/2\tau_*^2} \left( \operatorname{erf} \left[ \frac{t}{\sqrt{2}\sigma} - \frac{\sigma}{\sqrt{2}\tau_*} \right] + 1 \right) \quad (\text{A.7})$$

und der Abkürzungen

$$\Phi(t) \equiv \frac{t}{\sqrt{2}\sigma}, \quad \alpha \equiv \frac{\sigma r}{\sqrt{2}}, \quad \beta \equiv \frac{\tau_p}{\sqrt{2}\sigma}, \quad \gamma \equiv \frac{\sigma}{\sqrt{2}\tau_*}, \quad (\text{A.8})$$

folgt

$$\begin{aligned} F_p(t) \equiv f * \tilde{g} &= \frac{f_0}{2} \frac{\gamma}{\alpha - \gamma} \times \\ &\times \left\{ e^{-2\alpha\Phi(t)} e^{\alpha^2} (\operatorname{erf}[\alpha + \beta - \Phi(t)] - \operatorname{erf}[\alpha - \Phi(t)]) + \left( \frac{\alpha}{\gamma} - 1 \right) (\operatorname{erf}[\Phi(t)] - \operatorname{erf}[\Phi(t) - \beta]) \right. \\ &\left. + e^{-2\gamma\Phi(t)} e^{\gamma^2} \left[ \frac{\alpha}{\gamma} (\operatorname{erf}[\gamma - \Phi(t)] - 1) - \left( e^{-2\alpha\beta} + \frac{\alpha}{\gamma} - 1 \right) e^{2\beta\gamma} (\operatorname{erf}[\beta + \gamma - \Phi(t)] - 1) \right] \right\} \quad (\text{A.9}) \end{aligned}$$

---

Fluoreszenzen mit einem Szintillationszähler angegeben

In dieser Näherung folgt das zeitaufgelöste Meßsignal dem Ausdruck

$$\mathbf{F}(t) = \mathbf{F}_p(t) + \mathbf{F}_s(t - \tau_p). \quad (\text{A.10})$$

Eine Vereinfachung gegenüber den langwierigen Formeln (A.9) bzw. (A.10) stellt der Fall der elastischen Streuung (z. B. Rayleigh-Streuung) von Laserlicht an Gasparkeln dar. Unter der Annahme, daß die Streuintensität zeitlich instantan der Amplitude der Intensität der anregenden Laserstrahlung folgt, kann die Responsefunktion durch Faltung mit dem zeitlichen Verlauf des Laserspulses berechnet werden. Für ein Gaußprofil  $\tilde{f} = (\tilde{f}_0/\sqrt{2\pi}\sigma_p)e^{-t^2/2\sigma_p^2}$  lautet damit das Ergebnis

$$\mathbf{F}_p(t) \equiv g_1 * g_2 * \tilde{f} = \pi \tilde{f}_0 \frac{\sigma\sigma_p}{\tau_*} e^{-t/\tau_*} e^{\sigma^2 + \sigma_p^2} \left( \operatorname{erf} \left[ \frac{t}{\sqrt{2}\sqrt{\sigma^2 + \sigma_p^2}} - \frac{\sqrt{\sigma^2 + \sigma_p^2}}{\sqrt{2}\tau_*} \right] + 1 \right) \quad (\text{A.11})$$

wobei die Halbwertsbreite der Pulsdauer durch  $\tau_p = \sigma_p \sqrt{8 \ln 2}$  zu berücksichtigen ist.



## B. Beobachtete Emissionslinien im Freistrahls des RIT-10

Die nachfolgende Tabelle enthält eine Übersicht der wichtigsten, im Spektralbereich  $400 < \lambda < 1000$  nm detektierten Emissionslinien im Freistrahls des RIT-10. Spektral integrierte Intensitäten werden hier für die Testbedingung #3a gegeben, betrachtet wird die durch die Zentralachse längs der Sichtlinie integrierte Intensität in einem Abstand von 12 cm vom Beschleunigungsgitter. Die Normierung erfolgt auf den Xe I Übergang  $6s [3/2]_1^{\circ} - 6p [1/2]_0$  bei 828.012 nm. Zur Zuordnung der Spektrallinien werden die in Saloman [136] verzeichneten Emissionslinien in neutralem (Xe I) und einfach ionisiertem Xenon (Xe II) zugrunde gelegt.

Die instrumentelle Halbwertsbreite des spektroskopischen Aufbaus beträgt  $\sim 700$  pm. Spektrale Überlappungen zweier oder mehrerer Emissionslinien werden wie folgt angedeutet. Mit dem Kürzel 'b' indizierte Linien unterliegen mit hoher Wahrscheinlichkeit dem line blending mit einer oder mehreren weiteren Linien, 'f' bezeichnet eine Linie in der Flanke einer stärkeren Linie, 'd' eine im Bereich der spektralen Auflösung dominierende Linie, separierte Linien erhalten keine Indizierung. Die Emissionen neutralen Wasserstoffs und neutralen Sauerstoffs sind auf dissoziierte Wassermoleküle zurückzuführen, welche trotz einer langen Evakuierungsdauer noch in Spuren im Rezipienten vorlagen.

Für Xe I und Xe II werden Einstein-Koeffizienten  $A_{ij}$  und branching ratios  $b_{ij} \equiv A_{ij}\tau_i$ , soweit  $A_{ij}$  und die natürliche Lebensdauer  $\tau_i$  in der Literatur als experimentelle Werte verfügbar sind, angegeben. Für umfassende theoretische Berechnungen der Übergangsraten wird auf Aymar & Coulombe, [41], Martin et al, [127] und di Rocco et al [137] verwiesen.

Spezies	$\lambda_{air}$ [nm]	zugeordneter Übergang	$A_{ij}$ [ $10^8 s^{-1}$ ]	$b_{ij}$	Rel Int.
Xe II	418.010	$(^1D_2)6p [1]_{3/2}^{\circ} - (^1D_2)6d [1]_{3/2}$	-	-	0.054 b
Xe II	418.010	$(^3P_2)6p [2]_{3/2}^{\circ} - (^3P_2)6d [2]_{3/2}$	$1.25^b, 0.42^g$	$0.82^k$	0.054 b
Xe I	419.301	$6s [3/2]_2^{\circ} - 4f [5/2]_2$	-	-	0.034 b
Xe II	419.315	$(^1D_2)6p [3]_{5/2}^{\circ} - (^1D_2)6d [4]_{7/2}$	$2.16^b$	-	0.034 b
Xe I	419.353	$6s [3/2]_2^{\circ} - 4f [5/2]_3$	$0.0022^f$	-	0.034 b
Xe I/II	420.8- 421.6	Beiträge verschiedener Multipletts	-	-	0.102 b
Xe II	423.825	$(^3P_2)6p [2]_{5/2}^{\circ} - (^3P_2)6d [2]_{5/2}$	$1.11^b, 0.91^g$	$0.51^k$	0.04? f
Xe II	424.538	$(^3P_2)6p [2]_{5/2}^{\circ} - (^3P_2)6d [3]_{7/2}$	$1.06^b, 0.74^g$	$0.67^k$	0.096 d
Xe II	429.640	$(^3P_2)6p [2]_{3/2}^{\circ} - (^1D_2)5d [0]_{1/2}$	$0.72^g$	-	0.04? f
Xe II	431.051	$(^3P_1)6p [2]_{5/2}^{\circ} - (^3P_1)6d [2]_{5/2}$	$0.49^g$	-	0.086 d

B. Beobachtete Emissionslinien im Freistrahls des RIT-10

Xe II	433.052	$(^3P_2)6p [3]_{5/2}^{\circ} - (^3P_2)6d [4]_{7/2}$	$1.47^b, 1.46^a, 1.4^d, 10^g$	$0.92^l$	0.108 d
Xe II	439.320	$(^3P_0)6p [1]_{3/2}^{\circ} - (^3P_0)6d [2]_{5/2}$	$2.17^b, 1.6^g$	$\sim 1^l$	0.054 b
Xe II	439.577	$(^1D_2)6p [3]_{7/2}^{\circ} - (^1D_2)6d [4]_{9/2}$	$2.47^b, 0.52^g$	-	0.054 b
Xe II	440.6- 441.6	Beiträge verschiedener Multipletts	-	-	0.030 b
Xe II	444.813	$(^3P_1)6p [2]_{5/2}^{\circ} - (^3P_1)6d [3]_{7/2}$	$2.65^b$	-	0.044 d
Xe II	446.219	$(^3P_2)6p [3]_{7/2}^{\circ} - (^3P_2)6d [4]_{9/2}$	$2.39^b$	-	0.114 d
Xe I	450.098	$6s [3/2]_2^{\circ} - 6p' [1/2]_1$	$0.0097^e, 0.0146^f, 0.0039^g$	$0.036^e$	0.016
Xe II	452.468	$6s [3/2]_2^{\circ} - 6p' [3/2]_2$	$0.0027^e, 0.0046^f, 0.004^j$	$0.0095^e$	0.038d?
Xe II	454.089	$(^3P_1)6p [1]_{3/2}^{\circ} - (^3P_1)6d [2]_{5/2}$	$1.73^b, 1.4^g$	$0.78^k$	0.026 f
Xe II	454.523	$(^3P_2)6p [3]_{5/2}^{\circ} - (^3P_2)6d [3]_{7/2}$	$0.373^b, 0.42^g$	$0.23^k$	0.031 d
Xe I/II	457.6- 458.5	Beiträge verschiedener Multipletts	-	-	0.056 b
Xe II	460.303	$(^3P_2)6s [2]_{3/2} - (^3P_2)6p [1]_{3/2}^{\circ}$	$0.753^a, 0.82^d, 0.69^g$	$0.69^m$	0.148
Xe I	462.428	$6s [3/2]_2^{\circ} - 7p [3/2]_2$	$0.031^e, 0.0218^f, 0.0042^g$	$0.373^e$	0.250
Xe I	467.123	$6s [3/2]_2^{\circ} - 7p [5/2]_3$	$.032^e, .0284^f, .0061^g, .06^j$	$0.387^e$	0.472 d
Xe I	469.702	$6s [3/2]_2 - 7p [5/2]_2^{\circ}$	$0.0051^e, 0.0057^f, 0.02^j$	$0.051^e$	0.075 b
Xe II	469.801	$(^3P_2)6p [1]_{3/2}^{\circ} - (^1S_0)5d [2]_{3/2}$	$1.3^g$	-	0.075 b
Xe I	473.415	$6s [3/2]_1^{\circ} - 6p' [3/2]_2$	$0.0077^e$	$0.027^e$	0.038 d
Xe I	480.702	$6s [3/2]_1^{\circ} - 7p [1/2]_0$	$0.022^e, 0.0152^g, 0.05^j$	$0.25^e$	0.073
Xe I	482.971	$6s [3/2]_1^{\circ} - 7p [3/2]_1$	$0.0047^e, 0.0019^g$	$0.066^e$	0.060 d
Xe I	484.329	$6s [3/2]_1^{\circ} - 7p [3/2]_2$	$0.0077^e$	$0.092^e$	0.604 b
Xe II	484.433	$(^3P_2)6s [2]_{5/2} - (^3P_2)6p [3]_{7/2}^{\circ}$	$0.868^a, 1.15^c, 1.1^d, 0.77^g$	$0.72^c$	0.604 b
H I	486.135	2 - 4	-	-	b?
Xe II	486.245	$(^3P_2)6p [2]_{5/2}^{\circ} - (^3P_2)7s [2]_{5/2}$	$0.670^a, 0.72^g$	-	0.114 d
Xe II	487.650	$(^1D_2)6s [2]_{5/2} - (^1D_2)6p [3]_{7/2}^{\circ}$	$0.622^a, 0.63^d, 0.94^g$	$0.51^m$	0.078 f
Xe II	488.4- 489.0	Beiträge verschiedener Multipletts	-	-	0.173 b
Xe I/II	491.6- 492.3	Beiträge verschiedener Multipletts	-	-	0.240 b
Xe II	497.171	$(^1D_2)5d [3]_{5/2} - (^3P_2)7p [1]_{3/2}^{\circ}$	-	-	0.029 b
Xe II	497.271	$(^1D_2)6s [2]_{5/2} - (^1D_2)6p [1]_{3/2}^{\circ}$	$0.96^g$	-	0.029 b
Xe II	498.877	$(^3P_1)5d [1]_{1/2} - (^3P_1)6p [1]_{3/2}^{\circ}$	$0.209^a, 0.35^g$	$0.19^m$	0.014 b
Xe II	499.117	$(^1D_2)6p [1]_{3/2}^{\circ} - (^1D_2)7s [2]_{5/2}$	-	-	0.014 b
Xe II	518.8.6- 519.2	Beiträge verschiedener Multipletts	-	-	0.086 b
Xe II	525.989	$(^3P_2)6p [3]_{5/2}^{\circ} - (^3P_2)7s [2]_{5/2}$	-	-	b?
Xe II	526.044	$(^3P_1)5d [1]_{1/2} - (^3P_1)6p [2]_{3/2}^{\circ}$	$0.22^d, 1.1^g$	-	0.055 b
Xe II	526.195	$(^1D_2)6s [2]_{3/2} - (^1D_2)6p [2]_{3/2}^{\circ}$	$0.85^d, 5.4^g$	$0.77^n$	0.055 b
Xe II	529.222	$(^3P_2)6s [2]_{5/2} - (^3P_2)6p [2]_{5/2}^{\circ}$	$0.904^a, 0.957^c, 0.89^d, 2.3^g$	$0.75^c$	0.533 d
Xe II	530.927	$(^3P_1)6s [1]_{3/2} - (^3P_0)6p [1]_{3/2}^{\circ}$	$0.223^a, 0.94^g$	-	0.056 b
Xe II	531.387	$(^3P_2)6p [3]_{7/2}^{\circ} - (^3P_2)7s [2]_{5/2}$	$0.889^a, 3.46^g$	-	0.056 b
Xe II	533.933	$(^3P_2)6s [2]_{5/2} - (^3P_2)6p [2]_{3/2}^{\circ}$	$0.669^a, 0.654^c, 1.88^g$	$0.53^c$	0.184 d

