



Leistungsmodulierte großvolumige  
mikrowellenangeregte Plasmen:  
Eine experimentelle und theoretische  
Untersuchung

Vom Fachbereich Elektrotechnik  
der Bergischen Universität - Gesamthochschule Wuppertal  
genehmigte Dissertation

von

Diplom-Ingenieur

Stephan Behle

Wuppertal 1999



---

# Inhaltsverzeichnis

<b>Verzeichnis der verwendeten Symbole</b>	<b>iv</b>
<b>Abkürzungsverzeichnis</b>	<b>viii</b>
<b>Abbildungsverzeichnis</b>	<b>ix</b>
<b>Tabellenverzeichnis</b>	<b>xiii</b>
<b>Kurzfassung</b>	<b>xiv</b>
<b>Summary</b>	<b>xv</b>
<b>1 Einleitung</b>	<b>1</b>
1.1 Motivation . . . . .	1
1.2 Gepulste Plasmen. . . . .	2
<b>2 Grundlagen</b>	<b>5</b>
2.1 Plasma - Der vierte Zustand der Materie. . . . .	5
2.1.1 Plasmazustand. . . . .	6
2.1.2 Quasineutralität . . . . .	7
2.1.3 Plasmafrequenz . . . . .	8
2.2 Niedertemperatur-, Nichtgleichgewichtsplasmen . . . . .	9
2.2.1 Geschwindigkeits- und Energieverteilungsfunktion . . . . .	11
2.2.2 Kollisionsprozesse. . . . .	13
2.2.3 Kontinuitätsgleichungen . . . . .	17
2.2.4 Teilchentransport im Plasma. . . . .	18
2.3 Mikrowellenentladung. . . . .	27
2.3.1 Zündphase . . . . .	27
2.3.2 „Global Model“ stationärer Mikrowellenentladungen . . . . .	29
2.4 Theorie leistungsmodulierter Mikrowellenplasmen . . . . .	31
2.4.1 „Global Model“ gepulster Plasmen. . . . .	32
<b>3 Diagnostik gepulster großvolumiger Plasmen</b>	<b>39</b>
3.1 Elektrische Verfahren . . . . .	41
3.1.1 LANGMUIR-Sonde . . . . .	42
3.1.2 Einzelsondenkennlinie . . . . .	42
3.1.3 DRUYVESTYEN-Methode. . . . .	45
3.1.4 Zeitaufgelöste LANGMUIR-Sondenmessungen . . . . .	47

3.1.5	Mikrowelleninterferometrie . . . . .	50
3.2	Optische Verfahren . . . . .	53
3.2.6	Absorption und Emission . . . . .	53
3.2.7	Strahlungstransportgleichung „optisch dünner“ Plasmen . . . . .	54
3.2.8	Planare optische Emissionspektroskopie (POES) . . . . .	56
3.2.9	Detektion der Emissionsintensität großvolumiger Plasmen mittels POES . . . . .	57
3.3	Laserinduzierte Fluoreszenz . . . . .	58
3.3.1	Funktionsprinzip der laserinduzierten Fluoreszenz . . . . .	59
3.3.2	Zweiphotonen laserinduzierte Fluoreszenz . . . . .	60
3.3.3	Bestimmung absoluter Grundzustandsdichte . . . . .	62
3.3.4	Zeitaufgelöste laserinduzierte Fluoreszenz . . . . .	65
<b>4</b>	<b>Experimenteller Aufbau</b>	<b>66</b>
4.1	Versuchsanlage . . . . .	67
4.1.1	Mikrowellenplasmaquellen nach dem Schlitzantennenprinzip . . . . .	67
4.1.2	Mikrowellenversorgung . . . . .	70
4.1.3	Vakuumsystem und Gasversorgung . . . . .	71
4.2	Diagnostik . . . . .	71
4.2.1	Zeitaufgelöste Bestimmung der reflektierten Mikrowellenleistung . . . . .	71
4.2.2	Langmuir-Sondensystem . . . . .	72
4.2.3	Mikrowelleninterferometer . . . . .	73
4.2.4	Planare optische Emissionspektroskopie . . . . .	76
4.2.5	POES-Detektion . . . . .	78
4.2.6	Aufbau der LIF-Diagnostik . . . . .	82
<b>5</b>	<b>Experimentelle Ergebnisse</b>	<b>85</b>
5.1	Zeit- und ortsaufgelöste Emissionsspektroskopie an gepulsten Plasmen . . . . .	85
5.1.1	Argonatome und Argonionen . . . . .	86
5.1.2	Angeregter atomarer Sauerstoff . . . . .	95
5.1.3	Einfluß des Tastverhältnisses auf die zeitabhängige Emissionsintensität eines gepulsten Plasmas . . . . .	99
5.1.4	Zusammenfassung der Ergebnisse der POES-Messungen an gepulsten Plasmen . . . . .	101
5.2	Zeit- und ortsaufgelöste Elektronendichteverteilung . . . . .	103
5.2.1	Argonplasma . . . . .	104
5.2.2	Sauerstoffplasma . . . . .	115
5.2.3	Elektronendichteverlauf in gepulsten großvolumigen Mikrowellenplasmen . . . . .	118
5.3	Zeit- und ortsaufgelöste Elektronentemperaturverteilung . . . . .	120
5.3.1	Argonplasma . . . . .	120
5.3.2	Sauerstoffplasmen . . . . .	123

5.3.3 Elektronentemperaturverlauf in gepulsten großvolumigen Mikrowellenplasmen . . . . .	124
5.4 Zeit- und orts aufgelöste Neutralteilchendichte in gepulsten Plasmen . . . . .	126
5.4.1 Anstiegs- und Abfallszeit atomaren Sauerstoffs . . . . .	126
<b>6 „Global Model“ stoßbestimmter diffusiver Plasmen</b>	<b>132</b>
6.1 Stoßbestimmte diffusive Plasmen . . . . .	132
6.2 Ladungsträgerverlustfrequenz in stoßbestimmten diffusiven Plasmen . . . . .	134
6.2.1 Bestimmung der Elektronenverlustfrequenz im stoßbestimmten diffusiven Regime . . . . .	135
6.2.2 Bestimmung der ambipolaren Diffusionskonstanten aus dem zeitlichen Abfall der Elektronendichte . . . . .	138
6.3 Bestimmung der frequenzabhängigen mittleren Elektronendichte . . . . .	139
6.3.1 Bestimmung des frequenzabhängigen mittleren Elektronendichte in gepulsten molekularen Plasmen . . . . .	143
6.4 Bestimmung des zeitabhängigen Elektronentemperaturverlaufs. . . . .	144
6.5 Frequenzabhängiger Dichteverlauf neutraler Radikale am Beispiel des atomaren Sauerstoffs . . . . .	146
<b>7 Schlußbetrachtung</b>	<b>149</b>
7.1 Zusammenfassung . . . . .	149
7.2 Ausblick. . . . .	153
<b>Anhang</b>	<b>154</b>
A.1 Wechselwirkungsquerschnitte . . . . .	154
A.2 CCD-Kamerasystem . . . . .	156
A.3 Bestimmung der Ladungsträgerverteilung im cw Betrieb. . . . .	157
A.3.1 Zeitabhängiges Elektronendichteprofil entlang der Längsachse. . . . .	161
A.4 Herleitung des „Global Model“ für den feldfreien Bereich einer offenen Zylinderstruktur . . . . .	163
A.4.1 Globales Ladungsträgergleichgewicht . . . . .	163
A.4.2 Globale Leistungsbilanz . . . . .	166
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>169</b>

## Verzeichnis der verwendeten Symbole

$a$	Beschleunigung
$A$	Fläche
$A_{kl}$	EINSTEIN-Koeffizient
$A_s$	Sondenfläche
$B, B_0$	Magnetische Flußdichte
$c$	Lichtgeschwindigkeit
$C$	Konstante
$C_r$	Randschichtkapazität
$C_s$	Streukapazität
$D$	Diffusionskonstante
$D_a$	Ambipolare Diffusionskonstante
$D_o$	Diffusionskonstante des atomaren Sauerstoffs
$D_{et}$	Kalibrationskonstante der Detektionsoptik
$D_p$	Plasmadurchmesser
$e$	Elementarladung
$E$	Elektrischefeldstärke/Energie
$E_z$	Zündfeldstärke
$f$	Frequenz
$f(\vec{r}, \vec{v}, t)$	Geschwindigkeitsverteilungsfunktion
$f(w)$	Elektronenenergiewahrscheinlichkeitsfunktion
$F(w)$	Elektronenenergieverteilungsfunktion
$F$	Kraft
$g$	Verstärkungsfaktor
$h$	PLANCKScheswirkungsquantum
$H$	Magnetische Feldstärke
$I$	Intensität
$I(t)$	Zeitabhängige Intensität
$I_\nu$	Spektrale Intensität
$I_s$	Sondenstrom
$J_{i,sat}$	Ionensättigungsstromdichte
$k$	BOLTZMANNkonstante
$k_c$	Quenching-Konstante
$k_d(v)$	Detektionskonstante
$K$	Ratenkonstante
$K_{diss}$	Dissoziationsratenkonstante
$K_{ex}$	Anregungsratenkonstante
$K_{iz}$	Ionisationsratenkonstante
$L$	Länge
$l$	Länge der aktiven Zone
$m$	Masse
$m_e$	Elektronenmasse

---

$m_i$	Ionenmasse
$M$	Atommassenzahl
$n$	Teilchendichte
$n_c$	Kritische Dichte
$n_e$	Elektronendichte
$n_{eo}$	Elektronendichte im Zentrum der Resonatorebene der SLAN
$n_{ed}$	Elektronendichte zu Beginn der Downstream Zone
$n_{e\infty}$	Elektronendichte in der Gleichgewichtsphase
$N_e$	Sichtlinienintegrierte Elektronendichte
$n_e(t)$	Zeitabhängige Elektronendichte
$n_{e,cw}$	Äquivalenter cw Dichtewert
$n_{eff}$	Effektiver Brechungsindex
$n_n$	Neutralteilchendichte
$n_{i+}$	Dichte positiver Ionen
$n_{i-}$	Dichte negativer Ionen
$n_o$	Atomare Sauerstoffdichte
$n_o(t)$	Zeitabhängige atomare Sauerstoffdichte
$\bar{n}_o$	Zeitlich gemittelte atomare Sauerstoffdichte
$n_s$	Randschichtdichte
$p$	Druck
$P$	Leistung
$P_{MW}(t)$	Zeitabhängige Mikrowellenleistung
$P_{ref}(t)$	Zeitabhängige reflektierte Mikrowellenleistung
$P_{abs}(t)$	Zeitabhängige absorbierte Mikrowellenleistung
$\bar{P}_{MW}$	Mikrowellenleistung
$\bar{P}_{Mw}$	Zeitlich gemittelte Mikrowellenleistung
$P_a$	Aufgenommene Leistung
$\bar{P}_{abs}$	Absorbierte Mikrowellenleistung
$\bar{P}_{abs}$	Zeitlich gemittelte absorbierte Mikrowellenleistung
$P_{max}$	Mikrowellenpulsleistung
$P_{diss}$	Produktionsrate der dissoziativen Anregung
$P_{dir}$	Produktionsrate der direkten Anregung
$P_{ref}$	Reflektierte Mikrowellenleistung
$P_v$	Leistungsverluste
$q$	Ladung
$Q$	Quenchingratenkonstante
$r, R$	Radius
$r_{ce}$	Mittlerer Elektronengyrationsradius
$r_{ci}$	Mittlerer Ionengyrationsradius
$r_p$	Plasmaradius
$r_s$	Randschichtdicke
$r_{sh}$	Radius des Sondenhalters
$r_{sp}$	Radius der Sondenelektrode
$R_s$	Sondenmeßwiderstand
$t_{exp}$	Gesamtbelichtungszeit
$t_g$	Öffnungszeit des elektroischen Shutters

---

$t_{on}$	Leistungspulsdauer
$t_{off}$	Leistungspulspause
$T_e$	Elektronentemperatur
$T_{e\infty}$	Elektronentemperatur in der Gleichgewichtsphase
$T_e(t)$	Zeitabhängige Elektronentemperatur
$T_i$	Ionentemperatur
$T_n$	Neutralteilchentemperatur
$t$	Zeit
$T$	Periodendauer/Temperatur
$u_B$	BOHM-Geschwindigkeit
$U_f$	Floatingpotential
$U_p$	Plasmapotential
$U_s$	Sondenpotential
$v$	Geschwindigkeit
$\bar{v}_i$	Mittlere thermische Ionengeschwindigkeit
$v_s$	Strömungsgeschwindigkeit
$\bar{v}$	Mittlere thermische Geschwindigkeit
$v_D$	Driftgeschwindigkeit
$V_p$	Plasmavolumen
$w, W$	Energie
$W_{iz}$	Ionisationsenergie
$w_0$	Strahltaile des Laserstrahls im Fokus
$W_{lk}$	Anregungsenergie
$Z_M$	Anzahl der Molekülfragmente
$Z_\alpha$	Ladungszahl
$\beta$	Phasenkonstante
$\beta_0$	Phasenkonstante des Vakuums
$\beta_p$	Phasenkonstante des Plasmas
$\Gamma$	Partikelfluß
$\Gamma_e$	Elektronenfluß
$\Gamma_{i+}$	Fluß positiver Ionen
$\Delta\Phi_{min}$	Minimale Phasenwinkeländerung
$\epsilon_0$	Dielektrizitätskonstante
$\epsilon_c$	Energieverlust pro erzeugtem Elektronen-Ionenpaar
$\epsilon_{el}$	Energieverlust pro elastischen Stoß
$\epsilon_{ex}$	Energieverlust pro Anregungsstoß
$\epsilon_{iz}$	Energieverlust pro Ionisationsstoß
$\epsilon_T$	Gesamter Energieverlust
$\epsilon_v(v)$	Emissionskoeffizienten
$\eta$	Ionisationsgrad
$\kappa$	Geometriekoeffizient
$\lambda$	Mittlere freie Weglänge/Wellenlänge
$\lambda_0$	Zentrallwellenlänge
$\lambda_D$	DEBYE-Länge



---

$\lambda_e$	Mittlere freie Weglänge der Elektronen
$\lambda_i$	Mittlere freie Weglänge der Ionen
$\lambda_{MWI}$	Wellenlänge des Mikrowelleninterferometers
$\Lambda$	Diffusionslänge
$\Lambda_{eff}$	Effektive Diffusionslänge
$\Lambda_\infty$	Diffusionslänge des long discharge limit
$\mu$	Beweglichkeit
$\mu_o$	Permeabilitätskonstante
$\nu$	Anregungsfrequenz/Stoßfrequenz
$\nu_{at}$	Elektronenanlagerungsfrequenz
$\nu_{iz}$	Ionisationsfrequenz
$\nu_{rise}$	Dissoziationsfrequenz
$\nu_m$	Impulsübertragungsfrequenz, elastische Kollisionsfrequenz
$\nu_{loss}$	Elektronenverlustfrequenz
$\nu_o$	Verlustfrequenz des atomaren Sauerstoffs
$\sigma$	Wirkungsquerschnitt
$\sigma_i$	Inelastischer Wirkungsquerschnitt
$\sigma_m$	Impulsübertragungsquerschnitt
$\sigma_t$	Streuquerschnitt
$\sigma_{tot}$	Totale Streuquerschnitt
$\sigma_0^{(2)}$	Fundamentale Wirkungsquerschnitt der zwei Photonenanregung
$\tau$	Mittlere Stoßzeit
$\tau_{ex}$	Mittlere Lebensdauer eines spontanen Überganges
$\tau_{MW}$	Anstiegszeit der absorbierten Mikrowellenleistung
$\tau_r$	Anstiegszeit
$\tau_s$	Abfallzeitkonstante der Sondenmessanordnung
$\tau_d$	Abfallszeit
$\Phi$	Phasenwinkel
$\chi'_v$	Effektiver Absorptionskoeffizient des Plasmas
$\chi_{01}$	Erste Nullstelle der Besselfunktion erster Gattung nullter Ordnung (2,405)
$\omega$	Kreisfrequenz
$\omega_p$	Plasmafrequenz
$\omega_{pe}$	Elektronenplasmafrequenz
$\omega_{pi}$	Ionenplasmafrequenz
$\Omega$	Raumwinkel
$\left(\frac{\partial \sigma_R}{\partial \Omega}\right)$	Differentieller Wirkungsquerschnitt der RAMANstreuung

## Abkürzungsverzeichnis

BBO	Bariumborat
CCD	engl. <b>charged coupled device</b>
ICCD	engl. <b>intensified charged coupled device</b>
CW	Dauerstrichbetrieb (engl. <b>continous wave</b> )
ECR	Elektronenzyklotronresonanz (engl. <b>electron cyclotron resonance</b> )
EEVF	Elektronenenergieverteilungsfunktion
EPPF	Elektronenenergieverteilungsfunktion (engl. <b>electron energy probability function</b> )
FWHM	Halbwertsbreite (engl. <b>full width at half maximum</b> )
GVF	Geschwindigkeitsverteilungsfunktion
HF	Hochfrequenz
LIF	Laserinduzierte Fluoreszenz
2-P LIF	Zwei-Photonen laserinduzierte Fluoreszenz
MCP	Mikrokanalplatte (engl. <b>micro channel plate</b> )
MW	Mikrowelle
MWI	Mikrowelleninterferometer
OES	Optische Emissionsspektroskopie
POES	Planare optische Emissionsspektroskopie
UV	Ultraviolett

## Abbildungsverzeichnis

2.1:	Typische Plasmaerscheinungsformen in Abhängigkeit von Elektronendichte und Elektronentemperatur. . . . .	7
2.2:	Mittlere freie Weglänge von Argonionen ( $\text{Ar}^+$ ) in Argon ( $\text{Ar}$ ) . . . . .	15
2.3:	Typische Wechselwirkungszeiten und Lebensdauern angeregter Zustände . . . . .	17
2.4:	Radiales, normiertes Elektronendichteprofil einer zylinderförmigen Entladungsgeometrie. . . . .	23
2.5:	Idealisierte Darstellung eines beidseitig offenen zylinderförmigen Entladungsgefäßes . . . . .	24
2.6:	Einfluß des Geometriefaktors $\kappa$ auf das Verhältnis $\Lambda_\infty/\Lambda_{eff}$ . . . . .	26
2.7:	Normierte Elektronendichteverteilung in Abhängigkeit der auf die Länge der aktiven Zone $l$ normierten Gesamtlänge einer offenen Zylindergeometrie. . . . .	27
2.8:	Pulsfrequenz- und druckabhängige Zündfeldstärke für gepulste mikrowellenangeregte Luft . . . . .	29
2.9:	Energieverlust pro generiertem Elektronen-Ionenpaar, $\epsilon_c$ als Funktion der Elektronentemperatur . . . . .	31
2.10:	Ergebnisse des „Global Model“ zum zeitabhängigen Verlauf der Elektronendichte $n_e(t)$ , der Elektronentemperatur $T_e(t)$ und der Dichte der angeregten Argonatomzustände 4s und 4p in einem gepulsten stoßfreien Argonplasma . . . . .	36
2.11:	Normierte, zeitlich gemittelte Elektronendichte in Abhängigkeit von der Pulsfrequenz . . . . .	38
3.1:	Grundlegender Zusammenhang zwischen „äußeren“ und „inneren“ Plasmametern . . . . .	39
3.2:	Prinzipieller Meßaufbau LANGMUIR-Sonde. Typischer Strom-Spannungskennlinien Verlauf einer Langmuir-Sonden in Abhängigkeit von der Sondengeometrie . . . . .	43
3.3:	Magnetfeldeinfluß auf den Strom-Spannungskennlinien Verlauf einer LANGMUIR-Sonde . . . . .	45
3.4:	Mittlere freie Weglänge der Elektronen $\lambda_e$ in Argon in Abhängigkeit von der Elektronentemperatur . . . . .	49
3.5:	Prinzipieller Meßaufbau eines Mikrowelleninterferometers. . . . .	50
3.6:	Elektronendichte $n_{e0}$ im Zentrum der Meßstrecke eines 35 GHz MWIs in Abhängigkeit von der gemessenen Phasenverschiebung für unterschiedliche Elektronendichteverteilungen entlang des MWI Meßpfades. . . . .	52

3.7:	Funktionsprinzip der planaren optischen Emissionsspektroskopie POES. . . . .	57
3.8:	Funktionsprinzip der laserinduzierten Fluoreszenz. . . . .	59
3.9:	Zweiphotonen laserinduzierte Fluoreszenz am atomaren Sauerstoff: beteiligte Energieniveaus . . . . .	61
3.10:	Relative Besetzungsdichten der Energieniveaus des Sauerstoffatoms in Abhängigkeit von der Laserstrahlintensität . . . . .	64
4.1:	Übersicht über den Versuchsaufbau. . . . .	67
4.2:	Schematischer Aufbau einer Plasmaquelle vom Typ SLAN. . . . .	68
4.3:	Axialer Schnitt durch die <i>Downstream</i> version der SLAN-I. . . . .	69
4.4:	Prinzipieller Meßaufbau der zeitaufgelösten LANGMUIR-Sondenmessung. . . . .	72
4.5:	Schematischer Aufbau der MWI-Meßanordnung. . . . .	74
4.6:	Schematischer Aufbau und zeitlicher Ablauf der POES-Detektion. . . . .	77
4.7:	Druckabhängige Emissionsintensitäten zwischen 476-490 nm in einem cw Argonplasma. . . . .	80
4.8:	Druckabhängige Emissionsintensitäten zwischen 788-800 nm in einem cw Argonplasma. . . . .	80
4.9:	Längsschnitt durch den Versuchsaufbau. . . . .	81
4.10:	Schematischer Aufbau des zeitaufgelösten LIF-Diagnostiksystems . . . . .	84
5.1:	Orts- und zeitabhängige Ar I und Ar II Emissionsintensität im Verlauf einer Pulsperiode eines gepulsten Argonplasmas . . . . .	90
5.2:	Zeitverlauf der räumlich gemittelten Ar I und Ar II Emissionsintensität und der reflektierten Leistung $p_{ref}(t)$ während der Zündphase eines Argonplasmas. . . . .	93
5.3:	Zeitabhängige räumlich gemittelte Ar I und Ar II Emissionsintensität im Verlauf einer Pulsperiode eines mit 200 Hz gepulsten Argonplasmas. . . . .	94
5.4:	Entwicklung der orts- und zeitabhängigen O I Emissionsintensität, von der Zündphase bis zum Erreichen der Gleichgewichtsphase eines gepulsten Sauerstoffplasmas. . . . .	97
5.5:	Zeitabhängige räumlich gemittelte O I Emissionsintensität im Verlauf der Zündphase eines mit 200 Hz gepulsten Sauerstoffplasmas . . . . .	98
5.6:	Zeitabhängige räumlich gemittelte O I Emission im Verlauf einer Pulsperiode eines mit 200 Hz gepulsten Sauerstoffplasmas . . . . .	99
5.7:	Zeitabhängige räumlich gemittelte O I Emissionsintensität, im Verlauf einer Pulsperiode eines gepulsten ECR-Sauerstoffplasmas . . . . .	100
5.8:	Zeitabhängige räumlich gemittelte O I Emissionsintensität im Verlauf einer Pulsperiode eines gepulsten ECR-Sauerstoffplasmas . . . . .	100
5.9:	Prinzipielle Ausbreitung der Plasmaemission während der Zündphase eines gepulsten Plasmas . . . . .	102

5.10:	Normierter zeitlicher Elektronendichteverlauf in einem gepulsten Argonplasma . . . .	104
5.11:	Pulsfrequenzabhängiger zeitlicher Elektronendichteverlauf $n_e(t)$ in gepulsten Argonplasma . . . . .	107
5.12:	Pulsfrequenzabhängiger zeitlicher Elektronendichteverlauf $n_e(t)$ in gepulsten Argonplasma . . . . .	109
5.13:	Vergleich des zeitlichen Elektronendichteverlaufs $n_e(t)$ mit dem zeitlichen Verlauf der absorbierten Leistung $p_{abs}(t)$ in einem gepulsten Argonplasma . . . . .	111
5.14:	Einfluß des Tastverhältnisses auf den zeitlichen Elektronendichteverlauf $n_e(t)$ in einem gepulsten Plasma . . . . .	112
5.15:	Pulsfrequenz- und tastverhältnisabhängige zeitlich gemittelte Elektronendichte. . . .	113
5.16:	Frequenzabhängiger zeitlicher Verlauf der normierten zeitlich gemittelten Elektronendichte in gepulsten Argonplasma in Abhängigkeit von Druck, Leistung, Tastverhältnis . . . . .	114
5.17:	Pulsfrequenzabhängiger zeitlicher Elektronendichteverlauf $n_e(t)$ in gepulsten Sauerstoffplasma . . . . .	117
5.18:	Pulsfrequenzabhängiger Verlauf der zeitlich gemittelten Elektronendichte in gepulsten Sauerstoffplasma . . . . .	118
5.19:	Zeitlicher Elektronendichteverlauf $n_e(t)$ in einem mit 200 Hz gepulsten Argonplasma . . . . .	119
5.20:	Zeitlicher Elektronentemperaturverlauf $kT_e(t)$ in einem gepulsten Argonplasma . . . . .	121
5.21:	Pulsfrequenzabhängiger zeitlicher Elektronentemperaturverlauf $kT_e(t)$ in einem gepulsten Argonplasma . . . . .	123
5.22:	Pulsfrequenzabhängiger zeitlicher Elektronentemperaturverlauf $kT_e(t)$ in einem mit 500 Hz gepulsten Sauerstoffplasma . . . . .	123
5.23:	Pulsfrequenzabhängiger zeitlicher Elektronentemperaturverlauf $kT_e(t)$ in einem mit 10 Hz gepulsten Sauerstoffplasma . . . . .	124
5.24:	Pulsfrequenzabhängiger zeitlicher Verlauf der absoluten atomaren Sauerstoff $n_o(t)$ und Elektronendichte $n_e(t)$ in einem gepulsten Sauerstoffplasma . . . . .	127
5.25:	Elektronentemperaturabhängige Produktionsrate der dissoziativen Anregung des Sauerstoffmoleküls im Vergleich zur Produktionsrate der direkten Anregung des Sauerstoffatoms . . . . .	131
6.1:	Vergleich zwischen der gemessenen Elektronentemperatur im eingeschwingenen Zustand einer gepulsten Entladung und im äquivalenten cw-Fall. . . . .	137
6.2:	Zeitlicher Elektronendichteverlauf $n_e(t)$ in einem mit 200 Hz gepulsten Argonplasma . . . . .	138
6.3:	Normierte zeitlich gemittelte Elektronendichte in Abhängigkeit von Pulsfrequenz und Tastverhältnis nach Gl. 2.60 . . . . .	140

---

6.4:	Vergleich zwischen der experimentell und theoretisch bestimmten pulsfrequenzabhängigen normierten zeitlich gemittelten Elektronendichte . . . . .	141
6.5:	Pulsfrequenz- und Elektronenverlustfrequenzabhängige normierte zeitlich gemittelte Elektronendichte nach Gl. 2.60 . . . . .	142
A.1:	Energieabhängige elastische/inelastische Wirkungsquerschnitte für Ar . . . . .	154
A.2:	Ratenkonstanten $K(kT_e)$ für elastische und inelastische Argon-Elektronenstreuung . . . . .	155
A.3:	Verstärkungsfaktorabhängiger Intensitätsverlauf der ICCD-Kamera bei einer Wellenlänge von 480,6 nm . . . . .	156
A.4:	Verstärkungsfaktorabhängiger Intensitätsverlauf der ICCD-Kamera bei einer Wellenlänge von 795 nm . . . . .	157
A.5:	Leistungsabhängiges axiales und radiales Elektronendichteprofil $n_e(z, r)$ . . . . .	159
A.6:	Druck- und leistungsabhängiges Elektronendichteprofil entlang der Längsachse der Versuchsanlage . . . . .	160
A.7:	Leistungs- und druckabhängiges radiales Elektronendichteprofil $n_e(z = 30 \text{ cm})$ . . . . .	161
A.8:	Pulsfrequenzabhängiger normierter zeitaufgelöster Elektronendichteverlauf $n_e(z, r = 0 \text{ cm})$ entlang der Längsachse der Entladung . . . . .	162

---

## Tabellenverzeichnis

2.1:	Die häufigsten Erzeugungs- und Verlustprozesse in Niederdruckplasmen. . . . .	13
3.1:	Methoden der Plasmadiagnostik. . . . .	40
3.2:	Diagnostikmethoden zur Bestimmung des zeitabhängigen Elektronendichte und -temperaturverlaufs . . . . .	41
4.1:	Daten der durch POES untersuchten spontanen Emissionsübergänge . . . . .	81
5.1:	Anregungsprozesse der untersuchten und Ar I und Ar II-Emission . . . . .	86
5.2:	Anregungsprozesse des atomaren Sauerstoffübergangs $3p^3P \rightarrow 3s^3S^0$ . . . . .	130
6.1:	Einfluß von Geometrie und Druck auf die Höhe der Elektronenverlustfrequenz und das frequenzabhängige Maximum der mittleren Elektronendichte . . . . .	143
6.2:	Pulsregimeabhängiges Verhalten der Elektronendichte $n_e(t)$ und der atomaren Sauerstoffdichte $n_o(t)$ . . . . .	148
A.1:	Ionisationsenergien von Argon und molekularem/atomarem Sauerstoff. . . . .	154

## Kurzfassung

Gegenstand dieser Dissertation ist die Untersuchung leistungsmodulierter (gepulster) großvolumiger mikrowellenangeregter (2,45 GHz) Argon- und Sauerstoffplasmen. Die Untersuchungen sind in einer Mikrowellenplasmaquelle vom Schlitzantennentyp (SLAN) durchgeführt worden. Durch den kombinierten Einsatz von LANGMUIR-Sonden, Mikrowelleninterferometrie und planarer optischer Emissionsspektroskopie (POES) wurde das raum- und zeitaufgelöste Verhalten der wesentlichen Plasmaparameter Elektronendichte  $n_e(t)$  und -temperatur  $T_e(t)$  für Pulsfrequenzen zwischen 0,01-20 kHz ermittelt. Zusätzlich wurde die absolute atomare Sauerstoffdichte mittels zeitaufgelöster Zweiphotonen laserinduzierter Fluoreszenz (TALIF) bestimmt. Aus der POES-Untersuchung angeregter Argon-, Argonionen- und atomarer Sauerstoffzustände ließ sich die qualitative orts- und zeitaufgelöste Elektronentemperatur ableiten. Desweiteren zeigen die POES Aufnahmen, daß in der SLAN der Energieeintrag in das Plasma am Rand stattfindet und zwar in den Bereichen der höchsten elektrischen Feldstärke, zwischen den Schlitzantennen. Die Anstiegs- und Abfallszeit der Elektronendichte und -temperatur sind unabhängig von der gewählten Pulsfrequenz. Die Anstiegs- und Abfallszeiten der Elektronendichte liegt im ms Bereich, während Anstiegs- und Abfallszeiten der Elektronentemperatur um ca. zwei Größenordnungen niedriger sind. Das Maximum der zeitlich gemittelten Elektronendichte  $\bar{n}_e$  läßt sich in einem Argonplasma mit einem Druck von 5 Pa bei einer Pulsfrequenz von 200 Hz detektieren. Mit zunehmendem Druck verschiebt sich das frequenzabhängige  $\bar{n}_e$ -Maximum zu niedrigeren Frequenzen. Mit abnehmendem Tastverhältnis nimmt die  $n_e(t)$ -Amplitude und die Höhe des  $\bar{n}_e$ -Maximums zu. Die Ergebnisse der zeitaufgelösten TALIF-Messungen der atomaren Sauerstoffdichte zeigen, daß für Pulsfrequenzen unterhalb von 50 Hz der Anstieg der atomaren Sauerstoffdichte mit dem Anstieg der Elektronendichte korreliert. Der Dichteabfall hingegen ist wesentlich langsamer als der Anstieg und wird bestimmt durch die diffusiven Verluste des atomaren Sauerstoffs an der Reaktorwand. Die niedrige Sauerstoffverlustfrequenz  $\nu_o$  ist die Ursache dafür, daß für Pulsfrequenzen oberhalb von 100 Hz die atomare Sauerstoffdichte der Modulation der Mikrowellenleistung nicht mehr folgt. Für höhere Pulsfrequenzen bleibt die Dichte über die gesamte Pulsperiode konstant. Das pulsfrequenzabhängige Maximum der zeitlich gemittelten atomaren Sauerstoffdichte korreliert mit der Frequenz, für die das  $\bar{n}_e$ -Maximum erreicht wird. Die maximale zeitlich gemittelte atomare Sauerstoffdichte ist 1,5 mal höher als der äquivalente cw-Dichtewert. Innerhalb des untersuchten Druckbereiches (5 - 50 Pa) läßt sich das zeitliche  $n_e(t)$ ,  $T_e(t)$  und  $n_o(t)$  Verhalten durch ein auf stoßbestimmte Plasmen erweitertes „Global Model“ gepulster Plasmen beschreiben. Es zeigt sich, daß die Elektronenverlustfrequenz  $\nu_{loss}$  das  $n_e(t)$  Zeitverhalten bestimmt. Bei der Berechnung des  $T_e(t)$ -Abfalls sind neben  $\nu_{loss}$  auch die Energieverluste die durch inelastische Kollisionen verursacht werden zu berücksichtigen. Der Anstieg der Elektronentemperatur korreliert mit dem Anstieg der absorbierten Leistung im Plasma. Die Verlustfrequenzen  $\nu_{loss}$  und  $\nu_o$  sind in erster Näherung von der Anlagengeometrie und in zweiter Näherung von der Diffusionskonstante abhängig. Aus dem Abfall der Elektronendichte in der Pulspause, der Elektronentemperatur in der Gleichgewichtsphase eines gepulsten Plasmas oder aus der Elektronentemperatur im cw-Fall läßt sich  $\nu_{loss}$  ermitteln. Aus dem Abfall der atomaren Sauerstoffdichte erhält man  $\nu_o$ . Ist die Verlustfrequenz bekannt, ist es mit Hilfe des in dieser Arbeit hergeleiteten Modells stoßbestimmter Plasmen möglich, das zeitabhängige Verhalten von  $n_e(t)$ ,  $T_e(t)$  und  $n_o(t)$  in Abhängigkeit von Pulsfrequenz und Tastverhältnis zu bestimmen.



## Summary

Pulsed microwave excited (2.45 GHz) argon and oxygen plasmas generated by a large volume SLAN (slot antenna) type plasma source are investigated by various diagnostic tools. Through the combined use of time-resolved planar optical emission spectroscopy (TPOES), microwave interferometry (MWI), and LANGMUIR probes the temporal behaviour of the electron density,  $n_e(t)$  and effective electron temperature,  $T_e(t)$ , are determined for a pulse frequency range between 0.01 and 20 kHz. Additionally, the time-resolved absolute density of atomic oxygen  $n_o(t)$  is measured by two-photon laser induced fluorescence (TALIF). From the intensity maps of excited atomic oxygen, argon atoms and ions qualitative information about the spatially- and time-resolved  $T_e(t)$  is derived. Furthermore, the emission intensity maps show that in pulsed mode the SLAN is edge heated and the energy transfer into the plasma occurs in the areas between two slot antennas. Throughout the examined pulse frequency range the obtained  $n_e(t)$  and  $T_e(t)$  rise and decay times are almost constant for similar discharge conditions. Independently of gas type and pressure the  $n_e(t)$  rise and decay time is in the ms region while the  $T_e(t)$  decay is in the order of ten to hundred  $\mu$ s. Due to the constant  $n_e(t)$  rise and decay-time value the time averaged-electron density,  $\bar{n}_e$ , is frequency dependent. For example, for argon at a pressure of 5 Pa the maximum time averaged-electron density,  $\bar{n}_e$ , is obtained at a pulse frequency of 200 Hz. With increasing pressure the  $\bar{n}_e$  maximum shifts to lower pulse frequencies. With decreasing duty cycle the  $\bar{n}_e$  value is increasing at constant time-averaged absorbed microwave power. In pulsed pure oxygen discharges with pulse frequencies below 50 Hz the  $n_o(t)$  density rise is correlated to the  $n_e(t)$  rise time while the decay time is much slower than the  $n_e(t)$  decay. Within the investigated pressure range the most probable loss mechanism of atomic oxygen is wall recombination. The wall is reached by diffusion. Because of the obtained low atomic oxygen loss rate  $\nu_o$  there is no time variation of  $n_o$  detectable for pulse frequencies above 100 Hz. It is shown that the maximum of the time averaged atomic oxygen density is correlated to the  $\bar{n}_e$  maximum. In that case the time-averaged atomic oxygen density is 1.5 times higher than the corresponding cw value. Within the temporal  $n_e(t)$ ,  $T_e(t)$  and  $n_o(t)$  behaviour the investigated pressure range can be described by a simple set of equations based on the ‘‘Global Model’’ of pulsed plasmas extended to collisional plasmas. It can be concluded that the electron loss rate  $\nu_{loss}$  controls rise and decay time of  $n_e(t)$ . The  $T_e(t)$  decay is governed by  $\nu_{loss}$  and inelastic scattering losses while the rise time is correlated to the rise time of the microwave power. In first order  $\nu_{loss}$  and  $\nu_o$  are a function of the plasma geometry and in second order they depend on the diffusion coefficient  $D$ . It is shown that  $\nu_{loss}$  can be derived from the measurement of (i) the decay of the electron density or (ii) the electron temperature in the steady state phase of a pulsed plasma or (iii) from the cw electron temperature.  $\nu_o$  can be derived from the decay of the  $n_o(t)$  density measured by TALIF. By means of the model for collision dominated plasmas derived in this work it is possible to calculate the frequency and duty cycle dependent time-resolved behaviour of  $n_e(t)$ ,  $T_e(t)$  and  $n_o(t)$ .

---

*I often say that when you can measure what you are speaking about, and express it in numbers, you know something about it; but when you cannot express it in numbers, your knowledge is of a meagre and unsatisfactory kind; it may be the beginning of knowledge, but you have scarcely, in your thought, advanced to the state of Science, whatever the matter may be.*

Lord Kelvin (1824-1907)

---

# Kapitel 1

## Einleitung

### 1.1 Motivation

Plasmen in ihren unterschiedlichsten Erscheinungsformen bilden die Basis für eine Vielzahl von Technologien. Neben den „heißen“ Fusionsplasmen (SPATSCHEK, 1990), die eventuell einen Beitrag zur Lösung der anstehenden Energie- und Umweltprobleme im nächsten Jahrtausend leisten werden (ROTH, 1995), sind vor allen Dingen die „kalten“ Niedertemperaturplasmen das „Werkzeug“ zur Herstellung modernster Materialien und Komponenten der Hochtechnologie. Die im Verlaufe des letzten Jahrzehnts sich verstärkt entwickelnde Plasmatechnologie ist eine der Querschnittstechnologien mit dem höchsten Innovationspotential an der Schwelle zum nächsten Jahrtausend. Ursprünglich fast ausschließlich in der Halbleiterherstellung genutzt, werden Plasmen inzwischen zur Oberflächenmodifikation im gesamten Bereich der Materialwissenschaften und-technologien eingesetzt. Durch die Anwendung der Plasmatechnologie lassen sich diverse Produktionsverfahren überhaupt erst realisieren und herkömmliche Verfahren durch nachhaltigere emissionsärmere, ressourcen- und energiesparende Techniken ersetzen (CONRADS et al., 1995, ROTH, 1995).

In der Lichterzeugung werden Plasmen eingesetzt, um Lampen hoher Effizienz und Lichtausbeute zu entwickeln (POPP, 1999). Desweiteren nutzt man Plasmen zur Herstellung biokompatibler Membranen (PLANCK, 1999), Polymerlagen (NINGEL, 1998), Korrosions und Verschleißschutzschichten, zur Herstellung von hydrophoben und hydrophilen (Kunststoff-)Oberflächen (SPRANG, 1995), wärmedämmenden Gläsern (SÖDER, 1999), Entspiegelung optisch aktiver Schichten (KERSTEN et al., 1991) sowie zum umweltschonenden Reinigen von Oberflächen etc. (ENGEMANN, 1995b, CONRADS et al., 1995).

Der immer größer werdende Anwendungskreis von Plasmen stellt wachsende Anforderungen an die Plasmaerzeugung. Zum einen müssen speziell für den Einsatz im industriellen Bereich großvolumige Plasmaquellen zur kostengünstigen Bearbeitung großvolumiger Werkstücke entwickelt werden. Zum anderen sollen, um einen hohen Durchsatz zu erzielen, die Prozeßzeiten

möglichst kurz gehalten werden, was in der Regel Plasmen hoher Dichte erfordert. Dies alles unter der Bedingung hoher Qualität und Prozeßausbeute. Diese Anforderungen führten zur Entwicklung großvolumiger mikrowellenangeregter Plasmaquellen großer Homogenität (KORZEC et al., 1996), die speziell im Bereich der Oberflächenmodifikation, Schichtabscheidung und Plasmapolymersation eingesetzt werden (NORMAND et al., 1995). Ein großer Vorteil der Mikrowellenanregung im Vergleich zu anderen Plasmaanregungen ist, daß Mikrowellenplasmen in der Regel eine hohe Elektronen- und Radikalendichte aufweisen bei gleichzeitig niedrigen Ionenenergien (MOISAN und WERTHEIMER, 1991). Letzteres ist von entscheidender Bedeutung für Plasmaprozesse, die sehr sensitiv auf zu hohen Ionenenergiebeschuß reagieren, wie z.B. die Herstellung und Bearbeitung von organischen Schichten, Polymeren oder verlustarmer Dielektrika (CONRADS et al., 1995, ENGEMANN, 1995b). Ein zusätzlicher Vorzug mikrowellenangeregter Plasmaquellen ist ihre einfache Skalierbarkeit. Dies macht sie ideal geeignet zur Erzeugung kostengünstiger homogener großvolumiger Plasmen (KORZEC et al., 1996).