Xe II	537.239	$(^3P_2)6s [2]_{3/2} - (^3P_2)6p [1]_{1/2}^\circ$	$7.1^d, 2.8^g$	-	0.086 d
Xe II	541.915	$(^3P_2)6s [2]_{3/2} - (^3P_2)6p [3]_{5/2}^\circ$	$0.649^a, 0.683^c, 0.62^d, 2.1^g$	$0.64^c$	0.395 d
Xe II	543.896	$(^3P_1)6s [1]_{3/2} - (^3P_1)6p [0]_{1/2}^\circ$	$0.855^a, 0.74^d, 3.8^g$	-	0.046 d
Xe II	546.039	$(^3P_2)5d [2]_{5/2} - (^3P_2)6p [3]_{7/2}^\circ$	$0.064^a, 0.059^c, 0.27^g$	$0.038^c$	0.025 d
Xe II	547.261	$(^3P_2)5d [3]_{7/2} - (^3P_2)6p [3]_{7/2}^\circ$	$0.121^c, 0.099^d, 0.49^g$	$0.079^c$	0.055 d
Xe II	553.107	$(^3P_2)5d [3]_{7/2} - (^3P_2)6p [3]_{5/2}^\circ$	$0.085^c, 0.088^d, 0.12^g$	$0.079^c$	0.050 d
Xe I	555.239	$6p [1/2]_1 - 9d [3/2]_2^\circ$	${}_h$	-	0.013 d
Xe I	556.662	$6p [1/2]_1 - 9d [1/2]_1^\circ$	${}_h$	-	0.022 b
Xe I	556.777	$6p [5/2]_3 - 11d [5/2]_3^\circ$	-	-	0.022 b
Xe I	557.928	$6p [5/2]_3 - 11d [7/2]_4^\circ$	-	-	0.032 b
Xe I	558.178	$6p [1/2]_1 - 9d [1/2]_0^\circ$	${}_h$	-	0.032 b
Xe II	561.667	$(^3P_2)5d [1]_{3/2} - (^3P_1)6p [2]_{5/2}^\circ$	$0.35^g$	-	0.023 b
Xe I	561.888	$6p [5/2]_2 - 10d [7/2]_3^\circ$	-	-	0.023 b
Xe II	565.938	$(^3P_1)6s [1]_{1/2} - (^3P_1)6p [1]_{1/2}^\circ$	$1.3^g$	-	0.007 d
Xe II	566.756	$(^3P_2)5d [2]_{3/2} - (^3P_2)6p [1]_{1/2}^\circ$	$1.2^g$	-	0.037 b
Xe II	567.091	$(^3P_1)6p [2]_{3/2}^\circ - (^3P_0)7s [0]_{1/2}$	-	-	b?
Xe I	568.9- 569.6	Beiträge verschiedener Multipletts	-	-	0.022 b
Xe I/II	571.6- 572.2	Beiträge verschiedener Multipletts	-	-	0.077 b
Xe II	572.691	$(^3P_1)5d [3]_{5/2} - (^1D_2)6p [2]_{5/2}^\circ$	-	-	0.039 d
Xe II	575.103	$(^3P_1)6s [1]_{1/2} - (^3P_1)6p [1]_{3/2}^\circ$	$1.1^g$	-	0.029 d
Xe I	582.389	$6s' [1/2]_0 - 5f [3/2]_1^\circ$	-	-	0.066 b
Xe I	582.480	$6p [5/2]_2 - 9d [7/2]_3^\circ$	${}_h$	-	0.066 b
Xe I	587.502	$6p [1/2]_1 - 8d [3/2]_2^\circ$	${}_h$	-	0.033 d
Xe II	589.329	$(^3P_1)5d [2]_{5/2} - (^1D_2)6p [1]_{3/2}^\circ$	-	-	0.039 b
Xe I	589.499	$6p [1/2]_1 - 8d [1/2]_1^\circ$	${}_h$	-	0.039 b
Xe I	593.124	$6p [1/2]_1 - 8d [1/2]_0^\circ$	${}_h$	-	0.075 b
Xe I	593.417	$6p [5/2]_3 - 9d [7/2]_4^\circ$	${}_h$	-	0.075 b
Xe II	594.553	$(^3P_2)5d [1]_{1/2} - (^3P_2)6p [1]_{1/2}^\circ$	-	-	0.016 d
Xe II	597.646	$(^3P_2)6s [2]_{3/2} - (^3P_2)6p [2]_{3/2}^\circ$	$0.225^c, 0.28^d, 1.1^g$	$0.18^c$	0.093 d
Xe II	603.620	$(^3P_2)5d [2]_{5/2} - (^3P_2)6p [2]_{5/2}^\circ$	$0.111^a, 0.084^c, 0.075^d, 0.15^g$	$0.066^c$	0.047 d
Xe II	605.115	$(^3P_2)5d [3]_{7/2} - (^3P_2)6p [2]_{5/2}^\circ$	$0.205^a, 0.168^c, 0.17^d, 0.52^g$	$0.13^c$	0.100 d
Xe II	609.759	$(^3P_2)5d [2]_{5/2} - (^3P_2)6p [2]_{3/2}^\circ$	$0.197^c, 1.0^d, 0.72^g$	$0.16^c$	0.060 d
Xe I	616.366	$6p [5/2]_2 - 8d [5/2]_2^\circ$	${}_h$	-	0.029 b
Xe I	616.394	$6s' [1/2]_1^\circ - 5f [5/2]_2$	-	-	0.029 b
Xe I	617.830	$6s' [1/2]_1^\circ - 5f [3/2]_2$	-	-	0.083 b
Xe I	617.967	$6s' [1/2]_1^\circ - 5f [3/2]_1$	-	-	0.083 b
Xe I	618.242	$6p [5/2]_2 - 8d [7/2]_3^\circ$	$0.034^g$	-	0.083 b
Xe I	619.826	$6p [1/2]_1 - 9s [3/2]_2^\circ$	$0.0013^i$	-	0.049 b
Xe I	620.089	$6p [3/2]_2 - 9d [5/2]_3^\circ$	${}_h$	-	0.049 b
Xe II	627.082	$(^1D_2)6s [2]_{3/2} - (^1D_2)6p [3]_{5/2}^\circ$	$0.18^d, 0.89^g$	-	0.024d
Xe II	627.754	$(^3P_2)5d [2]_{3/2} - (^3P_2)6p [2]_{5/2}^\circ$	$0.047^c, 0.036^d, 0.15^g$	$0.037^c$	0.033d

B. Beobachtete Emissionslinien im Freistrahls des RIT-10

Xe I	628.601	$5d [7/2]_4^{\circ} - 8f [9/2]_5$	-	-	0.054 d
Xe I	631.806	$6p [5/2]_3 - 8d [7/2]_4^{\circ}$	$0.027^g$	-	0.074 d
Xe I	633.2- 633.8	Beiträge verschiedener Multipletts	-	-	0.035 b
Xe II	634.396	$(^3P_2)5d [2]_{3/2} - (^3P_2)6p [2]_{3/2}^{\circ}$	$0.068^c, 0.82^g$	$0.055^c$	0.016 d
Xe I	646.971	$6p [1/2]_1 - 7d [3/2]_2^{\circ}$	$_{-h}$	-	0.047 b
Xe I	647.284	$6p [1/2]_1 - 7d [3/2]_1^{\circ}$	$_{-h}$	-	0.047 b
Xe I	649.7- 650.4	Beiträge verschiedener Multipletts	-	-	0.087 d
H I	656.277	2 - 3			0.343
Xe I/II	659.5- 659.9	Beiträge verschiedener Multipletts	-	-	0.090 b
Xe I	663.044	$6p [3/2]_2 - 8d [7/2]_3^{\circ}$	$_{-h}$	-	b?
Xe I	663.246	$6p [3/2]_2 - 8d [3/2]_2^{\circ}$	$_{-h}$	-	0.020 d
Xe I	666.697	$6p [5/2]_3 - 9s [3/2]_2^{\circ}$	$_{-h}$	-	0.059 b
Xe I	666.892	$6p [1/2]_1 - 7d [1/2]_0^{\circ}$	$_{-h}$	-	0.059 b
Xe I	672.801	$6p [1/2]_1 - 7d [1/2]_1^{\circ}$	$_{-h}$	-	0.069 d
Xe I	677.757	$5d [1/2]_1^{\circ} - 6f [3/2]_2$	-	-	0.029 b
Xe I	677.860	$5d [1/2]_1^{\circ} - 6f [3/2]_1$	-	-	0.029 b
Xe II	680.574	$(^3P_1)5d [3]_{7/2} - (^3P_1)6p [2]_{5/2}^{\circ}$	$0.068^c, 0.061^d$	$0.054^c$	0.024 d
Xe I	682.732	$6s' [1/2]_0^{\circ} - 4f [3/2]_1$	-	-	0.031
Xe I	685.019	Beiträge verschiedener Multipletts	$_{-h}$	-	0.082 b
Xe I	687.210	$5d [7/2]_4^{\circ} - 6f [9/2]_5$	-	-	0.151 d
Xe I	688.216	$6p [5/2]_2 - 7d [7/2]_3^{\circ}$	$0.064^g, 0.0583^h$	-	0.161 d
Xe I	692.4- 693.5	Beiträge verschiedener Levels des 6f-Multipletts	-	-	0.058 b
Xe I	697.618	$6p [5/2]_3 - 7d [5/2]_3^{\circ}$	$0.0191^h$	-	0.047 d
Xe II	699.088	$(^3P_2)5d [4]_{9/2} - (^3P_2)6p [3]_{7/2}^{\circ}$	$0.207^c, 0.27^d, 0.27^g$	$0.13^c$	0.102 d
Xe I	704.737	$5d [5/2]_2^{\circ} - 8f [7/2]_3$	-	-	0.036 b
Xe I	704.737	$6p [3/2]_2 - 9s [3/2]_2^{\circ}$	$0.0064^i$	-	0.036 b
Xe I	711.959	$6p [5/2]_3 - 7d [7/2]_4^{\circ}$	$0.0839^h$	-	0.200
Xe I	725.794	$5d [7/2]_3^{\circ} - 6f [9/2]_4$	-	-	0.088 d
Xe I/II	728.4- 728.5	Beiträge verschiedener Multipletts		-	0.094 d
Xe I	732.145	$6s' [1/2]_1^{\circ} - 4f [3/2]_1$	-	-	0.089 d
Xe I	733.648	$6p [5/2]_2 - 5d [5/2]_3^{\circ}$	-	-	0.122 b
Xe II	733.930	$(^3P_0)5d [2]_{5/2} - (^3P_0)6p [1]_{3/2}^{\circ}$	-	-	0.122 b
Xe I	738.600	$6p [1/2]_1 - 8s [3/2]_2^{\circ}$	$0.0125^i$	-	0.071 f
Xe I	739.379	$6p [3/2]_2 - 7d [5/2]_3^{\circ}$	$0.0489^h$	-	0.134 d
Xe I	747.201	$5d [1/2]_1^{\circ} - 5f [3/2]_2$	-	-	0.049 b
Xe I	747.401	$5d [1/2]_1^{\circ} - 5f [3/2]_1$	-	-	0.049 b
Xe I	749.223	$6p [5/2]_3 - 5d' [5/2]_3^{\circ}$	-	-	0.031 d
Xe I	750.113	$6p [5/2]_2 - 5d' [3/2]_2^{\circ}$	-	-	0.018 d
Xe I	755.979	$5d [7/2]_4^{\circ} - 5f [7/2]_4$	-	-	0.020 d