Durch die Ausnutzung des Elektronenzyklotronresonanz-Effektes (engl. *electron cyclotron resonance ECR*) läßt sich der Anwendungsbereich von Mikrowellenplasmen zu niedrigen Drücken hin erweitern (ENGEMANN et al., 1995a). ECR-Mikrowellenplasmaquellen werden aufgrund ihrer hohen Effizienz speziell in Sputter- oder Ätzprozessen (SAMUKAWA und FURUOYA, 1993, SAMUKAWA, 1993) genutzt.

Aufgrund ihrer Vorteile werden großvolumige Mikrowellenplasmen im zunehmenden Maße im gesamten Spektrum der Plasmaanwendungen eingesetzt.

## 1.2 Gepulste Plasmen

Der Einsatz leistungsmodulierter Plasmen (gepulster Plasmen) hat das Potential der Plasmatechnologie in der Halbleiter- und Werkstofftechnik nachhaltig erhöht. Gepulste DC (HUGON et al., 1996), Hochfrequenz- (CONWAY et al., 1998, HEBNER und FLEDDERMANN, 1997, OVERZET, 1995) oder Mikrowellenentladungen (NINGEL, 1998, HEMING et al., 1992a) werden heutzutage in der Industrie eingesetzt, um u.a. Ätzraten, bzw. die Ätzselektivität zu erhöhen (SAMUKAWA, 1993 - SAMUKAWA und TSUKADA, 1997) oder eine gleichmäßigere Schichtabscheidung von organischen (BEHNISCH et al., 1998, MACKIE et al., 1998), wie auch von anorganischen Materialien (SCHILLER, 1997, HEMING et al., 1992b) bei verbesserter Stöchiometrie zu erzielen (ANANDAN et

al., 1995, CICALA et al., 1992). Gepulste Plasmen reduzieren das sogenannte "Notching" und ermöglichen somit die Herstellung von hochintegrierten Halbleiter- und Mikrostrukturen mit hohem Aspektverhältnis (MORIOKA et al., 1998, AHN et al., 1996). Desweiteren läßt sich die je nach Prozeß gewünschte oder unerwünschte Partikelnukleation steuern (COURTEILLE et al., 1996, BOUCHOULE et al., 1991). Störende Aufladungseffekte lassen sich ebenso (HWANG et al., 1997, SAMUKAWA und MIENO, 1996) wie die Hitzebelastung wärmesensitiver Substrate reduzieren (LIEBERMAN et al., 1997). Im Bereich der stationären Abgasreinigung von SO<sub>2</sub> und NO<sub>x</sub> belasteten Abgasen werden ebenfalls erfolgreich gepulste Plasmen mit kurzer Pulsdauer und hoher Leistungsdichte eingesetzt (AMIROV et al., 1993, ERSHOV und BORYSOW, 1995). Weitere bedeutsame Anwendungsbereiche sind die Erzeugung negativer Ionen (MOSBACH et al., 1998, AHN et al., 1996), sowie das Puls-Plasma-Nitrieren (DEBENEDICTIS und DILECCE, 1995, HUGON et al., 1993, HENRION et al., 1992) und die Plasma Immersions Ionenimplantation (MÖLLER, 1999) zur Oberflächenhärtung von Metallen.

Die typischerweise in Puls-Plasmaprozessen eingesetzten Modulationsfrequenzen liegen im Niederfrequenzbereich zwischen 1 - 20 kHz.

Die Vielzahl der in der Literatur aufgeführten Vorteile gepulster Plasmen gegenüber konventionellen Plasmatechniken wird durch die geeignete Wahl der beiden zusätzlichen äußeren Parameter Pulsfrequenz und Tastverhältnis erreicht.

Für die überwiegend in der Halbleiterindustrie eingesetzten stoßfreien<sup>1</sup> kapazitiv (GREENBERG und HEBNER, 1993) und induktiv (GEORG et al., 1997) gekoppelten hochfrequenzangeregten Plasmen existiert seit 1995 mit dem „Global Model“, ein von ASHIDA und LIEBERMAN entwickeltes nulldimensionales, räumlich gemittelttes Modell für gepulste stoßfreie Plasmen (ASHIDA et al., 1995 bzw. LIEBERMAN und ASHIDA, 1996). Lediglich basierend auf dem zeitabhängigen Energie- und Partikelerhaltungssatz des Plasmas beschreibt das Modell die wesentlichen plasmaphysikalischen Zusammenhänge gepulster stoßfreier Plasmen (SMITH und OVERZET, 1998, ASHIDA et al., 1996). Im Gegensatz zu den stoßfreien Plasmen ist der Einfluß von Pulsfrequenz, bzw. Tastverhältnis auf die Plasmaeigenschaften in großvolumigen stoßbestimmten Mikrowellenplasmen in ihrem typischen Arbeitsdruckbereich  $1 \text{ Pa} < p < 100 \text{ Pa}$  bislang nur unzurei-

---

1. Stoßfrei bedeutet in diesem Fall, daß die Ladungsträger ohne Stöße mit den Neutralteilchen bis zur Wand gelangen, wo sie rekombinieren. In der Regel gilt dies nur für Plasmen mit sehr niedrigem Druck ( $p < 1 \text{ Pa}$ ).

chend untersucht, so daß bis dato die meisten leistungsmodulierten Plasmaprozesse rein empirisch durch zeit- und kostenaufwendige Parameterstudien optimiert werden müssen (NINGEL, 1998, ANANDAN et al., 1995, OTTO et al., 1990).

Ziel dieser Arbeit ist, einen Beitrag zum Verständnis der grundlegenden, plasmaphysikalischen Mechanismen gepulster großvolumiger Plasmen zu leisten und den Prozeß- und Quellenentwickler in die Lage zu versetzen, mit Hilfe möglichst einfacher Beziehungen das Pulsverhalten seiner Quelle für unterschiedliche Frequenzen und Tastverhältnisse in Abhängigkeit der Prozeß-, bzw. Quellenparameter abschätzen zu können.

Hierzu wird in dieser Arbeit das zeit- und orts aufgelöste Verhalten der für die meisten plasmachemischen und plasmaphysikalischen Prozesse entscheidenden „inneren Plasmaparameter“:

- Elektronendichte
- Elektronentemperatur
- Dichte angeregter Radikale
- Grundzustandsdichte

am Beispiel vollmodulierter gepulster Argon- und Sauerstoffplasmen im Druckbereich zwischen 5 Pa und 50 Pa untersucht (Kapitel 5). Die zeit- und orts aufgelöste Bestimmung der oben aufgeführten „inneren“ Plasmaparameter geschieht durch den kombinierten Einsatz der planaren optischen Emissionsspektroskopie (POES) (Kapitel 5.1), der LANGMUIR-Sonde und der Mikrowelleninterferometrie (Kapitel 5.2/Kapitel 5.3). Das zeitliche Verhalten der absoluten atomaren Sauerstoffdichte in einem gepulsten Mikrowellenplasma wird durch den Einsatz der laserinduzierten Fluoreszenz (BROCKHAUS et al., 1998, BROCKHAUS et al., 1996) ermittelt (Kapitel 5.4). Die für das Verständnis dieser Arbeit theoretischen Grundlagen sind im nachfolgenden Kapitel dargestellt. In Kapitel 3 sowie in der dort aufgeführten Literatur sind die Grundlagen der eingesetzten zeitaufgelösten Diagnostikmethoden erläutert.

Anschließend werden in Kapitel 6 die Meßergebnisse diskutiert und aus Ihnen ein „Global Model“ stoßbestimmter diffusiver Plasmen hergeleitet. Mit diesem Modell wird es in Zukunft möglich sein, mit Hilfe einer einzigen Messung das charakteristische Pulsverhalten der wichtigsten „inneren“ Plasmaparameter großvolumiger Sauerstoff- und Argonplasmen für Drücke zwischen 1 Pa und 100 Pa ermitteln zu können. Eine Zusammenfassung der Ergebnisse dieser Arbeit und ein Ausblick auf zukünftige Anwendungen schließt diese Arbeit ab (Kapitel 7).

---

## Kapitel 2

### Grundlagen

#### 2.1 Plasma - Der vierte Zustand der Materie

Wird gasförmiger Materie hinreichend große Energie zugeführt, so daß die Gasatome bzw. -moleküle ionisiert werden, ändert die Materie ihren Aggregatzustand vom dritten, dem gasförmigen Zustand, in den Plasmazustand, der auch als vierter Aggregatzustand der Materie bezeichnet wird. Die Wahl des aus dem Griechischen stammenden Wortes Plasma ( $\pi\lambda\alpha\sigma\mu\alpha$ , formen) für diesen Zustand wird Irving Langmuir, einem Pionier der Plasmaphysik in den 20er Jahren unseres Jahrhunderts, zugeschrieben. Er soll diese Bezeichnung gewählt haben, weil sich mit diesem Begriff am besten die Eigenschaft von Plasmen, sich jeder beliebigen Gefäßform anzupassen, beschreiben läßt (BROWN, 1978).

Neuesten Abschätzungen zufolge befindet sich 99% der sichtbaren Materie des Universums im Plasmazustand (GLANZ, 1996).

Nach CHEN (1985, S. 3) läßt sich ein Plasma als „(...) quasineutral gas of charged and neutral particles which exhibits collective behaviour.“ definieren.

Zu den *Ladungsträgern* innerhalb eines Plasmas zählen einfach oder mehrfach geladene positive und negative Ionen sowie Elektronen. Negativ geladene Ionen entstehen in Plasmen, die elektronegative Gase (Halogene, O<sub>2</sub>, H<sub>2</sub> etc.) enthalten (VON ENGEL, 1983). Plasmen, in denen die Dichte der negativen Ionen größer oder gleich der der Elektronen ist, bezeichnet man als *elektronegative Plasmen*.

Die *Quasineutralität* ist gewährleistet, wenn bei hinreichend hoher Ladungsträgerdichte die lokale Dichte der positiven Ladung gleich der der negativen Ladung ist. Für einfach geladene positive und negative Ionen gilt  $n_{i+} \approx n_{i-} + n_e$  (Kapitel 2.1.2).

Die Gruppe der *Neutralteilchen* besteht aus ungeladenen Atomen und Molekülen im Grundzustand, bzw. angeregten Zustand.

### 2.1.1 Plasmazustand

Wie man der Abb. 2.1 entnehmen kann, treten Plasmen in einer Vielzahl von unterschiedlichen Erscheinungsformen auf. Die Unterscheidungsparameter sind der *Ionisationsgrad*

$$\eta = \frac{n_e}{n_e + n_n} \quad (2.1)$$

bzw. die *Elektronendichte*  $n_e$  und die *Elektronenenergie*  $kT_e$  (GLANZ, 1996, SPATSCHEK, 1990). Man unterscheidet im wesentlichen zwischen Hochtemperatur- und Niedertemperaturplasmen. Der Gruppe der *Hochtemperaturplasmen* gehören z.B. stellare und technische Fusionsplasmen an. Ihr Ionisationsgrad liegt bei  $\eta \sim 1$  und die Ionen und Elektronen befinden sich im thermischen Gleichgewicht. Die Energie der Teilchen  $kT_i = kT_e$  beträgt ca. 1-2 keV (SPATSCHEK, 1990).

Die in dieser Arbeit untersuchten mikrowellenangeregten Plasmen im Druckbereich zwischen 1-100 Pa werden wie die meisten in technischen Anwendungen genutzten *Niedertemperaturplasmen* der Kategorie der *schwach ionisierten Plasmen* zugeordnet. Diese Plasmen werden historisch bedingt in der Literatur auch häufig auch als *Glimm-*, bzw. *Gasentladung* bezeichnet (BROWN, 1978). Der Ionisationsgrad liegt zwischen 0,01 % in kapazitiv gekoppelten Hochfrequenzentladungen (LIEBERMAN und LICHTENBERG, 1994) und maximal 25% in mikrowellenangeregten ECR-Entladungen (ASMUSSEN, 1989). Die Elektronendichten  $n_e$  liegen zwischen  $10^8 \text{ cm}^{-3}$  und einigen  $10^{12} \text{ cm}^{-3}$ . Im Gegensatz zu den Hochtemperaturplasmen existiert in Niedertemperaturentladungen zwischen den diversen Teilchengruppen Ionen, Elektronen, angeregte Neutralteilchen etc. kein thermodynamisches Gleichgewicht. Ein stationäres thermodynamisches Gleichgewicht existiert in Niederdruckplasmen im äußersten Fall innerhalb einer Partikelgruppe. Aufgrund des lediglich partiellen thermodynamischen Gleichgewichts wird in solchen Plasmen zwischen Elektronen-  $kT_e$ , Ionen-  $kT_{i+}$ ,  $kT_{i-}$  und Neutralteilchentemperatur  $kT_n$  unterschieden. Die Elektronentemperatur<sup>1</sup>  $kT_e$  beträgt in mikrowellenangeregten Plasmen typischerweise 1-5 eV (MOISAN und PELLETIER, 1992). Die Iontemperatur  $kT_i$  liegt ein bis zwei Größenordnungen niedriger im Bereich zwischen 0,03 - 0,3 eV (NAKANO et al., 1991). Allgemein gilt für diese Plasmen  $kT_n \leq kT_i \ll kT_e$ . Aufgrund der Temperaturunterschiede zwischen den Plasmateilchengruppen

1. Die Teilchenenergien werden in der Plasmaphysik üblicherweise in Elektronenvolt [eV] angegeben (1 eV =  $1,6021 \cdot 10^{-19}$  J) und verkürzend auch als „Temperatur“ bezeichnet. Ein Elektronenvolt entspricht einer Temperatur von 11605 K (SPATSCHEK, 1990).



pen und der niedrigen Elektronentemperatur bezeichnet man diese Plasmen als *Niedertemperatur-, Nichtgleichgewichtsplasmen*. Die meisten technisch relevanten Niederdruckplasmen gehören dieser Kategorie (Abb. 2.1) an.

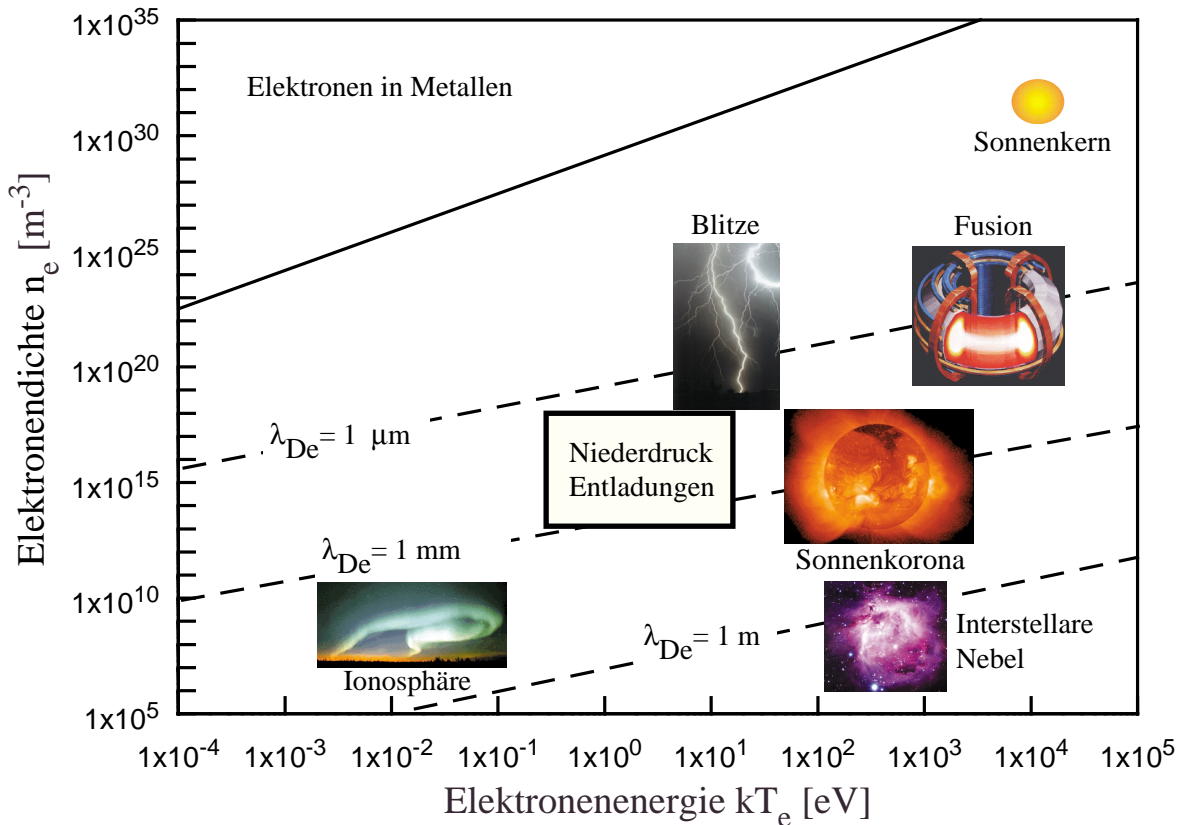


Abbildung 2.1: Typische Plasmaerscheinungsformen in Abhängigkeit von Elektronendichte und Elektronentemperatur.

### 2.1.2 Quasineutralität

Die Größe  $\lambda_D$  bezeichnet man als totale DEBYE-Länge<sup>1</sup>. Sie wird in Niedertemperaturplasmen ausschließlich durch die Elektronendichte  $n_e$  und -temperatur  $T_e$  bestimmt:

$$\lambda_D = \sqrt{\frac{\epsilon_0 k T_e}{e^2 n_e}} \tag{2.2}$$

1. Die allgemeine Gleichung für die DEBYE-Länge lautet:  $\lambda_D = \left[ \frac{e^2}{\epsilon_0} \sum_{\alpha} \frac{Z_{\alpha}^2 n_{\alpha}}{k T_{\alpha}} \right]^{-1/2}$ , wobei  $\alpha = e, i_+, i_-$  den Ladungsträgertyp,  $n_{\alpha}$  die Ladungsträgerdichte,  $T_{\alpha}$  die Ladungsträgertemperatur und  $Z_{\alpha}$  die Ladungszahl der Ionen angibt mit  $Z_{\alpha} = 0, 1, \dots, Z_{max}$

Hierbei wird mit  $k$  die BOLTZMANN-Konstante und  $\varepsilon_0$  die *Dielektrizitätskonstante* bezeichnet (LIEBERMAN und LICHTENBERG, 1994).

Eine grundlegende Eigenschaft eines Plasmas besteht darin, daß es makroskopisch, d.h. bis hinunter zu einem minimalen Plasmavolumen der Größe  $V_p \geq \lambda_D^3$  elektrisch neutral ist. Diese Eigenschaft, die als *Quasineutralität* bezeichnet wird, beruht darauf, daß jeder durch eine Störung verursachte Ladungsträgerüberschuß aufgrund der hierdurch hervorgerufenen starken elektrischen Felder in hinreichend kurzer Zeit wieder ausgeglichen wird. Die Voraussetzung hierfür ist, daß für die Anzahl der Ladungsträger  $N_D$  in einem Kugelvolumen mit dem Radius  $\lambda_D$  gilt:

$$N_D = \frac{4}{3}\pi n_e \lambda_D^3 \gg 1. \quad (2.3)$$

Gerät ein Plasma in Kontakt mit einer Begrenzung, so bildet sich eine *Randschicht* zwischen dem Plasmakörper und der Wand. Anders als der weiterhin quasineutrale Plasmakörper ist die Randschicht nicht mehr elektrisch neutral. Die Schichtdicke beträgt einige DEBYE-Längen. In Abb. 2.1 sind die typischen DEBYE-Längen  $\lambda_{De}$  in Abhängigkeit von der Ladungsträgerdichte und Elektronenenergie  $kT_e$  dargestellt.

### 2.1.3 Plasmafrequenz

Die *Plasmafrequenz*  $\omega_p$  ist neben dem Ionisationsgrad und der DEBYE-Länge eine weitere fundamentale plasmaphysikalische Größe. Ihr Kehrwert beschreibt, in welcher Zeit ein Plasma in der Lage ist, externe Störungen, z. B. verursacht durch elektromagnetische Wechselfelder, auszugleichen. Wird ein geladenes Teilchen von einer Kraft gegenüber einem entgegengesetzt geladenen Teilchen aus der Ruhelage verschoben, so entstehen aufgrund der Coulomb-Wechselwirkung starke Anziehungskräfte zwischen den Ladungsträgern. Entfällt die externe Kraft, schwingt das geladene Teilchen in einer gedämpften harmonischen Schwingung mit der Plasmafrequenz  $\omega_p$  um die Ruhelage. Die Elektronenplasmafrequenz  $\omega_{pe}$  ist gegeben durch die Gleichung

$$\omega_{pe} = \sqrt{\frac{n_e e^2}{\varepsilon_0 m_e}} \quad (2.4)$$

und die von einfach ionisierten positiven Ionen  $\omega_{pi}$  durch

$$\omega_{pi} = \sqrt{\frac{n_i e^2}{\varepsilon_0 m_i}}. \quad (2.5)$$

Aufgrund der höheren Ionenmasse ist die Ionenplasmafrequenz generell viel niedriger als die Elektronenplasmafrequenz. Deshalb wird die Plasmafrequenz häufig mit der Elektronenplasmafrequenz gleichgesetzt.

Externe elektromagnetische Wechselfelder mit Frequenzen, die kleiner sind als die Plasmafrequenz, werden durch das Plasma abgeschirmt und können nicht in das Plasma eindringen (Kapitel 2.3). Die Elektronenkonzentration, für die die Elektronenplasmafrequenz  $\omega_{pe}$  gleich der Anregungsfrequenz  $\omega$  wird, bezeichnet man als kritische Dichte  $n_c$ :

$$n_c = \omega^2 \frac{\epsilon_0 m_e}{e^2}. \quad (2.6)$$

Für eine Anregungsfrequenz von 2,45 GHz ergibt Gl. 2.6 eine kritische Ladungsträgerdichte von  $7,45 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ . Unterhalb dieser kritischen Dichte ist das Plasma für elektromagnetische Wellen mit einer Anregungsfrequenz  $\omega > \omega_p$  annähernd transparent. Oberhalb der kritischen Dichte können elektromagnetische Wellen in das Plasma nur noch bis zur *Skintiefe* eindringen (HEALD und WHARTON, 1978).

## 2.2 Niedertemperatur-, Nichtgleichgewichtsplasmen

Technisch genutzte mikrowellenangeregte Plasmen werden typischerweise im Druckbereich zwischen einigen zehntel Pascal bis zu Atmosphärendruck betrieben (MOISAN und PELLETIER, 1992). Die in dieser Arbeit untersuchten Mikrowellenplasmen werden für typische Anwendungen der Oberflächenmodifikation und Schichtabscheidung im Druckbereich zwischen 0,1 Pa und 100 Pa eingesetzt.

Zusätzlich zu den vorangehend bereits erwähnten Merkmalen

- geringer Ionisationsgrad
- fehlendes stationäres thermodynamisches Gleichgewicht zwischen den Plasmaspezies

weisen Niederdruckplasmen folgende charakteristische Eigenschaften auf:

- Der Energieeintrag in das Plasma geschieht über die im elektromagnetischen Feld beschleunigten Elektronen (MOISAN und PELLETIER, 1992).
- Die Elektronen geben einen Teil der aufgenommenen Energie über inelastische Stoßprozesse an die anderen Plasmateilchen ab (CHAPMAN, 1980).
- Ladungsträgerverluste werden durch die Elektronenstoßionisation der neutralen Gas-

atome,- moleküle ausgeglichen. Im stationären Zustand existiert ein Gleichgewicht zwischen der Ladungsträgererzeugung und -verlusten (MOISAN und PELLETIER, 1992).

- Ladungsträgerverluste, Energieverluste und Rekombination finden hauptsächlich an den Gefäßwänden statt (LIEBERMAN und LICHTENBERG, 1994).
- Ein Teil der aufgenommenen Energie wird in Form von elektromagnetischer Strahlung im gesamten Wellenlängenbereich an die Umgebung abgegeben (LOCHTE-HOLTGREVEN, 1995).
- Aufgrund des niedrigen Ionisationsgrades kann der Einfluß von Stößen zwischen den Ladungsträgern auf die Elektronenenergieverteilungsfunktion in der Regel vernachlässigt werden<sup>1</sup> (MACDONALD, 1966, SPATSCHEK, 1990).

Diese makroskopischen Eigenschaften eines hochfrequenzangeregten Plasmas lassen sich im Rahmen des Fluid-Modells (SPATSCHEK, 1990, CHEN, 1985) durch die MAXWELL-Gleichungen in Verbindung mit den dynamischen Gleichungen für *Partikelgleichgewicht*, *Energie-* und *Impulserhaltung* (Kapitel 2.2.3), die allesamt aus der BOLTZMANN-Gleichung (Gl. 2.7) abgeleitete Momente darstellen, beschreiben.

$$\frac{\partial f(\vec{r}, \vec{v}, t)}{\partial t} + \vec{v} \nabla_r f(\vec{r}, \vec{v}, t) + \vec{a} \nabla_v f(\vec{r}, \vec{v}, t) = \left. \frac{\partial f(\vec{r}, \vec{v}, t)}{\partial t} \right|_K \quad (2.7)$$

Die BOLTZMANN-Gleichung bestimmt die zeit- und orts aufgelöste Verteilung der Geschwindigkeit oder Energie der Gasteilchen eines Gases. Die *Geschwindigkeitsverteilungsfunktion* (*GVF*)  $f(\vec{r}, \vec{v}, t)$  ist definiert als die Anzahl der Partikel in einem Volumenelement  $d^3r$  mit der Geschwindigkeit  $d^3v$  an der Position  $\vec{r}, \vec{v}$  im Phasenraum zum Zeitpunkt  $t$  (MCDANIEL, 1989). Die BOLTZMANN-Gleichung beschreibt den Einfluß von externen Kräften und Stoßprozessen im Plasma auf die *GVF*. Sie verknüpft damit die Wechselwirkungen auf mikroskopischer Ebene eines Plasmasystems mit der *GVF* (Kapitel 2.2.2). Die Summanden auf der linken Seite der Gleichung (Gl. 2.7) beschreiben in der Reihenfolge von links nach rechts: die lokale zeitliche Änderung, den Raumgradienten und den Geschwindigkeitsgradienten der *GVF* an der Position  $\vec{r}, \vec{v}$  im Phasenraum. Der Vorfaktor  $\vec{a}$  vor dem Geschwindigkeitsgradienten repräsentiert die durch exter-

1. Jüngste Arbeiten zeigen, daß zumindest bei Plasmen hoher Elektronendichte  $n_e \geq 10^{12} \text{cm}^{-3}$  die Coulomb-Stöße der hochenergetischen Elektronen nicht mehr länger zu vernachlässigen sind (KORTSHAGEN et al., 1994a).

ne Kräfte hervorgerufene Beschleunigung. Den Term auf der rechten Seite der Gl. 2.7 bezeichnet man als *Stoßterm*. Er beschreibt die durch die Summe aller *unelastischen* und *elastischen Stoßprozesse* (Kapitel 2.2.2) verursachte Änderung der Verteilungsfunktion (MCDANIEL, 1989). Für eine detaillierte Betrachtung zur Bestimmung des Stoßtermes in Niedertemperaturplasmen sei auf LIEBERMAN und LICHTENBERG, 1994, S.547ff. verwiesen.

In hochfrequenzangeregten Plasmen reicht, aufgrund der Massenträgheit der Ionen, in vielen Fällen allerdings die Kenntnis der Elektronen-*GVF*, bzw. Elektronen-*EVF* aus, um die grundlegenden Plasmaeigenschaften zu beschreiben (MACDONALD, 1966).

### 2.2.1 Geschwindigkeits- und Energieverteilungsfunktion

Die Geschwindigkeitsmomente der durch die BOLTZMANN-Gleichung gegebenen Geschwindigkeitsverteilungsfunktion beschreiben makroskopische Plasmagrößen wie Teilchendichte  $n$ , mittlere Teilchengeschwindigkeit  $\bar{v}$ . Aus dem Moment nullter Ordnung erhält man die zeit- und ortsabhängige Teilchendichte  $n(\vec{r}, t)$

$$\int_0^{\infty} f(\vec{r}, \vec{v}, t) d\vec{v} = n(\vec{r}, t). \quad (2.8)$$

Die mittlere thermische Geschwindigkeit  $\bar{v}$  berechnet sich aus dem ersten Moment der Verteilungsfunktion

$$\bar{v}(\vec{r}, t) = \frac{1}{n} \int_0^{\infty} \vec{v} f(\vec{r}, \vec{v}, t) d\vec{v}. \quad (2.9)$$

Das Produkt aus Teilchendichte und mittlerer thermischer Geschwindigkeit ergibt den Teilchenfluß

$$\vec{\Gamma}(\vec{r}, t) = n \bar{v}(\vec{r}, t). \quad (2.10)$$

Befinden sich die Teilchen im thermodynamischen Gleichgewicht, wird die *GVF* beschrieben durch die MAXWELL-BOLTZMANN Verteilung:

$$f(\mathbf{v})d\mathbf{v} = n \sqrt{\frac{2}{\pi}} \left(\frac{m}{kT}\right)^{3/2} v^2 e^{-\left(\frac{mv^2}{kT}\right)}. \quad (2.11)$$

Die mittlere Geschwindigkeit einer MAXWELL-BOLTZMANN -Verteilung gemäß Gl. 2.11 beträgt:

$$\bar{v} = \sqrt{\frac{8kT}{\pi m}}, \quad (2.12)$$

mit  $kT$  als Teilchenenergie.

Die *Energieverteilungsfunktion (EVF)*  $F(w)$  lässt sich unter Berücksichtigung der kinetischen Teilchenenergie  $w = \frac{1}{2}m|\vec{v}|^2$  aus der Geschwindigkeitsverteilungsfunktion herleiten (LIEBERMAN und LICHTENBERG, 1994). Ist die Energieverteilung eine MAXWELL-BOLTZMANN-Verteilung gegeben<sup>1</sup>, erhält man für  $F(w)$ :

$$F(w)dw = n \sqrt{\frac{2}{\pi}} \left(\frac{1}{kT}\right)^{3/2} \sqrt{w} e^{-\left(\frac{w}{kT}\right)}. \quad (2.13)$$

Analog zur *GVF* lässt sich aus dem Moment nullter Ordnung der *EVF* die Teilchendichte  $n$  berechnen. Das erste Moment der *EVF* bezeichnet man als mittlere Energie:

$$\bar{w}(\vec{r}, t) = \frac{1}{n} \int_0^{\infty} w F(w) dw. \quad (2.14)$$

Für eine MAXWELL-Verteilung der Elektronenenergie ergibt sich als Ausdruck für die mittlere Energie:

$$\bar{w} = \frac{3}{2}kT. \quad (2.15)$$

Weicht die *EVF* von einer MAXWELL-Verteilung ab, lässt sich eine *effektive Temperatur* definieren durch die Beziehung:

$$T_{eff} = \frac{2}{3kn} \int_0^{\infty} w F(w) dw. \quad (2.16)$$

Im Falle einer MAXWELL-Verteilung der Energie ergibt Gl. 2.16 die *kinetische Temperatur*.

---

1. Die effektive Temperatur einer Mikrowellenentladung wird im wesentlichen allerdings durch die MAXWELL verteilte Komponente der Verteilung bestimmt. (MOISAN und PELLETIER, 1992, KORTSHAGEN et al., 1994a). Im Gegensatz dazu sind die EEVF in kapazitiv, bzw. induktiv gekoppelten HF-Entladungen in der Regel nicht MAXWELL-BOLTZMANN verteilt (GODYAK et al., 1995, 1992).

### 2.2.2 Kollisionsprozesse

Das zeitliche und räumliche Verhalten der im vorangegangenen Kapitel diskutierten *EVF*, ist das Ergebnis von *elastischen* und *inelastischen* Kollisionsprozessen auf mikroskopischer Ebene und wird beschrieben durch den Kollisionsterm der BOLTZMANN-Gleichung (MCDANIEL, 1964).

Elastische Kollisionen spielen die entscheidende Rolle beim Wirkleistungseintrag in ein mikrowellenangeregtes Plasma (MOISAN und PELLETIER, 1992). Sie bestimmen Plasmaparameter wie Beweglichkeit, Diffusionskoeffizient (Kapitel 2.2.4) und die Hochfrequenzleitfähigkeit der Mikrowellenentladung (HEALD und WHARTON, 1978). Durch inelastische Stöße zwischen den diversen Plasmaspezies werden Ionen, Elektronen und die für viele Plasmaprozesse wesentlichen angeregten Atome/Moleküle, bzw. dissoziierten Moleküle (Radikale) erzeugt. Die wichtigsten Stoßprozesse in einem Plasma sind mit ihrer Bezeichnung in Tabelle 2.1 aufgeführt.

Erzeugungsprozesse		Verlustprozesse	
$e + A \rightarrow e + A$	Elastische Streuung	$A^+ + e + W \rightarrow A + W$	Oberflächenrekombination
$e + A \rightarrow e + A^*$	Anregung	$A + B + W \rightarrow AB + W$	Oberflächenrekombination
$e + A \rightarrow 2e + A^+$	Ionisation	$AB^+ + e \rightarrow A + B$	Dissoziative Rekombination
$e + A \rightarrow A^-$	Anlagerung (Attachment)	$A^* \rightarrow A + h\nu$	Emission
$e + AB \rightarrow A + B + e$	Dissoziation		
$e + AB \rightarrow A + B^* + e$	Dissoziative Anregung		
$e + AB \rightarrow A + B^+ + 2e$	Dissoziative Ionisation		
$A^+ + B \rightarrow A + B^+$	Ladungsaustausch		
$A^* + B \rightarrow A + B^+ + e$	Penning Ionisation		
$A + h\nu \rightarrow A^*$	Strahlungsanregung		
$A + h\nu \rightarrow A^+$	Strahlungsionisation		
$A + BC \rightarrow C + AB$	Chemische Reaktion		

Tabelle 2.1: Die häufigsten Erzeugungs- und Verlustprozesse in Niederdruckplasmen.

Während elastische Prozesse für beliebige Teilchenenergien auftreten, beginnen inelastische Streuprozesse erst oberhalb eines Energiegrenzwertes. Den Energiegrenzwert für den im Plasma inelastischen Streuprozess der Ionisierung von Atomen/Molekülen bezeichnet man als *Ionisierungsenergie*. Typische Ionisierungsenergien für Argon (Ar), Sauerstoffmoleküle (O<sub>2</sub>) und Sauerstoffatome O durch Elektronenstöße sind in Tabelle A.1 angegeben.

Neben der Ionisierung treten in Plasmen eine Vielzahl von weiteren inelastischen Prozessen auf. Die meisten Stoßprozesse in schwach ionisierten Plasmen finden zwischen Ladungsträgern und Neutralteilchen statt. In Plasmen hoher Elektronendichte ( $n_e > 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ ) sind zusätzlich noch die Coulomb-Wechselwirkungen zwischen den Elektronen zu berücksichtigen (MOISAN und PELLETIER, 1992).

Wie in Kapitel 2.4.1 gezeigt wird, sind die unterschiedlichen Zeitskalen von Erzeugungs- (z.B. Ionisation/Dissoziation) und Verlustprozessen (Wandrekombination) eine wesentliche Ursache für die beobachtbaren Unterschiede zwischen stationären und zeitmodulierten Mikrowellenplasmen.

Die oben aufgeführten Streuprozesse werden durch Kollisionsparameter beschrieben.

### Kollisionsparameter

Die elastische und unelastische Kollisionsprozesse charakterisierende fundamentale Größe, ist der sogenannte Wirkungsquerschnitt  $\sigma$ . In der Regel wird der Wirkungsquerschnitt aus dem in Streuexperimenten ermittelten winkelabhängigen *differentiellen Wirkungsquerschnitt* berechnet (NEUERT, 1984, WIESEMANN, 1976). Die wichtigsten Streuquerschnitte sind der *totale elastische Streuquerschnitt*  $\sigma_v$ , der *Impulsübertragungsquerschnitt*  $\sigma_m$  sowie der *totale Streuquerschnitt*  $\sigma_{tot}$  (MCDANIEL, 1989).

Die Strecke, auf der ein ungestreuter Partikelfluß bedingt durch Stöße (elastische oder unelastische) mit anderen Teilchen auf seinen  $e$ 'ten Teil abgefallen ist, bezeichnet man als *mittlere freie Weglänge* (WIESEMANN, 1976)

$$\lambda = \frac{1}{n_n \bar{\sigma}(kT_e)}, \quad (2.17)$$

mit  $\bar{\sigma}(kT_e)$  als über die *GVF* gemittelten energieabhängigen Wirkungsquerschnitt des betrachteten Streuprozesses und  $n_n$  als Teilchendichte des Kollisionspartners. Als Beispiel ist in



Abb. 2.2 die mittlere freie Weglänge für Argonionen  $\text{Ar}^+$  in Abhängigkeit von der Ionenenergie dargestellt. Die mittlere Zeit zwischen zwei Kollisionen ergibt sich aus:

$$\tau = \frac{\lambda}{\bar{v}} \quad (2.18)$$

mit  $\bar{v}$  als mittlere Teilchengeschwindigkeit der GVF (Gl. 2.9 /Gl. 2.12).

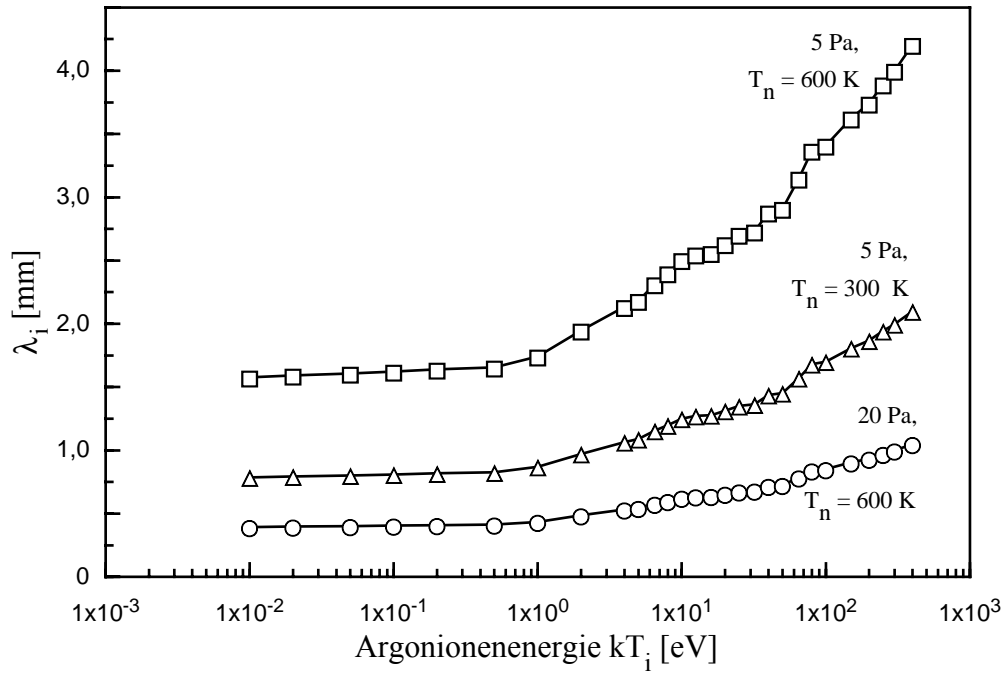


Abbildung 2.2: Mittlere freie Weglänge von Argonionen ( $\text{Ar}^+$ ) in Argon (Ar). Wirkungsquerschnitte aus: CRAMER, 1959 und VAHEDI et al., 1993a.

Der Kehrwert der Gl. 2.18 ergibt die sogenannte *Stoßfrequenz*  $\nu$

$$\nu = \frac{1}{\tau} = Kn_n, \quad (2.19)$$

mit  $K$  als Ratenkonstante. Im Falle eines Zweikörperstoßes berechnet sich die Ratenkonstante aus der Integration über die Geschwindigkeitsverteilungsfunktion der stoßenden Teilchen  $f_1(\vec{v}_1)$ ,  $f_2(\vec{v}_2)$ :

$$K = \int_0^{\infty} f_1(\vec{v}_1) f_2(\vec{v}_2) \sigma(v_r) v_r d^3 v_1 d^3 v_2. \quad (2.20)$$

Hierbei ist die Geschwindigkeit  $v_r$  gegeben durch  $v_r = |\vec{v}_1 - \vec{v}_2|$ . Für isotrope Mikrowellenplasmen mit MAXWELLverteilter Elektronenenergie lassen sich die Ratenkonstanten für einen Zwei-

körperstoß zwischen Elektron und einem im Vergleich zum Elektron ruhenden Schwerteilchen ( $v_2 = 0$ ) durch die Beziehung:

$$(kT_e) = \langle \sigma(v)v \rangle_v = \frac{m}{2\pi kT_e} \int_0^\infty 4\pi v^2 \sigma(v) v e^{-\frac{mv^2}{2kT_e}} dv \quad (2.21)$$

bestimmen, mit  $m$  als Masse und  $T_e$  als Elektronentemperatur. Auf diese Weise lassen sich, insofern die Wechselwirkungsquerschnitte bekannt sind, für beliebige Wechselwirkungsprozesse elektronenenergieabhängige Ratenkonstanten angeben. So ergibt sich z.B für die Ionisationsratenkonstante  $K_{iz}$  des Argons die Beziehung:

$$K_{iz} \approx 2,3 \times 10^{-14} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1} \left( \frac{kT_e}{\text{eV}} \right)^{0,68} \exp \left( \frac{-15,76 \text{ eV}}{\frac{kT_e}{\text{eV}}} \right) \quad (2.22)$$

(Kapitel A.1/RAPP UND ENGLANDER-GOLDEN 1965).

Das sich einstellende Gleichgewicht zwischen Erzeugungsprozessen und Verlustmechanismen bestimmt die stationären Plasmaeigenschaften.

Die wesentlichen Verlustmechanismen sind die *Rekombination* von im Plasma dissoziierten Molekülfragmenten sowie die Ladungsträgerrekombination. Hinzu kommt der Verlust durch Absorption von Plasmaspezies (sticking) durch das Wandmaterial des Entladungsgefäßes. Angeregte Teilchen verlieren ihre Anregungsenergie durch Emission von Photonen oder durch Stoßlöschung (Quenching, DÖBELE, 1995).

Aus Gründen der Impulserhaltung ist eine Rekombination nur möglich, wenn ein dritter Stoßpartner beteiligt ist. In Niederdruckplasmen<sup>1</sup> kommt als dritter Wechselwirkungspartner in erster Linie die Wand in Frage. Mit zunehmender Teilchendichte nimmt allerdings die Wahrscheinlichkeit von Volumenrekombinationen zu (MCDANIEL, 1964).

Die Zeitskala, auf der sich die Rekombinationsprozesse abspielen, wird durch die Anlagengeometrie und das vorherrschende Transportregime des Teilchens (Kapitel 2.2.4) bestimmt. Für die Wandrekombination von Radikalen spielt zusätzlich noch der von den Oberflächenbedingungen

1. Für Drücke  $p$  unterhalb von 130 Pa und Elektronendichten  $n_e \leq 10^{13} \text{ cm}^{-3}$  sowie Elektronentemperaturen  $kT_e > 1 \text{ eV}$  ist davon auszugehen, daß die Rekombinationsverluste an der Kammeroberfläche entstehen (LIEBERMAN und LICHTENBERG, 1994, S. 275ff. MOISAN und PELLETIER, 1992, S. 266ff. WIESEMANN, 1976, S. 166ff).

der Kammerwand abhängige Stickingkoeffizient eine Rolle (MATSUSHITA et al., 1997).

Die unterschiedlichen Zeitskalen, auf denen die Erzeugungs- und Verlustprozesse ablaufen, sind die Hauptursache für die sich einstellenden Unterschiede zwischen stationären und gepulsten Plasmen (LIEBERMAN und ASHIDA, 1996, Kapitel 6). Die unterschiedlichen Zeitskalen der elastischen/inelastischen Wechselwirkung zwischen Elektronen und Molekülen sind in Abb. 2.3 dargestellt. Wie man der Abbildung entnehmen kann, bewegt man sich mit niederfrequenzmodulierten Plasmen im Bereich der Elektronenlebensdauer, bzw. der Lebensdauer von radikalen und metastabilen Zuständen. Alle anderen unelastischen und inelastischen Kollisionsprozesse spielen sich auf einer kürzeren Zeitskala ab und sind innerhalb des in dieser Arbeit untersuchten Pulsfrequenzspektrums als zeitlich konstant anzusehen. Es ist also zu erwarten, daß im wesentlichen die Elektronen sowie die radikalen und metastabilen Zustände durch das Pulsen beeinflusst werden.

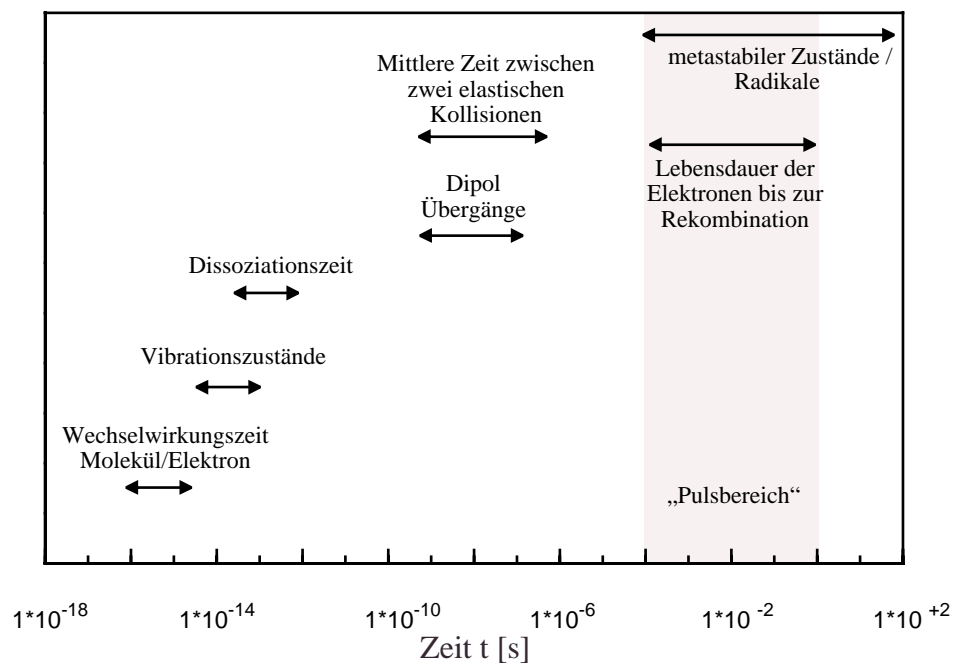


Abbildung 2.3: Typische Wechselwirkungszeiten und Lebensdauern angeregter Zustände. (LIEBERMAN und LICHTENBERG, 1994, MCDANIEL, 1989, NINGEL, 1998, VON ENGEL, 1983).

### 2.2.3 Kontinuitätsgleichungen

Aus den im vorangegangenen Abschnitten hergeleiteten Größen lassen sich die Kontinuitätsbeziehungen (Bilanzgleichungen), mit denen sich das makroskopische Plasmaverhalten vollständig beschreiben läßt, ableiten. Unter Vernachlässigung von Volumenrekombinationsprozessen

und Gravitationseffekten (LIEBERMAN und LICHTENBERG, 1994) erhält man die drei Beziehungen:

### I. Partikelgleichgewicht

$$\frac{\partial n}{\partial t} + \nabla \cdot (n \vec{v}) = \nu_i n \quad (2.23)$$

mit  $\vec{v}$  als mittlere Teilchengeschwindigkeit (Abschnitt 2.2.1),  $\nu_i$  als inelastische Stoßfrequenz (Kapitel 2.2.2).

### II. Impulserhaltung

$$mn \left( \frac{\partial \vec{v}}{\partial t} + (\vec{v} \cdot \nabla) \vec{v} \right) = en \left( \vec{E} + \vec{v} \times \vec{B} \right) - \nabla p - mn \nu_m \vec{v} \quad (2.24)$$

mit  $\nabla p$  als Druckgradienten und  $\nu_m$  als elastische Kollisionsfrequenz (Kapitel 2.2.2).

### III. Energieerhaltung

$$\frac{\partial}{\partial t} \left( \frac{3}{2} p_v \right) + \nabla \cdot \left( \frac{3}{2} p_v \vec{v} \right) = \frac{\partial}{\partial t} \left( \frac{3}{2} p_v \right) \Big|_K \quad (2.25)$$

mit  $3/2 p_v$  als Energiedichte,  $3/2 p_v \vec{v}$  als Energiefluß und  $\left( \frac{3}{2} p_v \right) \Big|_K$  als Kollisionsterm unter Vernachlässigung von Volumenkompressionseffekten sowie der thermischen Leitfähigkeit des Plasmas. (LIEBERMAN und LICHTENBERG, 1994).

#### 2.2.4 Teilchentransport im Plasma

Neben der ungeordneten thermischen Bewegung unterliegen alle Plasmaspezies den Einflüssen der *Strömung* und der *Diffusion*. Hinzu kommt für geladene Teilchen noch die *Drift* in elektromagnetischen Feldern sowie die *ambipolare Diffusion*.

Im folgenden werden die wesentlichen Transportmechanismen und ihr Einfluß auf das Plasmaverhalten für den Fall abwesender externer Magnetfelder kurz dargestellt.

#### Strömung

In Abhängigkeit vom Druck  $p$ , der Querschnittsfläche  $A$  der Entladungsgeometrie und dem Teilchenfluß  $F_v$  in der Entladung, folgen alle Plasmapartikel Strömungsvorgängen.

Die Strömungsgeschwindigkeit für eine laminare Strömung läßt sich durch

$$v_s = \frac{F_v}{Ap} \quad (2.26)$$

berechnen (NINGEL, 1998). Durchströmen Teilchen beispielsweise mit einem Fluß von 150 sccm bei einem Druck von 40 Pa (300 K Gastemperatur) einen Zylinder mit dem Radius  $R = 20$  cm, beträgt die Strömungsgeschwindigkeit  $v_s$  der Teilchen  $v_s \approx 0,05$  m/s. Bei den in dieser Arbeit verwendeten Flüssen ( $\sim 50$  sccm) und Geometrien liegt die Strömungsgeschwindigkeit weit unter dem typischen Diffusionsgeschwindigkeitsbereich  $|\vec{v}_D| \approx 100 - 2000$  m/s (Gl. A.4.6-Gl. A.4.8) der Teilchen und ist somit vernachlässigbar. In Anlagen, die jedoch mit hohen Flüssen betrieben werden, muß der Einfluß der Strömungsgeschwindigkeit auf das Plasmaverhalten, bzw. den Plasmaprozeß berücksichtigt werden (NINGEL, 1998).

### Drift im elektrischen Feld und freie Diffusion

Zur Beschreibung des Transports, bzw. des kollektiven Verhaltens des Plasmas, ist eine Betrachtungsweise notwendig, die es ermöglicht, das Zusammenwirken der in Kapitel 2.2.2 beschriebenen Einzelprozesse auf mikroskopischer Ebene mit der makroskopischen Ebene zusammenzufassen und kollektiv zu beschreiben. Den Zusammenhang liefert der in Kapitel 2.2.1 beschriebene Impulserhaltungssatz (Gl. 2.24). Im zeitunabhängigen und magnetfeldfreien ( $B = 0$ ) Fall<sup>1</sup>, sowie unter der Annahme einer von der mittleren Teilchengeschwindigkeit unabhängigen Stoßfrequenz erhält man aus Gl. 2.24 für den Fluß der Teilchen im elektrischen Feld die Beziehung (LIEBERMAN und LICHTENBERG, 1994)

$$\vec{\Gamma} = \pm(\mu n \vec{E} - D \nabla n). \quad (2.27)$$

Hierbei gilt das positive Vorzeichen in Gl. 2.27 für positive, das negative für negative Ladungsträger.

Der erste Summand in Gl. 2.27 beschreibt die *Drift* der elektrischen Ladungsträger mit der *Beweglichkeit*  $\mu$  im externen elektrischen Feld der Feldstärke  $\vec{E}$ , mit  $\mu$  als makroskopische *Beweglichkeit*

---

1. Im Fall  $B \neq 0$  ist die Diffusionskonstante, im Gegensatz zum magnetfeldfreien Plasmen, anisotrop. Für eine ausführliche Herleitung der Ausbreitung elektromagnetischer Wellen und der Diffusion in Plasmen unter dem Einfluß externer Magnetfelder sei auf die im Anhang aufgeführte Literatur verwiesen (HEALD und WHARTON, 1978, LIEBERMAN und LICHTENBERG, 1994).

$$\mu = \frac{|q|}{m\nu_m} [\text{m}^2/\text{Vs}]. \quad (2.28)$$

Der zweite Summand in Gl. 2.27 beschreibt den Teilchentransport gemäß dem zweiten Hauptsatz der Thermodynamik entgegengesetzt zu ihrem Dichtegradienten  $\nabla n$ . Diese durch Dichtegradienten ausgelöste Bewegung bezeichnet man als *Diffusion*, mit  $D$  als *Diffusionskonstante*:

$$D = \frac{kT}{m\nu_m} [\text{m}^2/\text{s}]. \quad (2.29)$$

Nutzt man die Definition für die mittlere Geschwindigkeit einer maxwellverteilten *GVF*  $\bar{v}$  (Gl. 2.12) und die mittlere freie Weglänge für Hartschalenkollisionen  $\lambda = \bar{v}/\nu_m$ , erhält man für die Diffusionskonstante die einfache Beziehung:

$$D = \frac{\pi}{8} \lambda \bar{v}. \quad (2.30)$$

Mit Hilfe dieses Ausdrucks läßt sich die Diffusionskonstante bei bekannter Teilchenenergie und mittlerer freier Weglänge abschätzen.

Die *Diffusionsgleichung* lautet für den Fall einer ortsunabhängigen Diffusionskonstante  $D$  und unter Vernachlässigung von Verlustprozessen:

$$\frac{\partial n}{\partial t} - D \nabla^2 n = n \nu_i, \quad (2.31)$$

mit  $n \nu_i$  als Quellterm, der die Erzeugung der Partikel berücksichtigt (MCDANIEL, 1964).

### Ambipolare Diffusion

Die Bewegungen von negativen und positiven Ladungen im Plasma sind über die Coulomb-Kräfte aneinander gekoppelt. Die Elektronen könnten aufgrund ihrer geringeren Masse sehr viel schneller als die Ionen einem Konzentrationsgefälle folgen. Die sich aufbauenden Raumladungsfelder verhindern dies allerdings weitgehend und es kommt zu einer gekoppelten Diffusion der Ladungsträger. Die durch die internen Raumladungsfelder gekoppelte Drift und Diffusion der Ladungsträger bezeichnet man als *ambipolare Diffusion*. Bestimmt man für Elektronen und positive Ionen den Fluß  $\Gamma$  (Gl. 2.27) unter der Voraussetzung  $\Gamma_{i+} = \Gamma_e$  sowie der Quasineutralität  $n_e \approx n_{i+} = n$ , erhält man in Abwesenheit eines externen Magnetfeldes den gemeinsamen Ladungsträgerfluß:

$$\vec{\Gamma} = -\frac{D_e\mu_{i+} + D_{i+}\mu_e}{\mu_{i+} + \mu_e}\nabla n, \quad (2.32)$$

mit  $\mu_{i+}$ ,  $\mu_e$  als Beweglichkeit der positiven Ionen, bzw. Elektronen und  $D_e$ ,  $D_{i+}$  als zugehörige Diffusionskonstanten.

Den Vorfaktor vor dem Dichtegradienten in Gl. 2.32 bezeichnet man als die *ambipolare Diffusionskonstante*  $D_a$ :

$$D_a = \frac{D_e\mu_{i+} + D_{i+}\mu_e}{\mu_{i+} + \mu_e}. \quad (2.33)$$

Aufgrund der in schwach ionisierten Entladungen im Vergleich zur Ionenbeweglichkeit sehr viel höheren Elektronenbeweglichkeit ( $\mu_e \gg \mu_{i+}$ ) läßt sich  $D_a$  unter Nutzung der EINSTEIN-Relation wie folgt abschätzen:

$$D_a \approx D_{i+} \left( 1 + \frac{T_e}{T_{i+}} \right). \quad (2.34)$$

So ergibt Gl. 2.34 für ein Argonplasma mit  $p = 5$  Pa,  $T_e = 2$  eV,  $T_i, T_n = 0,03$  eV (300K) und  $D_{i+} = 0,13$  m<sup>2</sup>/s (Gl. 2.30) einen Wert von  $D_a \approx 5$  m<sup>2</sup>/s.

Wie Gl. 2.34 zeigt, ist der ambipolare Transport von Elektronen und positiven Ionen abhängig vom Verhältnis der Elektronen- zu Ionentemperatur sowie der Diffusionskonstanten der Ionen  $D_{i+}$ . Die Diffusionskonstante wiederum wird von der druckabhängigen mittleren freien Weglänge der Ionen  $\lambda_i$  (Abb. 2.2) und von der mittleren thermischen Ionengeschwindigkeit  $\bar{v}_i$  bestimmt (Gl. 2.30). Im Falle einer zylinderförmigen Entladungsgeometrie mit dem Radius  $R$  und der Länge  $L$  unterscheidet man im Druckbereich  $p < 100$  Pa zwischen den folgenden drei Transportregimen (LIEBERMAN und LICHTENBERG, 1994):

I. **Niedriger Druckbereich:**  $\lambda_i > \begin{cases} R \\ L \end{cases}$

Innerhalb dieses auch als LANGMUIR-Bereich bezeichneten Regimes ist der ambipolare Transport zu den Kammerwänden aufgrund der im Vergleich zu den Abmessungen der Plasmakammer ( $R, L$ ) großen mittleren freien Weglänge der Ionen  $\lambda_i$  stoßfrei. Die Ionen werden durch die entstehenden Raumladungsfelder zu den Kammerwänden hin beschleunigt, auf die sie auftreffen, ohne durch Stöße abgelenkt zu werden. Hierdurch bildet sich ein sehr flaches

Ladungsträgerprofil im Plasma aus, das erst innerhalb der Randschicht sehr steil zum Rand hin abfällt (Abb. 2.4, Kurve I).

## II. Mittlerer Druckbereich:

In diesem Übergangsbereich übersteigt die Ionenendrift die thermische Ionengeschwindigkeit. In diesem Regime ergibt die Lösung der Diffusionsgleichung (LEE und LIEBERMAN, 1995) ein flacheres Dichteprofil als für höhere Drücke, das einen etwas steileren Abfall zum Rand hin als im Vergleich zum niedrigeren Druckbereich aufweist (Abb. 2.4, Kurve II).

## III. Hoher Druckbereich: $\lambda_i < \frac{T_e}{T_i} \left\{ \begin{array}{l} R \\ L \end{array} \right.$

Ist die obige Relation erfüllt, so ist der Ladungsträgertransport zu den Kammerwänden stoßbestimmt diffusiv. Die Plasmakammerabmessungen sind im Verhältnis zur mittleren freien Weglänge der Ionen  $\lambda_i$  groß, so daß der Einfluß der Kollisionen nicht mehr zu vernachlässigen ist. Für die in dieser Arbeit untersuchten großvolumigen Mikrowellenentladungen ( $R \geq 10$  cm,  $L \geq 50$  cm) mit typischen Elektronen-/Iontentemperaturen von  $T_e \sim 2$  eV,  $T_i \sim 0,05$  eV ist dies schon der Fall für Drücke ab  $p \geq 5$  Pa. Berücksichtigt man, daß der typische Arbeitsdruck von Mikrowellenplasmaquellen von einigen zehntel Pascal bis hin zu Atmosphärendruck reicht (MOISAN und PELLETIER, 1992), bedeutet dies, daß nahezu im gesamten Arbeitsdruckbereich der in dieser Arbeit untersuchten Quellen die Ladungsträger dem stoßbestimmten ambipolaren Transportregime unterliegen.

In Abb. 2.4 sind die für die unterschiedlichen Diffusionsregime sich einstellenden radialen Dichteprofile in Abhängigkeit des auf den Zylinderradius  $R$  normierten Plasmaradius  $r$  dargestellt.

Die sich im stoßbestimmten Fall einstellenden Dichteprofile für eine geschlossene Zylindergeometrie, unter der Voraussetzung einer radial homogenen  $E$ -Feldverteilung innerhalb des Zylinders, erhält man aus der Diffusionsgleichung (Gl. 2.31) unter der Randbedingung  $n_e(R,L) = 0$  mit  $D_a$  als ambipolare Diffusionskonstante und  $\nu_{iz}$  als Ionisationsfrequenz (Kapitel 2.2.2).



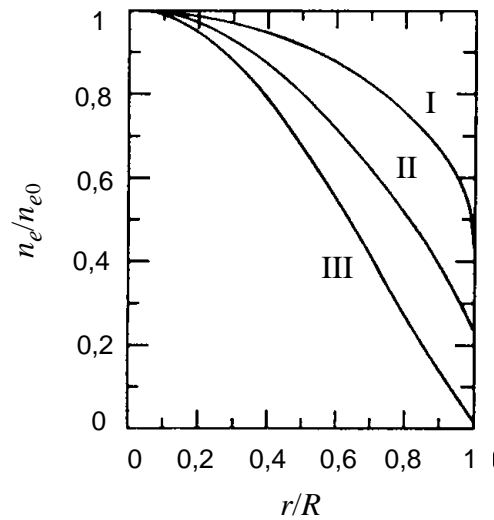


Abbildung 2.4: Radiales, normiertes Elektronendichteprofil einer zylinderförmigen Entladungsgeometrie mit dem Radius  $R$ . I.: Diffusiv stoßfreier Transport, II.: Freier Transport, III.: Stoßbestimmter Transport (MOISAN und PELLETIER, 1992 und LIEBERMAN und LICHTENBERG, 1994).

### Lösung der Diffusionsgleichung für den stoßbestimmten ambipolaren Transport in einer offenen Zylindergeometrie

In den meisten industriell genutzten Plasmaanlagen liegt keine geschlossene, sondern eine offene Zylindergeometrie vor (Abb. 2.5). In der Regel ist die Plasmaquelle an eine Behandlungskammer angeflanscht. Das in der Plasmaquelle erzeugte Plasma diffundiert von dort in den Rezipienten. Um das Diffusionsprofil für Plasmaanlagen dieses Types zu bestimmen, muß die Diffusionsgleichung (Gl. 2.31) für eine offene Zylindergeometrie gelöst werden und zwar für den aktiven (Plasmaquelle) sowie für den feldfreien Bereich (*Downstream-Bereich*). Das Dichteprofil im Übergangsbereich ermittelt man aus den Stetigkeitsbedingungen (ZAKRZEWSKI et al., 1992).

Für eine zum Zeitpunkt  $t$  abgeschaltete, offene zylinderförmige Mikrowellenentladung im stoßbestimmten Fall, ergibt sich für die Diffusionsgrundmode<sup>1</sup> die zeit- und ortsabhängige Elektronendichteverteilung  $n_e(r, z, t)$  innerhalb der aktiven Zone ( $|z| \leq l/2$ ):

$$n_e(r, z, t) = n_{e0} J_0\left(2,405 \frac{r}{R}\right) \cos\left(2\alpha_1 \frac{z}{l}\right) \exp\left(-\frac{t}{\tau_{d,n}}\right), \quad (2.35)$$

1. Die Lösungen der Differentialgleichungen, die die raum- und zeitaufgelöste Dichteverteilung beschreiben, besitzen unendlich viele diskrete Lösungen. Die angegebene Lösung stellt die sogenannte Diffusionsgrundwelle dar. Die höherwertigen Glieder (*Diffusionsoberwellen*) sind aus Gründen der Übersichtlichkeit an dieser Stelle vernachlässigt worden. Je höher deren Ordnung, desto schneller klingen sie ab.

mit  $n_{e0}$  als Elektronendichte im Zentrum der Entladung,  $J_0$  als Besselfunktion erster Gattung nullter Ordnung,  $R$  als Plasmadurchmesser,  $l$  als Länge der aktiven Zone,  $\alpha_1$  als Formfaktor des Elektronendichteprofiles innerhalb der aktiven Zone und  $\cos\left(2\alpha_1\frac{z}{l}\right)$  als axiales Elektronendichteprofil.

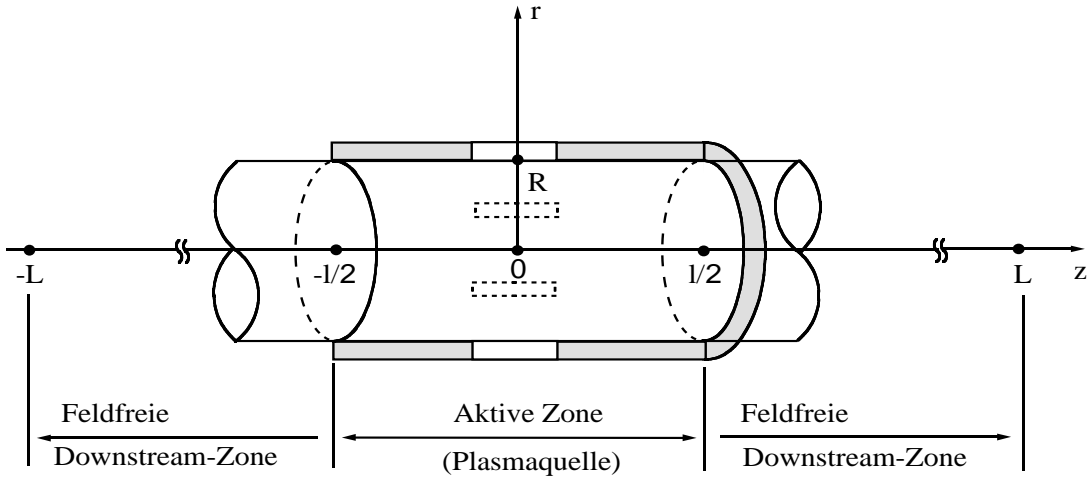


Abbildung 2.5: Idealisierte Darstellung eines beidseitig offenen zylinderförmigen Entladungsgefäßes.

Außerhalb der aktiven Zone, in der *Downstream-Zone* ( $|z| \geq l/2$ ) läßt sich das Elektronendichteprofil beschreiben durch

$$n_e(r, z, t) = n_{ed} J_0\left(2, 405 \frac{r}{R}\right) \exp\left(\kappa\left(1 - \left|2\frac{z}{l}\right|\right)\right) \exp\left(-\frac{t}{\tau_{d,n}}\right) \quad (2.36)$$

mit den Randbedingungen  $n_{ed} = n_{e0} \cos \alpha_1$ ,  $\alpha_1 \tan \alpha_1 = \kappa$ , die sich aus der Forderung nach einem stetigen Elektronendichteprofil und -gradienten an der Übergangsstelle zwischen aktiver Zone und der *Downstream-Zone* ( $|z| = l/2$ ) ergeben.

Der Geometrieoeffizient  $\kappa$  in Gl. 2.36 ergibt sich aus dem Verhältnis der Länge  $l$  zum Radius  $R$  der aktiven Zone:

$$\kappa = \frac{2, 405 l}{2R} . \quad (2.37)$$

Der Geometrieoeffizient beschreibt den Einfluß von Radius  $R$  und Länge  $l$  der aktiven Zone (Abb. 2.5) auf das axiale Elektronendichteprofil  $n_e(z)$  in der *Downstream-Zone*. In offenen zylinderförmigen Entladungen mit  $\kappa \leq 1$  wird das axiale Elektronendichteprofil bestimmt durch die Länge der aktiven Zone  $l$ , als kürzere Entfernung zur Partikelsenke<sup>1</sup>. Je größer der Geometrieoeffizient

efizient, d.h. je länger die aktive Zone im Verhältnis zum Entladungsradius ist, um so stärker wird das axiale Elektronendichteprofil in der *Downstream*-Zone durch den Entladungsradius  $R$  beeinflusst. Für sehr lange offene zylinderförmige Entladungen ( $\kappa \rightarrow \infty$ ) stellt sich ein axiales Elektronendichteprofil ein, daß sich vom Dichteprofil einer geschlossenen zylinderförmigen Entladung der Länge  $l$  nicht unterscheidet (Abb. 2.7).

Die charakteristische *Diffusionslänge*  $\Lambda$  einer offenen zylinderförmigen Entladungsgeometrie mit dem Radius  $R$  und der Länge  $l$  ist gegeben durch die Beziehung:

$$\frac{1}{\Lambda^2} = \left(\frac{2,405}{R}\right)^2 + \left(\frac{2\alpha_1}{l}\right)^2 = \left[1 + \left(\frac{\alpha_1}{\kappa}\right)^2\right] / \Lambda_\infty^2, \quad (2.38)$$

mit  $\Lambda_\infty = R / 2,405$  als die Diffusionslänge einer unendlichen langen offenen zylinderförmigen Entladung ( $\kappa \rightarrow \infty$ ) (ZAKRZEWSKI et al., 1992).

Im Grenzfall  $l \gg R$  („thin cylinder limit“ oder „long discharge limit“) nimmt die Diffusionslänge den Wert  $\Lambda_\infty = R / 2,405$  an und das Verhältnis  $\Lambda_\infty / \Lambda$  beträgt  $\Lambda_\infty / \Lambda = 1$ . Der Radius  $R$  als kürzere Strecke zu der Partikelsenke (Gefäßwände) bestimmt in diesem Fall die Diffusionslänge  $\Lambda$ .

Für  $R \gg l$  nimmt das Verhältnis den Wert  $\Lambda_\infty / \Lambda = \pi / 2\kappa$  an und man spricht von einer „kurzen“ Entladungsgeometrie („Parallelplatten-Limit“). In diesem Fall bestimmt die Länge  $l$  der Entladung die Diffusionslänge  $\Lambda$  (MCDANIEL, 1964, MOISAN und PELLETIER, 1992).

Die Abkling- oder *Diffusionszeit*  $\tau_{d,n}$  in Gl. 2.35 und Gl. 2.36 ist definiert als:

$$\tau_{d,n} = \frac{\Lambda^2}{D_a}, \quad (2.39)$$

mit  $\Lambda$  als charakteristische *Diffusionslänge* gemäß Gl. 2.38 (MCDANIEL, 1964).

### Lösung Diffusionsgleichung für überdichte Plasmen

In Mikrowellenentladungen werden in der Regel höhere Elektronendichten als die kritische Dichte  $n_c$  erreicht ( $n_c > 7,45 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$   $f = 2,45 \text{ GHz}$ , Gl. 2.6). In diesem Fall muß, wie ZAKRZEWSKI et al., 1992 gezeigt haben, die Diffusionslänge  $\Lambda$  modifiziert werden. Die sich im über-

1. Im Fall einer offenen zylinderförmigen Entladung rekombinieren die Elektronen nicht wie im Falle einer geschlossenen Zylindergeometrie an der Gefäßwand, sondern die aktive Zone „verliert“ diffusionsbedingt Elektronen durch die offenen Stirnflächen in Richtung *Downstream*-Zone. Aus diesem Grunde lassen sich diese Flächen aus Sicht der aktiven Zone als Partikelsenke beschreiben. Im Gegensatz zu den Wänden einer geschlossenen zylinderförmigen Entladung verschwindet in der Regel die Elektronendichte auf diesen Flächen nicht.

dichten Plasma einstellende effektive Diffusionslänge  $\Lambda_{eff}$  verkürzt sich, bedingt durch die sehr hohe Ionisationsrate  $v_{iz}$ , in Abhängigkeit von der Entladungsgeometrie um bis zu 20%. Die Abhängigkeit der effektiven Diffusionslänge  $\Lambda_{eff}$  vom Geometrieoeffizienten  $\kappa$  der jeweiligen Entladungsgeometrie (Abb. 2.5) ist in den Abb. 2.6 für Plasmen mit über-, bzw. unterkritischer Dichte dargestellt.

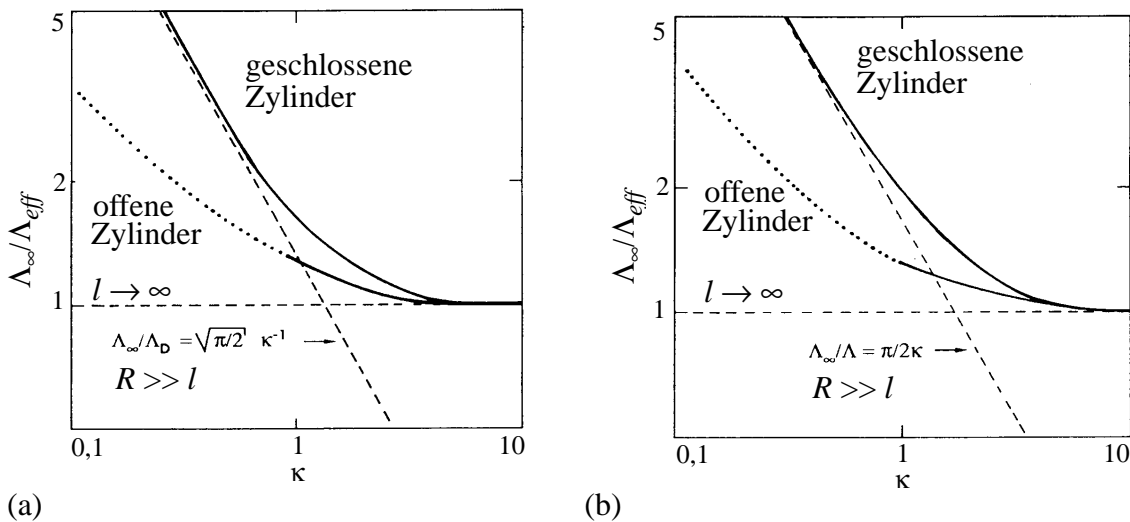


Abbildung 2.6: Einfluß des Geometriefaktors  $\kappa$  auf das Verhältnis  $\Lambda_{\infty}/\Lambda_{eff}$ .  
 (a) Überkritische Elektronendichte. (b) Unterkritischer Elektronendichte  
 (ZAKRZEWSKI et al., 1992).

Neben den Lösungen für offene und geschlossene Zylinderstrukturen sind in den Abbildungen die Grenzfälle für einen „langen“ Entladungszylinder ( $l \gg R$ ,  $\kappa \rightarrow \infty$ ), sowie das sogenannte „Parallelplatten-Limit“ („kurzer“ Entladungszylinder) eingezeichnet. Die in Abb. 2.6 dargestellte Abhängigkeit zwischen  $\kappa$  und  $\Lambda_{eff}$  gilt streng genommen nur unter der Annahme einer radial homogenen  $E$ -Feldverteilung (ZAKRZEWSKI et al., 1992). Diese Annahme ist für großvolumige überdichte Plasmen nicht mehr gerechtfertigt. KORTSHAGEN et al., 1994b haben allerdings gezeigt, daß der Einfluß von  $E$ -Feldinhomogenitäten in „randbeheizten“ überdichten Mikrowellenentladungen auf den globalen Partikelgleichgewichtsprozeß entlang der Entladungslängsachse vernachlässigbar ist<sup>1</sup>. Die Entladungsgeometrie ist der entscheidende Faktor, der die Elektronen-

1. In der Regel weisen alle randbeheizten, großvolumigen Mikrowellenplasmaquellen, die nach dem Schlitzantennen oder Oberflächenwellenprinzip angeregt werden Elektronendichten auf, die über der kritischen Elektronendichte  $n_c$  liegen (Gl. 2.6). In diesem Fall dringen die Mikrowellenfelder nur noch bis zur Skintiefe ( $\sim 1$  mm) in das Plasma ein und evtl. am Rand der Entladung auftretende Störungen werden durch das Plasma zum Zentrum hin abgeschirmt.

dichteverteilung bestimmt, während die in der aktiven Zone von der Feldstärke abhängige Ionisationsfrequenz  $\nu_{iz}$  innerhalb des Plasmavolumens nur eine sekundäre Rolle spielt. Dies bestätigen ebenfalls Messungen an „langen“ Mikrowellenentladungen mit überkritischer Elektronendichte (ZAKRZEWSKI et al., 1992). Wie der Vergleich der in Abb. 2.7 dargestellten Elektronendichteprofile zeigt, stellt sich in Plasmen mit überkritischer Dichte ein deutlich steilerer exponentieller  $n_e(z)$ -Abfall für  $\kappa > 5$  ein als in vergleichbaren Plasmen mit unterkritischer Elektronendichte.

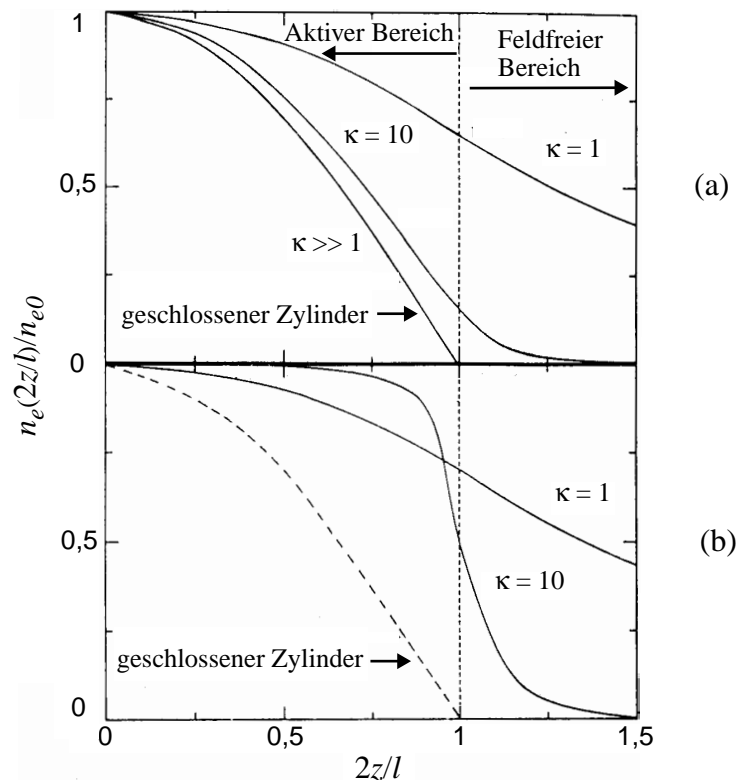


Abbildung 2.7: Normierte Elektronendichteverteilung in Abhängigkeit der auf die Länge der aktiven Zone  $l$  normierten Gesamtlänge einer offenen Zylindergeometrie. (a)  $n_e < n_c$ , (b)  $n_e > n_c$ . (ZAKRZEWSKI et al., 1992).

## 2.3 Mikrowellenentladung

### 2.3.1 Zündphase

Aufgrund kosmischer Höhenstrahlung oder durch Photoionisation existieren in jedem Gas einige freie Elektronen (MACDONALD und TETENBAUM, 1978, MACDONALD, 1966). Wird die Mikrowelle eingeschaltet, so werden diese Elektronen einem elektromagnetischen Feld ausgesetzt. Bei ausreichend hohen Feldstärken  $E = E_z$  (Zündfeldstärke) reicht die Energie, die die Elektronen

im elektrischen Wechselfeld aufnehmen können aus, um die vorhandenen Neutralteilchen im Gas zu ionisieren. Diesen Vorgang nennt man *Feldionisation*.

Unter der Voraussetzung, daß die Ladungsträger durch Elektronenstoßionisation im Volumen generiert werden und die Ladungsträgerverluste größtenteils durch Wandrekombinationsprozesse erfolgen, läßt sich das Zündverhalten durch die nicht stationäre Diffusionsgleichung (Gl. 2.31) beschreiben (WIESEMANN, 1976). Als Lösung für die zeitabhängige Komponente der Diffusionsgleichung erhält man:

$$n_e(t) = n_e(t_0) \exp \left[ -t \left( \frac{D}{\Lambda^2} - \bar{v}_{iz} \right) \right], \quad (2.40)$$

mit  $D$  als Diffusionskonstante und  $\Lambda$  als charakteristische Diffusionslänge der Entladung (Kapitel 2.2.4). Aus der obigen Gleichung läßt sich für den Fall sehr niedriger Anfangselektronendichte das TOWNSEND-Kriterium für den Zünddurchbruch einer Mikrowellenentladung ableiten. Ein Plasma zündet, wenn das Kriterium

$$\bar{v}_{iz} > v_{loss} = \frac{D}{\Lambda^2} \quad (2.41)$$

erfüllt ist. In diesem Fall erreicht die elektrische Feldstärke  $E_z$  einen ausreichend hohen Wert, so daß die Elektronen genügend Energie aufnehmen können, um mehr positive Ionen zu erzeugen als durch Wandverluste verloren gehen und das Plasma zündet. Infolge der zunehmenden Elektronendichte verschiebt sich das Diffusionsregime von freier Diffusion ( $D = D_e$ ) hin zu ambipolarer Diffusion ( $D = D_a$ ). Die ambipolare Diffusion der Ladungsträger herrscht vor, wenn die Bedingung  $\lambda_D \ll \Lambda$  erfüllt ist (MOISAN und PELLETIER, 1992). Für eine Entladung mit einer Diffusionslänge von  $\Lambda = 6$  cm ist dies oberhalb von Elektronendichten  $n_e > 3 \cdot 10^6$  cm<sup>-3</sup> gegeben.

Die Entladung erreicht ihren stationären Gleichgewichtszustand, wenn das räumlich gemittelte Partikelgleichgewicht zwischen Erzeugung und Verlusten erreicht ist:

$$\bar{v}_{iz} = v_{loss} = \frac{D_a}{\Lambda^2}. \quad (2.42)$$

Für niederfrequentleistungsmodulierte Plasmen ändert sich die Zündkurve in Abhängigkeit vom Tastverhältnis<sup>1</sup>, wie die nachfolgende Abbildung (Abb. 2.8) zeigt, nur geringfügig im Vergleich

1. Das Tastverhältnis wird in dieser Arbeit definiert als das Verhältnis von Pulsdauer  $t_{on}$  zur Pulsperiode  $T$  ( $t_{on}/T$ ). Die Angabe erfolgt in Prozent

zur cw Zündkurve. Mit zunehmendem Tastverhältnis nimmt die benötigte Zündfeldstärke leicht ab und nähert sich der cw Zündkurve an.

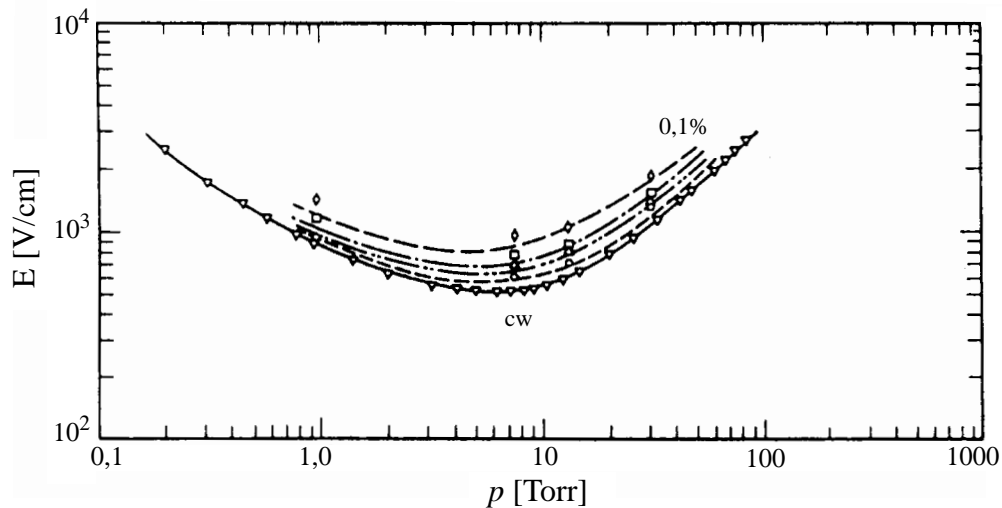


Abbildung 2.8: Pulsfrequenz- und druckabhängige Zündfeldstärke für gepulste mikrowellenangeregte Luft. Pulsfrequenz: 1 kHz, Tastverhältnis (von oben nach unten): 0,1%, 0,3%, 0,5%, 2%, cw. Mikrowellenfrequenz: 9,4 GHz,  $\Lambda = 0,4$  cm (MACDONALD, 1966).