Xe I	758.429	$5d [7/2]_4^{\circ} - 5f [5/2]_4$	-	-	b?
Xe I	758.468	$5d [7/2]_4^{\circ} - 5f [9/2]_5$	-	-	0.197 d
Xe I	764.203	$6s' [1/2]_0^{\circ} - 6p' [1/2]_1$	0.106 <sup>e</sup>	0.395 <sup>e</sup>	0.219 d
Xe I	764.230	$5d [3/2]_2^{\circ} - 5f [5/2]_2$	-	-	b?
Xe I	764.391	$5d [3/2]_2^{\circ} - 5f [5/2]_3$	-	-	b?
Xe I	766.4- 766.7	Beiträge verschiedener Multi- pletts	-	-	0.038 b
Xe I	774.031	$6p [3/2]_2 - 7d [1/2]_1^{\circ}$	- <sup>h</sup>	-	0.016
O I	777.194	$(^4S^{\circ})3s^5S_2^{\circ} - (^4S^{\circ})3p^5P_3^{\circ}$			0.127 b
O I	777.417	$(^4S^{\circ})3s^5S_2^{\circ} - (^4S^{\circ})3p^5P_2^{\circ}$			0.127 b
O I	777.539	$(^4S^{\circ})3s^5S_2^{\circ} - (^4S^{\circ})3p^5P_1^{\circ}$			0.127 b
Xe I	780.265	$6p [5/2]_2 - 8s [3/2]_1^{\circ}$	0.0228 <sup>i</sup>	-	0.043 d
Xe I	788.132	$6p [5/2]_2 - 8s [3/2]_2^{\circ}$	0.0055 <sup>i</sup>	-	b?
Xe I	788.739	$6s' [1/2]_1^{\circ} - 6p' [1/2]_0$	0.207 <sup>e</sup> , 0.10 <sup>g</sup>	0.62 <sup>e</sup>	0.085 d
Xe I	796.734	$6s' [1/2]_0^{\circ} - 7p [3/2]_1$	0.0251 <sup>e</sup>	0.351 <sup>e</sup>	0.164
Xe II	800.845	$(^3P_2)4f [4]_{9/2}^{\circ} - (^3P_2)5g [5]_{11/2}$	-	-	0.018 d
Xe I	802.967	$5d [7/2]_3^{\circ} - 5f [7/2]_4$	-	-	0.035 d
Xe I	802.967	$5d [7/2]_3^{\circ} - 5f [7/2]_3$	-	-	0.035 d
Xe I	805.726	$5d [7/2]_3^{\circ} - 5f [9/2]_4$	-	-	0.210 b
Xe I	806.140	$6p [5/2]_3 - 8s [3/2]_2^{\circ}$	0.0259 <sup>i</sup>	-	0.210 b
Xe I	810.198	$5d [5/2]_3^{\circ} - 6f [7/2]_4$	-	-	0.068 d
Xe I	817.102	$6p [3/2]_2 - 5d [3/2]_2^{\circ}$	-	-	0.060
Xe I	820.634	$6s' [1/2]_0^{\circ} - 6p' [3/2]_1$	0.088 <sup>e</sup>	0.37 <sup>e</sup>	0.151 d
Xe I	823.163	$6s [3/2]_2^{\circ} - 6p [3/2]_2$	0.186 <sup>e</sup> , 0.286 <sup>f</sup> , 0.038 <sup>g</sup> , 0.13 <sup>j</sup>	0.70 <sup>e</sup>	7.062
Xe I	826.652	$6s' [1/2]_1^{\circ} - 6p' [1/2]_1$	0.086 <sup>e</sup>	0.32 <sup>e</sup>	0.114
Xe I	828.012	$6s [3/2]_1^{\circ} - 6p [1/2]_0$	0.333 <sup>e</sup> , 0.34 <sup>f</sup> , 0.10 <sup>g</sup> , 0.33 <sup>j</sup>	0.998 <sup>e</sup>	1 d
Xe I	834.682	$6s' [1/2]_1^{\circ} - 6p' [3/2]_2$	0.209 <sup>e</sup> , 0.069 <sup>g</sup> , 0.29 <sup>j</sup>	0.733 <sup>e</sup>	0.584 d
Xe I	840.919	$6s [3/2]_2^{\circ} - 6p [3/2]_1$	0.025 <sup>e</sup> , 0.031 <sup>f</sup> , 0.0083 <sup>g</sup>	0.025 <sup>e</sup>	0.378 d
O I	844.625	$(^4S^{\circ})3s^5S_1^{\circ} - (^4S^{\circ})3p^3P_0^{\circ}$			0.067 b
O I	844.636	$(^4S^{\circ})3s^5S_1^{\circ} - (^4S^{\circ})3p^3P_2^{\circ}$			0.067 b
O I	844.676	$(^4S^{\circ})3s^5S_1^{\circ} - (^4S^{\circ})3p^3P_1^{\circ}$			0.067 b
Xe I	857.601	$6s' [1/2]_1^{\circ} - 7p [1/2]_0$	0.025 <sup>e</sup> , 0.08 <sup>j</sup>	0.282 <sup>e</sup>	0.036 d
Xe I	862.424	$6p [3/2]_2 - 8s [3/2]_2^{\circ}$	0.016 <sup>i</sup>	-	0.033 d
Xe I	864.854	$6s' [1/2]_1^{\circ} - 7p [3/2]_1$	0.0157 <sup>e</sup>	0.22 <sup>e</sup>	0.087
Xe I	869.220	$6s' [1/2]_1^{\circ} - 7p [3/2]_2$	0.0092 <sup>e</sup>	0.11 <sup>e</sup>	0.137 b
Xe I	869.686	$5d [5/2]_2^{\circ} - 5f [7/2]_3$	-	-	0.137 b
Xe I	870.964	$5d [5/2]_2^{\circ} - 5f [5/2]_2$	-	-	0.028 d
Xe I	873.937	$6p [1/2]_1 - 6d [3/2]_2^{\circ}$	-	-	0.193
Xe I	875.820	$6p [5/2]_2 - 6d [5/2]_3^{\circ}$	-	-	0.056 d
Xe I	881.941	$6s [3/2]_2^{\circ} - 6p [5/2]_3$	0.30 <sup>f</sup>	-	23.6
Xe I	886.232	$6p [1/2]_1 - 6d [1/2]_1^{\circ}$	-	-	0.329 d
Xe I	890.873	$6p [1/2]_1 - 6d [1/2]_0^{\circ}$	-	-	0.148 d
Xe I	893.083	$6s' [1/2]_1^{\circ} - 6p' [3/2]_1$	0.093 <sup>e</sup>	0.389 <sup>e</sup>	0.145
Xe I	895.225	$6s [3/2]_1^{\circ} - 6p' [3/2]_2$	0.079 <sup>e</sup> , 0.075 <sup>f</sup> , 0.08 <sup>j</sup>	0.30 <sup>e</sup>	2.67 d
Xe I	895.278	$6s' [1/2]_1^{\circ} - 7p [5/2]_2$	-	-	b?

B. Beobachtete Emissionslinien im Freistrahlspektrum des RIT-10

Xe I	898.105	$6p [5/2]_3 - 6d [5/2]_3^{\circ}$	-	-	0.209 b
Xe I	898.757	$6p [5/2]_2 - 6d [5/2]_2^{\circ}$	-	-	0.209 b
Xe I	904.545	$6s [3/2]_2^{\circ} - 6p [5/2]_2$	$0.091^e, 0.124^f$	$0.363^e$	4.96 d
Xe I	909.613	$5d [5/2]_3^{\circ} - 5f [7/2]_4$	-	-	0.114
Xe I	916.265	$6s [3/2]_1^{\circ} - 6p [3/2]_1$	$0.277^e, 0.217^f$	$0.915^e$	5.62 d
Xe I	916.752	$6p [5/2]_2 - 6d [7/2]_3^{\circ}$	-	-	b?
Xe I	920.320	$5d [1/2]_1^{\circ} - 4f [3/2]_2$	-	-	0.137 b
Xe I	921.138	$5d [1/2]_1^{\circ} - 4f [3/2]_1$	-	-	0.137 b
Xe I	930.664	$6s' [1/2]_1^{\circ} - 7p [1/2]_1$	$0.026^e$	$0.366^e$	0.185 d
Xe I	937.402	$5d [7/2]_4^{\circ} - 4f [9/2]_4$	-	-	0.539 b
Xe I	937.476	$5d [7/2]_4^{\circ} - 4f [9/2]_5$	-	-	0.539 b
Xe I	941.201	$6p [5/2]_3 - 6d [7/2]_3^{\circ}$	-	-	0.124
Xe I	944.146	$6p [5/2]_3 - 6d [3/2]_2^{\circ}$	-	-	0.299 b
Xe I	944.268	$5d [3/2]_2^{\circ} - 4f [5/2]_2$	-	-	0.299 b
Xe I	944.534	$5d [3/2]_2^{\circ} - 4f [5/2]_3$	-	-	0.299 b
Xe I	949.707	$5d [3/2]_2^{\circ} - 4f [3/2]_2$	-	-	0.280 d
Xe I	951.338	$6p [5/2]_3 - 6d [7/2]_4^{\circ}$	-	-	0.729
Xe I	968.532	$6p [3/2]_2 - 6d [5/2]_3^{\circ}$	-	-	0.377
Xe I	971.816	$6p [3/2]_1 - 6d [5/2]_2^{\circ}$	-	-	0.287 d
Xe I	979.970	$6s [3/2]_2^{\circ} - 6p [1/2]_1$	$0.248^e, 0.311^f$	$0.917^e$	8.75
Xe I	992.320	$6s [3/2]_1^{\circ} - 6p [5/2]_2$	$0.159^e, 0.120^f$	$0.637^e$	9.12

**Abbildung B.1.:** Übersicht der wichtigsten detektierten Emissionslinien im Freistrahlspektrum des RIT-10. Die Zuordnung der Übergänge erfolgte nach den klassifizierten Spektrallinien in Saloman [136]. Alle Zustände sind in der  $jK$ -Notation gegeben. Für die Übergangsraten  $A_{ij}$  und zur Angabe der branching ratios wurden experimentelle Literaturwerte herangezogen:

<sup>a</sup> Gigosos et al. [171]

<sup>b</sup> di Rocco et al. [137]

<sup>c</sup> Zielinska et al. [172], Berechnung der  $b_{ij} \equiv A_{ij}\tau_i$  aus den hierin gegebenen mittleren Lebensdauern

<sup>d</sup> Reader et al. [173]

<sup>e</sup> Horiguchi et al. [33]

<sup>f</sup> Sabbagh & Sadeghi [174]

<sup>g</sup> Miller et al. [175]

<sup>h</sup> Martin et al. [176], einige  $A_{ij}$  relativ bestimmt innerhalb eines Multipletts

<sup>i</sup> Peraza et al. [177]

<sup>j</sup> Karimov & Klimkin [178]

<sup>k</sup> abgeleitet für experimentell bestimmte  $A_{ij}$  aus di Rocco et al. [137], und  $\tau_i$  aus Das & Bhattacharya [179]

<sup>l</sup> abgeleitet für experimentell bestimmte  $A_{ij}$  aus di Rocco et al. [137], und  $\tau_i$  aus Blagoev et al. [180]

<sup>m</sup> abgeleitet für  $A_{ij}$  aus Gigosos et al. [171], und  $\tau_i$  aus Fonseca et al. [181]