### 2.3.2 „Global Model“ stationärer Mikrowellenentladungen

Verzichtet man auf Informationen über die ortsabhängige Ladungsträgerdichte bzw. -energie so läßt sich der stationäre Zustand einer Mikrowellenentladung global, d.h. räumlich gemittelt, durch zwei wesentliche Eigenschaften charakterisieren:

1. Partikelgleichgewicht der Ladungsträger.
2. Gleichgewicht der Leistungsbilanz.

Im vorangegangenen Abschnitt wurde bereits gezeigt, das Gl. 2.42 erfüllt sein muß, damit das Partikelgleichgewicht im stoßbestimmten diffusiven Fall gewährleistet ist. Die sich in diesem Fall einstellenden Ladungsträgerdichteverteilungen wurden in Kapitel 2.2.4 diskutiert (Gl. 2.35/ Gl. 2.36). Für die detaillierte Betrachtung des sich für ein stoßbestimmtes Plasma einstellenden Ladungsträgergleichgewichts innerhalb des feldfreien Bereiches einer offenen zylinderförmigen Entladungsgeometrie (Abb. 2.5) sei auf Kapitel A.4 im Anhang verwiesen.

Zusätzlich zum Partikelgleichgewicht muß die Leistungsbilanz gewährleistet sein. Die von den Elektronen aufgenommene Leistung  $P_{abs}$  ist gleich der Summe aller Leistungsverluste, die die Elektronen über ihre Stöße an Gasmoleküle, bzw. Atome und die Wand oder durch verlassen

des betrachteten Volumens abgeben:

$$P_{abs} = P_{ec} + P_{w,i} + P_{w,e}, \quad (2.43)$$

mit  $P_{ec}$  als Summe der durch Kollisionsprozesse entstehenden Elektronenergieverluste und  $P_{w,i}$ , bzw.  $P_{w,e}$  als Summe der Ionenenergie-, bzw. Elektronenenergieverluste an der Wand oder bei offenen Systemen in benachbarte Volumina.

Der durch elastische/inelastische Elektronenstöße verursachte Leistungsverlust  $P_{ec}$  der Elektronen läßt sich durch die Beziehung

$$P_{ec} = en_e n_n V_p (K_{el} \epsilon_{el} + \sum_i K_{iz,i} \epsilon_{iz,i} + \sum_i K_{ex,i} \epsilon_{ex,i}), \quad (2.44)$$

beschreiben. Hierbei sind  $K_{iz,i}$ ,  $K_{ex,i}$  und  $K_{el}$  die jeweiligen Ratenkonstanten (Kapitel 2.2.2) und  $\epsilon_{iz}$ ,  $\epsilon_{ex}$  und  $\epsilon_{el}$  der Energieverlust pro Anregungs-, Ionisations- und elastischen Stoß,  $n_n$  die Neutralteilchendichte,  $V_p$  das Plasmavolumen. Betrachtet man molekulare Gase, müssen in Gl. 2.44 u.a. noch die Dissoziations- sowie Rotations- und Vibrationszuständen berücksichtigt werden. In Abb. 2.9 ist für Argon- und Sauerstoffatome der Energieverlust pro erzeugtem Elektronen-Ionenpaar  $\epsilon_c = \frac{1}{K_{iz}} \sum_i K_i \epsilon_i$  in Abhängigkeit von der effektiven Elektronentemperatur  $T_e$  (Gl. 2.16) dargestellt.

Die Wandverluste  $P_{Wand}$  werden durch den Ionen- und Elektronenfluß (Gl. 2.10/Gl. 2.27) zur Wand verursacht. Der Anteil der Leistungsverluste, bedingt durch die Ionenwandverluste, beträgt für die sich an die aktive Zone anschließende *Downstream*-Zone der Länge  $L$  und des Durchmessers  $R$  (Kapitel A.4.2)

$$P_{i,w} = \left( eV_s + \frac{1}{2} kT_e \right) (\Gamma_{iz}(L) A_L + \Gamma_{ir}(R) A_R), \quad (2.45)$$

mit  $\Gamma_z(L)$  als axialer Fluß der Ionen an der Position  $z = L$ ,  $A_L$  als Fläche der axialen Stirnfläche ( $\pi R^2$ )<sup>1</sup>,  $\Gamma_r(R)$  als radialer Fluß der Ionen an der Position  $r = R$ ,  $A_R$  als Oberfläche der Mantelfläche ( $2\pi RL$ ) und  $V_s$  als Randschichtpotential für Ionen mit der Atommassenzahl  $M$ :

$$V_s = \frac{kT_e}{2e} \ln \left( \frac{M}{2\pi m_e} \right) \quad (2.46)$$

1. Für eine beidseitig geschlossene Zylindergeometrie gilt:  $A_L = 2\pi R^2$



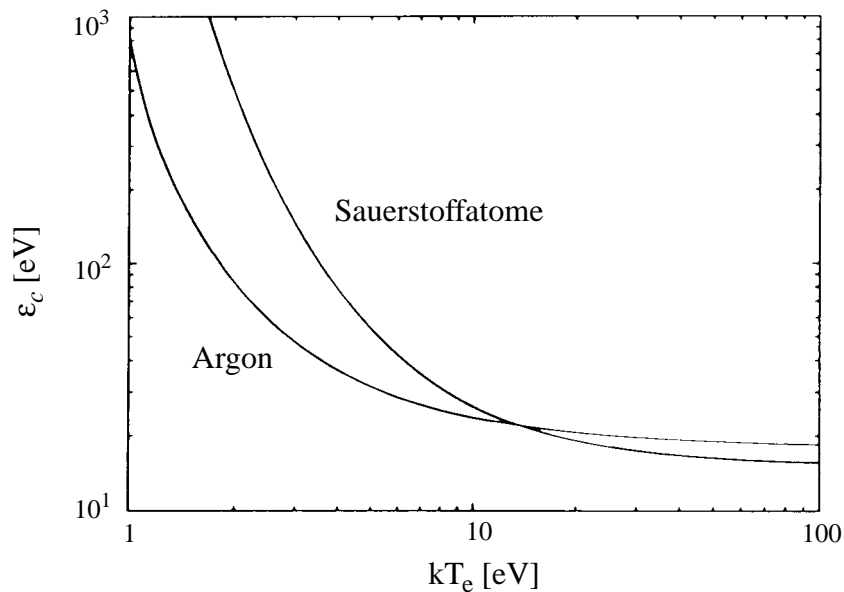


Abbildung 2.9: Energieverlust pro generiertem Elektronen-Ionenpaar,  $\varepsilon_c$  als Funktion der Elektronentemperatur (LIEBERMAN und LICHTENBERG, 1994)

(LEE und LIEBERMAN, 1995).

Der Anteil der Leistungsverluste, bedingt durch Elektronenwandverluste, ergibt sich aus der Beziehung:

$$e_{,w} = 2kT_e(\Gamma_{ez}(L)A_L + \Gamma_{er}(R)A_R). \quad (2.47)$$

Unter Berücksichtigung der vorangehend erläuterten Beziehungen erhält man die globale Leistungsbilanz für die *Downstream-Zone* im stationären Zustand:

$$P_{abs} = e\varepsilon_T(\Gamma_z(L)A_L + \Gamma_r(R)A_R), \quad (2.48)$$

mit  $\varepsilon_T = \varepsilon_c + eV_s + \frac{5}{2}kT_e$  (LIEBERMAN und LICHTENBERG, 1994).

Aus der stationären Ladungsträgerbilanzgleichung läßt sich, wie im Anhang (Kapitel A.4.2) gezeigt wird, die räumlich gemittelte Elektronentemperatur bestimmen. Die räumlich gemittelte Elektronendichte erhält man aus der Leistungsbilanzgleichung (MOISAN und PELLETIER, 1992).

## 2.4 Theorie leistungsmodulierter Mikrowellenplasmen

Aufgrund der zunehmenden Bedeutung gepulster stoßfreier Plasmen in der Halbleiterindustrie haben ASHIDA und LIEBERMAN nach einem möglichst einfachen theoretischen Beschreibungsansatz gepulster stoßfreier Plasmen gesucht. Im Gegensatz zu der schwierig zu interpretie-

renden und nur mit hohem numerischen Aufwand zu erzielenden Lösung der zeitabhängigen BOLTZMANN-Gleichung (WINKLER et al., 1984, BAEVA et al., 1998) sollten die Ergebnisse ihres Ansatzes einfach ohne großen Rechneraufwand zu erzielen sein. Desweiteren sollten die Lösungen ihres Modells einfach zu interpretieren sein und die wesentlichen physikalischen Mechanismen, die den Unterschied zwischen stationären und gepulsten Plasmen verursachen, offenlegen. Das von ihnen vorgeschlagene Modell stützt sich auf das für stationäre stoßfreie Plasmen entwickelte räumlich gemittelte Modell („Global Model“) von LEE et al., 1994 und wird aus diesem Grund als „Global Model“ gepulster Plasmen bezeichnet.

### 2.4.1 „Global Model“ gepulster Plasmen

LIEBERMAN und ASHIDA haben mit dem „Global Model“ 1995 ein ortsunabhängiges, räumlich gemitteltes (global) Modell für gepulste stoßfreie<sup>1</sup> Plasmen entwickelt, das im wesentlichen auf dem zeitabhängigen Energie- und Partikelerhaltungssatz basiert (Kapitel 2.2.1/Kapitel 2.3.2). Die aus den fundamentalen Erhaltungssätzen des Plasmas abgeleiteten einfachen Zusammenhänge ermöglichen grundlegende Einsichten in die physikalischen Mechanismen gepulster stoßfreier Plasmen (ASHIDA et al., 1995, LIEBERMAN und ASHIDA, 1996).

Der Geltungsbereich des „Global Model“ erstreckt sich auf Plasmen, die dem stoßfreien diffusiven Transport unterliegen. Für diese Plasmen gilt  $\lambda_i > \frac{T_i}{T_e}(R, L)$  (Kapitel 2.2.4). Weitere Randbedingungen des „Global Model“ sind:

- Homogene räumliche Verteilung der Plasmaparameter ( $T_e, n_e$ ) über dem gesamten Plasmavolumen.
- Ionisation und Anregung geschieht ausschließlich durch Elektronen-Neutralteilchen Kollisionen.
- Mehrstufige Ionisation oder PENNING-Ionisation werden vernachlässigt.
- Rekombination findet ausschließlich an den Gefäßwänden statt.
- Stoßfreier Ladungsträgertransport.
- Ambipolare gleichgroße, zeitunabhängige Ionen- und Elektronenflüsse zur Wand.

---

1. Stoßfrei bedeutet in diesem Fall, daß der Druck so gering ist, daß die Ladungsträger ohne Stöße mit den Neutralteilchen bis zur Wand gelangen, wo sie rekombinieren. In der Regel gilt dies nur für Plasmen mit sehr niedrigem Druck ( $p < 1\text{Pa}$ ), oder für Plasmen mit sehr kleinen Abmessungen.

- die Quasi-Neutralität ist gewährleistet ( $n_e(t) = n_i(t)$ ).

Unter diesen Bedingungen lautet die räumlich gemittelte instationäre Ladungsträgerbilanz:

$$\frac{1}{n_e} \frac{dn_e}{dt} = v_{iz}(t) - v_{loss}(t), \quad (2.49)$$

mit  $v_{iz}$  als Ionisation-,  $v_{loss}$  als Verlustfrequenz (Kapitel 2.2.2).

Möchte man neben dem zeitabhängigen Verhalten der Ladungsträgerdichte auch das zeitabhängige Verhalten von angeregten oder Grundzustandsdichten im Modell mitberücksichtigen, so läßt sich analog zu Gl. 2.49 die instationäre Bilanzgleichung für durch Elektronenstoß angeregte atomare/molekulare Zustände aufstellen:

$$\frac{dn_x}{dt} = Z_M \sum_i n_j v_i(t) - \sum_x v_{xloss}(t) n_x, \quad (2.50)$$

wobei  $Z_M$  die Anzahl der durch den Stoß entstandenen Molekülfragmente,  $n_j$  die Dichte des Ausgangszustandes und  $v_i$  die inelastische Kollisionsfrequenz und  $v_{xloss}$  die Verlustfrequenz des  $x$ 'ten Verlustprozesses des erzeugten Zustandes darstellt.

Das zeitabhängige Verhalten der Elektronentemperatur  $kT_e(t)$  ergibt sich aus der instationären Energiebilanz

$$\frac{1}{kT_e} \frac{dkT_e}{dt} = \frac{P_{abs}}{W_e} - \left( \frac{2}{3} \frac{\epsilon_c}{kT_e} + 1 \right) v_{iz}(t) - \left( \frac{2}{3} \frac{eV_s + \frac{5}{2}kT_e}{kT_e} - 1 \right) v_{loss}(t), \quad (2.51)$$

hierbei sind  $P_{abs}$  die im Plasma absorbierte Leistung (Kapitel 2.3.2),  $W_e$  die Plasmaenergie  $W_e = 3/2kT_e n_e V_p$ ,  $v_{iz} = K_{iz} n_n$  die Ionisationsfrequenz (Gl. 2.19-Gl. 2.22),  $\epsilon_c$  der Energieverlust pro erzeugtem Elektron-Ionenpaar (Abb. 2.9),  $V_s$  die Randschichtspannung (Gl. 2.47) und  $v_{loss}$  die Verlustfrequenz.

Die  $n_e(t)$  und  $T_e(t)$  in Abhängigkeit von Pulsfrequenz und Tastverhältnis erhält man aus der Lösung der Partikel- und Energiebilanzgleichung. Zur Lösung der Gl. 2.50 und Gl. 2.51 wird in erster Näherung davon ausgegangen, daß  $v_{loss}$  und  $v_{iz}$  zeitunabhängig sind. Dies ist zumindest für die Betrachtung des zeitabhängigen Elektronendichteverlaufs statthaft, da beide Größen in erster Linie eine Funktion der Elektronentemperatur darstellen und diese wesentlich schneller der Leistungsmodulation folgt als die Elektronendichte. Zum Zeitpunkt des Einschaltens des Leistungs-

pulses ( $t = t_{on}$ ) gilt die Randbedingung  $v_{loss} \ll v_{iz}$  und die Verlustterme in den Gl. 2.49 und Gl. 2.51 sind zu vernachlässigen. Das Gleichungssystem vereinfacht sich in diesem Fall zu:

$$\frac{1}{n_e} \frac{dn_e}{dt} \approx v_{iz}, \quad (2.52)$$

$$\frac{1}{kT_e} \frac{dkT_e}{dt} \approx \frac{P_{abs}}{W_e} - \left( \frac{2}{3} \frac{\epsilon_c}{kT_e} + 1 \right) v_{iz}. \quad (2.53)$$

Nach Abschalten des Leistungspulses ( $t > t_{off}$ ) gilt in Näherung  $v_{loss} \gg v_{iz}$  und die Erzeugungsterme sind zu vernachlässigen:

$$\frac{1}{n_e} \frac{dn_e}{dt} \approx -v_{loss} \quad (2.54)$$

$$\frac{1}{kT_e} \frac{dkT_e}{dt} \approx - \left( \frac{2}{3} \frac{V_s + \frac{5}{2} kT_e}{kT_e} - 1 \right) v_{loss}. \quad (2.55)$$

Der stationäre Zustand ist erreicht, wenn die Bedingung  $v_{loss} = v_{iz}$  erfüllt ist. Unter der Voraussetzung, daß die im Plasma absorbierte Leistung  $P_{abs}(t)$  in endlicher Zeit ansteigt, erhält man als Lösung der DGL für die Puls-, „an“ und Puls-, „aus“ Phase für den zeitlichen Verlauf der Elektronentemperatur  $kT_e(t)$ :

$$\text{MW-Puls-, „an“ Phase, } t_{on} < t < \tau_{MW}: \quad kT_e(t) \approx \frac{2}{3} \tau_{MW} \left( \frac{P_{max}}{kn_e V_p} + n_n \epsilon_c K_{iz} \right) - kT_{emin}, \quad (2.56)$$

$$\text{MW-Puls-, „aus“ Phase, } t_{off} < t < T: \quad kT_e(t) \approx kT_{e\infty} \frac{1}{(1 + 2v_{loss}(t - t_{off}))^2}, \quad (2.57)$$

mit  $\tau_{MW}$  als Anstiegszeit der absorbierten Mikrowellenleistung,  $V_p$  als Plasmavolumen,  $kT_{emin}$  als Elektronentemperatur zu Beginn der Zündphase, mit  $V_p$  als Plasmavolumen,  $T_{e\infty}$  als Elektronentemperatur im eingeschwungenen, stationären Zustand und  $T$  als Periodendauer der gepulsten Leistung.

Die Lösung für den zeitabhängigen Verlauf der Elektronendichte  $n_e(t)$  lautet:

$$\text{MW-Puls-, „an“ Phase } t_{on} < t < t_{off}: \quad n_e(t) \approx n_{e\infty} - (n_{e\infty} - n_{emin}) \exp(-v_{loss}t), \quad (2.58)$$

$$\text{MW-Puls-„aus“ Phase } t_{\text{off}} < t < T: \quad n_e(t) \approx n_{e\text{max}} \frac{1}{\sqrt{1 + 2\nu_{\text{loss}}(t - t_{\text{off}})}} \quad (2.59)$$

mit  $n_{e\infty}$  als Elektronendichte im eingeschwungenen Zustand,  $n_{e\text{min}}$  als Elektronendichte zum Zeitpunkt des Einschaltens des Leistungspulses und  $n_{e\text{max}}$  als Elektronendichte zum Zeitpunkt des Ausschaltens des Leistungspulses  $t = t_{\text{off}}$ .

Wie die Grundgleichungen des „Global Model“ (Gl. 2.56-Gl. 2.59) zeigen, wird bis auf das Anstiegsverhalten der Elektronentemperatur  $T_e(t)$  (Gl. 2.56) das Zeitverhalten der Elektronendichte  $n_e(t)$  und -temperatur  $T_e(t)$  durch die Verlustfrequenz  $\nu_{\text{loss}}$  bestimmt. Im Gegensatz zu stoßbestimmten Plasmen ist in stoßfreien Plasmen die Verlustfrequenz näherungsweise ortsunabhängig und gegeben durch  $\nu_{\text{loss}} = u_B/\Lambda_{\text{eff}}$ , mit  $u_B$  als BOHM- oder Ionenschallgeschwindigkeit (siehe Anhang Kapitel A. A.4, Gl. A.A.4.7) und  $\Lambda_{\text{eff}}$  als effektive Diffusionslänge der Entladung (siehe Kapitel 2.2.4).

In Abb. 2.10 sind die Ergebnisse des Global Model zum zeitabhängigen Verlauf der Elektronendichte, Temperatur sowie die Dichte zweier angeregter Zustände am Beispiel eines gepulsten Argonplasmas für Pulsfrequenzen von 100 kHz und 1 kHz dargestellt. Wie man den Abbildungen entnehmen kann, nimmt laut Global Model mit zunehmender Pulsfrequenz die Amplitude der Elektronendichte  $n_e(t)$  ab und nähert sich mit steigender Frequenz dem äquivalenten cw-Dichtewert an. Mit zunehmender Pulsfrequenz ist die Elektronendichte nicht mehr in der Lage, der Leistungsmodulation zu folgen. Die zeitabhängige Elektronendichte  $n_e(t)$  nimmt den konstanten Wert  $n_e(t) \approx n_{e,\text{cw}}$  an. Bei niedrigen Pulsfrequenzen übersteigt die Amplitude der Elektronendichte jedoch den cw-Wert. Die Elektronentemperatur  $T_e(t)$  steigt sofort sehr schnell nach Einschalten des Leistungspulses an. Die Anstiegszeit der Elektronentemperatur wird lediglich begrenzt durch die Anstiegszeit des Leistungs-Pulses (ASHIDA et al., 1995). Verglichen mit der Elektronendichte folgt für hohe Pulsfrequenzen die zeitabhängige Elektronentemperatur  $T_e(t)$  der Pulsmodulation stärker, wenn auch für hohe Pulsfrequenzen nur noch schwach. Anders als die Elektronendichte  $n_e(t)$  nimmt die zeitabhängige  $T_e(t)$ -Amplitude für hohe Pulsfrequenzen nicht den cw-Wert an, sondern schwingt, der Pulsmodulation folgend, dicht um den cw-Wert. Das unterschiedliche Anstiegsverhalten von Elektronentemperatur und -dichte (Gl. 2.56/Gl. 2.58) führt für niedrige Pulsfrequenzen kurz nach dem Einschalten des Leistungspulses zu einem Überschwingen der Elektronentemperatur  $T_e(t)$  auf den gemäß Gl. 2.56 vorgegebenen maximal erreichbaren  $T_e(t)$ -Wert.

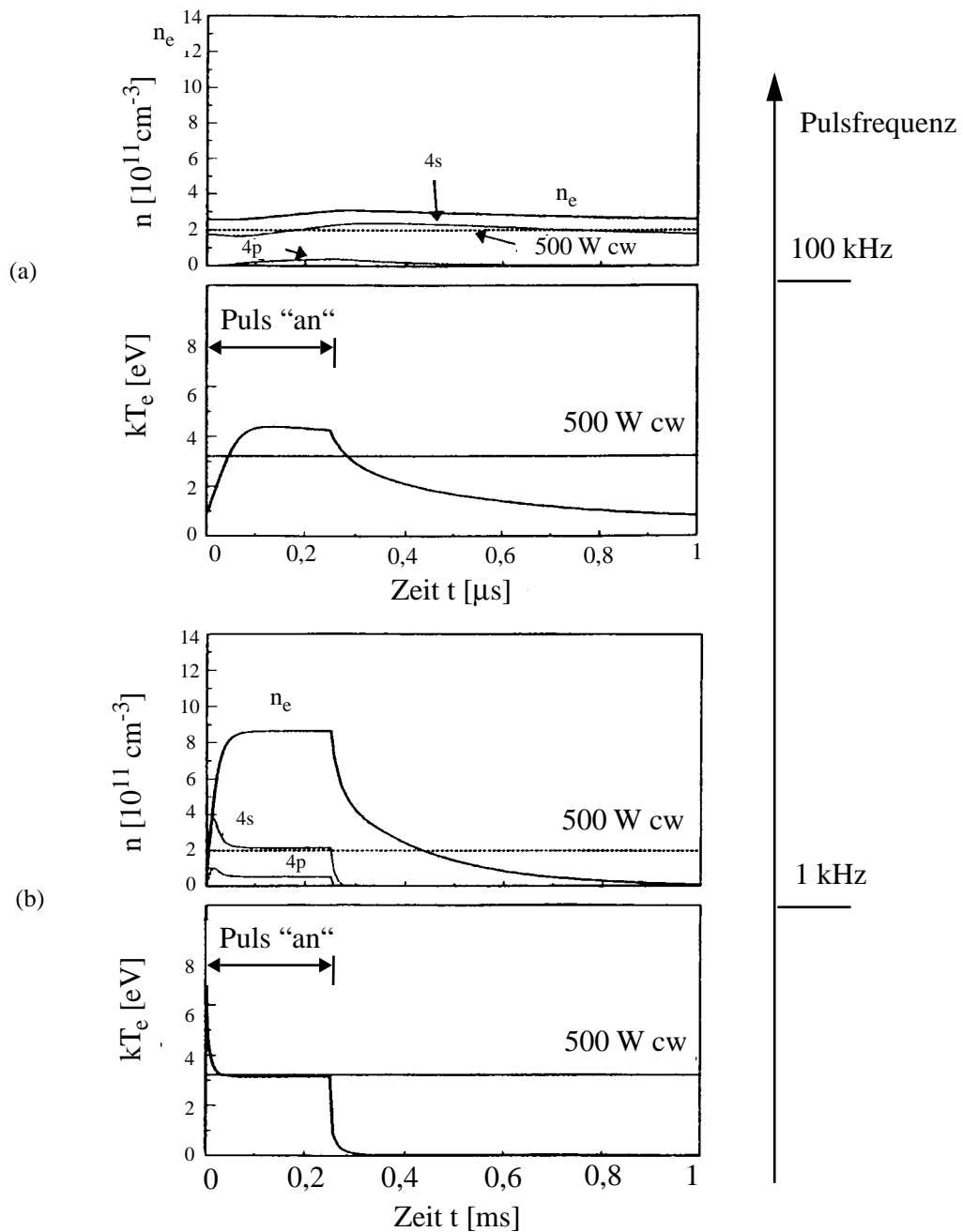


Abbildung 2.10: Ergebnisse des „Global Model“ zum zeitabhängigen Verlauf der Elektronendichte  $n_e(t)$ , der Elektronentemperatur  $T_e(t)$  und der Dichte der angeregten Argonatomzustände 4s und 4p in einem gepulsten stoßfreien Argonplasma für (a) 100 kHz und (b) 1 kHz.

Mittlere Leistung  $\bar{P}_{MW} = 500$  W, Druck  $p = 0,7$  Pa (ASHIDA et al., 1995).

Sobald die Elektronendichte merklich ansteigt, fällt die Elektronentemperatur auf den eingeschwungenen stationären Wert  $T_{e\infty}$  zurück, der für die verbleibende Pulsdauer konstant bleibt (Abb. 2.10b). Der stationäre  $T_{e\infty}$ -Wert entspricht dem  $T_{e,cw}$ -Wert, den man erhalten würde, wenn

dem Plasma im Dauerstrichbetrieb die gleiche Leistung wie die mittlere Pulsleistung zugeführt werden würde.

Der Überschwinger der Elektronentemperatur wird verursacht durch die bei niedrigen Pulsfrequenzen vor dem Anschalten des Pulses nur noch sehr geringe Ladungsträgeranzahl. Die gleiche Leistung verteilt sich zu Beginn des Pulses auf eine geringere Anzahl von Elektronen.

Ein wesentlicher Unterschied zwischen gepulsten und cw-Plasmen liegt laut „Global Model“ in der signifikant höheren Elektronendichte während der Pulsdauer. Die zeitlich gemittelte Elektronendichte, normiert auf die äquivalente cw-Dichte  $n_{e,cw}$ , läßt sich aus dem Integral über den zeitlichen Verlauf der Elektronendichte ermitteln:

$$\frac{\bar{n}_e}{n_{e,cw}} = \frac{1}{T n_{e,cw}} \int_0^T n_e(t) dt \approx 1 + \frac{(\sqrt{1 + 2v_{loss}t_{off}} - 1)^2 (1 - \exp(-v_{loss}t_{on}))}{v_{loss}t_{on}(\sqrt{1 + 2v_{loss}t_{off}} - \exp((-v_{loss})t_{on}))}. \quad (2.60)$$

Die äquivalente cw-Dichte  $n_{e,cw}$  ist die Elektronendichte, die man bei einer der mittleren Pulsleistung  $\bar{P}$

$$P_{cw} = \bar{P} = \frac{1}{T} \int_0^T p(t) dt \quad (2.61)$$

äquivalenten cw-Leistung  $P_{cw}$  erhalten würde.

Aus Gl. 2.60 folgt, daß die zeitlich gemittelte Dichte in erster Linie eine Funktion der Verlustrate  $v_{loss}$ , der Pulsfrequenz und dem Verhältnis von Pulsdauer zu Pulspause, dem Tastverhältnis ist. In Abb. 2.11(a) ist die aus Gl. 2.60 bestimmte pulsfrequenzabhängige Höhe der normierten mittleren Elektronendichte  $\bar{n}_e/n_{e,cw}$  für unterschiedliche Verlustraten dargestellt. Abb. 2.11(b) zeigt die pulsfrequenzabhängige Höhe der normierten mittleren Elektronendichte  $\bar{n}_e/n_{e,cw}$  in Abhängigkeit des Tastverhältnisses. Wie in Abb. 2.11(a) zu erkennen ist, nimmt mit zunehmender Verlustrate die Pulsfrequenz, bei der die zeitlich gemittelte Elektronendichte  $\bar{n}_e$  maximal wird, zu. Die Pulsdauer, bzw. das Tastverhältnis bestimmt den Wert, um den die mittlere Elektronendichte  $\bar{n}_e$  die äquivalente cw-Dichte  $n_{e,cw}$  übersteigt. Je kürzer die Pulsdauer, desto höher wird  $\bar{n}_e$  im Vergleich zum cw-Wert (siehe Abb. 2.11(b)), während mit zunehmender Pulsdauer  $\bar{n}_e$  sich dem cw-Wert annähert.

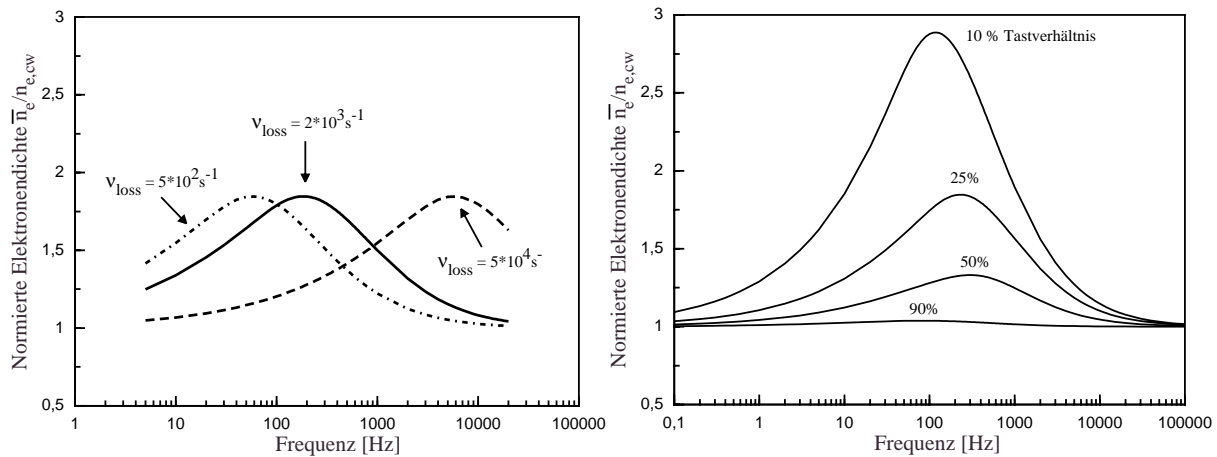


Abbildung 2.11: Normierte, zeitlich gemittelte Elektronendichte in Abhängigkeit von der Pulsfrequenz.  
 (a) Unterschiedliche Verlustraten, Tastverhältnis 25% (b) unterschiedliche Tastverhältnisse, Verlustrate konstant.

Wird das Plasma nicht mit einem idealen rechteckförmigen Leistungspuls, sondern mit einer Pulsform endlicher Anstiegszeit moduliert, so nähert sich, wie ASHIDA et al., 1995 gezeigt haben, mit zunehmender Pulsanstiegszeit das zeitabhängige Verhalten der Elektronendichte- und temperatur dem cw Verhalten an. Ändert sich die Modulationsform bei gleichbleibender Leistungsamplitude und Pulsfrequenz von einem idealen Rechteckpuls hin zu einem sinusförmigen Signal, so verringert sich die Höhe des  $\bar{n}_e$  Maximums um ca. 50% und die zeitlich gemittelte Elektronentemperatur  $\bar{T}_e$  verdoppelt sich (ASHIDA et al., 1995).

Erste Untersuchungen an stoßfreien kapazitiv und induktiv gekoppelten HF-Entladungen zeigen trotz der Simplifizierungen, die dem „Global Model“ gepulster Plasmen zugrunde liegen, eine gute Übereinstimmung zwischen Modell und den Meßresultaten (SMITH und OVERZET, 1998, ASHIDA et al., 1996).



---

## Kapitel 3

### Diagnostik gepulster großvolumiger Plasmen

Zur Bestimmung der Plasmaeigenschaften reicht häufig die Kenntnis der äußeren Parameter einer Entladung (Druck, Gasart, -fluß, zugeführte Leistung, Geometrie) nicht aus. Im Fall leistungsmodulierter Plasmen kommen als weitere zusätzliche äußere „Knöpfe“ zur Beeinflussung der Plasmaeigenschaften die Pulsfrequenz und das Tastverhältnis hinzu. Diese äußeren Parameter wirken zusammen auf das gepulste Plasma ein und bestimmen über die im vorangegangenen Kapitel beschriebenen Mechanismen die wesentlichen „inneren“ Plasmaparameter wie Elektronendichte  $n_e(t)$  und -temperatur  $T_e(t)$ . Die Wechselwirkung der durch Elektronenstoßprozesse entstandenen Ionen und Radikale im gepulsten Plasma mit der Substratoberfläche sind ausschlaggebend für die meisten additiven oder subtraktiven Pulsplasma-Substratwechselwirkungen. Die Hauptaufgabe der Plasmadiagnostik ist, die in Abb. 3.1 schematisch dargestellten Zusammenhänge zwischen äußeren und inneren Parametern festzustellen und die zugrundeliegenden Wirkmechanismen aufzuklären.

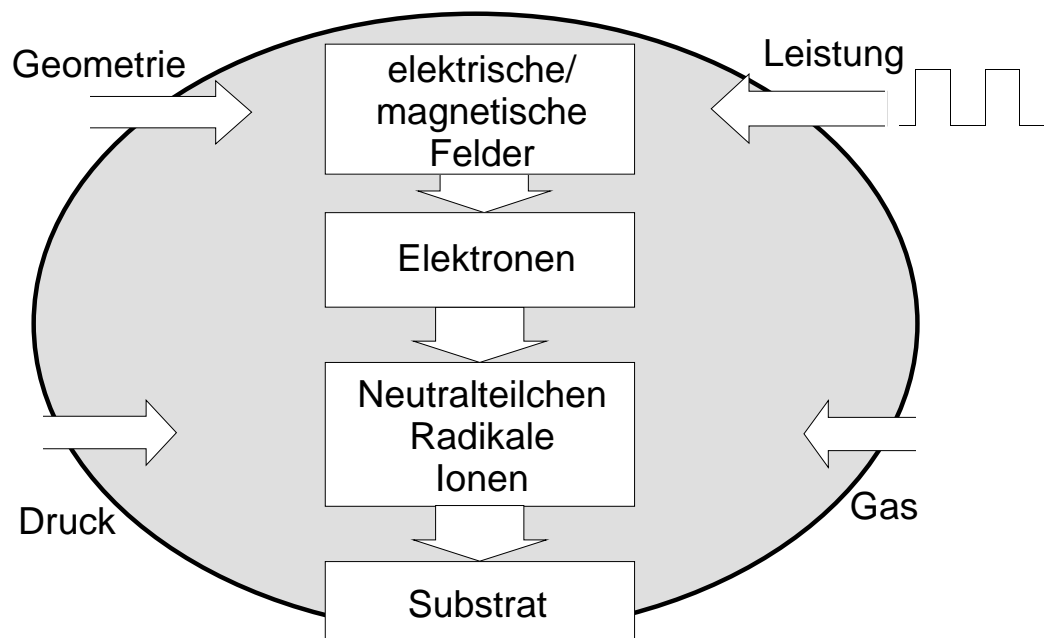


Abbildung 3.1: Grundlegender Zusammenhang zwischen „äußeren“ und „inneren“ Plasmaparametern.

Denn nur bei genauer Kenntnis der Wirkmechanismen ist es möglich, schnell und kostengün-

stig optimale Plasmaprozesse zu entwickeln und zeit- und kostenaufwendige „try and error“ Versuchsreihen zu vermeiden. Desweiteren ermöglicht ein exaktes Verständnis der Zusammenhänge die Entwicklung von maßgeschneiderten Prozeßanlagen, die ein reproduzierbares, optimales Prozeßergebnis gewährleisten. Dies ist eine wesentliche Voraussetzung für die industrielle Umsetzbarkeit von Plasmaprozessen. Ohne Nutzung der zeitaufgelösten Plasmadiagnostik und somit ohne Kenntnis des zeitabhängigen Verhaltens der inneren Plasmamparameter ist eine Verbesserung oder gar Kontrolle eines Puls-Plasmaprozesses in der Regel nur ein Zufallsergebnis.

Die einsetzbaren Diagnostikmethoden reichen von Sonden zur Bestimmung der Elektronendichte und -temperatur über aktive und passive Meßverfahren zur Detektion elektromagnetischer Strahlung bis hin zur Teilchendiagnostik. Tabelle 3.1 gibt eine Übersicht über einige wesentliche Diagnostikmethoden. Hierbei sind aktive Diagnostiken Verfahren, die durch das Einbringen einer externen Größe (Spannung, Strahlung, etc.) in das Plasma Informationen über das Plasma gewinnen. Passive Verfahren hingegen verwerten lediglich die vom Plasma selbst abgegebenen Signale.

<b>Aktive elektrische Verfahren</b>	<b>Aktive optische Verfahren</b>	<b>Passive optische Verfahren</b>	<b>Teilchendiagnostik</b>
Langmuir-Sonde	Laserinterferometrie	(Planare)Optische Emissions-spektroskopie	Massenspektrometer - Quadrupol - Time of flight - Plasmamonitor
Doppelsonde	Streuung: - Rayleigh - Raman - Thomson		Restgasanalysator
Mikrowelleninterferometrie	Laserabsorptionsspektroskopie		
Plasmaoszillationssonde	Cavity-RingDown Spectroscopy		
Gegenfeldanalysator	Laserfluoreszenzspektroskopie		

Tabelle 3.1: Methoden der Plasmadiagnostik. (LOCHTE-HOLTGREVEN, 1995, DÖBELE, 1995, BEHLE et al., 1997a, GODYAK et al., 1992, BROCKHAUS et al., 1994, HEALD und WHARTON, 1978, SCHWABEDISSEN et al., 1998).

Mit zunehmender technologischer Relevanz leistungsmodulierter Plasmen (Kapitel 1.2) steigt in jüngster Zeit der Bedarf nach passiven sowie aktiven orts- und zeitaufgelösten Meßme-

thoden. Die genutzten Meßmethoden sollten eine ausreichend hohe Zeitauflösung aufweisen und möglichst auch im industriellen Umfeld zur späteren Kontrolle und Steuerung gepulster Plasma-prozesse einsetzbar sein.

Das zeitabhängige Verhalten der Ladungsträger in einem gepulsten Plasma läßt sich am einfachsten durch den Einsatz aktiver elektrischer Meßverfahren ermitteln.

### 3.1 Elektrische Verfahren

In Tabelle 3.2 ist eine Übersicht über die unterschiedlichen Methoden zur Bestimmung des zeitabhängigen  $n_e(t)$ ,  $T_e(t)$  Verhaltens mit ihren Vor- und Nachteilen aufgeführt.

Methoden	$n_e$ [cm <sup>-3</sup> ]	$kT_e$ [eV]	Druck [Pa]	$\Delta t_{min}$ [ns]	Bemerkungen
LANGMUIR-Sonde	$10^8 < n_e < 10^{13}$	$0,1 < kT_e < 10$	$\leq 100$	$\geq 500$	schwierig in beschichtenden Plasmen. hohe Ortsauflösung
Doppelsonde	$10^8 < n_e < 10^{13}$	$0,1 < kT_e < 10$	$\leq 100$	$\geq 500$	
THOMSON-Streuung	$n_e > 10^{11}$	Ja		$\geq 100$	aufwendig, hohe Ortsauflösung
Mikrowelleninterferometrie	$10^9 < n_e < 10^{13}$	Nein	$\leq 1000$	$\geq 50$	Sichtlinienintegriert
Plasmaoszillation	$10^9 < n_e < 10^{13}$	Nein	$\leq 15$	$\geq 1000$	einsetzbar in beschichtenden Plasmen, geringe Zeitauflösung
Laserinterferometrie	$n_e > 10^{11}$	Nein	$\leq 10$	$\geq 100$	Aufwendig

Tabelle 3.2: Diagnostikmethoden zur Bestimmung des zeitabhängigen Elektronendichte und -temperaturverlaufs. (GODYAK et al., 1995-1992, BEHLE et al., 1997c, SMITH und OVERZET, 1998, SOLTWITSCH und KACZOR, 1999, HEALD und WHARTON, 1978, SCHWABEDISSEN et al., 1999, BAEVA et al., 1999).

Die LANGMUIR-Sonde, die Doppelsonde und die THOMSON-Streuung sind die einzigen Diagnostikmethoden, die die gleichzeitige Bestimmung der Elektronendichte und -temperatur aus einer Messung erlauben. Die Vorteile der beiden Sondentechniken gegenüber der THOMSON-Streuung liegen im wesentlich geringeren apparativen Aufwand und der höheren Empfindlichkeit. Die höhere Meßgenauigkeit der Sondentechnik erlaubt speziell in der Pulsphase eine genauere Mes-

sung des zeitlichen Dichteabfalls. Sondentechniken sind allerdings grundsätzlich invasive Diagnostikmethoden.

Im Gegensatz zur Einzelsonde ist es mit einer Doppelsonde möglich, Messungen in Plasmaanlagen mit dielektrischen Kammerwänden durchzuführen. Zur Auswertung der Doppelsondenkennlinie wird aber eine MAXWELL-Verteilung der Elektronenenergieverteilung (*EEVF*) im Plasma vorausgesetzt (BROCKHAUS et al., 1994). Dies kann insbesondere bei der effektiven Elektronentemperaturbestimmung in Plasmen mit nicht maxwellverteilten Elektronenenergien zu recht großen Fehlern führen.

Aufgrund dieser Vorteile wird in dieser Arbeit die LANGMUIR-Sonde zur Bestimmung des zeitabhängigen Verhaltens der Elektronendichte und Temperatur eingesetzt.

### 3.1.1 LANGMUIR-Sonde

Die LANGMUIR-Sondentechnik ist Mitte der 20er Jahre von LANGMUIR (MOTT-SMITH und LANGMUIR, 1926) entwickelt worden und ist eine der ältesten Methoden der Plasmadiagnostik zur Bestimmung der Elektronendichte und Temperatur. Hierbei wird eine, von den Plasmakammerwänden isolierte, Metallelektrode mit definierter Oberfläche in ein Plasma eingeführt und in Abhängigkeit von der angelegten Spannung zwischen Sondenspitze und der geerdeten Plasmakammerwand der Sondenstrom gemessen (Abb. 3.2). Führt man die Spannung von negativen zu positiven Spannungswerten durch, so läßt sich eine Strom-Spannungskennlinie, die sogenannte Sondenkennlinie, aufnehmen. Das spezifische Aussehen dieser Kurve ist abhängig von der Elektronendichte und -temperatur sowie der Form der Sondenspitze (Abb. 3.2).

### 3.1.2 Einzelsondenkennlinie

Die Form der LANGMUIR-Sondenkennlinie ist, wie in Abb. 3.2 gezeigt, von der Geometrie der Sondenelektrode abhängig. Die Einzelsondenkennlinie unterteilt man in drei Bereiche:

- I. Ionensättigungsbereich**
- II. Übergangs- oder Elektronenanlaufstrombereich**
- III. Elektronensättigungsbereich**

Der Spannungswert, bei dem die Kennlinie den Stromwert Null annimmt, bezeichnet man als Floatingpotential  $U_f$ . Der Spannungswert, bei dem sich die Krümmung der Sondenkennlinie vom

Elektronenanlaufbereich zum Sättigungsbereich hin ändert (Maximum der zweiten Ableitung der Kennlinie), kennzeichnet das Plasmapotential  $U_p$ .

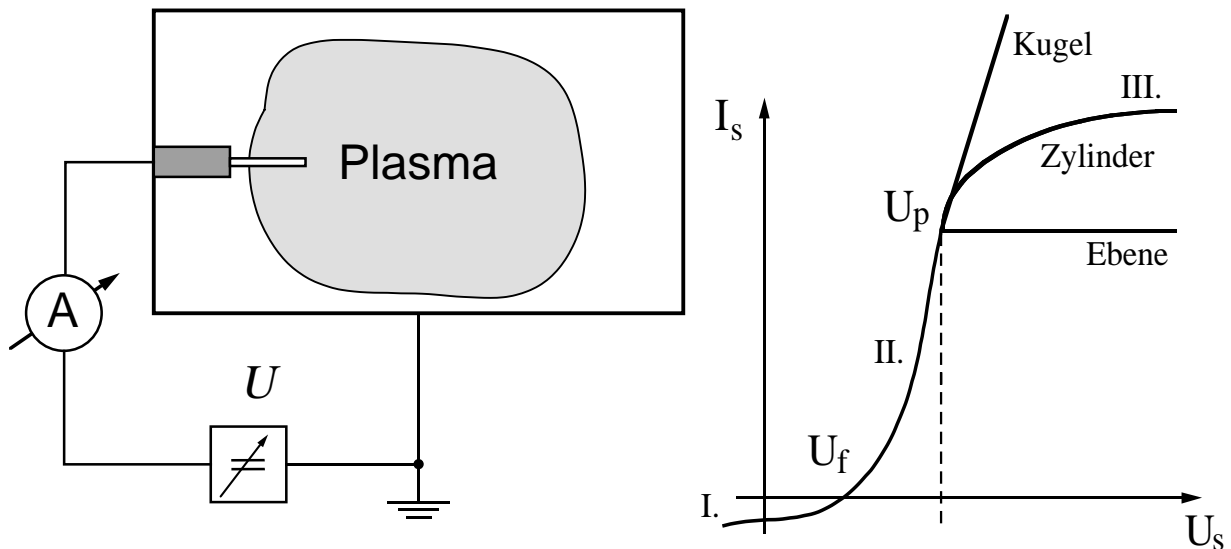


Abbildung 3.2: Linke Seite: Prinzipieller Meßaufbau LANGMUIR-Sonde. Rechte Seite: Typischer Strom-Spannungskennlinien Verlauf einer Langmuir-Sonden in Abhängigkeit von der Sondengeometrie.

### I. Ionensättigungsbereich:

Im Ionensättigungsbereich der Kennlinie ist das Sondenpotential gegenüber dem Plasmapotential so stark negativ vorgespannt, daß ausschließlich die Ionen die Sonde erreichen können. Die sich einstellende Ionensättigungsstromdichte  $J_{i,sat}$  ist ein Maß für die im Plasma vorhandene Ionenkonzentration  $n_i$ . Unter bestimmten Voraussetzungen läßt sich der Ionensättigungsbereich zur Bestimmung der Ladungsträgerkonzentration im Plasma nutzen.

Allerdings ist bei der Auswertung des Ionensättigungsbereiches zu beachten, daß der gemessene Sättigungsstrom eine Funktion der Randschichtdicke zwischen Sonde und Plasma ist.

Hierbei unterscheidet man zwischen drei Fällen:

- I.  $r_s/\lambda_D \gg 1$ : „dünne“ Randschicht (*Thin Sheath Limit TSL*)
- II.  $r_s/\lambda_D \approx 1$ : Übergangsbereich (*LAFRAMBOISE, 1966*)
- III.  $r_s/\lambda_D \ll 1$ : „dicke“ Randschicht (*Orbital Motion Limit OML,*

*ASHIDA et al., 1996, GODYAK et al., 1993*)

mit  $r_s$  als Radius der Sondenelektrode.

## II. Elektronenanlaufbereich

Mit zunehmender Sondenspannung gelingt es zuerst den energiereichsten Elektronen, die Potentialbarriere um die Sonde zu überwinden. Mit Erreichen des Floatingpotentials wird der Sondenstrom zu Null, d.h. der Ionen- und Elektronenstrom auf die Sondenoberfläche ist bei diesem Spannungswert gleich groß. Erhöht man die Sondenspannung über diesen Wert hinaus, verringert sich der Ionenstrom und der Elektronenstrom steigt stark an. Der Gesamtstrom der Sonde setzt sich im Anlaufbereich aus der Summe von Ionen- und Elektronenstrom zusammen.

## III. Elektronensättigungsbereich

Übersteigt die Sondenspannung das Plasmapotential  $U_s > U_p$ , erreicht man den Kennlinienbereich des Elektronensättigungsstroms. Aufgrund der höheren Elektronenbeweglichkeit ist der Elektronensättigungsstrom ca. zwei Größenordnungen höher als der Ionensättigungsstrom.

Generell läßt sich der Elektronensättigungsstrom analog zum Ionensättigungsstrom auswerten. In der Praxis jedoch eignet sich der Elektronensättigungsstrom kaum zur Ermittlung der Plasmaparameter (GODYAK et al., 1993).

## Sondencharakteristik in statischen Magnetfeldern

Abb. 3.3 zeigt den Einfluß eines statischen Magnetfeldes auf eine idealisierte Langmuir-Sondenkennlinie. Ist die Sondenspitze senkrecht zum Magnetfeld orientiert, verringert sich der Sondenstrom im Vergleich zum magnetfeldfreien Fall ( $B_0 = 0$ ) lediglich geringfügig. Der Elektronenanlaufstrombereich wird kaum beeinflusst. Im Falle einer parallel zum Magnetfeld orientierten Sondenspitze, erreichen lediglich die senkrecht zu den Magnetfeldlinien sich bewegenden Elektronen die Sondenspitze. Der weit aus größte Teil der Elektronen in magnetisierten Plasmen gyriert allerdings in schraubenförmiger Bewegung entlang der Magnetfeldlinien. Ist der mittlere Elektronengyrationsradius (Larmor-Radius)  $r_{ce}$  wesentlich kleiner als der Sondenradius  $r_s$ ,<sup>1</sup> so erreichen die parallel zum Magnetfeld sich bewegenden Elektronen nicht die Sondenoberfläche (ARSLANBEKOV et al., 1994). Diesen Vorgang bezeichnet man auch als *Eigenabschattung* (LIEBERMAN und LICHTENBERG, 1994). Aufgrund der Eigenabschattung verringert sich der Elektro-

1. Der mittlere Elektronengyrationsradius  $r_{ce} = \frac{\sqrt{2m_e k T_e}}{e B_0}$  beträgt für eine Elektronentemperaturen von 2 eV und  $B_0 = 0,09$  T  $r_{ce} = 50$   $\mu\text{m}$ .

nensättigungsstrom und der Elektronenanlaufstrombereich so stark, daß die Bestimmung der Elektronendichte, bzw. der Elektronentemperatur für parallel zum Magnetfeld angeordnete Sondenspitzen ohne weiteres kaum noch möglich ist (WILLIAMS, 1979).

Generell gilt das vorangehend beschriebene auch für den Ionensättigungsbereich der Sondenkennlinie. Bedingt durch den bei gleichen Magnetfeldstärken im Vergleich zum Elektronengyrationradius wesentlich größeren mittleren *Ionengyrationradius*<sup>1</sup> $r_{ci}$  wird der Ionensättigungsstrom, unabhängig von der Sondenorientierung, durch das Magnetfeld wesentlich geringer beeinflusst. Für Magnetfelder oberhalb von 0,2 T muß in Abhängigkeit von der Plasmadichte allerdings auch bei der Auswertung des Ionensättigungsbereiches der Einfluß des Magnetfeldes berücksichtigt werden (WILLIAMS, 1979).

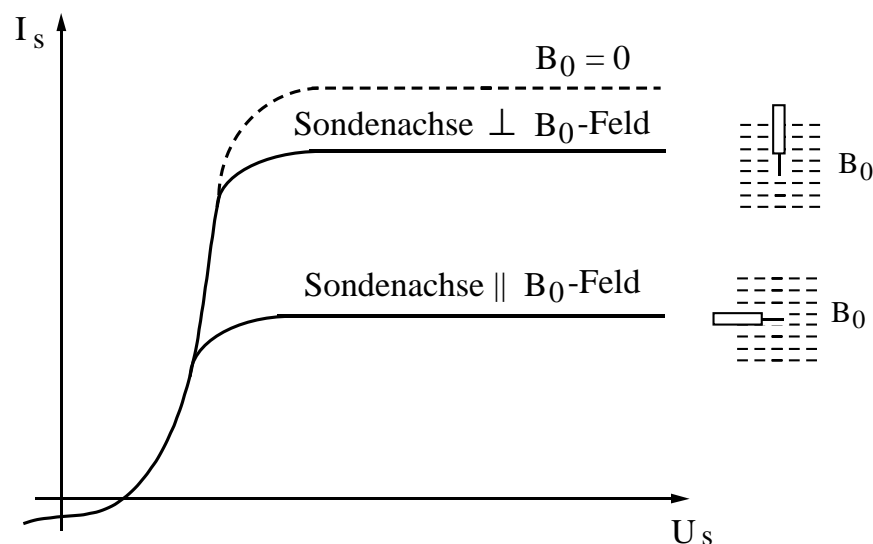


Abbildung 3.3: Magnetfeldeinfluß auf den Strom-Spannungskennlinien Verlauf einer LANGMUIR-Sonde.

### 3.1.3 DRUYVESTEYN-Methode

Alle im vorangegangenen Abschnitt erwähnten Verfahren zur Kennlinienauswertung (TSL/LAFRAMBOISE/OML) setzten eine MAXWELL-Verteilung der *EEVF* (Kapitel 2.2.1) zur Auswertung der Sondenkennlinienbereiche voraus (BRAITHWAITE, 1990). Einzelsondenmessungen speziell in kapazitiv und induktiv gekoppelten HF-Entladungen zeigen jedoch, daß in Niederdruck-

1. Der mittlere Ionengyrationradius  $r_{ci} = \frac{\sqrt{2m_i k T_i}}{e B_0}$  beträgt für einfach geladene Argonionen mit  $kT_i = 0,1$  eV und  $B_0 = 0,09$  T  $r_{ci} = 3$  mm.

plasmen allgemein nicht von einer maxwellverteilten *EEVF* auszugehen ist (GODYAK et al., 1995 - GODYAK et al., 1992).

Über die zeitabhängige Verteilungsform der *EEVF* in gepulsten Plasmen ist bislang wenig bekannt, die publizierten Ergebnisse weisen zum Teil deutliche Abweichungen der *EEVF* von einer MAXWELL-Verteilung auf (HUGON et al., 1996).

Zur Kennlinienauswertung nach DRUYVESTEYN (DRUYVESTEYN, 1930) sind keine Annahmen zur Form der *EEVF* im Plasma notwendig (GODYAK et al., 1993). Dies macht diese Methode ideal geeignet zur Bestimmung der Elektronendichte und -temperatur in gepulsten Plasmen mit unbekanntem zeitlichem Verhalten der *EEVF*.

Um Störungen des Plasmas durch die Sonde zu vermeiden, muß die Bedingung

$$\lambda_D, r_{sh}, r_{sp} \ll \lambda_e \quad (3.1)$$

(GODYAK et al., 1992) erfüllt sein, mit  $\lambda_d$  als DEBYE-Länge (Kapitel 2.1.2),  $r_{sp}$  als Radius der Metallelektrode der Sonde,  $r_{sh}$  als Radius des Sondenhalters und  $\lambda_e$  als mittlere freie Weglänge der Elektronen (Kapitel 2.2.2).

Ist die Bedingung 3.1 während der Kennlinienaufnahme erfüllt, so läßt sich die Sondenkennlinie mit der DRUYVESTEYN-Methode auswerten<sup>1</sup>. Bei bekannter Sondenfläche  $A_s$  und in Abwesenheit eines externen Magnetfeldes erhält man die *EEVF*  $-F(w)$  aus der zweiten Ableitung des Sondenstromes nach dem Sondenpotential

$$F(w) = \frac{\sqrt{8m_e w} \partial^2 I_s}{e^3 A_s \partial U_s^2}, \quad (3.2)$$

mit  $w$  als Elektronenenergie.

Die anschließende Integration über die *EEVF* ergibt die Elektronendichte

$$n_e = \int_0^{\infty} F(w) dw, \quad (3.3)$$

und aus der Beziehung

---

1. LANGMUIR-Sondenkennlinien die in magnetfeldbehafteten Plasmen aufgenommen wurden ( $B_0 \neq 0$ ), lassen sich mit Hilfe der DRUYVESTEYN-Methode auswerten, so lange der Larmor-Radius  $r_{ce}$  der Elektronen wesentlich größer ist als der Sondenradius  $r_s$  (ARSLANBEKOV et al., 1994).



$$kT_{e, eff} = \frac{2}{3n_e} \int_0^{\infty} wF(w)dw \quad (3.4)$$

läßt sich die effektive Elektronentemperatur  $kT_{eff}$  (Kapitel 2.2.1) ermitteln.

### 3.1.4 Zeitaufgelöste LANGMUIR-Sondenmessungen

Generell existieren zwei Möglichkeiten zur Aufnahme einer Einzelsondenkennlinie in einem sich zeitlich ändernden Plasma:

1. „Sweeptechnik“:

In diesem Fall ist die Aufnahmezeit der gesamten Sondenkennlinie kurz gegenüber der zeitlichen Veränderung des Plasmas, so daß während der gesamten Kennlinienaufnahme die Plasmabedingungen quasi-stationär sind. Die Zeitauflösung dieser Methode ist in erster Linie limitiert durch die Steuerungs- und Meßelektronik. Bei hinreichender Meßgenauigkeit liegt die untere Grenze der zeitlichen Auflösung beim heutigen Stand der Technik im ms-Bereich.

2. „Sampletechnik“:

Hierbei wird die jeweilige Sondenspannung  $U_s$  über eine Periode konstant gehalten und der über die Pulsperiode sich zeitlich ändernde Strom  $I_s(U_s, t)$  gemessen. Im Anschluß erhöht man die Sondenspannung um die gewünschte Schrittweite  $\Delta U_s$  und mißt für den neuen Spannungswert den zeitlichen Stromverlauf  $I_s(U_s + \Delta U_s, t)$ . Nachdem der gesamte Spannungsbereich der Sondenkennlinie durchfahren ist, erhält man eine  $U_s/I_s(t)$ -Kennlinien-Matrix. In der Sampletechnik ist die Zeitauflösung im wesentlichen begrenzt durch die kapazitiven Elemente der Sonde.

### Limitierende Faktoren der Zeitauflösung

Die wesentlichen, die Zeitauflösung limitierenden Faktoren sind:

- Kapazität  $C_r$  der Sondenrandschicht.

Die zeitlich sich ändernde Raumladungskapazität der Sondenrandschicht ist abhängig von der Sondengeometrie und den Plasmaparametern und liegt typischerweise in der Größenordnung von einigen pF (WOOD et al., 1991, ASHIDA et al.,

1996).

- Verschiebestrome in der Randschicht.

Solange die zeitliche Dichteänderung  $dn_i/dt$ , bzw.  $dn_e/dt$  der Ladungsträger innerhalb des Zeitraums  $1/\omega_{pi}$  bzw.  $1/\omega_{pe}$  annähernd konstant bleibt, ist der Einfluß von Verschiebestromen zu vernachlässigen (DING et al., 1998). Für die typischerweise mit der Sonde minimal auflösbare Elektronen- bzw. Ionendichte von  $n_e = n_i = 10^8 \text{ cm}^{-3}$  ergibt sich als Grenzwert:  $1/\omega_{pi} \approx 60 \text{ ns}$  bzw.  $1/\omega_{pe} \approx 2 \text{ ns}$ .

- Parasitäre Streukapazitäten  $C_s$  des Meßaufbaus (SMITH und OVERZET, 1998, ASHIDA et al., 1996).

Aufgrund der zu vernachlässigenden Verschiebestrome und Randschichtkapazität wird die Zeitauflösung der Sonde im wesentlichen durch parasitäre Streukapazitäten bestimmt.

In diesem Fall verhält sich die Sondenmeßanordnung wie ein Tiefpaß im Zeitbereich und die Zeitkonstante des Meßaufbaus ist gegeben durch

$$\tau_s = R_s C_s \quad (3.5)$$

mit  $R_s$  als Meßwiderstand. Die maximal erreichbare Zeitauflösung der Sonde liegt in etwa bei dem fünffachen Wert der Zeitkonstanten  $\tau_s$ . Für Einzel- und Doppelsondensondenmessungen in Sampletechnik lassen sich Zeitaufösungen im  $\mu\text{s}$ -Bereich erreichen (Kapitel 4.2.2/OVERZET und KLEBER, 1998, SMITH und OVERZET, 1999).

### Zeitaufgelöste Auswertung der Sondenkennlinie nach DRUYVESTEYN

Solange im gepulsten Plasma die Bedingung  $r_{sp}, \lambda_D(n_e(t), T_e(t)) \ll \lambda_e(T_e(t))$  einer stoßfreien Randschicht erfüllt bleibt, läßt sich die DRUYVESTEYN-Methode zur Auswertung der Sondenkennlinie anwenden. Sowohl die DEBYE-Länge als auch die mittlere freie Weglänge der Elektronen sind in einem gepulsten Plasma zeitabhängig. Die Debye-Länge ist proportional zu

$$\lambda_D \propto \sqrt{\frac{T_e(t)}{n_e(t)}}, \quad (3.6)$$

während  $\lambda_e(t)$  eine Funktion des Druckes und der Elektronentemperatur ist (Kapitel 2.2.2). Da sowohl die Elektronentemperatur als auch die Dichte in der Pulspause abnimmt, könnte es insbesondere in diesem Bereich zur Verletzung der obigen Bedingung kommen.

Um abschätzen zu können, bis zu welchem Zeitpunkt in der *Afterglow*-Phase eines Plasmas die Kennlinienauswertung nach DRUYVESTEYN möglich ist, sind in Abb. 3.4 am Beispiel eines Argonplasmas  $\lambda_D$  und  $\lambda_e$  als Funktion der Elektronentemperatur dargestellt. Zur Bestimmung der maximalen DEBYE-Länge (Kapitel 2.1.2) wurde als unterste, noch mit der Sonde auflösbare Elektronendichte, eine Dichte  $n_{e,min} \geq 10^8 \text{ cm}^{-3}$  angenommen. Wie man der Abb. 3.4 entnehmen kann, läßt sich, für  $p < 100 \text{ Pa}$ , die DRUYVESTEYN-Methode selbst bei dieser minimalen Elektronendichte über den gesamten relevanten Elektronentemperaturbereich ( $T_e < 5 \text{ eV}$ ) anwenden.

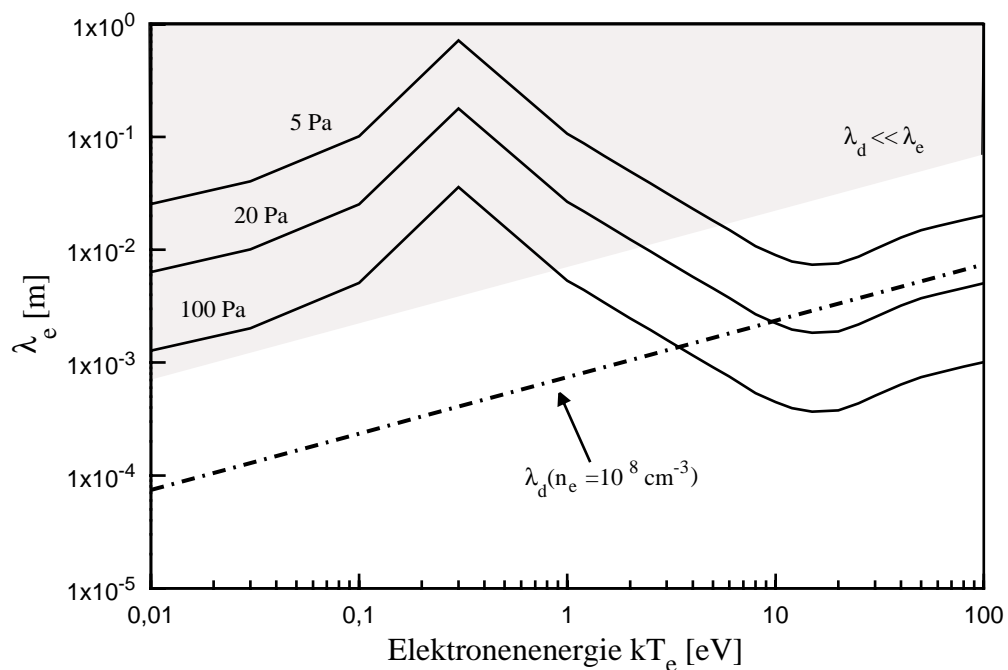


Abbildung 3.4: Mittlere freie Weglänge der Elektronen  $\lambda_e$  in Argon in Abhängigkeit von der Elektronentemperatur.  $\lambda_d$ : DEBYE-Länge bei  $n_e = 10^8 \text{ cm}^{-3}$ . Grau schraffierter Bereich: stoßfreie Sondenrandschicht DRUYVESTEYN-Methode zur Kennlinienauswertung anwendbar.

In der Pulspause eines gepulsten Plasmas fällt die Elektronentemperatur  $T_e(t)$  schneller ab als die Elektronendichte  $n_e(t)$ , so daß bei Erreichen von  $n_{e,min}$  in der Pulsausphase die Elektronentemperatur typischerweise Werte  $T_e \leq 0,5 \text{ eV}$  annimmt (Kapitel 5.3). Dies bedeutet, daß es in der Pulspause keinerlei Einschränkungen bei der Anwendung des DRUYVESTEYN-Verfahrens existieren. Für zunehmende Elektronendichten, wie sie im gepulsten Plasma in der Anstiegsphase und im eingeschwungenen Zustand auftreten, nimmt die DEBYE-Länge weiter ab, so daß in diesem Bereich ebenfalls die DRUYVESTEYN-Methode ohne Einschränkungen einsetzbar ist. Zusammengefaßt zeigt die Abschätzung, daß in gepulsten Plasmen die DRUYVESTEYN-Methode innerhalb

des Sondenmeßbereiches ohne Einschränkung einsetzbar ist.

### 3.1.5 Mikrowelleninterferometrie

Die Mikrowelleninterferometrie ist neben der Sondentechnik eine weitere etablierte Methode zur Bestimmung der Elektronendichte. Im Gegensatz zur Sonde ist die Mikrowelleninterferometrie eine nichtinvasive Diagnostik. Die typische Zeitauflösung von MWI liegt bei ca. 100 ns (NEUMANN et al., 1993, OVERZET, 1995). Aufgrund der hohen Zeitauflösung und einfachen Handhabung eignet sich die Mikrowelleninterferometrie gut zur Bestimmung der zeitabhängigen Elektronendichte in gepulsten Plasmen, speziell in beschichtenden oder stark korrosiven Plasmen, in denen Sondenmessungen nur extrem schwierig durchzuführen sind. Die hohe Zeitauflösung der MWI bietet zusätzlich die Möglichkeit, die Meßgenauigkeit und Zeitauflösung von Sonden in cw, bzw. gepulsten Plasmen zu ermitteln (TUSZEWSKI und TOBIN, 1996, OVERZET und HOPKINS, 1993a).

Das Meßprinzip der Mikrowelleninterferometrie ist in Abb. 3.5 dargestellt. Allgemein funktioniert ein Mikrowelleninterferometer nach folgendem Prinzip: Die in einem Mikrowellengenerator erzeugte Mikrowelle wird zum einen über einen Meßpfad, der das zu vermessende Plasma enthält, zum anderen über einen Referenzpfad bekannter Länge zu einem Detektor geleitet.

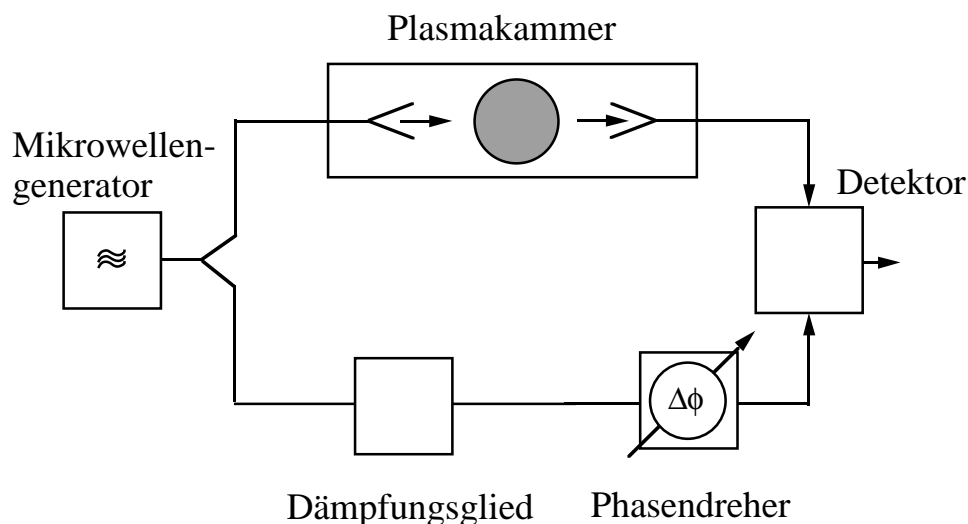


Abbildung 3.5: Prinzipieller Meßaufbau eines Mikrowelleninterferometers.

Beim Durchqueren des Plasmas erfährt die Mikrowelle in Abhängigkeit von der Elektronendichte

eine Phasenverschiebung. Die Phasenverschiebung wird im Detektor durch den Vergleich zwischen Referenzpfadsignal und Meßpfadsignal ermittelt (HOTSTON und SEIDL, 1964, HEALD und WHARTON, 1978).

Erfüllen alle Öffnungen innerhalb des Ausbreitungspfades der Mikrowelle sowie der Plasmadurchmesser die Bedingung  $D, D_p \geq 5 \lambda_{MWI}$ , breitet sich die Mikrowelle in guter Näherung als ebene Welle im Plasma aus (OVERZET, 1995).

Erfüllt die Frequenz des Mikrowelleninterferometers  $\omega_{MWI}$  die Bedingungen

$$\omega_{MWI} \gg \begin{cases} \omega_p \gg v_m \\ \left(\frac{c}{D_p}\right) \end{cases} \quad (3.7)$$

mit  $\omega_p$  als Plasmafrequenz (Gl. 2.4),  $v_m$  als elastische Stoßfrequenz (Gl. 2.19),  $c$  als Lichtgeschwindigkeit und  $D_p$  als Durchmesser des Plasmas, so erhält man die Elektronendichte aus der gemessenen Phasenverschiebung als Lösung der sogenannten adiabatischen Näherung

$$\Delta\Phi = - \int_{-r_p}^{r_p} (\beta_p - \beta_0) dx = \frac{2\pi}{\lambda_{MW}} \int_{-r_p}^{r_p} \left( 1 - \sqrt{1 - \frac{n_e(x)}{n_c}} \right) dx \quad (3.8)$$

mit  $\beta_p$  als Phasenkonstante des Plasmas,  $\beta_0$  als Phasenkonstante des Vakuums und  $n_c$  als kritische Plasmadichte der Interferometerfrequenz (HEALD und WHARTON, 1978). Die obige Näherung läßt sich für ein 35 GHz MWI mit einer Vakuumwellenlänge von  $\lambda_{MWI} \approx 9 \text{ mm}$  ( $n_c \approx 2 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ ) für einen zur Ausbreitung der Mikrowelle transversalen Plasmadurchmesser  $D_p \geq 5 \text{ cm}$  anwenden (OVERZET, 1995).

Ist die Elektronendichteverteilung entlang der Meßstrecke nicht bekannt, liefert Gl. 3.8 die über den Plasmadurchmesser  $D_p$  gemittelte Elektronendichte  $N_e$ .

Bei bekannter relativer Elektronendichteverteilung entlang der Meßstrecke läßt sich aus Gl. 3.8 die Elektronendichte im Zentrum der Entladung ermitteln.

In Abb. 3.6 ist die Elektronendichte im Zentrum eines Plasmas mit einem Durchmesser von  $D_p = 40 \text{ cm}$  für unterschiedliche Dichteverteilungen dargestellt.

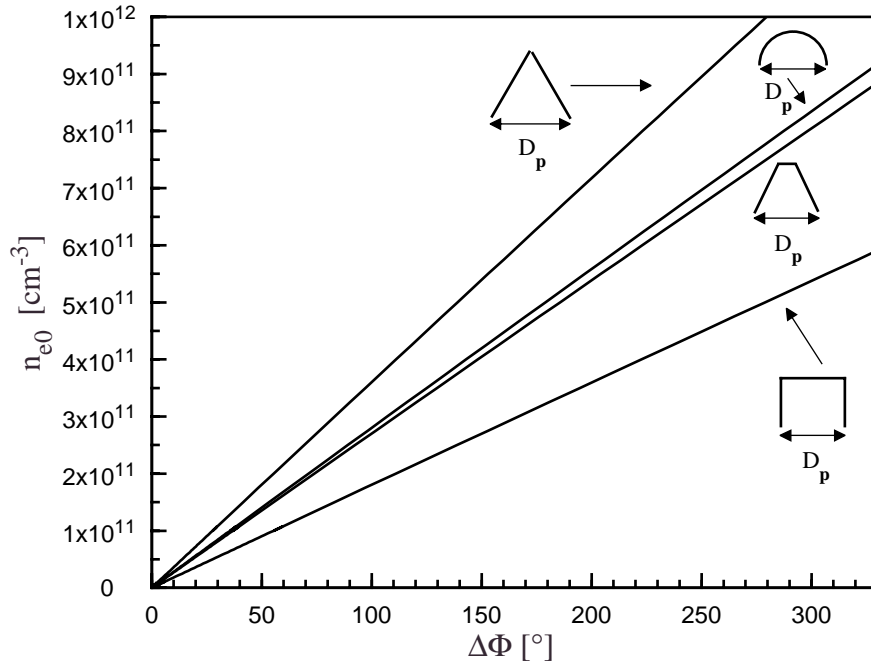


Abbildung 3.6: Elektronendichte  $n_{e0}$  im Zentrum der Meßstrecke eines 35 GHz MWIs in Abhängigkeit von der gemessenen Phasenverschiebung für unterschiedliche Elektronendichteverteilungen entlang des MWI Meßpfades.  $D_p = 40$  cm.

Im Falle einer zweidimensionalen Elektronendichteverteilung  $n_e(r,z)$  erhält man für eine ebene Welle, die Elektronendichte aus der gemessenen Phasenverschiebung des MWI

$$\Delta\Phi = \frac{\pi}{\lambda l} \int_{-l}^l \int_{-r_p}^{r_p} \left( 1 - \sqrt{1 - \frac{n_e(r,z)}{n_c}} \right) dr dz \quad (3.9)$$

mit  $n_c$  als kritische Plasmadichte,  $\lambda_{MWI}$  der Freiraumwellenlänge des MWIs und  $n_e(r,z)$  als zylindersymmetrischer Elektronenverteilung, wobei die z-Richtung senkrecht zur Sichtlinie des MWI steht.

Die maximal mit einem MWI meßbare Elektronendichte liegt unter Berücksichtigung von dissipativen Effekten bei  $n_{e,max} = \frac{1}{3}n_c$  (HEALD und WHARTON, 1978). Die untere Grenze des Meßbereiches wird durch die minimal meßbare Phasenverschiebung  $\Delta\Phi_{min}$  vorgegeben und liegt typischerweise zwischen  $1-2^\circ$  (HOTSTON und SEIDL, 1964). Für ein 35 GHz MWI liegt der Meßbereich in etwa zwischen  $6 \times 10^9 \text{ cm}^{-3} \leq n_e \leq 5 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ .

## 3.2 Optische Verfahren

Der Vorteil der optischen Methoden der Plasmadiagnostik liegt im wesentlichen darin, daß sie - im Vergleich zur Sonde- das zu untersuchende Objekt nicht stören (GOTTSCHO und MILLER, 1984). Dies gilt allgemein für die Emissionsspektroskopie und wird für die „aktiven“ optischen Verfahren der Laserspektroskopie in der Regel durch die adäquate Wahl der Energiedichte der Laserstrahlung erreicht (AMORIM et al., 1994).

Die Emission angeregter Plasmateilchen wurde schon früh genutzt, um Aussagen über die inneren Plasmamparameter eines Plasmas zu gewinnen. Der Vorteil hierbei ist, daß man die ohnehin vom Plasma emittierte Strahlung nutzt, um Aussagen über das Plasma zu erzielen. Einige auf der optischen Emissionsspektroskopie (OES), bzw. Laserspektroskopie basierende Verfahren werden mittlerweile zur Prozeßkontrolle und Überwachung eingesetzt (HERSHKOWITZ und MAYNARD, 1993, MURAOKA et al., 1992).

### 3.2.6 Absorption und Emission

Die optischen Verfahren basieren auf Absorptions- und Emissionsvorgängen von Photonen. Höhere atomare oder molekulare Anregungszustände lassen sich neben der Elektronenstoßanregung auch durch anderweitige Prozesse anregen. So z.B. durch thermische Erwärmung oder durch die Bestrahlung des Atoms bzw. Moleküls mit Lichtquanten (Photonen). Letzteres wird in aktiven optischen Methoden, wie z.B. der laserinduzierten Fluoreszenz (Kapitel 3.3) zur gezielten, selektiven Anregung spezieller Energiezustände genutzt. Der Übergang von einem höheren zu einem niedrigeren Energiezustand kann zum einen *spontan* -ohne äußere Beeinflussung- oder zum anderen *induziert* - durch äußere Beeinflussung- erfolgen. In beiden Fällen wird die Energiedifferenz  $E_{kl}$  zwischen oberem und unterem Niveau in Form eines Photons abgestrahlt.

Die Wahrscheinlichkeit  $P_{ex}$ , daß pro Sekunde ein Photon von einem Atom spontan emittiert wird, ist gleich dem EINSTEIN-Koeffizienten  $A_{kl}$  für den Übergang  $|k\rangle \rightarrow |l\rangle$

$$P_{ex} = A_{kl}. \quad (3.10)$$

Der EINSTEIN-Koeffizient ist abhängig von der Struktur des Atoms und dem betrachteten Übergang (DEMTRÖDER, 1991).

### 3.2.7 Strahlungstransportgleichung „optisch dünner“ Plasmen

Die innerhalb eines Plasmas vorhandene Strahlung durchsetzt das Plasmavolumen in alle Richtungen. Die pro Raumwinkel- und Volumeneinheit innerhalb einer Sekunde abgestrahlte Energie wird durch den Emissionskoeffizienten  $\epsilon_{\nu}(\nu)$  beschrieben. Die Änderung der spektralen Intensität  $I_{\nu}$  beim Durchqueren eines Plasmas der Länge  $L$  ist durch die Strahlungstransportgleichung gegeben:

$$\frac{dI_{\nu}}{dx} = \epsilon_{\nu} - I_{\nu}\chi'_{\nu} \quad (3.11)$$

Dabei beschreibt der zweite Term der rechten Gleichungsseite die Absorption der emittierten Strahlung durch das Plasma pro Längeneinheit mit  $\chi'_{\nu}$  als effektivem Absorptionskoeffizienten des Plasmas. Für ein eindimensionales homogenes Plasma der Länge  $L$  erhält man als Lösung der Strahlungsgleichung:

$$I_{\nu}(L) = I_{\nu}(0)\exp(-\chi'_{\nu}L) + \frac{\epsilon_{\nu}}{\chi'_{\nu}}(1 - \exp(-\chi'_{\nu}L)) \quad (3.12)$$

mit  $I_{\nu}(0)$  als Hintergrundintensität am Ort  $x = 0$ .

#### Optisch dünner Grenzfall

Für  $I_{\nu}(0) = 0$  und  $\chi'_{\nu}L \ll 1$  ergibt Gl. 3.12

$$I_{\nu}(L) = \epsilon_{\nu}L. \quad (3.13)$$

In diesem Fall ist die Reabsorption der abgegebenen Strahlung durch das Plasma vernachlässigbar. Die gesamte im Plasma anfallende Emission durchdringt das Plasma ungehindert und verläßt das Plasma an der Grenzschicht  $x = L$ . Plasmen mit einer solchen Eigenschaft bezeichnet man als optisch dünne Plasmen. Ist das Plasma für die betrachtete Wellenlänge optisch dünn, so ist die gemessene Intensität gegeben durch das Integral über die spektralen Emissionskoeffizienten entlang der Sichtlinie (LOCHTE-HOLTGREVEN, 1995). Bis auf die Übergänge, deren unteres Niveau einen metastabilen Zustand darstellt, sind die Emissionsübergänge in Niederdruckentladungen optisch dünn (GRIEM, 1964).



### Linienstrahlung eines optisch dünnen Plasmas

Im Falle eines optisch dünnen Plasmas ist die gemessene Emissionsintensität  $I_\nu$  proportional zur Produktionsrate des oberen angeregten Niveaus, des jeweils betrachteten Überganges, pro Volumeneinheit.

Für durch Elektronenstoß angeregte Zustände erhält man die Emissionsintensität aus:

$$I_\nu \propto P = K(\omega)n_e n_n = n_e n_n \int_0^\infty \sigma(\omega) F(\omega) \sqrt{\frac{2\omega}{m_e}} \quad (3.14)$$

mit  $\sigma(\omega)$  als energieabhängigen Wirkungsquerschnitt des oberen angeregten Zustandes (Kapitel 2.2.2),  $n_e$  als Elektronendichte,  $n_n$  als Neutralteilchendichte und  $F(\omega)$  als Elektronenenergieverteilungsfunktion. Im Falle einer MAXWELL-Verteilung der Elektronenenergie erhält man typischerweise Ausdrücke für die Produktionsrate der Form

$$I \propto P \approx a n_e n_n \exp\left(-\frac{W_{lk}}{kT_e}\right) \quad (3.15)$$

mit  $W_{lk}$  als Anregungsenergie des oberen Zustandes,  $kT_e$  als effektive Elektronenenergie und  $a$  als prozeßspezifischer Konstanten (LIEBERMAN und LICHTENBERG, 1994). Die gemessene Emissionsintensität  $I$  ist somit proportional zur Elektronendichte und exponentiell abhängig von der Elektronentemperatur.

### Mittlere Lebensdauer angeregter Zustände

Die *mittlere Strahlungslebensdauer* eines angeregten Zustandes berechnet sich aus

$$\tau_{ex} = \frac{1}{\sum_l A_{kl}}. \quad (3.16)$$

Die mittlere Lebensdauer eines angeregten Niveaus liegt typischerweise zwischen 10 -100 ns, die von angeregten metastabilen Zuständen liegt im ms-Bereich und höher (Kapitel 2.2.2, Abb. 2.3)

### 3.2.8 Planare optische Emissionsspektroskopie (POES)

Durch den Einsatz der OES läßt sich zum einen der Nachweis erbringen, daß bestimmte Spezies im Plasma vorhanden sind und zum anderen die Abhängigkeit der Emissionsintensität dieser Spezies von inneren und äußeren Plasmaparametern ermitteln. Hierzu werden Meßgeräte benötigt, die wellenlängenselektiv die Plasmaemission messen können. Üblicherweise wird in der OES die Emission eines Plasmas über Linsen auf den Eingang eines optischen Filters/Monochromators abgebildet und im Anschluß wird das optische Signal über einen Photomultiplier in ein zur Intensität proportionales elektrisches Signal umgewandelt. Durch die Abbildung auf das Monochromatorgitter geht bei diesem Verfahren in der Regel die Information über die räumliche Intensitätsverteilung verloren. In randbeheizten großvolumigen Mikrowellenentladungen ist aufgrund der inhomogenen  $E$ -Feldverteilung nicht ohne weiteres von einer isotropen Emissionsverteilung auszugehen (BEHLE et al., 1997a, KORTSHAGEN, 1993). In diesen Quellen läßt sich die orts aufgelöste Emissionsintensität entweder durch schrittweises Verschieben der Detektionsoptik oder des Plasmas relativ zur Detektionsoptik bestimmen (DJUROVIC et al., 1993, TSEREPI und MILLER, 1995) oder, wesentlich einfacher und wesentlich weniger zeitaufwendig, durch den Einsatz der planaren optischen Emissionsspektroskopie (POES). Hierbei wird die zu detektierende orts aufgelöste Emissionsintensität durch eine geeignete Linse und einen Bandpaßfilter auf einen zweidimensionalen optoelektronischen Bildwandler abgebildet (ALDÉN et al., 1982, DYER und CROSLEY, 1982). Mit dieser Methode läßt sich durch einen einzigen Meßvorgang direkt die räumliche Emissionsintensitätsverteilung in einem großvolumigen Plasma bestimmen. Die gewünschte Wellenlänge läßt sich durch das Vorschalten von Bandpaßfiltern mit der jeweils benötigten Wellenlänge selektieren. Die Wellenlängenauflösung (Kapitel 3.2.9) ist abhängig von der Bandbreite des verwendeten Bandpaßfilters und liegt typischerweise zwischen 1 - 10 nm (BEHLE et al., 1997a). Das grundlegende Prinzip der POES ist in Abb. 3.7 schematisch dargestellt.