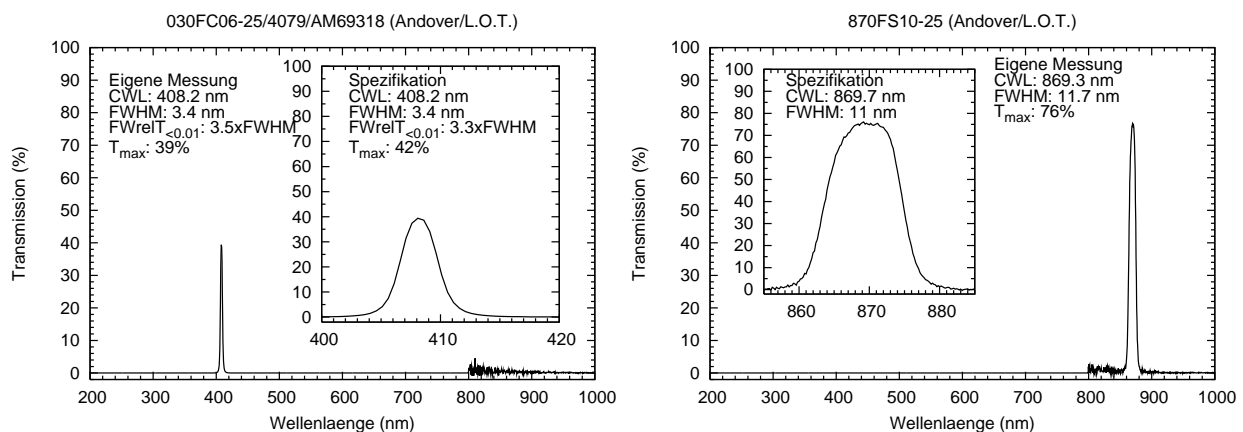
<sup>n</sup> abgeleitet für  $A_{ij}$  aus Reader et al. [173], und  $\tau_i$  aus Fonseca et al. [181]

## C. Verwendete Interferenzfilter

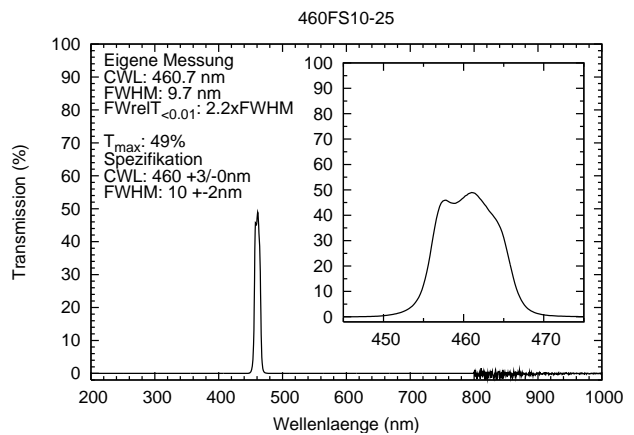
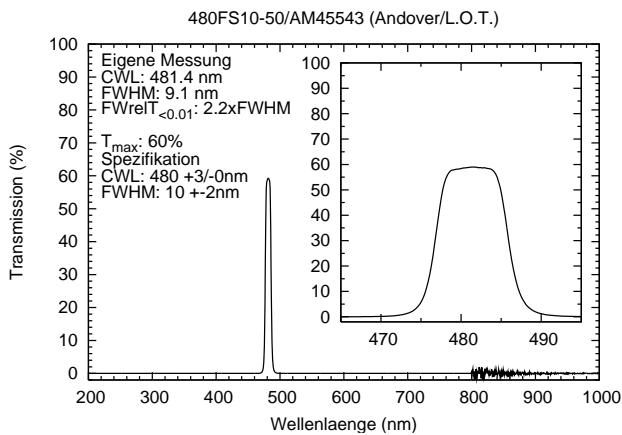
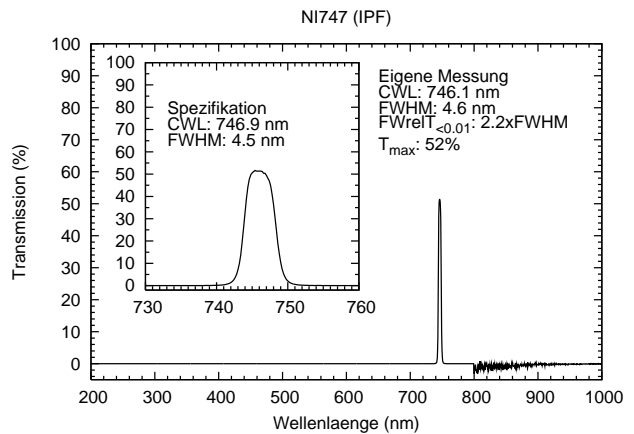
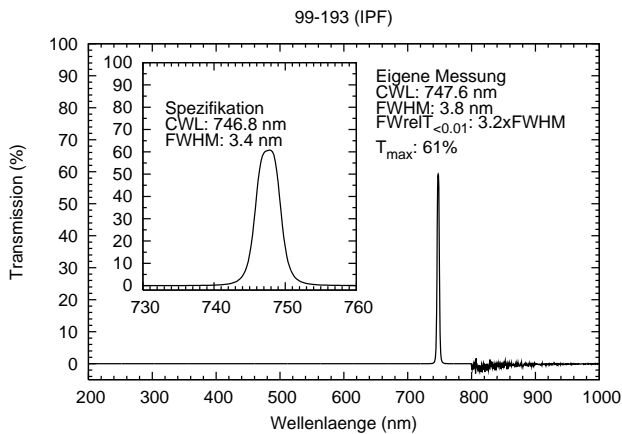
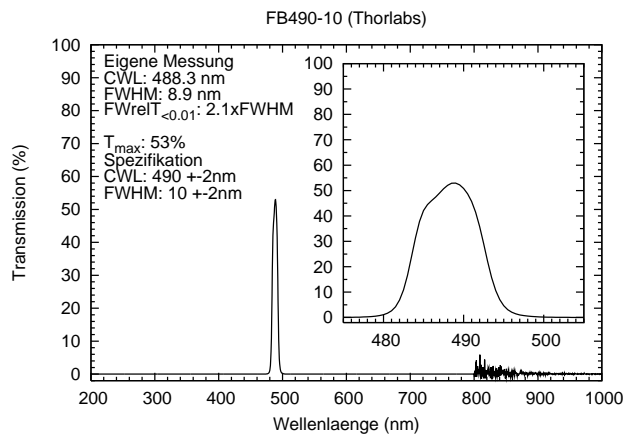
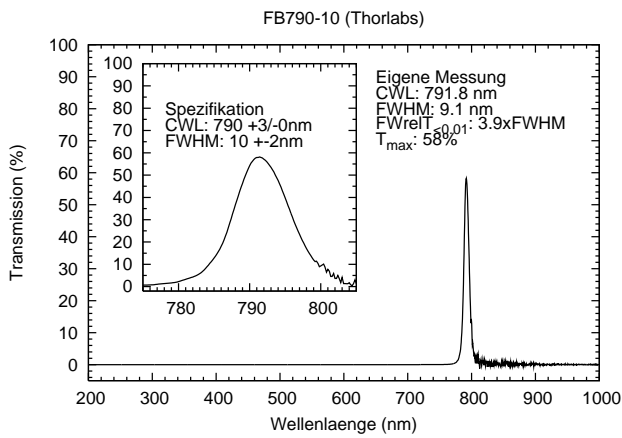
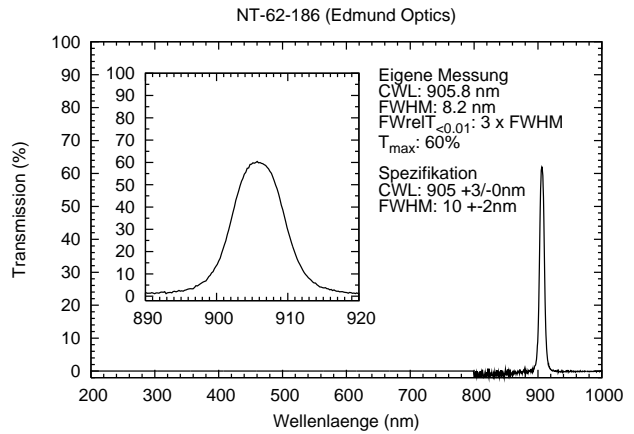
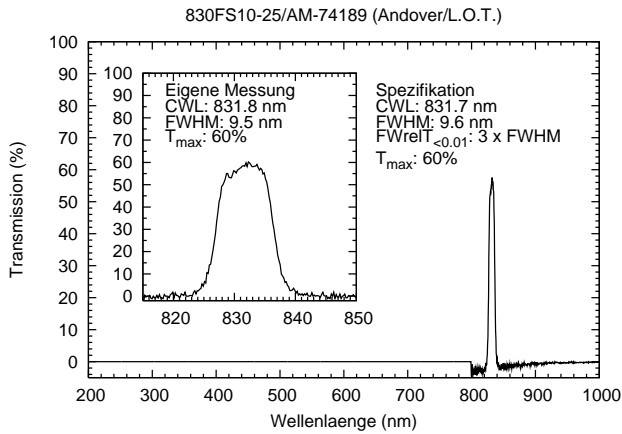
Im folgenden werden die Transmissionskurven einiger in dieser Arbeit verwendeter Interferenzfilter angegeben. Das Blockungsverhalten wurde im Bereich zwischen 200 und 1000 nm überprüft. Die Messungen erfolgten mit einer spektral durchstimmbaren Lichtquelle, bestehend aus kontinuierlichen Strahlquellen für den jeweiligen Spektralbereich und einem Monochromator (UVPC-31 Shimadzu) des Instituts für Plasmaforschung (Universität Stuttgart).

Alle verwendeten Filter sind unterhalb von 1000 nm mit einer Blockung  $OD \geq 4$  spezifiziert. Kein Filter zeigte Transmission außerhalb des Transmissionsbereichs. Zur Überprüfung der Blockung außerhalb des Transmissionsbereichs wurde der Spektralbereich mit der Schrittweite von 0.5 nm durchfahren. Für alle untersuchten Filter wurde im Bereich 200–800 nm OD4 gemäß den Spezifikationen erreicht. Nach einem Wechsel der Strahlquelle bei 800 nm treten zwischen 800 und 900 nm bei allen Messungen deutliche Störungen in der Transmissionskurve auf, die jedoch auf die hier schwachen Intensitäten der Strahlquelle bei dem gewählten Austrittspalt (Einstellung 0.5) des Monochromators zurückzuführen sind und nicht die tatsächliche Transmission wiedergeben.

Für eine genauere Bestimmung des Transmissionsbereichs wurde der Austrittspalt des Monochromators weiter verengt (Einstellung 0.2) und die Durchstimmung mit einer Schrittweite von 0.2 nm vorgenommen. Die Zentralwellenlänge (CWL) entspricht der Mitte der vollen Halbwertsbreite und gibt daher nicht notwendigerweise die Wellenlänge maximaler Transmission  $T_{max}$  an. Soweit möglich wurde die Breite  $FWrelT_{<0.01}$  bestimmt, außerhalb der die Transmission auf weniger als 1/100 der maximalen Transmission abfällt. Die Wellenlängenskala wurde anhand eines innerhalb kurz zuvor von L.O.T. Oriol spezifizierter Filters (831 nm) überprüft. Gegenüber der Spezifikation ergab sich eine Abweichung von 0.8 nm bei 831 nm, dieser Offset wurde in den folgenden Abbildungen korrigiert. In der Fehlerbetrachtung bei der Bestimmung von relativer Zwei-Photonen Absorptionsquerschnitte wird die Unsicherheit der Transmission durch diese Abweichung festgelegt und beträgt im Maximalfall etwa 25 Prozent.