Für die POES werden speziell entwickelte sogenannte CCD<sup>1</sup>-, bzw. ICCD-Kameras eingesetzt (STRÜDER und ZANTHIER, 1998). Die POES verbindet die wesentlichen Vorteile der klassischen OES (nicht-invasiv, speziesselektiv, einfache Handhabung) mit hoher Zeit- und Ortsauflösung.

---

1. CCD eng. Abkürzung von *charged coupled device*.

Die zeit- und orts aufgelöste Untersuchung der optischen Emission mittels POES ermöglicht es, im optisch dünnen Fall Informationen über die Elektronenenergieverteilung (Gl. 3.15/COX et al., 1987) sowie die Energieeinkopplung in das Plasma zu gewinnen.

### 3.2.9 Detektion der Emissionsintensität großvolumiger Plasmen mittels POES

Bei der Beobachtung einer speziellen Emissionslinie mittels POES ist vorab sicherzustellen, daß innerhalb der Bandbreite des verwendeten Bandpaßfilters keine zusätzlichen Emissionslinien oder Banden zu detektieren sind. Desweiteren muß die Abschwächung des Bandpaßfilters außerhalb seines Durchlassbereiches hinreichend groß sein, so daß starke außerhalb liegende Emissionslinien abgeblockt werden.

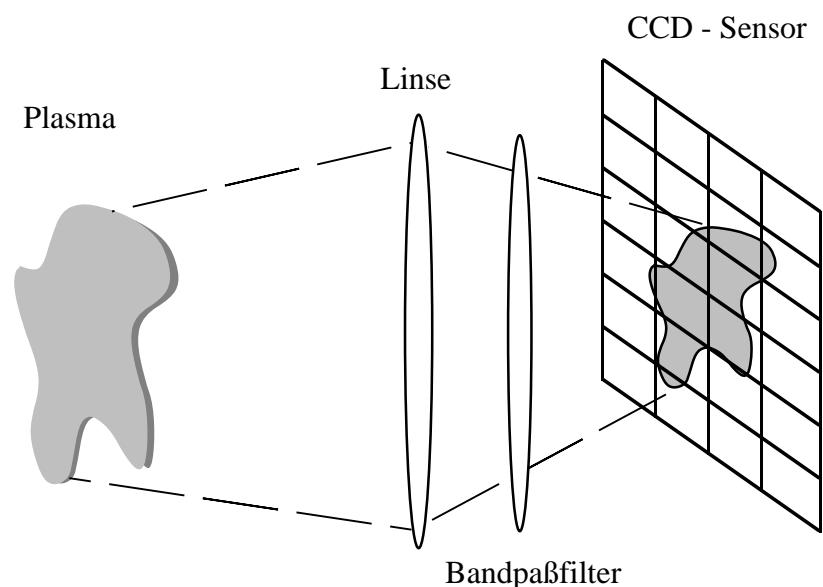


Abbildung 3.7: Funktionsprinzip der planaren optischen Emissionsspektroskopie POES.

Hinzu kommt, daß bei der Beobachtung großvolumiger Plasmen mittels POES zu beachten ist, daß sowohl die Zentralwellenlänge als auch die Bandbreite der verwendeten Bandpaßfilter abhängig sind vom Winkel der auftreffenden Strahlung. Mit zunehmender Abweichung vom senkrechten Einfall verschiebt sich die Zentralwellenlänge des Bandpaßfilters zu kürzeren Wellenlängen. Bei der Detektion großvolumiger Plasmen mittels POES ist je nach Abstand zwischen Kamera und Plasma ein senkrechter Einfall der Strahlung speziell aus den Randbereichen des Plasmas nicht immer gewährleistet. Die Bandbreite des verwendeten Bandpaßfilters, bzw. seine

Position im Strahlengang der Detektion ist somit so zu wählen, daß zum einen auch die nicht senkrecht auftreffenden Strahlen aus den Randbereichen der zu untersuchenden Wellenlänge detektiert werden und zum anderen, daß durch die Verschiebung des Durchlaßbereiches des Filters keine unerwünschten Nebenlinien detektiert werden.

Für Lichtstrahlen mit einem Einfallswinkel  $\theta \leq 15^\circ$  läßt sich die Verschiebung der Zentralwellenlänge des Bandpaßfilters berechnen durch die Formel

$$\lambda_\theta = \lambda_0 \frac{\sqrt{n_{eff}^2 - \sin^2 \theta}}{n_{eff}^2} \quad (\text{MACLEOD, 1969}) \quad (3.17)$$

mit  $n_{eff}$  als effektivem Brechungsindex, abhängig von den Indizes der verwendeten Dünnschichten des Bandpaßfilters, mit  $\lambda_0$  als Zentralwellenlänge bei einem Einfallswinkel von  $0^\circ$  und  $\lambda_\theta$  als Zentralwellenlänge bei einem Einfallswinkel von  $\theta$ . Für die meisten handelsüblichen Bandpaßfilter liegt der effektive Brechungsindex zwischen 1,5-2.

### 3.3 Laserinduzierte Fluoreszenz

Neben den elektrischen Ladungsträgern, die das wesentliche Pulsverhalten des Plasmas bestimmen, ist für viele Plasmaprozesse auch das zeitabhängige Verhalten von neutralen Radikalen von Interesse. Im Gegensatz zu angeregten Teilchen lassen sich Partikel im Grundzustand nicht direkt durch den Einsatz der optischen Emissionsspektroskopie detektieren. Eine Möglichkeit, Teilchenkonzentrationen aus gemessenen Linienintensitäten zu bestimmen, bildet die Aktinometrie (GOTTSCHO und MILLER, 1984). Allerdings sind aktinometrische Verfahren zur Bestimmung von absoluten oder relativen Grundzustandsdichten vor allen Dingen in molekularen Plasmen mit äußerster Vorsicht einzusetzen (COLLART et al., 1991, HANCOCK, 1995).

Die Vielzahl der aktiven optischen Methoden mit ihren Einsatzgebieten in der Plasmadiagnostik aufzuführen, würde an dieser Stelle zu weit führen und es sei auf die Literatur verwiesen (DÖBELE, 1995, MURAOKA et al., 1992, DEMTRÖDER, 1991).

Zur Bestimmung der absoluten orts- und zeitaufgelösten atomaren Sauerstoffdichte in hochfrequenzangeregten gepulsten Plasmen hat sich das laserspektroskopische Verfahren der laserinduzierten Fluoreszenz bewährt (COLLART et al., 1995, TSEREPI und MILLER, 1995).

### 3.3.1 Funktionsprinzip der laserinduzierten Fluoreszenz

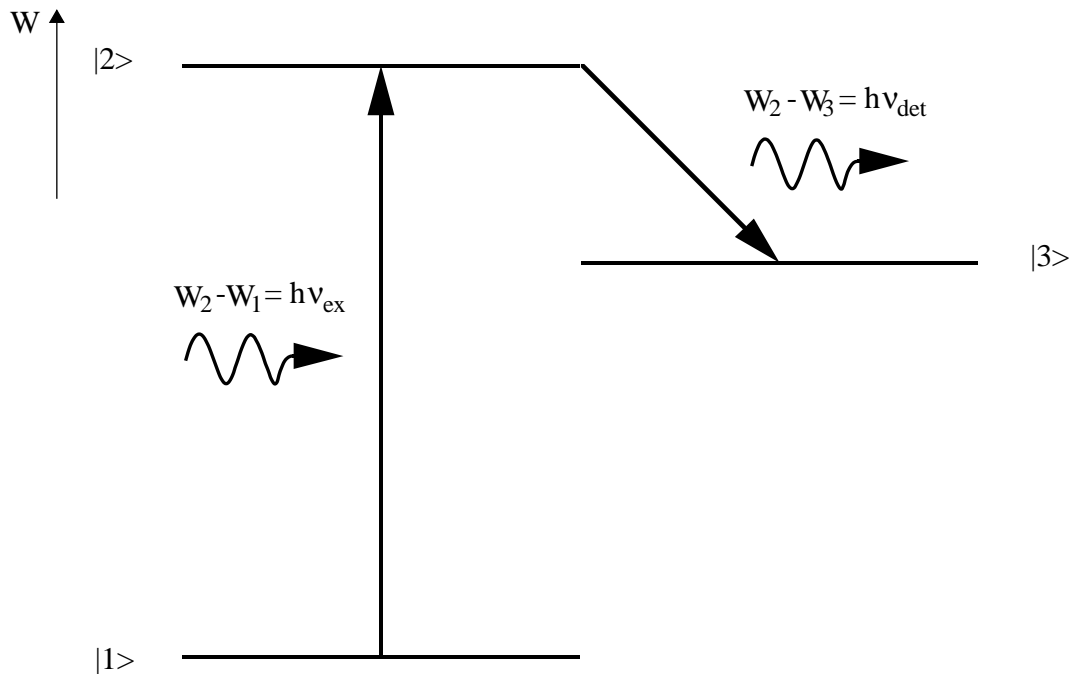


Abbildung 3.8: Funktionsprinzip der laserinduzierten Fluoreszenz.

In Abb. 3.8 ist das wesentliche Funktionsprinzip der laserinduzierten Fluoreszenz dargestellt. Um die Dichte des Zustandes  $|1\rangle$  einer Spezies im Plasma zu bestimmen, werden Elektronen aus diesem Zustand mittels eines schmalbandigen Lasers in einen energetisch höher gelegenen Zustand  $|2\rangle$  „gepumpt“. Die Energie der Laserwellenlänge  $h\nu_{ex}$  entspricht hierbei exakt der Energiedifferenz des anzuregenden Übergangs. Vom energetisch höheren Zustand  $|2\rangle$  erreichen die Elektronen unter Abgabe eines Photons einen tiefer gelegenen Energiezustand  $|3\rangle$ . Die hierbei ausgesandte Fluoreszenzstrahlung  $\nu_{det}$  überlagert die normalerweise immer vorhandene Emissionsstrahlung und läßt sich mittels geeigneter Detektoren detektieren. Die Detektion der Fluoreszenzstrahlung geschieht entweder über Monochromatoren oder Bandpaßfilter in Kombination mit einem Photomultiplier. Das Photomultiplier-Signal wird dann entweder an einen Photonenzähler oder einen Boxcarintegrator weitergeleitet. Aus der Intensität, der Linienbreite und dem zeitlichen Verhalten des Fluoreszenzsignals (LIF-Signals), lassen sich u.a. die Teilchendichte, -temperatur, -geschwindigkeitsverteilung und Stoßrate bestimmen (BROCKHAUS et al., 1996, BROCKHAUS et al., 1995, DÖBELE, 1995).

Die Vorteile der laserinduzierten Fluoreszenz sind

- Spezies- und Spezieszustandsselektiv
- Hohe Orts- und Zeitauflösung
- Bestimmung relativer wie absoluter Teilchendichten
- Nachweisgrenze zwischen  $10^6 - 10^8 \text{ cm}^{-3}$  (DREYFUS et al., 1985)
- Nicht invasiv, sofern die Laserintensität unter einem bestimmten Grenzwert gehalten wird, unterhalb der keine Photoionisations- und Photolyseprozesse stattfinden können (PEZÉ et al., 1992, WYSONG et al., 1989, AMORIM et al., 1994, GOLDSMITH, 1987).

Der Nachweis der Grundzustandsdichte von in vielen Plasmaprozessen wichtigen Radikalen wie atomarer Wasserstoff, Sauerstoff und Stickstoff, läßt sich mit vertretbarem Aufwand nicht mehr in einem Ein-Photonenprozeß realisieren. Die zur Anregung des Grundzustandes in das nächst höher gelegene Niveau für einen Ein-Photonenprozeß benötigten Laserwellenlängen liegen bei all diesen Elementen im Vakuum-Ultraviolett (VUV)<sup>1</sup>. In diesem Wellenlängenbereich muß zum einen die gesamte Strahlführung im Vakuum geschehen, zum anderen ist die Erzeugung ausreichend intensiver Laserstrahlung in diesem Wellenlängenbereich sehr aufwendig. Ein weiterer Nachteil der Ein-Photonenanregung ist häufig, daß die zu beobachtende Fluoreszenz gleich der anregenden Laserwellenlänge ist. Dies führt zu einem hohen Aufwand zur Unterdrückung von Streulicht im Detektionszweig.

Zur Umgehung all dieser Schwierigkeiten werden Zwei-Photonenanregungsprozesse zur Detektion der Grundzustandsdichte dieser Elemente genutzt.

### 3.3.2 Zweiphotonen laserinduzierte Fluoreszenz

In Abb. 3.9 ist das Prinzip der Zweiphotonenanregung am Beispiel der Anregung atomaren Sauerstoffs aus dem Grundzustand dargestellt. Die Zweiphotonen Absorption ist schon 1931 quantentheoretisch vorhergesagt worden (GÖPPERT-MAYER, 1931). Da der quantenmechanische Effekt nur in Strahlungsfeldern mit ausreichend hoher Intensität auftreten kann, konnte er allerdings erst durch den Einsatz von Lasern in den 60er Jahren experimentell nachgewiesen werden. Die Zweiphotonen laserinduzierte Fluoreszenz nutzt bei der Anregung ein virtuelles Zwischenni-

1. 130 nm für Sauerstoff, 150 nm für Stickstoff

veau. Aufgrund der quantenmechanischen Auswahlregeln der elektronischen Übergänge für die Zweiphotonenanregung ( $\Delta L = 0$  oder  $\pm 2$ ) lassen sich somit auch Zustände erreichen, die durch Einphotonanregung ( $\Delta L = \pm 1$ ) nicht erreicht werden können.

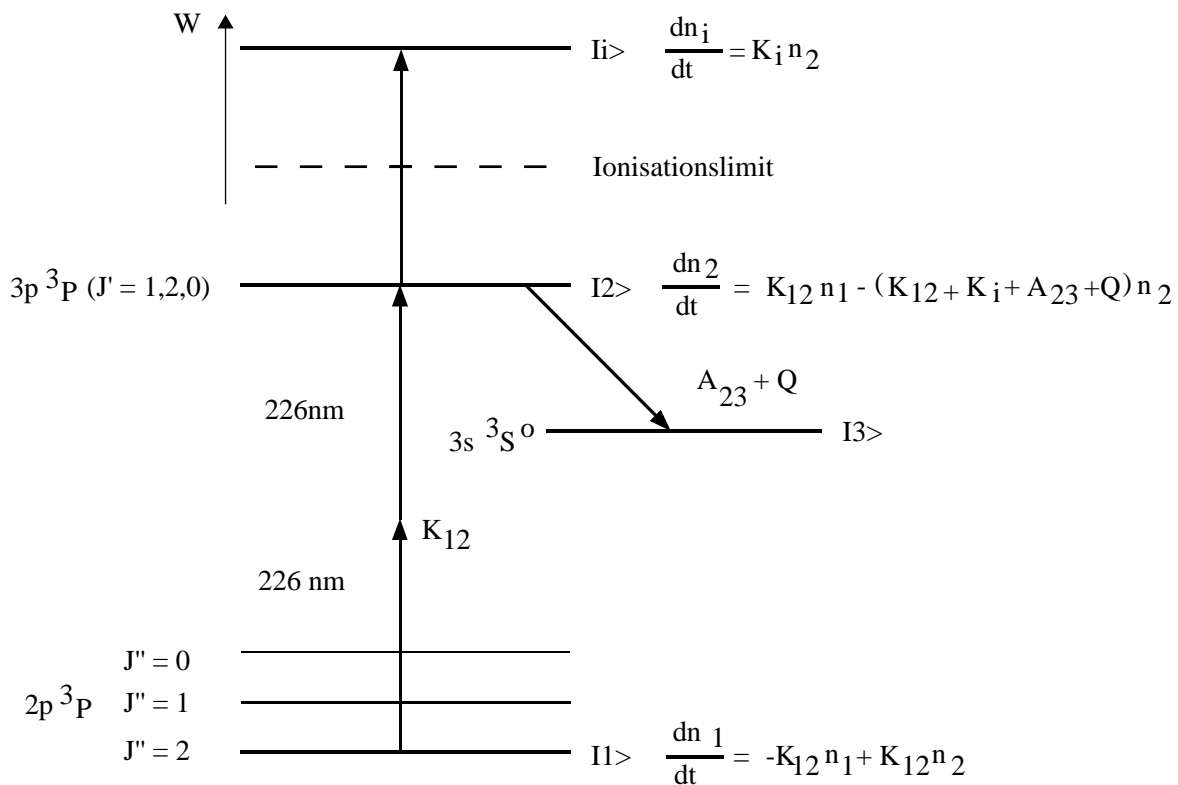


Abbildung 3.9: Zweiphotonen laserinduzierte Fluoreszenz am atomaren Sauerstoff: beteiligte Energieniveaus.

Zur Anregung eines Sauerstoffatoms im Grundzustand reichen dann zum Beispiel zwei Photonen der Wellenlänge  $226\text{ nm}$  (ALDÉN et al., 1989). Die Detektion der Fluoreszenz erfolgt bei  $845\text{ nm}$ , was die Streulichtproblematik erheblich reduziert. Den Vorteilen der Zweiphotonenanregung steht als Nachteil der im Vergleich zur Einphotonenanregung sehr viel kleinere Anregungsquerschnitt gegenüber. Um dies auszugleichen, muß mit höheren Strahlungsintensitäten im Detektionsvolumen gearbeitet werden. Bei der Verwendung von zu hohen Laserenergien führt dies jedoch zu verstärkt auftretenden Konkurrenzprozessen wie Photoionisation, verstärkter stimulierter Emission (ASE) oder Photolyse.

### 3.3.3 Bestimmung absoluter Grundzustandsdichte

Im wesentlichen existieren drei Verfahren zur Bestimmung der absoluten Grundzustandsdichte:

1. Kalibrierung des LIF Signals mit RAYLEIGH-Streuung (DÖBELE, 1995).
2. Kalibrierung mittels einer Referenz bekannter Teilchenkonzentration (BRAKE et al., 1983, COLLART et al., 1995)
3. Berechnung der absoluten Dichte durch ein Ratengleichungsmodell

Bei Mehrphotonenanregung läßt sich die RAYLEIGH-Streuung nicht mehr zur Kalibration einsetzen.

Die dritte Methode beruht auf der genauen Kenntnis der einzelnen Übergangswahrscheinlichkeiten der anzuregenden und detektierenden Niveaus. Eine exakte Bestimmung der absoluten Dichte ist mit dieser Methode allerdings nur möglich, wenn zusätzlich das Anregungs- und Detektionsvolumen und die Laserstrahlintensität genau bekannt sind. Die wesentlichen Grundzüge dieser Methode werden im folgenden am Beispiel der Zweiphotonen laserinduzierten Fluoreszenz zur Bestimmung der atomaren Sauerstoffdichte im Grundzustand dargestellt.

#### Ratengleichungsmodell zur Bestimmung der absoluten atomaren Sauerstoffdichte

Die folgende Vorgehensweise basiert im wesentlichen auf einer Arbeit von BAMFORD et al., 1986, bzw. BROCKHAUS et al., 1996. Das Prinzip des Anregungsprozesses sowie die beteiligten Energieniveaus des Sauerstoffatoms sind in Abb. 3.9 dargestellt.

Die Rate des Zwei-Photonenanregungsprozesses ist gegeben durch die Beziehung

$$K_{12} = \sigma^{(2)} \left( \frac{I}{h\nu} \right)^2 \quad (3.18)$$

mit  $I$  als Laserintensität,  $h\nu$  als Energie der Laserphotonen und  $\sigma^{(2)}$  als Wirkungsquerschnitt für die Anregung aus dem Grundzustand

$$\sigma^{(2)} = \sum_{J'} \sigma_0^{(2)}(J' \leftarrow 2) G^{(2)} g(\nu). \quad (3.19)$$

Die Funktion  $g(\nu)$  in Gl. 3.19 beschreibt das Linienprofil, gegeben durch die Dopplerverbreiterung und die Laserbandbreite. Der Faktor  $G^{(2)}$  leitet sich aus der Photonenstatistik ab und be-



trägt im Falle eines Multimoden-Lasers  $G^{(2)} = 2$ . Der fundamentale Wirkungsquerschnitt für die Zweiphotonenanregung von atomarem Sauerstoff aus dem Grundzustand  $\sigma_0^{(2)}$  wird über die drei eng benachbarten Feinstrukturen des oberen Tripletzustandes ( $J' = 1, 2, 0$ ) summiert. Der Wirkungsquerschnitt für den  $2p^3P(J'' = 2)$  Übergang in das obere Tripletniveau  $3p^3P$  beträgt  $2,66 \times 10^{-35} \text{ cm}^4$  (BISCHEL et al., 1981). Für Laserstrahlungsintensitäten  $I < 10^9 \text{ Wcm}^{-2}$  wird der Zusammenhang zwischen den Energieniveaus  $|1\rangle$ ,  $|2\rangle$  und  $|i\rangle$  durch die Ratengleichungen

$$\frac{dn_1}{dt} = -K_{12}n_1 + K_{12}n_2, \quad (3.20)$$

$$\frac{dn_2}{dt} = K_{12}n_1 - (K_{12} + K_{iz} + A_{23} + Q)n_2, \quad (3.21)$$

$$\frac{dn_i}{dt} = -K_{iz}n_2, \quad (3.22)$$

beschrieben. Sowohl die Dichten  $n$  als auch die Rate  $K$  sind zeit- und ortsabhängig. Der zweite Summand in Gl. 3.21 beschreibt die Verlustprozesse des angeregten oberen Niveaus. Berücksichtigt werden hier: *Ionisation* ( $K_{iz}$ ), verursacht durch ein drittes absorbiertes Photon

$$K_{iz} = \sigma_{iz} \frac{I}{h\nu}, \quad (3.23)$$

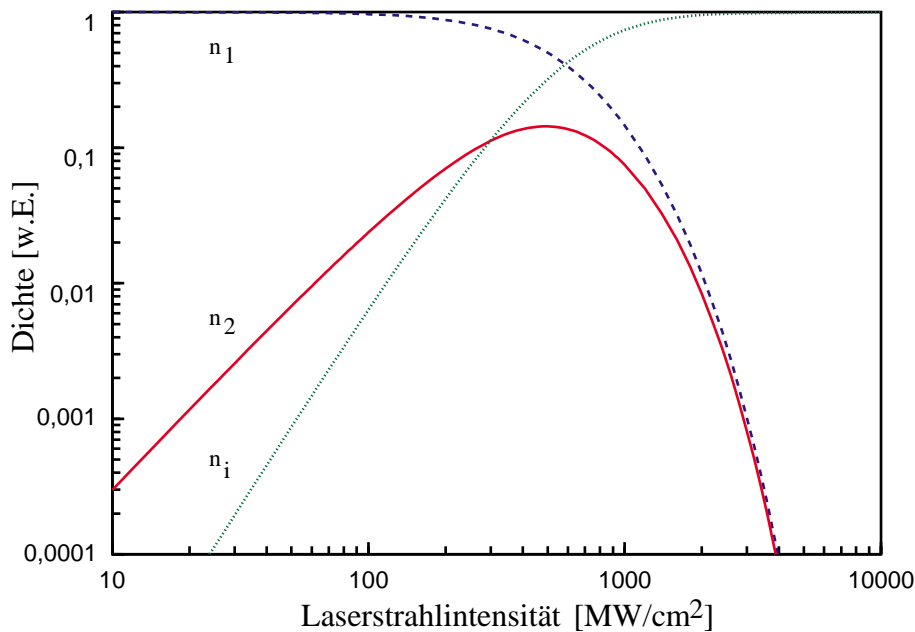
mit dem Wirkungsquerschnitt  $\sigma_{iz} = 5,27 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$ , *spontane Emission* in das niedrigere Energieniveau  $|3\rangle$  mit  $A_{23} = 2,89 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$  und durch Stöße verursachte *stimulierte Emission* (Quenching) in benachbarte niederenergetische Niveaus ( $Q$ ),

$$Q = k_c p \quad (3.24)$$

mit  $k_c$  als Quenching-Konstante ( $k_c = 2,1 \times 10^5 \text{ s}^{-1} \text{ Pa}^{-1}$ , BISCHEL et al., 1981).

Unter der Voraussetzung eines schmalbandigen Laserpulses, dessen mittlere Pulsdauer wesentlich kürzer ist als die Abfallzeit des Fluoreszenzsignals, lassen sich die Gl. 3.20-Gl. 3.22 mit Hilfe numerischer Verfahren lösen.

In Abb. 3.10 sind die relativen Besetzungsdichten der Zustände in Abhängigkeit von der Laserenergie für ein Sauerstoffplasma direkt im Anschluß an den Laserpuls dargestellt. Die maximale Anregungseffizienz erhält man für Laserstrahlintensitäten von ca.  $500 \text{ MW cm}^{-2}$ . Für höhere Intensitäten überwiegt die Photoionisation des Sauerstoffatoms.



bbildung 3.10: Relative Besetzungsdichten der Energieniveaus des Sauerstoffatoms in Abhängigkeit von der Laserstrahlintensität. Laserbandbreite:  $0,18 \text{ cm}^{-1}$ ,  $p = 20 \text{ Pa}$ .

Um die absolute Grundzustandsdichte des atomaren Sauerstoffs  $n_1$  bestimmen zu können, muß neben den Ratengleichungen auch die Effizienz des Detektionszweiges bekannt sein. Hierzu läßt sich ein von BISCHEL et al., 1986, entwickeltes, auf der RAMAN-Streuung basierendes Verfahren, einsetzen. Füllt man anstatt Sauerstoff in dieselbe Anlage Wasserstoff, dann erhält man bei einer Laserwellenlänge von 625 nm ein STOKES-Signal bei einer Wellenlänge von 845 nm. Das detektierte RAMAN-Signal  $N_R$  ist abhängig von der Laserenergie  $W$  und der Dichte  $n_{H_2}$  des Wasserstoffs

$$N_R = D_{et} n_{H_2} \frac{W}{h\nu} \left( \frac{\partial \sigma_R}{\partial \Omega} \right) \quad (3.25)$$

mit  $D_{et}$  als Detektionskonstante und  $\partial \sigma_R / \partial \Omega = 3,56 \times 10^{-31} \text{ cm}^2 \text{ sr}^{-1}$  als differentiell, vom Detektionsraumwinkel abhängigen, Wirkungsquerschnitt der RAMAN-Streuung. Im Anschluß an die RAMAN-Kalibrierung erhält man die absolute Sauerstoffdichte in zwei Schritten. Zuerst wird aus dem gemessenen LIF-Signal die Besetzungsdichte des durch den Laser angeregten Zustandes  $n_2$  bestimmt

$$N_C = \frac{D_{et} \pi w_0^2}{4\pi} \frac{A_{23}}{A_{23} + Q} n_2. \quad (3.26)$$

In einem zweiten Schritt läßt sich dann bei bekannter Laserleistung, Laserbandbreite und mittlerer Laserpulsdauer mittels des Ratengleichungsmodells das Verhältnis der angeregten Zustandsdichte  $n_2$  zur gesuchten Grundzustandsdichte  $n_1$  berechnen.

### 3.3.4 Zeitaufgelöste laserinduzierte Fluoreszenz

Zeitaufgelöste Ein- oder Zweiphotonen laserinduzierte Fluoreszenzmessungen stellen inzwischen ein Standardverfahren der Laserspektroskopie dar (TOMASINI et al., 1996, DEBENEDICTIS und DILECCE, 1996, SUZUKI und KADOTA, 1995). Aus diesem Grund wird an dieser Stelle nur kurz auf die wesentlichen Punkte eingegangen. Für eine ausführlichere Darstellung sei auf die im Literaturverzeichnis zu diesem Thema aufgeführte Literatur verwiesen (BEHLE et al., 1998, COLLART et al., 1995, TSEREPI und MILLER, 1995, DILECCE und DEBENEDICTIS, 1993).

Die Zeitauflösung der laserinduzierten Fluoreszenz ist im wesentlichen beschränkt durch die Pulsfrequenz des Lasers und die mittlere Abfallszeit des LIF-Signals. Sie liegt bei atomarem Sauerstoff bei ca. 60 ns (BROCKHAUS et al., 1996). Die Pulsfrequenz handelsüblicher Lasersysteme liegt zwischen 10 und 100 Hz. Bei geeigneter Synchronisation mit dem gepulsten Plasma läßt sich unter Zuhilfenahme der Boxcartechnik eine minimale Auflösung in der Größenordnung der Abklingzeit des LIF-Signals erreichen (GOECKNER et al., 1994). Um ein vernünftiges Signal/Rauschverhältnis zu erzielen, muß man allerdings über eine Vielzahl von Laserschüssen und Perioden integrieren, was bei niedrigen Pulsfrequenzen zu einer langen Meßdauer führen kann. Innerhalb dieser Meßzeit ist sicherzustellen, daß es zu keinen Driften der Laserfrequenz, bzw. des zu beobachtenden Plasmas, kommt.

---

## Kapitel 4

### Experimenteller Aufbau

In diesem Abschnitt werden der dieser Arbeit zugrunde liegende Versuchsaufbau dargestellt sowie die wesentlichen Komponenten in ihrer Funktion kurz erläutert.

Untersucht worden ist das gepulste Verhalten großvolumiger Mikrowellenplasmen an einer am Forschungszentrum für Mikrostrukturtechnik-*fmt* entwickelten 2,45 GHz Mikrowellenplasmaquelle nach dem Schlitzantennenprinzip vom Typ SLAN (SLAN: *slot antenna*) (KORZEC et al., 1996).

Der experimentelle Versuchsaufbau besteht aus (Abb. 4.1):

#### I. Versuchsanlage

- Mikrowellenplasmaquelle & Rezipient
- Mikrowellenversorgung
- Vakuumsystem
- Gasversorgung

#### II. Zeitaufgelöste Diagnostik

- Mikrowelleninterferometrie
- LANGMUIR-Sonde
- Planare optische Emissionsspektroskopie (POES)
- Laserinduzierte Fluoreszenz (LIF)
- Reflektierte Leistung

Eine Übersicht sowohl der wesentlichen Komponenten der Versuchsanlage als auch der eingesetzten Diagnostik ist in Abb. 4.1 gegeben. Aus Gründen der Übersichtlichkeit sind in Abb. 4.1 lediglich die Orte gekennzeichnet, an denen die diversen Sondenmessungen und die zeitaufgelösten Messungen der LIF durchgeführt wurden. Für eine detaillierte Übersicht über den Versuchsaufbau der LANGMUIR-Sondenmessung sei auf Abb. 4.4, Kapitel 4.2.2 verwiesen. Der Versuchsaufbau der LIF ist in Abb. 4.10 im Kapitel 4.2.6 dargestellt.

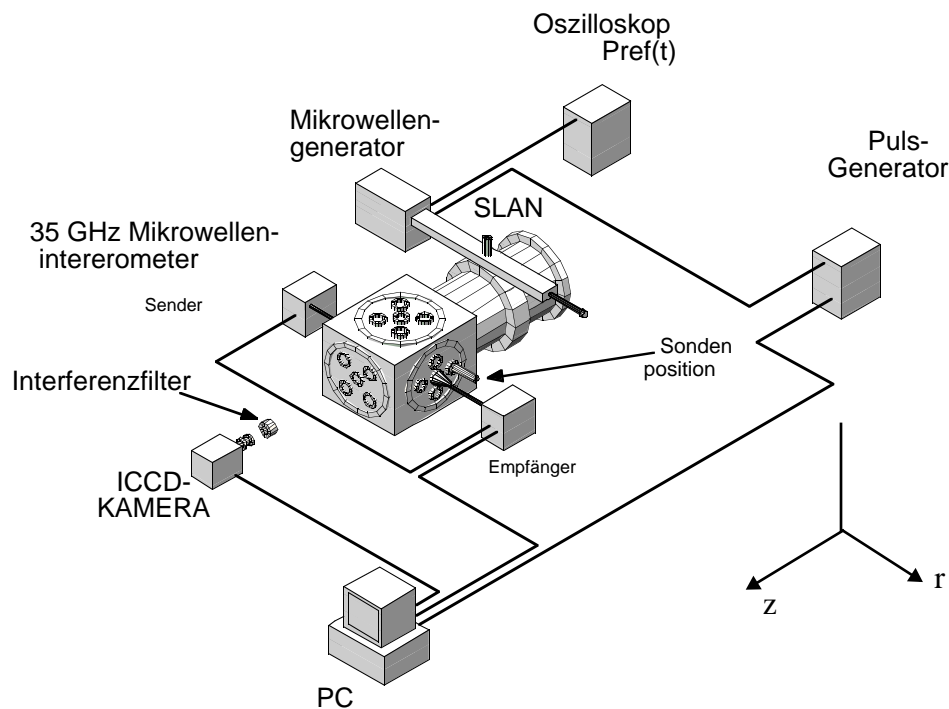


Abbildung 4.1: Übersicht über den Versuchsaufbau.

## 4.1 Versuchsanlage

### 4.1.1 Mikrowellenplasmaquellen nach dem Schlitzantennenprinzip

Wesentlicher Bestandteil aller Mikrowellenquellen vom Typ SLAN ist ein aus Hohlleitern vom Typ R26 aufgebauter Ringresonator. Auf der Innenseite des Resonators befinden sich im Abstand der halben Hohlleiterwellenlänge  $\lambda_g/2$  symmetrisch zur Seitenmitte und senkrecht zur Ausbreitungsrichtung der Mikrowelle bis zu 32 Schlitzantennen (KORZEC et al., 1996). Die Position der Schlitzantennen entspricht in etwa der Position der  $E$ -Feldmaxima des Stehwellenfeldes im Ringresonator. Über die in den Innenraum der Quelle abstrahlenden Schlitzantennen wird die Mikrowellenleistung aus dem Resonator ausgekoppelt und durch ein zylinderförmiges Quarzglas in das Plasma, bzw. die Plasmakammer abgestrahlt.

Der Ringresonator ist über eine verschiebbare Antenne mit einem geraden R26-Hohlleiter gekoppelt. Die Antenne ist in der Mitte der breiten Hohlleiterseite positioniert und wird durch ein Koppelloch in den Resonator geführt. Der zuführende Hohlleiter ist an der dem Mikrowellengenerator gegenüberliegenden Seite mit einem verstellbaren Kurzschluß abgeschlossen. Antenne

und Kurzschlußschieber bilden zusammen das Anpaßnetzwerk, mit dem sich die zur Minimierung der reflektierten Leistung notwendige Impedanzanpassung der Quelle an den Mikrowellengenerator vornehmen läßt.

Zwischen SLAN und Mikrowellengenerator befindet sich ein Zirkulator, der eine Zerstörung des Mikrowellengenerators durch zu hohe reflektierte Leistung verhindern soll. Die reflektierte Leistung wird hier in einer Wasserlast absorbiert und die entstehende Wärme an einen Kühlwasserkreislauf abgegeben.

Das Schlitzantennenprinzip in Kombination mit der konzentrischen Einstrahlung ermöglicht die Mikrowellenabsorption über eine große Plasmaoberfläche und die Erzeugung großvolumiger homogener Plasmen mit Elektronendichten  $n_e > 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ . Weitere Vorteile einer zylindrischen Einkopplung liegen in der dreidimensionalen Plasmabehandlung von Werkstücken. Der prinzipielle Aufbau von Mikrowellenplasmaquellen vom Typ SLAN ist in Abb. 4.2 /Abb. 4.3 dargestellt.

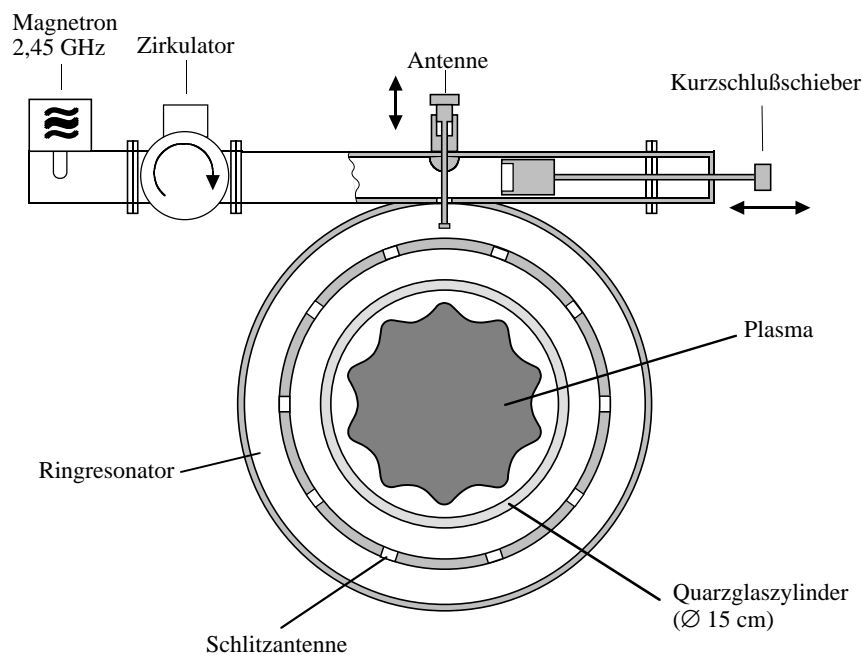


Abbildung 4.2: Schematischer Aufbau einer Plasmaquelle vom Typ SLAN.

In dieser Arbeit wurde eine SLAN-I in ihrer *Downstream*-Version untersucht. Diese Version ist für Anwendungen konzipiert, bei denen Ort der Plasmaerzeugung und der Plasmabehandlung aus prozeßtechnischen Gründen voneinander getrennt sein sollten. Das in der Plasmakammer der Quelle erzeugte Plasma gelangt durch Diffusion zum Ort des Plasmaprozesses. Die Vorteile von Downstream Prozessen liegt in der wesentlich reduzierten Wärme- und Mikrowellenbelastung

des zu behandelnden Substrates.

Der in dieser Arbeit eingesetzte SLAN-Typ (Abb. 4.2) hat einen Ringresonator mit zehn azimuthal angeordneten Schlitzantennen, die die Mikrowellenleistung in eine als Plasmakammer genutzte Quarzglasglocke mit einem Innendurchmesser von 15 cm abstrahlen. Die Höhe der Glocke beträgt 20 cm. Zur Vermeidung von Überschlägen im Ringresonator, bedingt durch zu hohe  $E$ -Feldstärken im Pulsbetrieb, wurde die in den Ringresonator hineinragende Antennenspitze von 8 mm auf einen Durchmesser von 20 mm erhöht. Die ebenfalls untersuchte gepulste ECR-SLAN (Kapitel 5.1.3) ist, bis auf einen Trägerring zur Befestigung der zur Erzeugung des ECR-Effektes benötigten Permanentmagneten baugleich mit der verwendeten SLAN-I. Die Magnete befinden sich jeweils zwischen zwei Schlitzantennen und sind in toridaler Konfiguration angeordnet (ENGEMANN et al., 1995a).

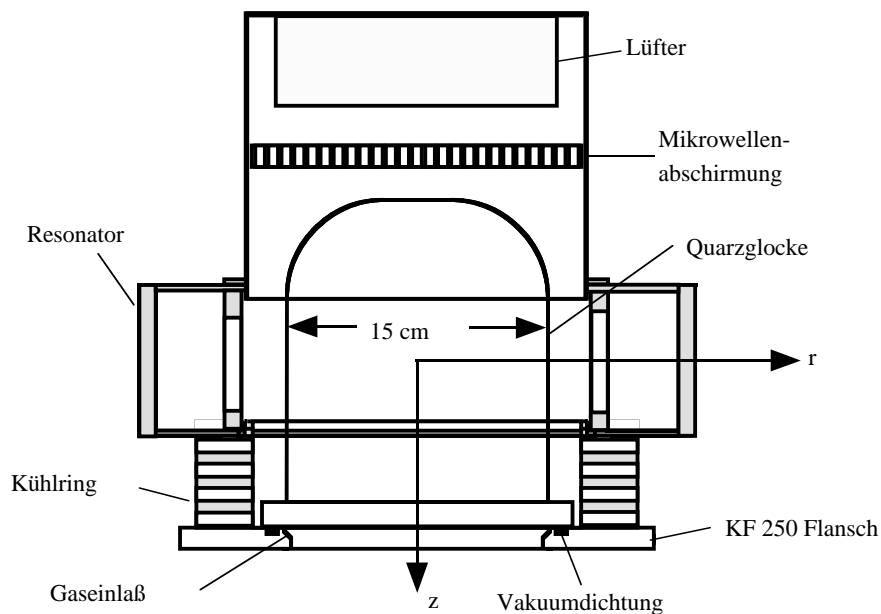


Abbildung 4.3: Axialer Schnitt durch die *Downstream*-version der SLAN-I.

Die Quelle wurde, wie in Abb. 4.1 gezeigt, seitlich an einen kubischen Edelstahlrezipienten mit einer inneren Kantenlänge von 30 cm angeflanscht. Zur Befestigung der Plasmaquelle und der Vakuumpumpe werden zwei der insgesamt am Rezipienten vorhandenen sechs DN 250 ISO-K Anschlußflansche genutzt. Die restlichen DN 250 ISO-K Anschlußflansche sind mit Blindflanschen versehen mit bis zu fünf DN 40 ISO-KF Öffnungen pro Flansch zur Adaption diverser Diagnostiken, bzw. Quarzfenster. Der Abstand von Flansch zu Flansch beträgt  $\varnothing = 4,64$  cm (Abb. 4.1/Abb. 4.9).

### 4.1.2 Mikrowellenversorgung

Die Mikrowellenversorgung der Plasmaquelle erfolgt über einen 2,45 GHz Mikrowellengenerator mit variabler Ausgangsleistung (*Sairem GMP 20 KE/D*). Die maximale Ausgangsleistung des Gerätes beträgt 2 kW. Die Ausgangsleistung des Mikrowellengenerators läßt sich durch einen extern angeschlossenen Funktionsgenerator zwischen cw und 20 KHz mit beliebigen Signalformen modulieren. Zur Erzeugung einer vollmodulierten gepulsten Mikrowellenleistung wurde ein Funktionsgenerator (*Hewlett-Packard HP 8112A*) eingesetzt. Über dieses Gerät werden Pulsfrequenz, Tastverhältnis sowie die maximale Mikrowellenleistung im Puls vorgegeben. Die mittlere Ausgangsleistung erhält man dann als Funktion des Tastverhältnisses und der Pulsperiodendauer  $T$ :

$$\bar{P} = \frac{1}{T} \int_0^T p(t) dt. \quad (4.1)$$

Für den Fall eines ideal rechteckförmigen Leistungspulses mit der Amplitude  $P_{MW,on} = P_{max}$  während des Puls-, „an“ Zeitraums  $t_{on}$  und  $P_{MW,off} = 0$  während des Puls-, „aus“ Zeitraums  $t_{off} = T - t_{on}$  ergibt Gl. 4.1:

$$\bar{P}_{MW} = \frac{t_{on}}{T} P_{max}. \quad (4.2)$$

Analog erhält man die zeitlich gemittelte reflektierte Mikrowellenleistung  $\bar{P}_{ref}$ . Die vom Plasma absorbierte Mikrowellenleistung ergibt sich dann aus der Differenz zwischen Vorwärtsleistung und der reflektierten Leistung:

$$\bar{P}_{abs} = \bar{P}_{MW} - \bar{P}_{ref}. \quad (4.3)$$

Im Pulsbetrieb wird die SLAN stets so abgestimmt, daß die mittlere reflektierte Leistung minimal ist. Die hierzu eingestellte Antennen- und Abschlußschieberposition wird während des Pulsbetriebes nicht verändert.

Die Anstiegszeit von 10% auf 90% der Mikrowellenleistung liegt bei 1  $\mu$ s, die Abfallszeit bei 10  $\mu$ s. Zwischen dem Triggersignal des Mikrowellengenerators und dem Anliegen des MW-Pulses im Resonator der SLAN existiert eine Verzögerungszeit von 12  $\mu$ s. Sowohl Anstiegs-, Abfallszeit als auch die Verzögerungszeit wurden mit einer Stabantenne kombiniert mit einem schnellen digitalen Speicheroszilloskop (*Tektronix TDS 684B*) direkt im Resonator gemessen.



### 4.1.3 Vakuumsystem und Gasversorgung

Zur Vakuumerzeugung wurde ein Pumpensystem genutzt, das aus einer Drehschieberpumpe (*Leybold Trivac D40B*) und einer Turbomolekularpumpe (*Leybold Turbovac 1500*) besteht. Mit dieser Anordnung wird ein Basisdruck in der Anlage von  $p = 3 \cdot 10^{-4}$  Pa erreicht.

Die Versorgung der Versuchsanlage mit den Prozeßgasen Argon und Sauerstoff erfolgt über eine zentrale Gasversorgung. Von dort aus wird jedes Gas einem eigenen, von der zentralen Steuereinheit (*MKS 647 B*) angesteuerten, Gasflußregler (*MKS 1259*) zugeführt. Druck, Gasfluß und -zusammensetzung werden direkt über eine zentrale Steuereinheit kontrolliert. Der Prozeßdruck wird über die Gaseinlaßseite über das Saugvermögen der Pumpe in Verbindung mit einem Drosselventil (*MKS 152*) und zugehörigem Druckregler (*MKS152E-P2*) in Verbindung mit der Steuereinheit geregelt. Der Druck-Istwert wird mittels eines am Rezipienten angeschlossenen, temperaturkompensierten Baratrons (*MKS 127*) ermittelt. Falls nicht anders erwähnt, beträgt der Gasfluß für alle in dieser Arbeit durchgeführten Experimente 50 sccm.

## 4.2 Diagnostik

### 4.2.1 Zeitaufgelöste Bestimmung der reflektierten Mikrowellenleistung

Um sicherzustellen, daß bei allen Experimenten die gleichen Abstimmbedingungen sowie gleiches Quellenverhalten vorliegt, wurde im Pulsbetrieb die zeitabhängige reflektierte Leistung  $p_{ref}(t)$  aufgezeichnet. Die reflektierte Leistung wurde mittels einer  $E$ -Feldsonde vor der Wasserlast des Zirkulators detektiert. Die gleichgerichtete SONDENSspannung ist proportional zum Quadrat der elektrischen Feldstärke und wird mit einem Oszilloskop gemessen. Die Abgleichung der am Oszilloskop gemessenen Spannung erfolgt mittels einer am Mikrowellengenerator vorhandenen Meßvorrichtung zur Bestimmung der reflektierten Leistung im cw Betrieb. Mit Hilfe dieser Abgleichsfunktion läßt sich dann im Pulsbetrieb die zeitaufgelöste reflektierte Leistung  $p_{ref}(t)$  per Oszilloskop ermitteln. Die Zeitauflösung liegt bei der Verwendung von handelsüblichen Diodendetektoren aufgrund von parasitären Kapazitäten bei ca. 10 kHz. Der Meßfehler liegt in der Größenordnung des Meßfehlers der Meßvorrichtung zur Bestimmung der reflektierten Leistung im cw-Betrieb des Mikrowellengenerators und beträgt ca.  $\pm 10$  %.

### 4.2.2 Langmuir-Sondensystem

In Ermangelung bestehender Systeme wurde zur zeitaufgelösten Elektronendichte und -temperaturbestimmung das in Abb. 4.4 dargestellte Einzelsondenmeßsystem entwickelt (BEHLE et al., 1997b). Das zeitaufgelöste Meßverfahren basiert auf der in Kapitel 3.1.4 dargestellten Sampletechnik. Die gesamte Meßwerterfassung und -steuerung und die anschließende Auswertung ist rechnergesteuert. Der den Mikrowellengenerator ansteuernde Pulsgenerator (HP 8112A) wird als Master-Trigger des gesamten Systems verwandt. Um die zeitabhängige Strom-Spannungskennlinie  $I(t)$ - $U$  aufzunehmen, wird für jeden Spannungspunkt der Kennlinie der zeitabhängige Sondenstrom über den gegen Masse geschalteten Innenwiderstand ( $R_{osz} = R_m = 50 \Omega$ ) des digitalen Speicheroszilloskops (Tektronix TDS 684) gemessen. Im Anschluß wird der über  $N$  Perioden gemittelte zeitabhängige Sondenstrom vom Rechner ausgelesen.

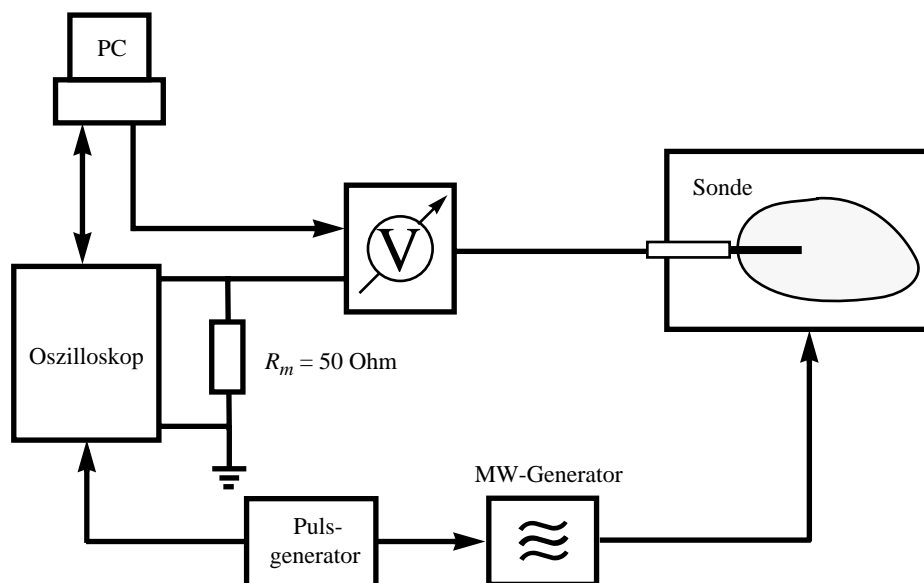


Abbildung 4.4: Prinzipieller Meßaufbau der zeitaufgelösten LANGMUIR-Sondenmessung.

Als Spannungsquelle wird eine rechnergesteuerte, potentialfreie Spannungsquelle eingesetzt (Keithley 237). Die minimal einstellbare Schrittweite beträgt  $\Delta U = 0,1 \text{ V}$ . Daraus folgt eine untere Grenze der Elektronenergieauflösung des Sondenmeßsystems von  $kT_e \geq 0,1 \text{ eV}$ . Ist der gesamte Spannungsbereich der Kennlinie durchfahren, wird die aufgenommene  $U$ - $I(t)$  Matrix zu einer  $I(t)$ - $U$  Kennlinienmatrix transponiert und anschließend per DRUYVESTYEN-Methode (Kapitel 3.1.3) ausgewertet. Bei der hierzu notwendigen numerischen Berechnung der zweiten Ableitung

wird die reale Sondenspannung  $U_s$  bestimmt, indem die vorgegebene Sondenspannung um den Spannungsabfall am Meßwiderstand korrigiert wird:

$$\frac{\partial^2 I(t)}{\partial U_s^2} = \frac{\partial^2 I(t)}{\partial U^2} \frac{1}{(1 - R_m(\partial I(t)/\partial U))^3} \quad (4.4)$$

(FLENDER et al., 1996).

Als Sondenspitze wird, falls nichts anderes erwähnt ist, ein Wolframdraht mit 0,1 mm Durchmesser und 3 mm Länge eingesetzt (KREHER et al., 1994). Die meisten zeitaufgelösten Einzelsondenmessungen sind entlang der Quellenlängsachse ( $r = 0$  cm) im *Downstream*-Bereich durchgeführt worden. Im Pulsbetrieb vermeiden Messungen in diesem Bereich ein unbeabsichtigtes Zünden des Plasmas durch eine durch die Sondenspitze erzeugte lokale Feldüberhöhung. Ob die Sonde an ihrer jeweiligen Meßposition evtl. die Plasmazündung im Pulsbetrieb beeinflusste, wurde mittels der eingesetzten ICCD-Kamera vor jeder Messung überprüft.

Zur Bestimmung der minimalen Zeitauflösung des Meßaufbaus (Kapitel 3.1.4) wurde in Abwesenheit eines Plasmas die Streukapazität des Meßsystems experimentell ermittelt. Hierzu wurde auf die Sondenspitze ein Dreiecksignal mit einer Pulsfrequenz zwischen 0,2 – 1 MHz gegeben und der zum Sondenstrom  $I(t)$  proportionale Spannungsabfall  $U_m(t)$  am Meßwiderstand  $R_m$  des Oszilloskops gemessen. Die Streukapazität des Meßsystems erhält man dann aus der Beziehung

$$I(t) = C_s \frac{dU}{dt}. \quad (4.5)$$

Die Messungen ergaben eine mittlere Streukapazität  $C_s$  der Meßanordnung von ca. 5 nF. Die Zeitkonstante der Meßanordnung  $t_s = R_m C_s$  beträgt in diesem Fall  $t_s = 250$  ns. Hieraus folgt eine minimale Zeitauflösung des Meßsystems in etwa vom fünfachen Wert der Zeitkonstante  $t_s$  von 1,5  $\mu$ s.

### 4.2.3 Mikrowelleninterferometer

Zur Bestimmung des zeitabhängigen Verhaltens der Elektronendichte wird in dieser Arbeit zusätzlich zur Einzelsondenmessung ein 35 GHz ( $\lambda_{MWI} \approx 9$  mm) Mikrowelleninterferometer (MWI) mit einer minimalen Zeitauflösung von 100 ns eingesetzt (NEUMANN et al., 1993). Die wesentlichen Komponenten des Meßaufbaus sind in Abb. 4.5 dargestellt. Der Detektionszweig des eingesetzten heterodynen Mikrowellengenerators besteht aus einem Sender und Empfänger,

in denen zwei zueinander kohärente, phasengeregelte GUNN-Oszillatoren verwendet werden. Die Kohärenz der beiden Oszillatoren wird durch den Einsatz eines 100 MHz Referenzoszillators in Kombination mit nachgeschalteten Frequenzmultiplizierern gewährleistet. Durch die Nutzung zweier Mikrowellenoszillatoren ist es möglich, eine flexible Koaxialleitung als Referenzleitung zwischen Sender und Empfänger einzusetzen. Auf aufwendige Hohlleiterverbindungen im Referenzzweig, wie in anderen MWI üblich, kann hierdurch verzichtet werden. Aufgrund des flexiblen Referenzzweigs läßt sich das verwendete heterodyne MWI an beliebige Plasmageometrien adaptieren. Der Frequenzabstand zwischen Sender und Empfängeroszillator beträgt 200 MHz.

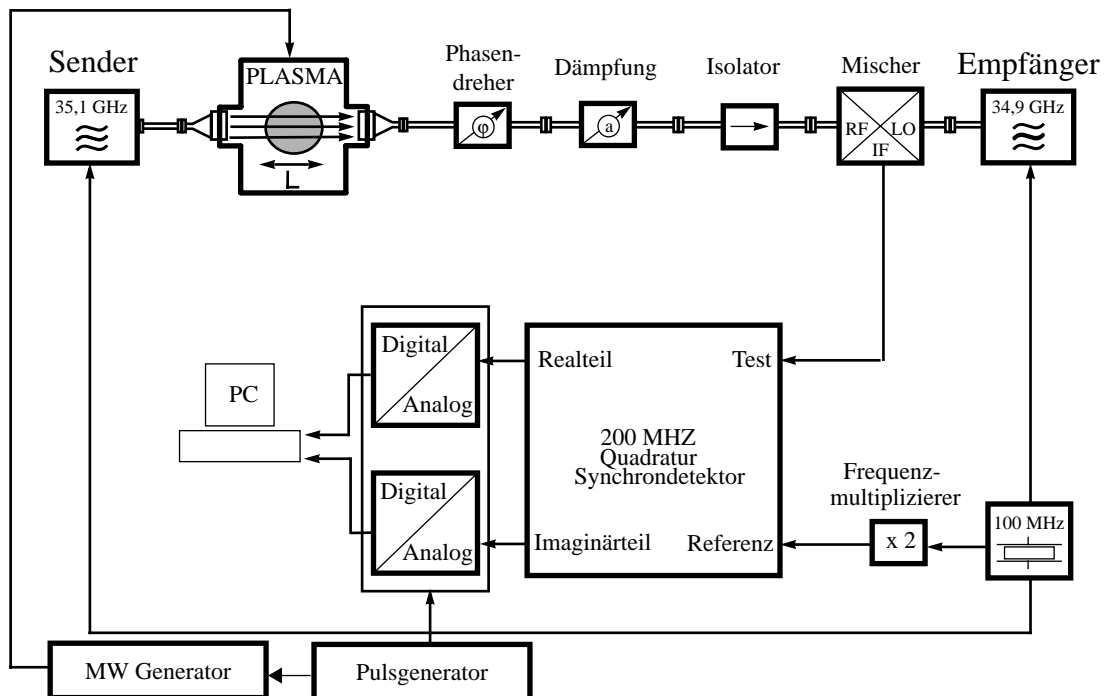


Abbildung 4.5: Schematischer Aufbau der MWI-Meßanordnung.

Das beim Durchgang durch das Plasma gegenüber dem Referenzsignal phasenverschobene Sendersignal wird zusammen mit dem Empfangssignal über einen Gegentaktmischer demoduliert und somit die Phasenverschiebung in eine Zwischenfrequenzlage umgesetzt. Ein nachgeschalteter Quadratur-Synchrondetektor ermittelt Real- und Imaginärteil des Phasensignals. Im Anschluß werden Real- und Imaginärteil digitalisiert und per Rechner ausgewertet.

Zur Digitalisierung der MWI-Daten wurden eine 12 bit A/D-Wandlertarte mit einer Samplingrate von 130 kHz/s pro Kanal eingesetzt (*Keithley DAS-1800*). Die eingesetzte A/D-Wandlertarte begrenzt die minimale Zeitauflösung des MWI auf 15  $\mu$ s. Während der zeitaufgelö-

sten Messung wird das MWI im kontinuierlichen Modus betrieben. Die Synchronisation der Meßwerterfassung des MWI zum gepulsten Plasma wird erreicht über ein Startsignal des Puls-generators, der den Mikrowellengenerator ansteuert.

Der Einsatz des MWIs erfolgte in der *Downstream*-Zone ( $z = 31$  cm) quer zur Längsachse der Versuchsanordnung (siehe Abb. 4.1 u. Abb. 4.9). Hierbei wurde die Mikrowelle über den Hornstrahler des Senders, einer Mikrowellenlinse aus Teflon und ein Quarzfenster ( $\varnothing = 4$  cm,  $d = 0,8$  cm) in den Rezipienten abgestrahlt. Detektiert wurde die Mikrowelle auf der Empfangsseite durch einen Hornstrahler und nachgeschalteten Detektor (Abb. 4.5). Die beiden konvex geformten dielektrischen Mikrowellenlinsen vor den Hornstrahlern sorgen für eine möglichst gering divergente Einkopplung der Mikrowellenstrahlung in das Plasma (HEALD und WHARTON, 1978).

Aufgrund der im Vergleich zur Vakuumwellenlänge des MWIs ( $\lambda_{MWI} = 8,6$  mm) großen Abmessungen des Rezipienten ( $\varnothing = 464$  mm) und der Fensteröffnungen ( $\varnothing = 40$  mm) ist eine Beeinflussung des MWI-Feldes durch Wellenleitungseffekte, wie sie z.B. bei MWI-Messungen in der *GEC*<sup>1</sup>-Reference cell auftreten, zu vernachlässigen (OVERZET und HOPKINS, 1993a). Da alle im Bereich der zur Ausbreitungsrichtung des MWI-Signals transversalen Abmessungen (Fensteröffnungen, Rezipient) die Bedingung  $D \geq 5 \cdot \lambda_{MWI}$  erfüllen, läßt sich die Elektronendichte  $n_e$  aus der gemessenen Phasenverschiebung durch die in Kapitel 3.1.5 aufgeführten Gl. 3.8, bzw. Gl. 3.9 berechnen.

Die mit dem eingesetzten MWI maximal detektierbare Phasendifferenz beträgt laut Hersteller (*MITEQ*)  $\Delta\phi = 2^\circ$ . Dies entspricht einer Meßgenauigkeit der Elektronendichte von  $\pm 5,8 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ . Hieraus resultiert für eine Verteilung der Elektronen der Form  $n_e(r) = n_{e,0} J_0(2,405r/R)$  eine minimal im Zentrum des Plasmas detektierbare Elektronendichte von  $n_{e0} \approx 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ . Falls nicht anders erwähnt, geben alle in dieser Arbeit präsentierten MWI-Messungen die Elektronendichte im Zentrum ( $r = 0$ ) der *Downstream*-Zone wieder. Die maximal mit dem eingesetzten 35 GHz MWI detektierbare Elektronendichte liegt aufgrund von Brechungseffekten und Transmissionsverlusten bei ca.  $5 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$  (Kapitel 3.1.5).

---

1. GEC: eng. Abkürzung für *Gaseous electronics conference*. Die GEC-Reference Cell ist eine standardisierte kapazitiv gekoppelte HF-Quelle in Parallelplattenanordnung.

#### 4.2.4 Planare optische Emissionsspektroskopie

Zur Untersuchung des zeit- und ortsabhängige Verhalten der Emission von angeregten Spezies speziell in gepulsten großvolumigen Mikrowellenplasmen wurde im Rahmen dieser Arbeit das Verfahren der zeitaufgelösten, planaren optischen Emissionsspektroskopie (POES) entwickelt (BEHLE et al., 1997a). Hierbei erfolgt die zeit- und ortsaufgelöste Detektion der zu untersuchenden angeregten Spezies mittels schmalbandiger Bandpaßfilter in Kombination mit einem gatebaren ICCD-Kamerasystem (*Princeton 576-G/I*). Die Kamera besteht aus einem thermoelektrisch gekühlten ( $-40^{\circ}\text{C}$ ), frontbeleuchteten Silizium CCD-Array (576x384 Pixel, Pixelgröße  $22\ \mu\text{m}$ ). Als Bildverstärker ist dem CCD-Chip eine mit einer elektronischen Blende ausgestattete Mikrokanalplatte (*MCP*<sup>1</sup> BALK, 1994) vorgeschaltet. Die elektronische Blende ermöglicht extrem kurze Belichtungszeiten von bis zu 5 ns. Ein rechnergesteuerter Puls-/Delaygenerator (*Princeton PG200*) kontrolliert die Öffnungszeit  $t_g$  der elektronischen Blende.

Der Ablauf sowie der schematische Aufbau der zeitaufgelösten POES-Detektion ist in Abb. 4.6 dargestellt. Die Kohärenz zwischen gepulstem Mikrowellenplasma und der Kamera wird durch ein kontinuierliches, vom Pulser des Mikrowellengenerators kommendes Triggersignal gewährleistet. Die steigende Flanke dieses Signals triggert den Triggereingang des Puls-/Delaygenerators der Kamera. Der elektronische Verschuß der Kamera öffnet nach der per Rechner vorgegebenen Verzögerungszeit  $t_d$  und der CCD-Chip wird für die Dauer der Öffnungszeit des Verschlusses  $t_g$  belichtet. Um ein bei diesen kurzen Belichtungszeiten zur Auswertung hinreichend großes Intensitätssignal zu erhalten, wird die Belichtung des CCD-Chips solange periodisch wiederholt, bis die eingestellte Gesamtbelichtungszeit  $t_{exp}$  erreicht ist. Die Anzahl der Einzelaufnahmen, aus denen sich das abschließend vom CCD-Chip ausgelesene POES-Bild zusammensetzt, ist gleich dem ganzzahligen Anteil von  $t_{exp}/T$ , mit  $T$  als Periodendauer der Pulsfrequenz.

---

1. MCP Abkürzung des englischen Begriffes für Mehrkanalverstärker: *micro channel plate*.

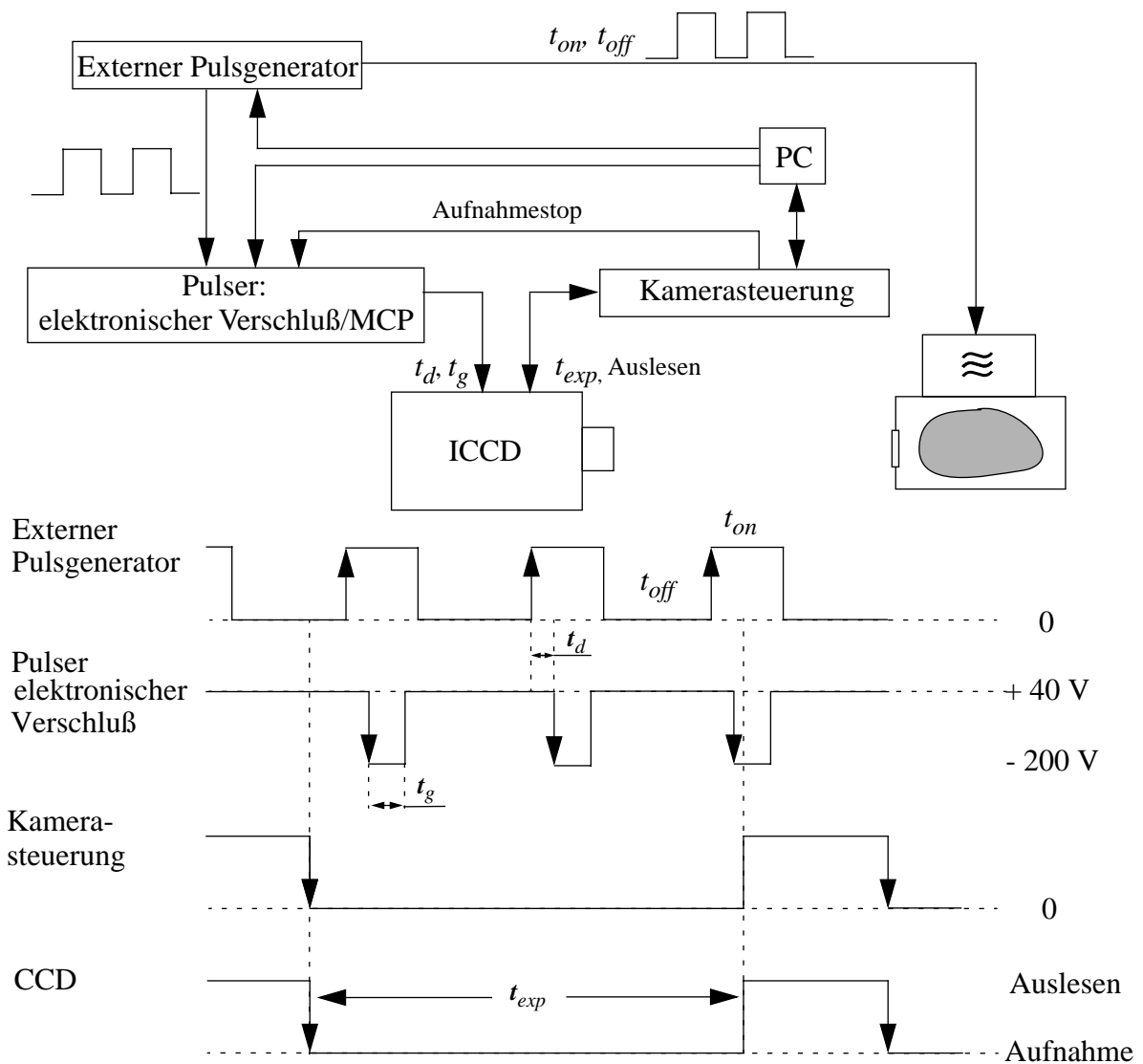


Abbildung 4.6: Schematischer Aufbau und zeitlicher Ablauf der POES-Detektion.  $t_d$ : Aufnahmezeitpunkt,  $t_g$ : Öffnungszeit der elektronischen Blende,  $t_{exp}$ : Gesamtbelichtungszeit für eine Aufnahme.

Die mittlere Emissionsintensität pro Einzelaufnahme erhält man aufgrund der linearen Abhängigkeit der Bildintensität von  $t_g$  und  $t_{exp}$  aus der Division der im POES-Bild angegebenen Intensität durch die Anzahl der Einzelaufnahmen. Anschließend wird die Verzögerungszeit des Kamerapulsers rechnergesteuert um die gewünschte Zeitspanne  $\Delta t_d$  verschoben. Dies wird fortgesetzt, bis die zeit- und ortsabhängige Emission über eine gesamte Pulsperiode hinweg beobachtet wurde.

Die POES-Aufnahme wird im Anschluß an die Belichtungszeit  $t_{exp}$  mittels Zeilen-Adress-

Verfahren (Full-Frame-CCD, STRÜDER und ZANTHIER, 1998) ausgelesen, in Spannungspulse umgewandelt und digitalisiert. Die Auslesezeit des gesamten CCD-Arrays beträgt bei einer A/D Wandlerrate von 430 kHz 520 ms. In dieser Zeit bleibt der elektronische Verschluss geschlossen. Die minimal einstellbare Gesamtbelichtungszeit der ICCD beträgt  $t_{exp} = 5$  ms.

Für absolute Emissionsintensitätsmessungen sowie für vergleichende Messungen bei unterschiedlichen Emissionswellenlängen, ist die Kenntnis der Abhängigkeit der detektierten Intensitäten von der Wellenlänge, Belichtungszeit sowie vom Verstärkungsfaktor von Bedeutung.

Für eine zeitlich konstante Strahlungsquelle ist die mit der ICCD gemessene Intensität linear abhängig sowohl von der Gesamtbelichtungsdauer  $t_{exp}$  als auch von der Öffnungszeit des elektronischen Verschlusses  $t_g$ . Die gemessene Intensität ist, wie die Abb. A.3 bis Abb. A.4 (Kapitel A.2) zeigen, von der beobachteten Wellenlänge sowie exponentiell vom eingestellten Verstärkungsfaktor der MCP abhängig. Alle in dieser Arbeit präsentierten POES-Aufnahmen einer Wellenlänge sind bei konstanter Gesamtbelichtungszeit  $t_{exp}$ , Öffnungszeit  $t_g$  des elektronischen Verschlusses und Verstärkungsfaktor detektiert worden. Die Öffnungszeit des elektronischen Verschlusses  $t_g$  betrug  $t_g = 50$  ns. Die gesamte Belichtungszeit  $t_{exp}$  wurde in Abhängigkeit von der Emissionsintensität der beobachteten Spezies variiert und liegt typischerweise im Bereich von einigen Sekunden.

Die eingesetzte Kamerasteuerung (*Princeton ST 138*) bietet eine Detektionsdynamik von 16 bit (65536:1) bei einer A/D-Wandlerrate von 430 kHz. Dies macht das eingesetzte ICCD-System ideal zur Beobachtung zeitlich stark schwankender Emissionsintensitäten, wie z.B. gepulster Plasmen mit ihren extremen Intensitätsschwankungen zwischen Puls-, „an“ und Puls-, „aus“ Phase. Der Verstärkungsfaktor und die Gesamtbelichtungszeit werden so gewählt, daß die gesamte Detektionsdynamik der Kamera genutzt wird, so daß sowohl die Emission in der ersten Phase nach Abschalten des MW-Pulses noch zu detektieren ist als auch eine Überbelichtung während Puls-, „an“ Phase des Plasmas vermieden wird. Zur Korrektur von Streulichteinflüssen und Dunkelrauschen wird von jeder POES-Aufnahme der Rauschhintergrund abgezogen.

#### 4.2.5 POES-Detektion

Die Kameraposition zur Detektion der POES aus der Resonatorebene der gepulsten Plasmen läßt sich aus den Abb. 4.1 bzw. Abb. 4.9 entnehmen. Die POES-Aufnahmen zeigen das Plasma



innerhalb des SLAN-Resonators wie in Abb. 4.2 dargestellt.

Die Kamera befindet sich auf der Längsachse des Versuchsaufbaus direkt gegenüber der SLAN, ca.  $z = 60$  cm vom Zentrum der SLAN ( $r, z = 0$  entfernt). Die Detektion erfolgt durch eine mit einem Quarzfenster versehene Öffnung ( $\phi = 4$  cm) im hinteren Flanschabschluß des Rezipienten. Das Quarzfenster besteht aus unbeschichtetem Quarz (*Suprasil*) mit einer Dicke von 8 mm und einer Planparallelität besser als  $\lambda/10$ . Die Transmission beträgt 92 % bei einer Wellenlänge von 845 nm. Die Emission aus der Resonatorebene wurde mit einem direkt vor der ICCD befestigten Objektiv f 24/3,3 (*Nikon AF 24-50/3.3-4.5*) auf das Quarzeintrittsfenster der ICCD fokussiert. Für die Beobachtung der POES im Infrarotbereich besitzt das verwendete Objektiv eine Schärfentiefekorrektur zum Ausgleich der chromatischen Aberration. Dies ergibt eine laterale Ortsauflösung der POES-Bilder von  $500 \mu\text{m}$  bei einer im beobachteten Wellenlängenbereich in etwa konstanten Schärfentiefe von  $\pm 10$  cm.

Wie in Kapitel 3.2.9 erwähnt, wird die Position des verwendeten Bandpaßfilters und die Wahl der benötigten Halbwertsbreite bestimmt durch die maximal mögliche Abweichung der zu detektierenden Strahlung vom senkrechten Einfall auf den Filter. Für einen Innendurchmesser der Resonatorebene von 15 cm ergibt sich ein maximaler Einfallswinkel von  $6,7^\circ$  (Abb. 4.9), dies entspricht einer Vergrößerung der Bandbreite um 0,17% (Gl. 3.17, Kapitel 3.2.9). Alle untersuchten Linien (Tabelle 4.1) wurden so gewählt, daß im Bereich der verwendeten Filterbandbreite keine weiteren  $\text{Ar}^*$  (Ar I),  $\text{Ar}^{+*}$  (Ar II) oder  $\text{O}^*$  (O I) Emissionslinien zu beobachten waren. Dies wurde im Vorfeld der POES-Messung mittels OES Testmessungen an einem cw Argon- bzw. Sauerstoffplasma untersucht. Hierzu wurde die Plasmaemission bei einer cw Mikrowellenleistung  $P_{MW} = 1$  kW für 5, 10 und 20 Pa im Wellenlängenbereich 200 nm-800 nm mittels eines Monochromators (*Jobin Yvon HR 320*) mit einer Auflösung von 1 pm vermessen. Die im Bereich der Filterbandbreite gemessenen Emissionsintensitäten für die beiden im gepulsten Betrieb zu untersuchenden Ar I bzw. Ar II Emissionslinien sind in Abb. 4.7 und Abb. 4.8 dargestellt. Die Halbwertsbreite und die Position der in Tabelle 4.1 aufgeführten Bandpaßfilter wurde so gewählt, daß bei den betrachteten Wellenlängen auch die Emission aus dem Randbereich der Resonatorebene störungsfrei und unbeeinflusst durch benachbarte Emissionslinien detektiert werden kann. Die gesamte Halbwertsbreite der verwendeten Bandpaßfilter unter Berücksichtigung der maximal möglichen Verschiebung der Zentralwellenlänge ist in Abb. 4.7 und Abb. 4.8 grau eingezeichnet.

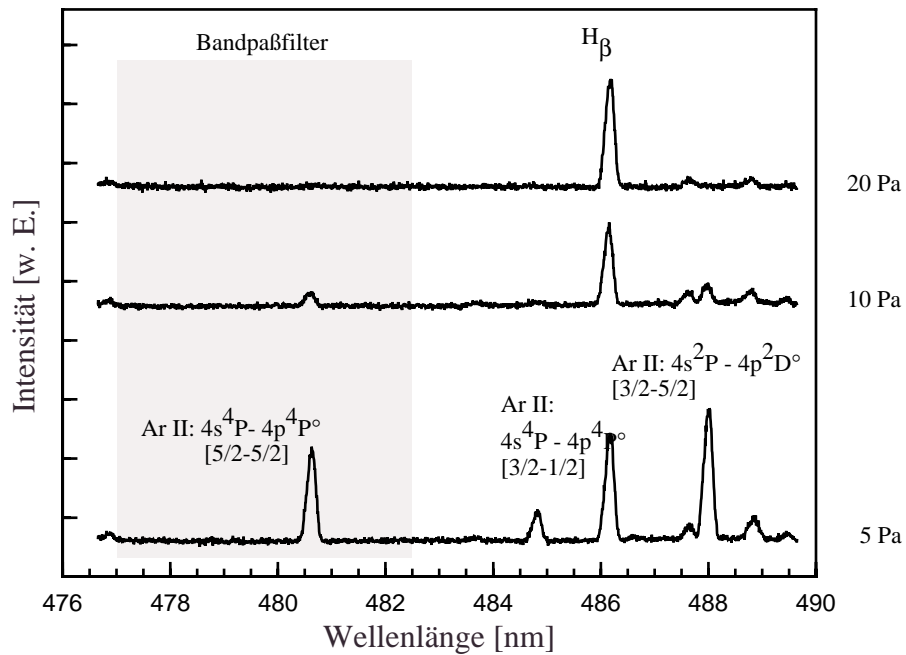


Abbildung 4.7: Druckabhängige Emissionsintensitäten zwischen 476-490 nm in einem cw Argonplasma.  
 $P_{MW} = 1 \text{ kW}$ .

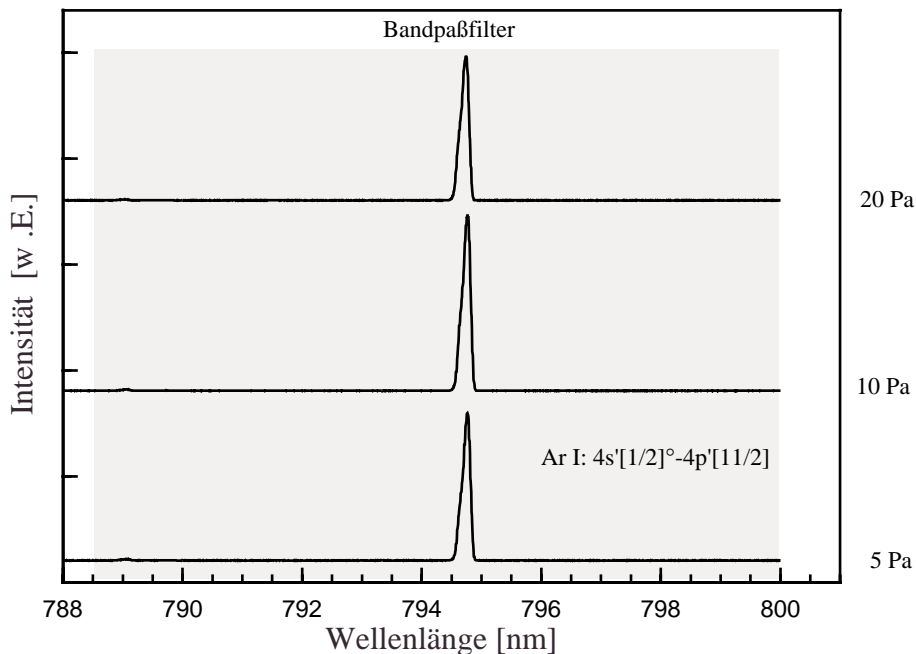


Abbildung 4.8: Druckabhängige Emissionsintensitäten zwischen 788-800 nm in einem cw Argonplasma.  
 $P_{MW} = 1 \text{ kW}$ .

Die detektierbaren Nachbarlinien liegen in jedem Fall außerhalb des Durchlaßbereiches der eingesetzten Bandpaßfilter. Abb. 4.7 läßt sich gleichzeitig entnehmen, daß die beobachtete Ar II-

Linienintensität mit steigendem Druck stark abnimmt. Oberhalb von 10 Pa ist diese Linie kaum noch zu detektieren.

Die Daten der per POES untersuchten Argon und Sauerstoffübergänge und der hierzu verwendeten Bandpaßfilter sind in der nachfolgenden Tabelle aufgeführt.

Übergang	$\lambda$ [nm]	Lebensdauer $\tau$ [ns]	Bandpaßfilter
Ar I: $4p^1[11/2] \rightarrow 4s^1[1/2]^o$	794,8	51	795/FWHM: 10 nm
Ar II: $4p^4P^o \rightarrow 4s^4P$	480,6	7,8	480,6/FWHM: 5 nm
O I: $3p^3P \rightarrow 3s^3S$	845	29	845/FWHM: 10 nm

Tabelle 4.1: Daten der durch POES untersuchten spontanen Emissionsübergänge (STRIGANOV und SVENTITSKII, 1968, VUJNOVC und WIESE, 1992, COLLART et al., 1991).

Die in Tabelle 4.1 aufgeführten Bandpaßfilter besitzen alle eine Transmission von 80%. In Abb. 4.9 ist abschließend ein Längsschnitt durch den verwendeten Versuchsaufbau dargestellt.

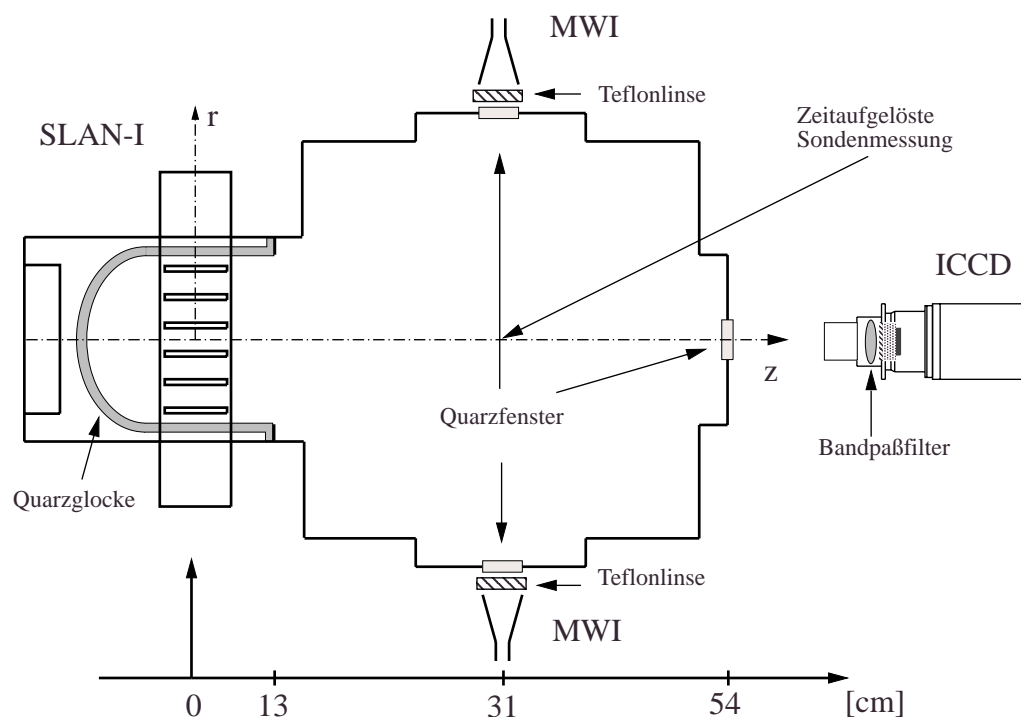


Abbildung 4.9: Längsschnitt durch den Versuchsaufbau.