### C. Verwendete Interferenzfilter



# Literaturverzeichnis

- [1] J. R. Brophy, *NASA's Deep Space 1 Ion Engine*, Rev. Sci. Instrum. **73** (2002) 1071-1078
- [2] C. R. Koppel, D. Estublier, *The SMART-1 Hall Effect Thruster Around the Moon: In Flight Experience*, 29th International Electric Propulsion Conference, Princeton, NJ, October 31 - November 4, IEPC-2005-119, 2005
- [3] H. Kuninaka, K. Nishiyama, I. Funakai, K. Tetsuya, Y. Shimizu, J. Kawaguchi, *Asteroid Rendezvous of Hayabusa Explorer Using Microwave Discharge Ion Engines*, 29th International Electric Propulsion Conference, Princeton, NJ, October 31 - November 4, IEPC-2005-010, 2005
- [4] E. Stuhlinger, *Ion Propulsion for Space Flight*, McGraw Hill, New York, 1964
- [5] R. G. Jahn, *Physics of Electric Propulsion*, McGraw Hill, New York, 1968
- [6] M. Auweter-Kurtz, *Lichtbogenantriebe für Weltraumaufgaben*, Teubner, Stuttgart, 1992
- [7] D. M. Goebel, I. Katz, *Fundamentals of Electric Propulsion: Ion and Hall Thrusters*, JPL Space Science and Technology Series, Jet Propulsion Laboratory and California Institute of Technology, Pasadena, 2008
- [8] J. Wang, D. Brinza, M. Young, *Three-Dimensional Particle Simulation of Ion Propulsion Plasma Environment for Deep Space 1*, J. Spacecraft Rockets **38** (2001) 433-440
- [9] I. G. Mikellides, G. A. Jongeward, I. Katz, D. H. Manzella, *Plume Modeling of Stationary Plasma Thrusters and Interactions with the Express-A Spacecraft*, J. Spacecraft Rockets **39** (2002) 894-903
- [10] G. F. Karabadzhak, Y.-H. Chiu, R. A. Dressler, *Passive optical diagnostic of Xe propelled Hall thrusters. II. Collisional-radiative model*, J. Appl. Phys. **99** (2006) 113305/1-12
- [11] D. Gawron, S. Mazouffre, C. Boniface, *A Fabry Pérot spectroscopy study on ion flow features in a Hall effect thruster*, Plasma Sourc. Sci. Tech. **15** (2006) 757-764
- [12] R. J. Cedolin, R. K. Hanson, M. A. Cappelli, *Laser-induced fluorescence measurements of resonance broadening in xenon*, Phys. Rev. A **54** (1996) 335-342
- [13] R. J. Cedolin, W. A. Hargus Jr., P. V. Storm, R. K. Hanson, M. A. Cappelli, *Laser-induced fluorescence study of a xenon Hall thruster*, Appl. Phys. B **65** (1997) 459-469

- [14] T. B. Smith, *Deconvolution of ion velocity distributions from laser-induced fluorescence spectra of xenon electrostatic ion thruster plumes*, Dissertation, University of Michigan (2003)
- [15] G. Severn, D. Lee, N. Hershkowitz, *Xenon ion laser-induced fluorescence using a visible tunable diode laser near 680 nm*, Rev. Sci. Instrum. **78** (2007) 116105/1-3
- [16] S. Mazouffre, D. Gawron, N. Sadeghi, *A time-resolved laser induced fluorescence study on the ion velocity distribution function in a Hall thruster after a fast current disruption*, Phys. Plasma **16** (2009) 043504/1-8
- [17] S. Mazouffre, V. Kulaev, J. Perez Luna, *Ion diagnostics of a discharge in crossed electric and magnetic fields for electric propulsion*, Plasma Sourc. Sci. Tech. **18** (2009) 034022/1-12
- [18] S. Mazouffre, G. Bourgeois, *Spatio-temporal characteristics of ion velocity in a Hall thruster discharge*, Plasma Sourc. Sci. Tech. **19** (2010) 065018/1-9
- [19] S. Mazouffre, G. Bourgeois, L. Garrigues, E. Pawelec, *A comprehensive study on the atom flow in the cross-field discharge of a Hall thruster*, J. Phys. D **44** (2011) 105203/1-8
- [20] K. Niemi, V. Schulz-von der Gathen, H. F. Döbele, *Absolute calibration of atomic density measurements by laser-induced fluorescence spectroscopy with two-photon excitation*, J. Phys. D **34** (2001) 2330-2335
- [21] K. Niemi, V. Schulz-von der Gathen, H. F. Döbele, *Absolute atomic oxygen density measurements by two-photon absorption laser-induced fluorescence spectroscopy in an RF-excited atmospheric pressure plasma jet*, Plasma Sourc. Sci. Tech. **14** (2005) 375-386
- [22] S. Löhle, M. Auweter-Kurtz, *LIF-Measurements of Atomic Oxygen in Inductively Heated Plasma Flows using two calibration methods*, J. Thermophys. Heat Tran. **21** (2007) 623-629
- [23] S. Löhle, C. Eichhorn, A. Steinbeck, S. Lein, G. Herdrich, H.-P. Röser, M. Auweter-Kurtz, *Oxygen plasma flow properties deduced from laser-induced fluorescence and probe measurements* Appl. Opt., **47** (2008) 1837-1845
- [24] S. F. Adams, T. A. Miller, *Two-photon absorption laser-induced fluorescence of atomic nitrogen by an alternative excitation scheme*, Chem. Phys. Lett. **295** (1998) 305-311
- [25] D. G. Fletcher, *Arcjet flow properties determined from laser-induced fluorescence of atomic nitrogen*, Appl. Opt. **38** (1999) 1850-1858
- [26] S. Mazouffre, I. Bakker, P. Vankan, R. Engeln, D. C. Schram, *Two-photon laser induced fluorescence spectroscopy performed on free nitrogen plasma jets*, Plasma Sourc. Sci. Tech. **11** (2002) 439-447
- [27] I. G. Mikellides, I. Katz, R. A. Kuharski, M. J. Mandell, *Elastic Scattering of Ions in Electrostatic Thruster Plumes*, J. Propul. Power **21** (2005) 111-118

- [28] C. Cai, I. D. Boyd, Q. Sun, *Rarefied Background Flow in a Vacuum Chamber Equipped with One-Sided Pumps*, J. Thermophys. Heat Tran. **20** (2006) 524-535
- [29] R. I. S. Roy, D. E. Hastings, N. A. Gastonis, *Numerical study of spacecraft contamination and interactions by ion-thruster effluents*, J. Spacecraft Rockets **33** (1996) 535-542
- [30] A. Goehlich, T. Kawetzki, H. F. Döbele, *On absolute calibration with xenon of laser diagnostic methods based on two-photon absorption*, J. Chem. Phys. **108** (1998) 9362-9370
- [31] M.R. Bruce, W.B. Layne, C.A. Whitehead, J.W. Keto, *Radiative lifetimes and collisional deactivation of two-photon excited xenon in argon and xenon*, J. Chem. Phys. **92** (1990) 2917-2925
- [32] C.A. Whitehead, H. Pournasr, M.R. Bruce, Hong Cai, J. Kohel, W.B. Layne, J.W. Keto, *Deactivation of two-photon excited  $Xe(5p^5 6p, 6p', 7p)$  and  $Kr(4p^5 5p)$  in xenon and krypton* J. Chem. Phys. **102** (1995) 1965-1980
- [33] H. Horiguchi, R. S. F. Chang, D. W. Setser, *Radiative lifetimes and two-body collisional deactivation rate constants in Ar for  $Xe(5p^5 6p)$ ,  $Xe(5p^5 6p')$ , and  $Xe(5p^5 7p)$  states*, J. Chem. Phys. **75** (1981) 1207-1218
- [34] J.K. Ku, D.W. Setser, *Collisional deactivation of  $Xe(5p^5 6p)$  states in Xe and Ar*, J. Chem. Phys. **84** (1986) 4304-4316
- [35] N. Böwering, M.R. Bruce, J.W. Keto, *Collisinal deactivation of two-photon laser excited xenon  $5p^5 6p$ . I. State-to-state reaction rates*, J. Chem. Phys. **84** (1986) 709-714
- [36] N. Böwering, M.R. Bruce, J.W. Keto, *Collisinal deactivation of two-photon laser excited xenon  $5p^5 6p$ . II. Lifetimes and total quench rates*, J. Chem. Phys. **84** (1986) 715-726
- [37] W.J. Alford, *State-to-state rate constants for quenching of xenon  $6p$  levels by rare gases*, J. Chem. Phys. **96** (1992) 4330-4340
- [38] E. Jiménez, J. Campos, C. Sánchez del Río, *Radiative lifetimes of some levels of Xe I and Xe II*, J. Opt. Soc. Am. **64** (1974) 1009-1010
- [39] L. Allen, D.G.C. Jones, D.G. Schofield, *Radiative Lifetimes and Collisional Cross Sections for Xe I and II*, J. Opt. Soc. Am. **59** (1969) 842-847
- [40] Ya.F. Verolainen, A.L. Osherovich, *Lifetimes of Certain Xenon Levels*, Opt. Spectrosc. **27** (1969) 31-33
- [41] M. Aymar, M. Coulombe, *Theoretical Transition Probabilities and Lifetimes in Kr I and Xe I Spectra*, Atomic Data and Nuclear Data Tables **21** (1978) 537-566
- [42] A. V. Loginov, P. F. Gruzdev, *Radiation lifetimes of xenon levels*, Opt. Spectrosc. **41** (1976) 176-179
- [43] D. Verdugo, M. Shaw, J. Campos, *Lifetime measurements of some levels of the  $5p^5 nf$  ( $n = 4, 5, 6, 7, 8$ ) configurations of Xe I*, Physica C **141** (1986) 329-332

- [44] M.B. Das, S. Karmakar, *Radiative lifetimes of some excited states of neutral xenon*, Eur. Phys. J. D, **32** (2005) 285-288
- [45] M. Chenevier, T. D. Nguyen, *Lifetimes and g-factors of certain xenon levels*, Phys. Lett. A **36** (1971) 177-178
- [46] J. C. Miller, *Two-photon resonant multiphoton ionization and stimulated emission in krypton and xenon*, Phys. Rev. A **40** (1989) 6969-6976
- [47] X. K. Hu, J. B. A. Mitchell, R. H. Lipson, *Resonance-enhanced multiphoton-ionization-photoelectron study of the dissociative recombination and associative ionization of  $Xe_2^+$* , Phys. Rev. A **62** (2000) 052712/1-8
- [48] R. H. Lipson, X. K. Hu, J. B. A. Mitchell, C. Froese Fischer, *State-dependent associative ionization in xenon*, Phys. Rev. A **68** (2003) 012717/1-5
- [49] R. H. Lipson, X. K. Hu, J.B.A. Mitchell, C. Froese Fischer, *Recombination studies of  $Xe_2^+$  following associative ionization of laser-excited Xe*, J. Phys. Conf. Ser. **4** (2005) 216-223
- [50] W. Gornik, S. Kindt, E. Matthias, D. Schmidt, *Two-photon excitation of xenon atoms and dimers in the energy region of the  $5p^5 6p$  configuration*, J. Chem. Phys. **75** (1981) 68-74
- [51] T.D. Raymond, N. Böwering, C.-Y. Kuo, J.W. Keto, *Two-photon laser spectroscopy of xenon collision pairs*, Phys. Rev. A **29** (1984) 721-734
- [52] C.H. Chen, G.S. Hurst, M.G. Payne, *Direct counting of Xe atoms*, Chem. Phys. Lett. **75** (1980) 473-477
- [53] S. Kröll, W. K. Bischel, *Two-photon absorption and ionization cross section measurements in the  $5p^5 6p$  configuration of xenon*, Phys. Rev. A **41** (1990) 1340-1349
- [54] M. S. Pindzola, M. G. Payne, W. R. Garrett, *Two-photon excitation of xenon*, Phys. Rev. A **24** (1981) 3315-3319
- [55] V. A. Alekseev, D. W. Setser, *Quenching Rate Constants and Product Assignments for Reactions of  $Xe(7p[3/2]_2, 7p[5/2]_2, \text{ and } 6p'[3/2]_2)$  Atoms with Rare Gases, CO, H<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>O, CH<sub>4</sub>, and Halogen-Containing Molecules*, J. Phys. Chem. **100** (1996) 5766-5780
- [56] M. W. Crofton, *Measurement of Neutral Xenon Density Profile in an Ion Thruster Plume*, Proceedings of the 27th Plasmadynamics and Lasers Conference, New Orleans, LA, 17-20 June, AIAA 1996-2290, 1996
- [57] A. Aanesland, L. Liard, G. Leray, J. Jolly, P. Chabert, *Direct measurements of neutral density depletion by two-photon absorption laser-induced fluorescence spectroscopy*, Appl. Phys. Lett., **12** (2007) 121502/1-3
- [58] Y.-H. Chiu, L. Austin, S. Williams, R. A. Dressler, G. F. Karabadzhak, *Passive optical diagnostic of Xe propelled Hall thrusters. I. Emission cross sections*, J. Appl. Phys. **99** (2006) 113304/1-11



- [59] J. D. Sommerville, L. B. King, Y.-H. Chiu, R. A. Dressler, *Ion-Collision Emission Cross Sections for Xenon Electric Thruster Plasmas*, J. Propul. Power **24** (2008) 880-888
- [60] J. S. Miller, S. H. Pullins, D. J. Levandier, Y.-H. Chiu, R. A. Dressler, *Xenon charge exchange cross sections for electrostatic thruster models*, J. Appl. Phys. **91** (2002) 984-991
- [61] R. G. Jahn, E. Y. Choueiri, *Electric Propulsion*, in: Encyclopedia of Physical Science and Technology, Volume 5, Third Edition, Academic, San Diego (2002)
- [62] G. Kornfeld, N. Koch, H.-P. Harmann, *Physics and Evolution of HEMP-Thrusters*, 30th International Electric Propulsion Conference, Florence, Italy, September 17-20, IEPC-07-108, 2007
- [63] N. Koch, M. Schirra, S. Weis, A. Lazurenko, B. van Reijen, J. Haderspeck, A. Genovese, P. Holtmann, R. Schneider, K. Matyash, O. Kalantyevev, *The HEMPT Concept - A Survey on Theoretical Considerations Experimental Evidences*, 32th International Electric Propulsion Conference, Wiesbaden, Germany, September 11-15, IEPC-11-236, 2011
- [64] M. Auweter-Kurtz, T. Gölz, H. Habiger, F. Hammer, H. Kurtz, M. Riehle, C. Sleziona *High-Power Hydrogen Arcjet Thrusters*, J. Propul. Power **14** (1998) 764-773
- [65] M. Auweter-Kurtz, H. L. Kurtz, *Optimization of Electric Propulsion Systems Considering Specific Power as Function of Specific Impulse*, J. Propul. Power **4** (1988) 512-519
- [66] M. Auweter-Kurtz, H. Kurtz, *Optimization of Electric Thrusters for Primary Propulsion Based on the Rocket Equation*, J. Propul. Power **19** (2003) 413-423
- [67] K. Sankaran, L. Cassady, A. D. Kodys, E. Y. Choueiri, *A Survey of Propulsion Options for Cargo and Piloted Missions to Mars*, in: Annals of the New York Academy of Sciences, Volume 1017, Blackwell Publishing Ltd, 2004
- [68] T. D. Schmidt, B. Dachwald, W. Seboldt, M. Auweter-Kurtz, *Flight Opportunities from Mars to Earth for Piloted Missions Using Continuous Thrust Propulsion*, Proceedings of the 39th Joint Propulsion Conference, Huntsville, AL, 20-23 July, AIAA 2003-4573, 2003
- [69] T. D. Schmidt, W. Seboldt, M. Auweter-Kurtz, *Flexible Piloted Mars Missions Using Continuous Thrust Propulsion*, J. Spacecraft Rockets **43** (2006) 1231-1238
- [70] C.D. Child, *Discharge from Hot CaO*, Phys. Rev. **XXXII** (1911) 492-511
- [71] I. Langmuir, *The Effect of Space Charge and Residual Gases on Thermoionic Current in High Vacuum*, Phys. Rev. **2** (1913) 450-486
- [72] V. V. Zhurin, H. R. Kaufman, R. S. Robinson, *Physics of closed drift thrusters*, Plasma Sourc. Sci. Tech. **8** (1999) R1-R20
- [73] H. R. Kaufman, *Technology of Closed-Drift Thrusters*, AIAA Journal **23** (1985) 78-87

- [74] H.W. Loeb, *Ein elektrostatisches Raketentriebwerk mit Hochfrequenzenergiequelle*, *Astronautica Acta* **VIII** (1962) 49
- [75] H.W. Loeb, *Recent Work on Radio Frequency Ion Thrusters*, *J. Spacecraft Rockets* **8** (1971) 494-500
- [76] H.W. Loeb, *Electric Propulsion Technology Status and Development Plans European Programs*, *J. Spacecraft Rockets* **11**, (1974) 821-828
- [77] H.J. Leiter, R. Killinger, H. Bassner, J. Müller, R. Kukies, *Development of the Radio Frequency Ion Thruster RIT XT - A Status Report*, 27th International Electric Propulsion Conference, Pasadena, CA, October 15-19, IEPC-01-104, 2001
- [78] K.H. Groh, H.W. Loeb, *Radio-frequency ion sources for space propulsion (invited)*, *Rev. Sci. Instrum.* **63** (1992) 2513-2518
- [79] K.H. Groh, H.W. Loeb, *State of the art of radio-frequency ion sources for space propulsion*, *Rev. Sci. Instrum.* **65** (1994) 1741-1744
- [80] R. Killinger, R. Kukies, M. Surauer, A. Tomasetto, L. van Holtz, *ARTEMIS Orbit Raising Inflight Experience with Ion Propulsion*, *Acta Astronautica* **53** (2003) 607-621
- [81] H. R. Kaufman, *An Ion Rocket with an Electron-Bombardment Ion Source*, NASA LeRC, Cleveland, Ohio, Technical Report TN D-585 (1961) 1-39
- [82] C. E. Garner, M. D. Rayman, J. R. Brophy, S. C. Mikes, *The Dawn of Vesta Science*, 32th International Electric Propulsion Conference, Wiesbaden, Germany, September 11-15, IEPC-11-326, 2011
- [83] H. Goede, *30-cm Electron Cyclotron Plasma Generator*, *J. Spacecraft Rockets* **24** (1987) 437-443
- [84] H. Kuninaka, S. Satori, *Development and Demonstration of a Cathodeless Electron Cyclotron Resonance Ion Thruster*, *J. Propul. Power* **14** (1998) 1022-1026
- [85] N. Koch, S. Weis, M. Schirra, A. Lazurenko, B. van Reijen, J. Haderspeck, A. Genovese, P. Holtmann, K. Ruf, N. Püttmann, H. Lübberstedt, *The High Efficiency Multistage Plasma Thruster HEMPT based Ion Propulsion System for the SmallGEO Satellite*, Proceedings of the 47th Joint Propulsion Conference, San Diego, CA, July 31 - August 03, AIAA 2011-6086, 2011
- [86] M. N. Nakles, W. Hargus, *Background Pressure Effects on Ion Velocity Distribution Within a Medium-Power Hall Thruster*, *J. Propul. Power* **27** (2011) 737-743
- [87] J. Wang, J. Polk, J. Brophy, I. Katz, *Three-Dimensional Particle Simulations of Ion-Optics Plasma Flow and Grid Erosion*, *J. Propul. Power* **19** (2003) 1192-1199
- [88] A. C. Eckbreth, *Laser diagnostics for combustion temperature and species*, Gordon and Breach Publ., New York (1996)

- [89] P. Lokai, B. Burghardt, D. Basting, W. Mückenheim, *Typ-I-Frequenzverdopplung und Frequenzmischung in  $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>*, *Laser & Optoelektronik* **19** (1987) 296
- [90] H. B. Bebb, A. Gold, *Multiphoton Ionization of Hydrogen and Rare-Gas Atoms*, *Phys. Rev.* **143** (1966) 1-24
- [91] D. J. Bamford, L. E. Jusinski, W. K. Bischel, *Absolute two-photon absorption and three-photon ionization cross sections for atomic oxygen*, *Phys. Rev. A* **34** (1986) 185-198
- [92] R. Loudon, *The Quantum Theory of Light*, Clarendon, Oxford (1983)
- [93] W. Demtröder, *Laserspektroskopie: Grundlagen und Techniken*, 4. Auflage, Springer, Heidelberg, Berlin (2000)
- [94] R. P. Saxon, J. Eichler, *Theoretical calculation of two-photon absorption cross sections in atomic oxygen*, *Phys. Rev. A* **34** (1986) 199-206
- [95] Y. Liu, J. Lin, G. Huang, Y. Guo, Ch. Duan, *Simple empirical analytical approximation to the Voigt profile*, *J. Opt. Soc. Am B* **18** (2001) 666-672
- [96] B. H. Brandsen, C. J. Joachain, *Physics of Atoms and Molecules*, 2nd Edition, Pearson Education, Harlow (2003)
- [97] G. Racah, *On a New Type of Vector Coupling in Complex Spectra*, *Phys. Rev.* **61** (1942) 537
- [98] K. D. Bonin, T. J. McIlrath, *Two-photon electric-dipole selection rules*, *J. Opt. Soc. Am. B.* **1** (1984) 52-55
- [99] J. E. Velazco, J. H. Kolts, D. W. Setser, *Quenching Rate constants for Metastable Argon, Krypton, and Xenon Atoms by Fluorine Containing Molecules and Branching Ratios for XeF\* and KrF\* Formation*, *J. Chem. Phys.* **65** (1976) 3468-3480
- [100] T. O. Nelson, D. W. Setser, M. K. Richmann, *Quenching Rate Constants of the Xe(5p<sup>5</sup> 6p and 6p') States and the Energy-Pooling Ionization Reaction of Xe(5p<sup>5</sup> 6s) Atoms*, *J. Phys. Chem.* **99** (1995) 7482-7494
- [101] M. B. Faist, R. B. Bernstein, *Computational Study of Elastic and Electronically Inelastic Scattering of Br by Ground State I Atoms: Role of Potential Curve Crossing*, *J. Chem. Phys.* **64** (1976) 2971-2984
- [102] P. H. Paul, *A Model for Temperature-Dependent Collisional Quenching of OH A<sup>2</sup>Σ<sup>+</sup>*, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* **51** (1994) 511-524
- [103] W. R. Bennett Jr, P. J. Kindlmann, G. N. Mercer, *Measurement of Excited State Relaxation Rates*, *Appl. Opt. Suppl.* **3** (1965) 34
- [104] W. R. Bennett Jr, P. J. Kindlmann, *Radiative and Collision-Induced Relaxation of Atomic States in the 2p<sup>5</sup> 3p Configuration of Neon*, *Phys. Rev.* **149** (1966) 38-51

- [105] G. Inoue, J. K. Ku, D. W. Setser, *Laser-induced fluorescence study of Xe( $5p^5 6p, 5p^5 6p', 5p^5 7p$  and  $5p^5 6d$ ) states in Ne and Ar: Radiative lifetimes and collisional deactivation rate constants*, J. Chem. Phys. **81** (1984) 5760-5774
- [106] J. W. Keto, R. E. Gleason Jr., G. K. Walters, *Production Mechanisms and Radiative Lifetimes of Argon and Xenon Molecules Emitting in the Ultraviolet*, Phys. Rev. Lett. **33** (1974) 1365-1368
- [107] T. J. McGee, J. Burris, W. S. Heaps, G. Miller, T. J. McIlrath, *Time-resolved laser-induced fluorescence of selected even-parity  $7p$  states of Xe I*, J. Opt. Soc. Am. B **2** (1985) 414-416
- [108] S. A. Kazantsev, V. P. Markov, S. L. Morozova, M. L. Chaika, *Alignment of xenon atoms in a gas discharge*, Opt. Spectrosc. **46** (1979) 619-622
- [109] M. B. Gorny, S. A. Kazantsev, B. G. Matisov, N. T. Polezhaevs, *Accurate lifetime measurements for the noble gases by the electron beam alignment technique*, Z. Phys. A **322** (1985) 25-36
- [110] J. Brossel, F. Bitter, *A new "Double Resonance" method for investigating atomic energy levels. Application to Hg  $^3P_1^*$* , Phys. Rev. **86** (1952) 308-316
- [111] M.B. Das, S. Karmakar, *Lifetime Measurements of Some Levels Belonging to the  $5p^5 nd$  ( $n = 6, 7, 8, 9$ ) Configuration of XeI*, Phys. Scr. **71** (2005) 170-171
- [112] LOT-Oriel GmbH & Co. KG, *About Bandpass Filters*, <http://www.lot-oriel.com/files/downloads/andover/en/standardbandpassfilters.pdf>
- [113] E. Jimenez, J. Campos, *Poblacion indirecta de algunos niveles de Xe I en la excitacion con electrones*, An. Fis. **72** (1976) 162-165 (auf spanisch)
- [114] D. C. Hanna, M. A. Yuratich, D. Cotter, *Nonlinear Optics of Free Atoms and Molecules*, Springer, Berlin (1979)
- [115] L. Allen, G. I. Peters, *Amplified Spontaneous Emission and External Signal Amplification in an Inverted Medium*, Phys. Rev. A **8** (1973) 2031-2047
- [116] K. Niemi, *Nachweis leichter Atome in reaktiven Plasmen mittels Zweiphotonen laserinduzierter Fluoreszenzspektroskopie unter besonderer Berücksichtigung der Absolutkalibrierung*, Cuvillier Verlag, Göttingen (2003) (auf deutsch)
- [117] V. A. Alekseev, D. W. Setser, *A pulsed source for Xe( $6s[3/2]_1$ ) and Xe( $6s'[1/2]_1$ ) resonance state atoms using two-photon driven amplified spontaneous emission from Xe( $6p$ ) and Xe ( $6p'$ ) states*, J. Chem. Phys. **105** (1996) 4613-4625
- [118] Y.-J. Shiu, M. A. Biondi, D. P. Sipler, *Dissociative recombination in xenon: Variation of the total rate coefficient and excited-state production with electron temperature*, Phys. Rev. A **15** (1977) 494-498

- [119] Y.-J. Shiu, M. A. Biondi, *Dissociative recombination in argon - Dependence of the total rate coefficient and excited-state production on electron temperature*, Phys. Rev. A **17** (1978) 868-872
- [120] H. Schomburg, H. F. Döbele, R. Rückle, *Generation of tunable narrow-bandwidth VUV-radiation by anti-stokes SRS in H<sub>2</sub>*, Appl. Phys B **30** (1983) 131-134
- [121] A. Goehlich, U. Czarnetzki, H. F. Döbele *Increased Efficiency of Vacuum Ultraviolet Generation by Stimulated Anti-Stokes Raman Scattering with Stokes Seeding*, Appl. Opt. **37** (1998) 8453-8459
- [122] M. Spaan, A. Goehlich, V. Schulz-von der Gathen, H. F. Döbele, *Experimental Tests of a Novel Raman Cell for Vacuum Ultraviolet Generation to Below Lyman- $\alpha$* , Appl. Opt. **33** (1994) 3865-3870
- [123] M. Röwekamp, A. Goehlich, H. F. Döbele, *Diagnostics of Sputtering Process of Carbon and Carbides by Laser-Induced Fluorescence Spectroscopy in the VUV at 166 nm*, Appl. Phys. A **54** (1992) 61-67
- [124] H. F. Döbele, M. Hörl, M. Röwekamp, B. Reimann, *Detection of atomic oxygen by laser-induced fluorescence spectroscopy at 130 nm*, Appl. Phys. B **39** (1986) 91-95
- [125] D. J. Bamford, R. P. Saxon, L. E. Jusinski, J. D. Buck, W. K. Bischel, *Two-photon excitation of atomic oxygen at 200.6, 192.5 and 194.2 nm: Absolute cross sections and collisional ionization rate constants*, Phys. Rev. A **37** (1988) 3259-3269
- [126] J. E. Hansen, W. Persson, *Revised Analysis of Singly Ionized Xenon, Xe II*, Phys. Scripta **36** (1987) 602-643
- [127] I. Martin, C. Hernando, C. Lavin, A. M. Velasco, *Transition probabilities for singly ionized xenon*, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf. **62** (1999) 71-83
- [128] F. H. M. Faisal, R. Wallenstein, H. Zacharias, *Three-photon excitation of xenon and carbon monoxide*, Phys. Rev. Lett. **39** (1977) 1138-1141
- [129] Y. Salamero, H. Asselman, A. Birot, H. Brunet, J. Galy, P. Millet, *Multiphoton excitation and frequency tripling in xenon*, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **16** (1983) 2971-2979
- [130] Y. Salamero, A. Birot, H. Brunet, J. N. Foulquier, J. Galy, P. Millet, M. Rouzaud, J. L. Teyssier, *Multiphoton excitation near the  $6s'[1/2]_1$  ( $^1P_1$ ) resonant state of xenon. Spectroscopic study and temporal analysis of the post-luminescence*, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **21** (1988) 2015-2025
- [131] N. Sewraj, J. P. Gardou, Y. Salamero, P. Millet, *Radiation trapping of the  $^3P_1 - ^1S_0$  resonant transitions of xenon and krypton in Xe-Kr, Xe-Ar, and Kr-Ar mixtures: Kinetic analysis and determination of the van der Waals broadening coefficients*, Phys. Rev. A **62** (2000) 052721/1-21

- [132] G. Grynberg, *Three-photon absorption: selection rules and line intensities*, Le Journal de Physique **40** (1979) 965-968
- [133] T. Holstein, *Imprisonment of resonance radiation in gases*, Phys. Rev. **72** (1947) 1212-1233
- [134] T. Holstein, *Imprisonment of resonance radiation in gases II*, Phys. Rev. **83** (1951) 1159-1168
- [135] J. J. Olivero, R. L. Longbothum, *Empirical fits to the Voigt line width: A brief review*, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf. **17** (1977) 233-236
- [136] E. B. Saloman, *Energy Levels and Observed Spectral Lines of Xenon, Xe I through Xe LIV*, J. Phys. Chem. Ref. Data, **33** (2004) 765-921
- [137] H. O. Di Rocco, D. I. Iriarte, J. A. Pomarico, *Lifetime and transition probabilities of Xe II: Experimental measurements and theoretical calculations*, Eur. Phys. J. D **10** (2000) 19-26
- [138] E. R. Peck, K. Reeder, *Dispersion of Air*, J. Opt. Soc. Am. **62** (1972) 958-962
- [139] S. Löhle, *Untersuchung von Wiedereintrittsplasmen mit Hilfe laserinduzierter Fluoreszenzmessungen*, Dissertation, Universität Stuttgart, Sierke Verlag, Göttingen (2006)
- [140] M. Feigl, *Experimentelle Untersuchung des Erosionsprozesses von SiC-haltigen Hitzeschutzmaterialien rückkehrfähiger Raumtransportsysteme mit Hilfe der Methode der laserinduzierten Fluoreszenz*, Dissertation, Universität Stuttgart (2005)
- [141] X. Xing, D. Charalambidis, E. Koutsourelaki, C. Fotakis, *Interference between nearly resonant three-photon excitation and third harmonic generation probed by the cancellation of four photon resonances*, **47** (1993) 2296-2304
- [142] I. P. Grant, *Methods in Computational Chemistry*, Ed. S. Wilson, Vol. 2, Plenum Press, New York, 1988
- [143] F. A. Parpia, C. Froese Fischer, I. P. Grant *GRASP92: a package for large-scale relativistic atomic structure calculations*, Comp. Phys. Comm. **94** (1996) 249-271
- [144] S. Fritzsche, C. Froese Fischer, *REOS - A program for relaxed-orbital oscillator strength calculations*, Comp. Phys. Comm. **99** (1997) 323-334
- [145] S. Fritzsche, C. Froese Fischer, C. Z. Dong, *REOS99: A revised program for transition probability calculations including relativistic, correlation, and relaxation effects*, Comp. Phys. Comm. **124** (2000) 340-352
- [146] L. D. Landau, E. M. Lifschitz, *Lehrbuch der theoretischen Physik IV Quantenelektrodynamik*, Verlag Harry Deutsch, Frankfurt am Main, 1991
- [147] W. Gornik, S. Kindt, E. Matthias, H. Rinneberg, D. Schmidt, *Off-Resonant E2 Transition Observed in Two-Photon Absorption in Xe I*, Phys. Rev. Lett. **45** (1980) 1941-1944

- [148] G. Herdrich, M. Auweter-Kurtz, H. L. Kurtz, *New Inductively Heated Plasma Source for Reentry Simulations*, J. Thermophys. Heat Tran. **14** (2000) 244-249
- [149] G. Herdrich, M. Auweter-Kurtz, H. L. Kurtz, T. Laux, M. Winter, *Operational Behavior of the Inductively Heated Plasma Source IPG3 for Entry Simulations*, J. Thermophys. Heat Tran. **16** (2002) 440-449
- [150] G. Herdrich, *Aufbau, Qualifikation und Charakterisierung einer induktiv beheizten Plasmawindkanalanlage zur Simulation atmosphärischer Eintrittsmanöver*, Dissertation, Shaker, Aachen, 2005
- [151] U. Brackmann, *Lambdachrome Laser Dyes*, 2. Auflage, Lambda Physik GmbH, Göttingen (1994)
- [152] R. B. Miles, W. R. Lempert, J. N. Forkey, *Laser Rayleigh scattering*, Meas. Sci. Technol. **12** (2001) R33-R51
- [153] Hamamatsu Corporation, *Photomultipliers R636-10, R758-10 Data Sheet*, [http://sales.hamamatsu.com/assets/pdf/parts\\_R/R636-10.pdf](http://sales.hamamatsu.com/assets/pdf/parts_R/R636-10.pdf)
- [154] Hamamatsu Corporation, *Photomultiplier Tubes - Basics and Applications*, [http://sales.hamamatsu.com/assets/applications/ETD/pmt\\_handbook\\_complete.pdf](http://sales.hamamatsu.com/assets/applications/ETD/pmt_handbook_complete.pdf)
- [155] H. G. Griem, *Plasma Spectroscopy*, McGraw-Hill, New York, 1964
- [156] R. W. P. McWhirter, *Plasma Diagnostic Techniques*, hrsg. R. H. Huddlestone und S. L. Leonard, Academic Press, New York, 1965
- [157] J. B. Boffard, C. Lin, C. A. DeJoseph, *Application of excitation cross sections to optical plasma diagnostics*, J. Phys. D **37** (2004) R143-R161
- [158] V. M. Donnelly, *Plasma electron temperatures and electron energy distributions measured by trace rare gases optical emission spectroscopy*, J. Phys. D **37** (2004) R217-R236
- [159] T. Czerwicz, D. B. Graves, *Mode transitions in low pressure rare gas cylindrical ICP discharge studied by optical emission spectroscopy*, J. Phys. D **37** (2004) 2827-2840
- [160] A. M. Daltrini, S. A. Moshkalev, M. J. R. Monteiro, E. Bessler, A. Kostyukov, M. Machida, *Mode transitions and hysteresis in inductively coupled plasmas*, J. Appl. Phys. **101** (2007) 073309/1-6
- [161] Y.-K. Lee, C.-W. Chung, *Ionization in inductively coupled argon plasmas studied by optical emission spectroscopy*, J. Appl. Phys. **109** (2011) 013306/1-6
- [162] M. Winter, *Emissionsspektroskopische Untersuchung der Umströmung von Probenkörpern in hochenthalpen Plasmaströmungen*, Dissertation, Universität Stuttgart (2007). Der in Kapitel 5.2 beschriebene Versuchsaufbau sowie die Aufnahme von den emissionspektroskopischen Daten wurden in Zusammenarbeit mit M. Winter realisiert.

- [163] R. O. Jung, J. B. Boffard, L. W. Anderson, C. C. Lin, *Electron-impact excitation cross sections from the xenon  $J=2$  metastable level*, Phys. Rev. A **72** (2005) 022723/1-9
- [164] R. O. Jung, J. B. Boffard, L. W. Anderson, C. C. Lin, *Excitation into  $5p^57p$  levels from the ground level and the  $J = 2$  metastable  $5p^56p$  levels of Xe*, Phys. Rev. A **80** (2009) 062708/1-13
- [165] J. T. Fons, C. C. Lin, *Measurement of the cross sections for electron-impact excitation into the  $5p^56p$  levels of Xe*, Phys. Rev. A **58** (1998) 4603-4615
- [166] C. Bundesmann, M. Tartz, F. Scholze, H. Neumann, H. Leiter, F. Scortecci, D. Feili, P.-E. Frigot, J. Gonzalez del Amo, *In-situ temperature, grid curvature, erosion, beam and plasma characterization of a gridded ion thruster RIT-22*, 31th International Electric Propulsion Conference, Ann Arbor, MI, September 20-24, IEPC-2009-160, 2009
- [167] N. Hishinuma, *Charge Transfer Cross Sections of  $^2P_{3/2}$  and  $^2P_{1/2}$  Xe Ions in Xe and  $O_2$* , J. Phys. Soc. Jpn. **32** (1972) 1452
- [168] J. A. M. van der Mullen, *Excitation equilibria in plasmas; a classification*, Phys. Rep. **191** (1990) 109-220, und Referenzen hierin
- [169] T. W. Reynolds, E. A. Richley, *Thermionic Emission from Caesium-Coated Electrostatic Ion Thruster Electrodes*, NASA LeRC, Cleveland, Ohio, Technical Report TN D-1879 (1963) 1-33
- [170] V. I. Lozgachev, *Distribution of Molecular Flow on a Surface During Evaporation in Vacuum*, Sov. Phys. Tech. Phys. **7** (1963) 736-744
- [171] M. A. Gigosos, S. Mar, C. Pérez, I. de la Rosa, *Experimental Stark widths and shifts and transition probabilities of several XeII lines*, Phys. Rev. E **49** (1994) 1575-1585
- [172] S. Zielinska, L. Bratasz, K. Dzierzega, *Absolute Transition Rates for Transitions from  $5p^4(^3P)6p$ ,  $^4P_{5/2}^\circ$ ,  $^4P_{3/2}^\circ$ ,  $^4D_{7/2}^\circ$  and  $^2D_{5/2}^\circ$  Levels of Xe II*, Phys. Scripta **66** (2002) 454-457
- [173] J. Reader, C. H. Corliss, W. L., Wiese, G. A. Martin, *Wavelength and Transition Probabilities for Atoms and Atomic Ions*, Natl. Bur. Stand. Ref. Data Ser., Natl. Bur. Stand. (U.S.) Circ. No. 68 (U.S. GPO, Washington, DC, 1980)
- [174] J. Sabbagh, N. Sadeghi, *Experimental Transition Probabilities of Some Xe(I) Lines*, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf. **17** (1977) 297-301
- [175] M. H. Miller, R. A. Roig, R. D. Bengtson, *Transition Probabilities of XeI and Xe II*, Phys. Rev. A **8** (1973) 480-486
- [176] P. Martin, J. A. Cabrera, J. Campos *Transition probabilities of  $6p - nd$  ( $n = 7, 8, 9$ ) lines of Xe I*, Phys. Rev. A **32** (1985) 3110-3113
- [177] C. Peraza, P. Martin, J. Campos *Transition probabilities of  $6p - ns$  ( $n = 7, 8, 9, 10, 11, 12, 13$ ) lines of Xe (I)*, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf. **46** (1991) 455-458



- [178] R. G. Karimov, V. M. Klimkin *XeI and XeII radiative lifetimes and transition probabilities*, Sov. Phys. J. **14** (1971) 308-311
- [179] M. B. Das, R. Bhattacharya *Experimental lifetimes of some levels belonging to the  $5p^46d$  configuration of Xe II*, Phys. Scripta **44** (1991) 145-147
- [180] K. Blagoev, N. Dimitrov, M. Drenska, *Radiative lifetimes of some excited Xe II states*, J. Phys. B: Atom. Mol. Phys. **17** (1984) 2189-2195
- [181] V. Fonseca, M. Ortiz, J. Campos, *Lifetime measurements of some levels of singly ionized xenon*, J. Opt. Soc. Am. **73** (1983) 1070-1073
- [182] die angegebenen Wellenzahlen sind nach den vom National Institute of Standards and Technology (NIST) online bereitgestellten Daten aktualisiert, siehe [http://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/levels\\_form.html](http://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/levels_form.html)
- [183] A. W. McCown, M. N. Ediger, J. G. Eden, *Resonantly enhanced, three-photon ionization of Xe: Optically pumped rare-gas laser*, Phys. Rev. A **26** (1982) 2281-2284
- [184] P. Moutard, P. Laporte, N. Damany, J. L. Subtil, H. Damany, *Pressure effect on  $6p - 6s$  ir decay in xenon after two-photon excitation*, Chem. Phys. Lett. **132** (1986) 521-525
- [185] X. Husson, J. Margerie, *Hanle effect of  $2p_3$ ,  $2p_6$ ,  $2p_7$ ,  $2p_8$ ,  $2p_9$  and  $3p_8$  levels of Xe I*, Opt. Commun. **5** (1972) 139-142

**Teile dieser Arbeit wurden während der Durchführung des Promotionsvorhabens an folgenden Stellen veröffentlicht:**

*In Fachzeitschriften*

- [186] C. Eichhorn, S. Löhle, S. Fasoulas, H. Leiter, S. Fritzsche, M. Auweter-Kurtz, *Two-photon laser induced fluorescence of neutral xenon in a thin xenon plasma*, J. Propul. Power **28** (2012) 1116-1120
- [187] C. Eichhorn, S. Fritzsche, S. Löhle, A. Knapp, M. Auweter-Kurtz, *Time-resolved fluorescence spectroscopy of two-photon laser-excited  $8p$ ,  $9p$ ,  $5f$  and  $6f$  levels in neutral xenon*, Phys. Rev. E **80** (2009) 026401/1-6

*In Konferenzbeiträgen*

- [188] C. Eichhorn, S. Löhle, S. Fasoulas, H. Leiter, M. Auweter-Kurtz, *Two-photon Spectroscopy on Neutral Xenon in the Plume of the Radio-Frequency Ion Thruster RIT-10*, 32nd International Electric Propulsion Conference, Wiesbaden, Germany, September 11-15, IEPC-2011-302, 2011

*Literaturverzeichnis*

- [189] C. Eichhorn, S. Löhle, S. Fasoulas, H. Leiter, M. Auweter-Kurtz, *Laser Induced Fluorescence Spectroscopy on Neutral Xenon: Two-Photon Cross Sections and Measurements in an Ion Thruster Plume*, 42nd Plasmadynamics and Lasers Conference, Honolulu, HI, 27-30 June, AIAA 2011-3460, 2011
- [190] C. Eichhorn, S. Löhle, A. Knapp, M. Auweter-Kurtz, *On Calibration of Laser-Induced Fluorescence Measurements in Plasma Flows Using Rare Gases*, 14th International Symposium on Applied Laser Techniques to Fluid Mechanics, Lisbon, Portugal, July 07-10, 2008
- [191] M. Winter, C. Eichhorn, M. Auweter-Kurtz, T. Pfrommer, *Status on Plasma Diagnostic Measurements on a RIT-10 Thruster*, 30th International Electric Propulsion Conference, Florence, Italy, September 17-20, IEPC-2007-173, 2007

# Danksagung

Es folgt an dieser Stelle noch ein sehr wichtiger Teil der Arbeit: Meinen aufrichtigen Dank auszusprechen an die Personen, welche mir durch ihre fachliche und freundschaftliche Unterstützung in vielen Momenten zur Seite gestanden haben.

Mein großer Dank geht zunächst an Frau Prof. Dr. Monika Auweter-Kurtz, für die Betreuung des hochinteressanten Promotionsthemas, ihre umfassende und uneingeschränkte Unterstützung während der Durchführung der Arbeit, sowie für die Bereitstellung der Möglichkeiten, im wissenschaftlichen Feld der elektrischen Raumfahrtantriebe tätig sein zu dürfen. Herrn Prof. Dr. Hans-Peter Röser möchte ich für die freundliche Aufnahme in sein Institut und für die Übernahme des Mitberichts sehr herzlich danken. Für die Übernahme des weiteren Mitberichts danke ich Herrn Prof. Dr. Stephan Fritzsche, ebenso wie für sein kontinuierliches fachliches Interesse während des Voranschreitens der Arbeit und die bereichernden physikalischen Gespräche.

Ich bedanke mich bei Stefan Löhle für eine große Zahl wissenschaftlicher Diskussionen, seine immer wertvollen Ratschläge, seine große Unterstützung und ausdauernde Geduld wenn manche Einsichten meinerseits auf sich warten ließen, und danke ihm genauso für manche notwendige Ermutigung. Mein weiterer Dank gilt allen meinen Kollegen für den wunderbar freundschaftlichen Umgang und die sehr angenehme Arbeitsatmosphäre, welche immer eine große Bereicherung für mich bedeuteten. Für nicht aufwiegbare Hilfe und Unterstützung - sei es im Labor, im Büro oder auf dem Nachhauseweg gewesen - und das allgegenwärtige freundschaftliche Miteinander in vielen Gesprächen möchte ich Sebastian Lein, Uwe Bauder, Andreas Knapp, und natürlich meinen Büromitbewohner(inne)n Anuscheh Nawaz, Ricarda Wernitz und Matthias Lau meinen Dank aussprechen. Mein Dank gilt Torsten Stindl und Dejan Petkow für vielfältige fachliche Diskussionen und ihre freundschaftliche Zuspache. Darüber hinaus möchte ich mich bei Andreas Steinbeck, Birk Wollenhaupt, Hannes Fulge, Georg Herdrich, Thomas Marynowski, Arianit Preci, Tony Schönherr und natürlich bei Dagmar Lauer, Hannah Böhrk und Constanze Syring für die langjährige freundschaftliche Begegnung, die vielen fachlichen Gespräche und ihre Hilfsbereitschaft bedanken. Ebenso danke ich Daniel Haag, Martin Eberhart, Ulf Fuchs, Adam Boxberger, Marcel Pfeiffer und Roland Gabrielli für viele offene Gespräche während meiner Zeit am Institut. Noch vielen weiteren Institutsmitarbeitern gebührt mein Dank, den ich an dieser Stelle hiermit aussprechen möchte.

Für die technische Hilfestellung zu meinen Versuchen im Labor möchte ich mich weiterhin bei Manfred Hartling und Edgar Schreiber für ihre Unterstützung, sowie allen Werkstattmitarbeitern bedanken. Bei Michael Winter bedanke ich mich für die Installation des RIT-10 Triebwerks in den Vakuumteststand, für seinen fachlichen Beistand sowie die Zusammenarbeit beim

## *Literaturverzeichnis*

Betrieb des Triebwerks und bei der Aufnahme der emissionsspektroskopischen Daten. Mein weiterer Dank gilt Hans Leiter von EADS Astrium, der die Leihgabe des Triebwerks ermöglichte und als Ansprechpartner unermüdlich zur Verfügung stand. Bernhard Roth vom IPF danke ich für die freundliche Erfüllung häufig kurzfristiger Leihwünsche optischer Komponenten, sowie für den Zugang zu Meßgeräten der Filtertransmissionsanalyse.

Die personelle, finanzielle Unterstützung während weiter Zeiträume der Promotion wurde durch ein Stipendium des Evangelischen Studienwerks Villigst ermöglicht. Für das mir entgegengebrachte Vertrauen möchte ich mich sehr herzlich, insbesondere bei Herrn Prof. Dr. Eberhard Müller, als Ansprechpartner mit einem immer offenen Ohr für all meine Belange, bedanken.

Schließlich möchte ich von Herzen meinen Freunden und meinen Eltern und meiner Familie danken, für ihren immerwährenden Beistand, für ihre Geduld und Ermutigung, die sie mir besonders während mancher schwieriger und zeitaufwendiger Abschnitte dieser Arbeit entgegengebracht haben.

## Lebenslauf von Christoph Eichhorn

geboren am 28.01.1978 in Kronach

### Ausbildung

1984–1988	Hartranft-Grundschule, Freudenstadt
1988–1992	Kepler-Gymnasium, Freudenstadt
1992–1997	Paul-Pfinzing-Gymnasium, Hersbruck
06/1997	Abitur, Paul-Pfinzing Gymnasium, Hersbruck
11/1998–09/2001	Studium der Physik an der Julius-Maximilians-Universität, Würzburg
09/2001–03/2005	Studium der Physik an der Ruprecht-Karls-Universität, Heidelberg
01/2005	Diplom in Physik

### Berufliche Tätigkeit

10/2003–03/2004	Wissenschaftliche Hilfskraft am Institut für Theoretische Physik, Ruprecht-Karls-Universität, Heidelberg
06/2005–09/2012	Wissenschaftlicher Mitarbeiter/Doktorand am Institut für Raumfahrtssysteme, Universität Stuttgart
seit 09/2012	Wissenschaftlicher Mitarbeiter am Leibniz-Institut für Oberflächenmodifizierung, Leipzig

### Stipendium

07/2006–06/2007	Promotionsstipendiat des Evangelischen
01/2008–01/2010	Studienwerks Villigst