#### 4.2.6 Aufbau der LIF-Diagnostik

Der experimentelle Aufbau der LIF-Diagnostik ist schematisch in Abb. 4.10 dargestellt. Die Anregung des eingesetzten abstimmbaren Farbstofflasers (*LAS LDL OG505B*) erfolgt mit Hilfe eines Nd:YAG-Lasers (*Spectra Physics GCR-170*). Hierzu wird die Grundwelle des mit einer Pulsfrequenz von 10 Hz arbeitenden Nd:YAG-Lasers von 1064 nm zuerst frequenzverdoppelt und dann per Wellenmischung auf eine Wellenlänge von 355 nm verdreifacht. Die Trennung der Wellenlängen 1064 nm, 532 nm sowie 355 nm erfolgt mit Hilfe von dichroitischen Spiegeln im Strahlengang der Laserstrahlung. Der mit einer Farbstofflösung aus Coumarin 47 und Isopropanol betriebene Farbstofflaser liefert eine im Wellenlängenbereich zwischen 440-490 nm durchstimmbare Laserstrahlung. Die Strahlung des Farbstofflasers wird mittels eines Bariumboratkristalls (BBO) auf die zur Zwei-Photonenanregung des atomaren Sauerstoffs im Grundzustand notwendige Wellenlänge von 226 nm frequenzverdoppelt. Ein nachgeschalteter Prismenseparator trennt die frequenzverdoppelte Welle von der Fundamentalwelle des Farbstofflasers. Dieser Vorgang ist schematisch in Abb. 4.10 dargestellt. Quarzprismen lenken den Laserstrahl in den Vakuumrezipienten. Vor dem Eintrittsfenster aus Quarz fokussiert eine Quarzlinse mit einer Brennweite von 30 cm den Strahl in die Mitte des Vakuumrezipienten. Das Anregungsvolumen befindet sich auf der Längsachse ( $r = 0$  cm) der Versuchsanordnung 22 cm vom Zentrum der SLAN entfernt in der Downstream Zone. Auf der gegenüberliegenden Seite des Eintrittsfensters tritt der Laserstrahl durch ein weiteres Quarzfenster aus dem Rezipienten aus und wird in einem Lichtsumpf absorbiert. Die Detektion der laserinduzierten Fluoreszenz bei einer Wellenlänge von 845 nm (Kapitel 3.3) erfolgt senkrecht zum Laserstrahlengang. Die Trennung der Fluoreszenzstrahlung vom Hintergrundlicht (spontane Emission des Plasmas, Streulicht) geschieht mittels zweier hintereinander geschalteter Bandpaßfilter (Zentralwellenlänge von 845 nm, FWHM 10 nm, Transmission 80%). Anschließend werden die Photonen des Fluoreszenzsignals durch einen Photomultiplier (*Hamamatsu R3896*) detektiert. In einem nachgeschalteten Verstärker wird das Spannungssignal noch einmal verstärkt und auf den ersten Eingangskanal eines Boxcar-Integrators (*EG&G 4121B*) gegeben und dort mit einer Detektionsbreite von 100 ns über 500 Laserschüsse integriert (*EG&G 4161A*). Die Detektion der spontanen Emission des atomaren Sauerstoffs geschieht mittels eines zweiten Boxcar-Eingangs. Das Fluoreszenzsignal ergibt sich aus der Subtraktion der beiden Boxcar-Kanalwerte.

### **Zeitaufgelöste laserinduzierte Fluoreszenz**

Zu Beginn der zeitaufgelösten LIF-Messung wird die Farbstofflaserwellenlänge so eingestellt, daß das detektierte LIF-Signal sein Maximum annimmt. Um dies zu detektieren, sowie zur Bestimmung der Verzögerungszeit zwischen Laserpuls und Fluoreszenzsignal und zur Bestimmung der Abklingzeit des Fluoreszenzsignals, wird das verstärkte Photomultiplier-Signal auf ein Digitaloszilloskop (*Tektronix TDS 684*) gegeben. Anschließend erfolgt die Detektion des über die Pulsperiode des Plasmas zeitabhängigen LIF-Signals.

Zur Bestimmung des zeitabhängigen Verlaufs des LIF-Signals ist der in Abb. 4.10 dargestellte Aufbau verwendet worden. Der den Mikrowellengenerator ansteuernde Pulser triggert mit der gleichen Frequenz wie der Mikrowellengenerator einen vierkanaligen Puls-/Delaygenerator (*Quantum Composers 9310*). Dieser Generator wiederum triggert mit Hilfe eines Frequenzdividers den ND:YAG Laser mit einer zur Pulsfrequenz der Mikrowellenleistung kohärenten Frequenz von 10 Hz. Der Schußzeitpunkt des Lasers wird dann durch die vorgegebene Verzögerungszeit relativ zur gepulsten Mikrowelle verschoben und so das LIF-Signal über die gesamte Pulsperiode ermittelt. Die Triggerung der Signalintegration der beiden Kanäle des Boxcar-Integrators geschieht durch das Signal einer im Strahlengang des Laser befindlichen schnellen Photodiode. Die verwendete UV-Laserleistung betrug bei allen zeitaufgelösten LIF-Experimenten 0,03 mJ. Bei dieser Laserleistung waren keinerlei, das LIF-Signal beeinträchtigende, stimulierte spontane Emission, Photolyse oder Photoionisation zu beobachten.

Die Bestimmung der zeitabhängigen spontanen Emission geschieht analog zum vorangehend beschriebenen Vorgang bei abgedecktem Laserstrahl.

Im Anschluß an jede gepulste Messung erfolgte bei zur mittleren Mikrowellenpulsleistung  $\bar{P}_{MW}$  äquivalenten cw Mikrowellenleistung  $P_{MW}$  und ansonsten gleichen Plasma- und Laserparametern die Bestimmung des LIF-Signals im cw Betrieb der Quelle.

Dieser cw-Wert wurde mit den in einer vorangegangenen Arbeit am gleichen Versuchsaufbau bei gleichen äußeren Parametern ermittelten absoluten Sauerstoffdichten abgeglichen (BEHLE et al., 1997a, BROCKHAUS et al., 1996).

### **Absolutkalibration der zeitaufgelösten LIF-Messung**

Die absoluten zeitaufgelösten Sauerstoffdichten des Experiments im Pulsbetrieb der SLAN erhält man anschließend aus dem Verhältnis des zeitaufgelösten LIF-Signal zum cw LIF-Signal.

Die Bestimmung der absoluten Sauerstoffdichte in BROCKHAUS et al., 1996 erfolgt aus einer Kombination von Ratengleichungsmodell zur Beschreibung der Zwei-Photonenanregung und Fluoreszenz des atomaren Sauerstoffs, der absoluten Kalibration der Detektionsoptik per RAMAN-Streuung, sowie der exakten Vermessung der Laserintensität, -pulsdauer (7,4 ns FWHM) und -bandbreite ( $0,18 \text{ cm}^{-1}$ ), und den durch die Lasergeometrie im Fokus gegebenen Abmessungen des Anregungsvolumens. Das Vorgehen bei dieser Methode ist in Kapitel 3.3 beschrieben worden.

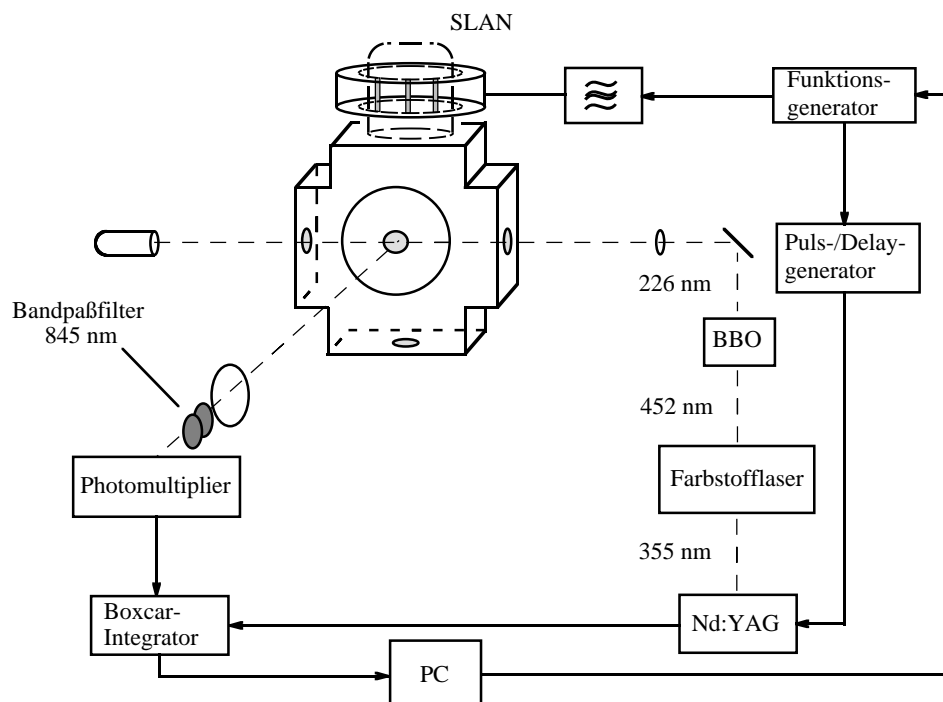


Abbildung 4.10: Schematischer Aufbau des zeitaufgelösten LIF-Diagnostiksystems.  
BBO – Bariumboratkristall zur Frequenzverdopplung.

---

## Kapitel 5

### Experimentelle Ergebnisse

Im folgenden Kapitel wird das zeitabhängige Verhalten einer gepulsten großvolumigen Mikrowellenplasmaquelle vom Typ SLAN-I am Beispiel gepulster Argon- und Sauerstoffplasmen untersucht. Hierzu wird das zeit- und ortsabhängige Verhalten der Elektronendichte, der Elektronentemperatur, der Emissionsintensität angeregter Teilchen und die absolute Grundzustandsdichte durch den kombinierten Einsatz der planaren optischen Emissionsspektroskopie (POES), LANGMUIR-Sonde, Mikrowelleninterferometrie und der laserinduzierten Fluoreszenz ermittelt.

Zum tiefergehenden Verständnis der physikalischen Grundlagen der eingesetzten Meßmethoden sei an dieser Stelle auf das Kapitel 3 und die dort aufgeführte weitergehende Literatur verwiesen. Der in dieser Arbeit verwendete Versuchsaufbau und die eingesetzten diversen meßtechnischen Systeme sind im vorangegangenen Kapitel und in BEHLE et al., 1999, BROCKHAUS et al., 1998, BEHLE et al., 1997a und BROCKHAUS et al., 1996 beschrieben.

#### 5.1 Zeit- und orts aufgelöste Emissionsspektroskopie an gepulsten Plasmen

Die zeit- und orts aufgelöste planare Emissionsspektroskopie (POES) ermöglicht es, die Verteilung angeregter Zustände nichtinvasiv und speziesspezifisch innerhalb der Resonatorebene der SLAN über einen oder mehrere Pulszyklen hinweg zu bestimmen. Hieraus lassen sich Erkenntnisse über das zeit- und orts aufgelöste Verhalten angeregter Spezies in großvolumigen gepulsten Mikrowellenquellen gewinnen. Wie in Kapitel 2.2.2 gezeigt wurde, sind der Wechselwirkungsquerschnitt  $\sigma$  für die Elektronenstoßanregung der untersuchten Spezies sowie die Emissionsintensität  $I$  in erster Linie eine Funktion der Elektronentemperatur  $kT_e$  (Kapitel 3.2.7, Gl. 3.15). Es lassen sich somit aus der zeit- und orts abhängigen Intensitätsverteilung eines gepulsten Plasmas auch Rückschlüsse auf die zeitliche und räumliche Elektronenenergieverteilung  $kT_e(t,r)$  ziehen. Hieraus wiederum lassen sich Informationen über die Einkopplungsmechanismen der leistungsmodulierten Mikrowelle in das Plasma ableiten. Durch die Vielzahl der Informationen, die sich aus den POES-Aufnahmen ableiten lassen, erhält man einen direkten Einblick in die Zusammenhänge und Wechselwirkungsmechanismen in einem gepulsten großvolumigen Plasma.

### 5.1.1 Argonatome und Argonionen

In Abb. 5.1 ist die orts- und zeitabhängige Emission von Argonionen und Argonatomem über eine gesamte Pulsperiode vom Beginn der Zündphase bis in die Nachglimmphase (*Afterglow*) dargestellt. Die Aufnahmen zeigen die durch POES bestimmte Emissionsintensität  $I$  der Ar I-Linie ( $4p^1[11/2] \rightarrow 4s^1[1/2]^{\circ}$ , 794,8 nm) und die der angeregten Ar II Ionen ( $4p^4P^{\circ} \rightarrow 4s^4P$ , 480,6 nm). Die Pulsfrequenz beträgt 200 Hz und das Tastverhältnis 50%. Die zeitlich gemittelte MW-Leistung beträgt  $\bar{P}_{MW} = 1 kW$ , der Druck  $p = 5$  Pa. Die in Abb. 5.1 dargestellten Ar I-Aufnahmen sind über insgesamt 6000, die Ar II Aufnahmen über insgesamt 18000 Aufnahmen integriert. Die Öffnungszeit des elektronischen Verschlusses beträgt in beiden Fällen 50 ns.

Aufgrund der kurzen Öffnungszeit ist es möglich, die Teilchenbewegung zwischen Anregung und Emission zu vernachlässigen. Geht man von einer Ionen-, bzw. Neutralgastemperatur der beobachteten Spezies von ca. 600 K aus, so beträgt ihre mittlere thermische Geschwindigkeit 560 m/s (Gl. 2.12). Während der Öffnungszeit des elektronischen Verschlusses von  $t_g = 50$  ns legen die angeregten Ar I, Ar II eine Strecke von ca. 30  $\mu m$  zurück. Dies liegt weit unter der optischen Auflösung des eingesetzten ICCD-Systems von 500  $\mu m$  (Kapitel 4.2.5). Angesichts der kurzen mittleren Lebensdauer der Ar I, bzw. Ar II Zustände von 51 ns bzw. 8 ns (Kapitel 3.2.7), ist die Teilchenbewegung zwischen Anregung und Emission zu vernachlässigen.

Die wesentlichen Anregungskanäle, die zu der beobachteten Ar I und Ar II-Emission beitragen, sind in Tabelle 5.1 aufgeführt.

Anregungskanal	Schwellenenergie	Maximaler Wirkungsquerschnitt
I. $Ar + e \rightarrow Ar^* + e$	13,28 eV	$\sigma_{max} = 5 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$ ( $kT_e = 22 \text{ eV}$ )
IIa. $Ar + e \rightarrow Ar^+ + 2e$	15,76 eV	$\sigma_{max} = 1 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ ( $kT_e = 90 \text{ eV}$ )
IIb. $Ar^+ + e \rightarrow Ar^{+*} + e$	19,22 eV	
III. $Ar + e \rightarrow Ar^{+*} + 2e$	34,98 eV	$\sigma_{max} = 6 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$ , ( $kT_e = 54 \text{ eV}$ )

Tabelle 5.1: Anregungsprozesse der untersuchten und Ar I und Ar II-Emission (COX et al., 1987, STRIGANOV und SVENTITSKII, 1968, RAPP UND ENGLANDER-GOLDEN 1965, PETERSON und ALLEN, 1972).

Ein zusätzlicher Anregungspfad des Argonions ist die schrittweise Anregung über metastabile Zwischenniveaus des Argons. In diesem Fall reduziert sich die minimal benötigte Anregungs-



energie um 11,55 eV auf 23,43 eV. Allerdings trägt dieser Pfad für  $kT_e = 10$  eV, laut COX et al., 1987, mit weniger als 1% zur beobachteten Ar II-Emission bei.

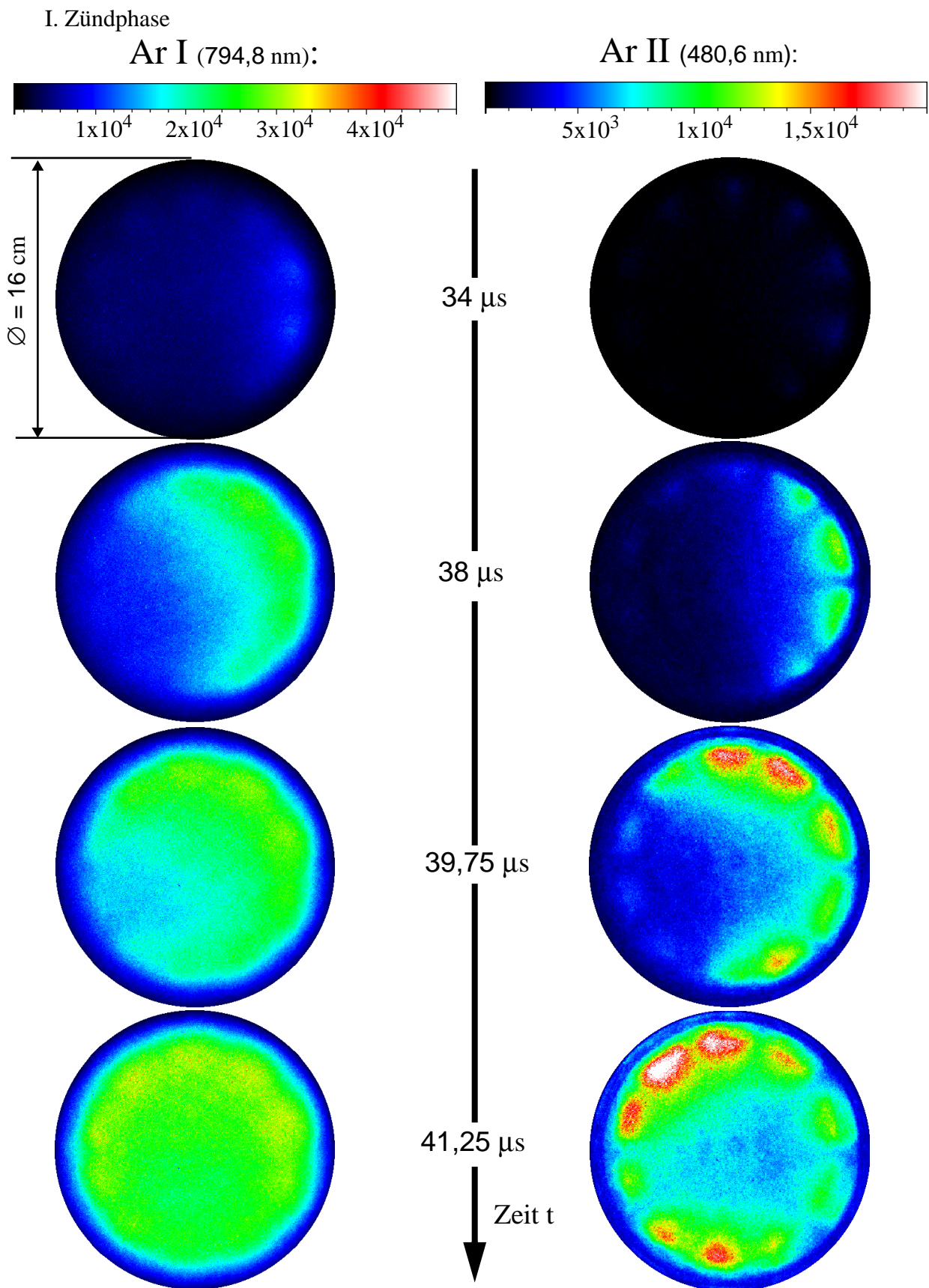
In Abb. 5.1 lassen sich drei Phasen der Plasmaemission unterscheiden:

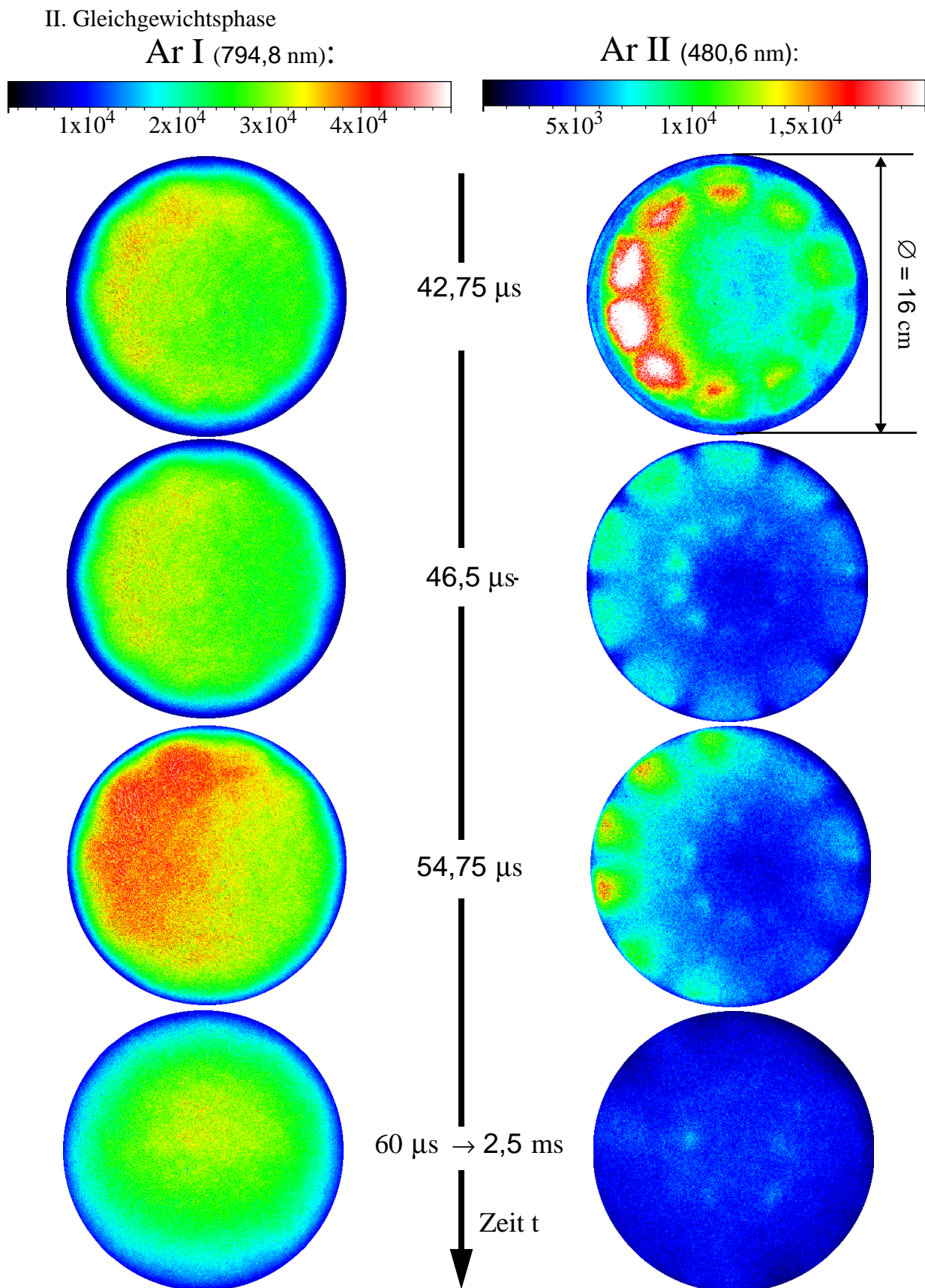
- I. Zündphase** ( $34 \mu\text{s} < t < 60\mu\text{s}$ )
- II. Gleichgewichtsphase** ( $60 \mu\text{s} < t < 2,5 \text{ ms}$ )
- III. Nachglimm- oder Afterglowphase** ( $2,54 < t < 5 \text{ ms}$ )

### **I. Zündphase**

Der Beginn der Emission, sowohl von Ar I als auch Ar II, läßt sich  $34 \mu\text{s}$  nach Anlegen des Mikrowellenpulses detektieren. Ungefähr  $4 \mu\text{s}$  später zeigen die POES-Aufnahmen auf der rechten Resonatorseite der SLAN eine sehr viel stärkere Emissionsintensität. Die Quelle zündet! Die Beobachtungen zeigen, daß die SLAN I, unabhängig von Gasart und Druck, auf der Seite zündet, auf der der Abschlußschieber montiert ist (Abb. 5.4). Im Anschluß an die Zündung breitet sich die Ar I-Emission sowohl radial als auch azimuthal aus. Eine homogene Ar I-Verteilung ist ab dem Zeitpunkt  $t = 41 \mu\text{s}$  zu beobachten. Mit weiter zunehmender Pulsdauer bleibt die örtliche Ar I-Verteilung konstant, während die Emissionsintensität weiter zunimmt. Insgesamt lassen sich zwei zeitabhängige Emissionsmaxima der angeregten Ar I-Atome detektieren (Abb. 5.2). Im Anschluß an das zweite Intensitätsmaxima fällt die Emissionsintensität des Ar I auf einen konstanten Wert ab (Abb. 5.3).

Zur Erzeugung angeregter Ar II werden Elektronen mit höherer Elektronenergie benötigt als zur Anregung von Argonatomen (Tabelle 5.1). Aus diesem Grund zeigt die gemessene Ar II-Emission ein anderes Verhalten als die Ar I. Im Anschluß an die Zündung breitet sich die Ar II-Emission im wesentlichen in azimuthaler Richtung entlang der Innenseite des Quarzzyllinders bis zur Bildung einer geschlossenen Ringstruktur aus.





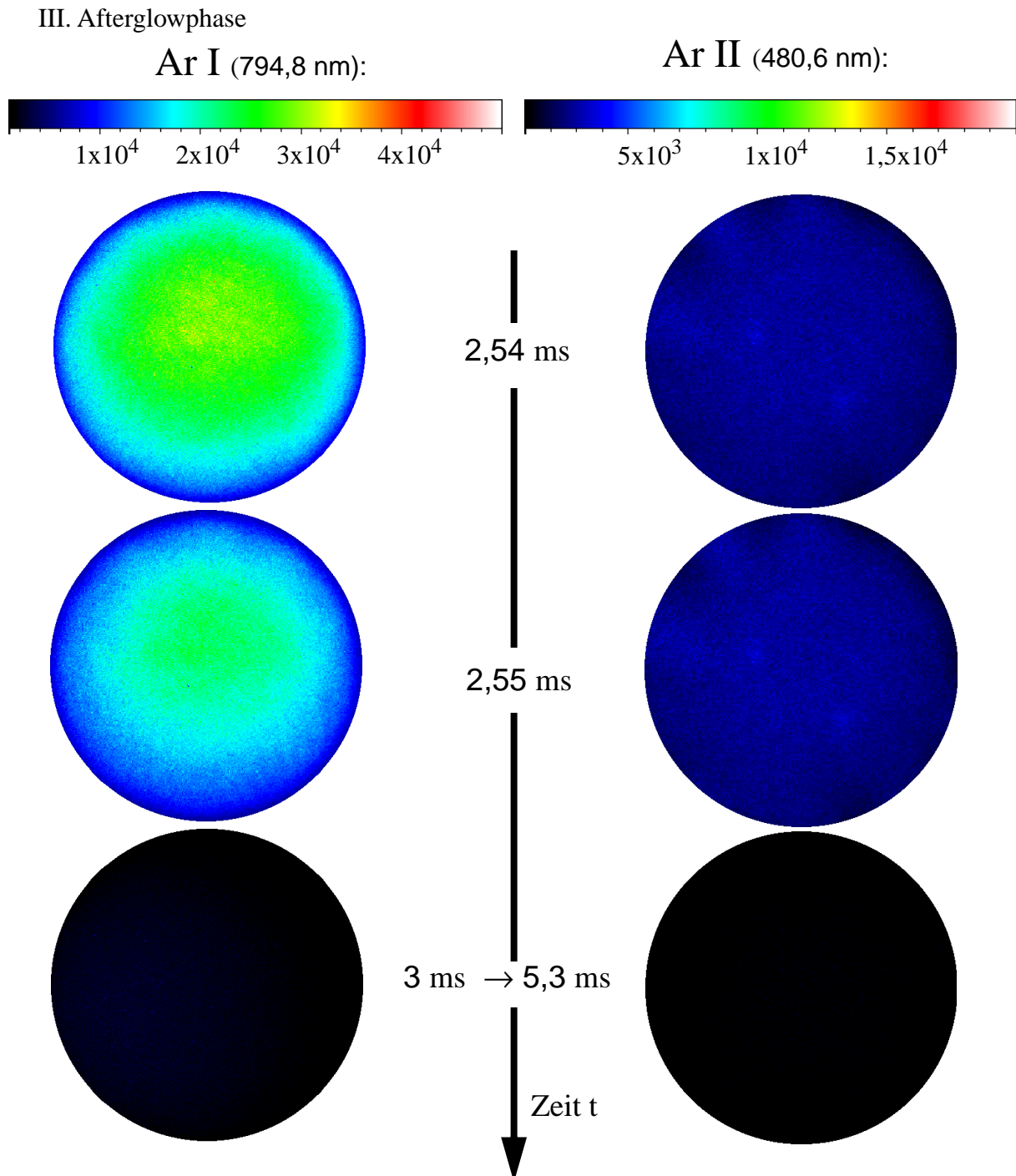


Abbildung 5.1: Orts- und zeitabhängige Ar I und Ar II Emissionsintensität im Verlauf einer Pulsperiode eines gepulsten Argonplasmas. Pulsfrequenz: 200 Hz, Tastverhältnis: 50%,  $p = 5$  Pa,  $\bar{P}_{MW} = 1$  kW.

Die Ausbreitung in radialer Richtung ist langsamer als die der Ar I. Zum Zeitpunkt  $t = 39,75 \mu\text{s}$  sind 8 Gebiete mit unterschiedlichen Intensitätsmaxima innerhalb der Ringstruktur



zu erkennen. Das Gebiet mit der jeweils höchsten Ar II-Emission scheint mit fortschreitender Zeit entgegen dem Uhrzeigersinn zu rotieren. Der azimutale Ar II-Emissionsring ist nach  $t = 41,25 \mu\text{s}$  geschlossen. Zu diesem Zeitpunkt sind zehn klar voneinander abgegrenzte Intensitätsmaxima innerhalb der Ringstruktur zu erkennen. Die Position der zehn Gebiete korrespondiert mit den zwischen den zehn Schlitzantennen der SLAN sich ausbildenden Bereichen maximaler elektrischer Feldstärke (KORZEC et al., 1996, WALTER et al., 1997). Für optisch dünne Plasmen - wie das hier untersuchte Argonplasma - ist die Emissionsintensität eine Funktion des von der Elektronentemperatur abhängigen Anregungsquerschnitts und der Elektronendichte (Kapitel 3.2.7, Gl. 3.15). Da die zeit- und ortsabhängige Elektronendichteverteilung  $n_e(t,r)$  im Verlauf des Mikrowellenpulses für beide beobachteten Spezies identisch ist und, wie Sondenmessungen zeigen (Abb. 5.11(c)), die Anstiegszeit der Elektronendichte wesentlich langsamer ist als der Anstieg der Emissionsintensität, kommt als Ursache für die unterschiedliche Emissionsintensitätsverteilung von Ar II und Ar I nur die orts- und zeitabhängige Elektronentemperatur  $kT_e(r,t)$  in Frage (Tabelle 5.1). Durch einen Vergleich der Ar I und Ar II Emission erhält man somit Informationen über die orts- und zeitabhängige Verteilung von Elektronen „niedriger“ und „hoher“ Elektronenenergie<sup>1</sup>. Die hohe Ar II-Emission in den Regionen hoher elektrischer Feldstärke zeigt deutlich, daß die Energieeinkopplung der Mikrowelle während der Zündphase der SLAN in diesen Bereichen stattfindet. Die Elektronen nehmen am Rand der Plasmakammer ausreichend Mikrowellenenergie auf, um Ar II anregen zu können (Tabelle 5.1).

Der Vergleich der Ar I und Ar II Aufnahmen sowie auch die weiter unten aufgeführten POES-Aufnahmen der Emission atomaren Sauerstoffs (Abb. 5.4) zeigen, daß der Energieeintrag in die Plasmen in der SLAN durch Elektronenheizung am Plasmarand geschieht. In radialer Richtung zur Mitte der Resonatorebene hin werden die elektrischen Wechselfelder durch das Plasma (Abb. 5.1 /Abb. 5.4) abgeschirmt. In diesem Bereich nehmen die Elektronen keine Energie auf, sondern sie verlieren ihre am Rand der Plasmakammer aufgenommene Energie durch elastische und unelastische Stöße mit dem Hintergrundgas. Die am Rand aufgenommene Energie reicht jedoch aus, um die untersuchten Argonatome über den gesamten Kammerradius homogen anzuregen.

1. Führt man eine Absolutkalibration der POES-Aufnahmen durch, so läßt sich nach einem von SHATAS et al., 1992 vorgeschlagenen Verfahren die zeit- und orts aufgelöste Elektronentemperatur aus dem Verhältnis der Intensitäten  $T_e \propto I_{Ar^+}/I_{Ar}$  ermitteln.

Die in Abb. 5.1 zu beobachtende Rotation der Ar II Emissionsmaxima entgegen dem Uhrzeigersinn wird verursacht durch eine Änderung der Abstrahlcharakteristik der Schlitzantennen in der Zündphase. Zu Beginn der Zündphase ( $t = 38\mu\text{s}$ ) strahlen lediglich drei Schlitzantennen auf der rechten Seite des Ringresonators Mikrowellenleistung in die Plasmakammer ab. Anschließend nimmt in diesem Bereich die Elektronendichte bis zum Erreichen der für die eingesetzte Mikrowellenfrequenz von 2,45 GHz kritischen Dichte von  $n_c = 7,6 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$  (Gl. 2.6) weiter zu. Ist die kritische Elektronendichte erreicht oder überschritten, so kann die abgestrahlte Mikrowelle nicht länger in das Plasma eindringen. Hierdurch verändert sich die Mikrowellenfeldverteilung in der Plasmakammer und die Ankopplung der betroffenen Schlitzantennen nimmt ab. Aufgrund der einsetzenden Plasmaexpansion erhöht sich allerdings die Ankopplung der Nachbarschlitzantennen an die Plasmakammer und sie beginnen, verstärkt abzustrahlen ( $t = 39,75 \mu\text{s}$ ), bis auch dort die Bedingung  $n_e < n_c$  nicht mehr erfüllt ist. Durch diese Wechselwirkung zwischen ortsabhängiger Elektronendichteverteilung und Mikrowellenfeldverteilung beginnen die Schlitzantennen sukzessive in das Plasma abzustrahlen, bis alle Schlitzantennen je nach ihrer Ankopplung mehr oder weniger gleichmäßig Mikrowellenleistung an das Plasma abgeben ( $t > 60 \mu\text{s}$ ). Aus der elektronentemperaturabhängigen Emission lassen sich somit auch Informationen über die zeit- und ortsaufgelöste  $E$ -Feldverteilung in der SLAN gewinnen. Dieser Zusammenhang konnte ebenfalls für Sauerstoff cw-Plasmen durch den Vergleich von MAFIA<sup>1</sup>-Simulationen zur Feldverteilung innerhalb der Resonatorebene und POES-Aufnahmen nachgewiesen werden (WALTER et al., 1997, BEHLE et al., 1997a).

Die zeitlich variierende Ankopplung der einzelnen Schlitzantennen führt zu einer Oszillation in der Plasma- und Quellenimpedanz. Die Impedanzoszillationen in dieser Phase führen zu einer sich ständig ändernden Leistungsaufnahme der Quelle aufgrund der sich ändernden Anpaßbedingungen zwischen Mikrowellengenerator- und Quellenimpedanz. Dies läßt sich, wie in Abb. 5.2 dargestellt, anhand des Verhaltens der zeitgleich zu den POES-Messungen detektierten reflektierten Leistung nachweisen. Die Minima in der reflektierten Leistung  $p_{ref}(t)$  -entsprechend einem Maxima der im Plasma absorbierten Leistung  $p_{abs}(t)$  - korrelieren mit den Intensitätsmaxima der Ar II und Ar I Emission zu den Zeitpunkten  $t = 42,75 \mu\text{s}$  bzw.  $t = 54 \mu\text{s}$ .

Das absolute Intensitätsmaximum der Ar II-Emission (Abb. 5.2) sowie das räumlich gemit-

---

1. MAFIA Abkürzung für: *Maxwell finite algorithm*

telte (globale) Maximum der Elektronentemperatur  $T_e(t)$  während der Zündphase, wird zum Zeitpunkt  $t = 41,75 \mu\text{s}$  erreicht. Ein zweites, aber schwächeres Intensitätsmaximum der Ar II Emission läßt sich zum Zeitpunkt der absoluten maximalen Gesamtemission der Ar I  $t = 54,75 \mu\text{s}$  detektieren (Abb. 5.2). Anschließend fällt die Ar II Emission auf einen konstanten Wert ab. Die Elektronentemperatur  $T_e(t)$  stabilisiert sich auf einem niedrigeren und homogener verteilten Gleichgewichtszustandswert.

## II. Gleichgewichtsphase

Für beide angeregten Zustände ist die Gleichgewichtsphase  $60 \mu\text{s}$  nach Anlegen des MW-Pulses erreicht. Von diesem Zeitpunkt an bis zum Abschalten des Mikrowellenpulses zum Zeitpunkt  $t = 2.5 \text{ ms}$  bleibt sowohl die Ar I als auch die Ar II Emission zeitlich und räumlich konstant (Abb. 5.3).

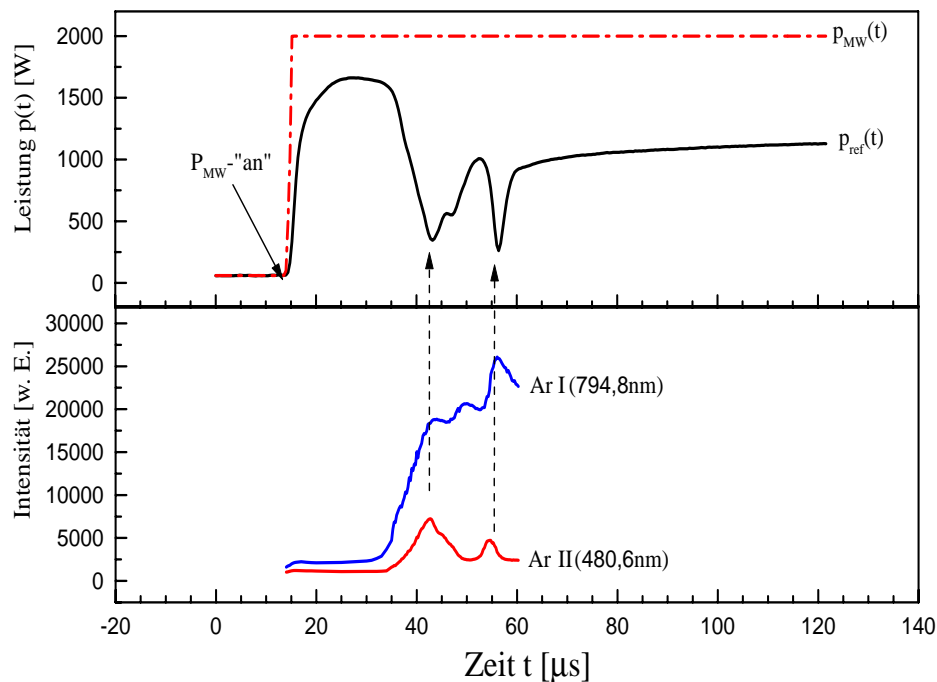


Abbildung 5.2: Zeitverlauf der räumlich gemittelten Ar I und Ar II Emissionsintensität und der reflektierten Leistung  $p_{ref}(t)$  während der Zündphase eines Argonplasmas. Plasmamparameter wie in Abb. 5.1.

## III. Afterglowphase

Nach Abschalten der Mikrowellenleistung fällt die Ar I und Ar II Emissionsintensität innerhalb von  $40 \mu\text{s}$  auf Werte unterhalb des Kamerarauschens ab. Während dieser Zeitspanne zieht sich das Ar I Emissionsgebiet radial in Richtung der Mitte der Resonatorebene zusammen.  $50 \mu\text{s}$

nach Abschalten der Mikrowellenleistung ist keinerlei Emission mehr detektierbar.

### Abschätzung des Zeitverhaltens der Elektronentemperatur aus Anstiegs- und Abfallszeiten der Linienintensitäten

Wie im vorangegangenen Abschnitt gezeigt wurde, korreliert die Ar I und Ar II Emission in erster Linie mit der Elektronentemperatur  $kT_e(t)$  (Gl. 3.15). Die in der Zündphase des Plasmas beobachteten Emissionsmaxima deuten auf eine im Vergleich zum Gleichgewichtszustand wesentlich höhere Elektronentemperatur in dieser Phase hin (Abb. 5.2/Abb. 5.3). Das Überschwingen der Elektronentemperatur zu Beginn der Zündphase erklärt sich analog zur Vorhersage des „Global Models“ für stoßfreie Plasmen (Kapitel 2.4.1). Auch in stoßbestimmten Plasmen absorbieren die wenigen Elektronen zu Beginn der Zündphase die gesamte Mikrowellenleistung. Ist die Mikrowellenpulslänge ausreichend lang, geht die Entladung in einen Gleichgewichtszustand über. Die Mikrowellenenergie verteilt sich auf eine zunehmende Anzahl von Elektronen und die Elektronentemperatur fällt auf ihren Gleichgewichtswert ab.

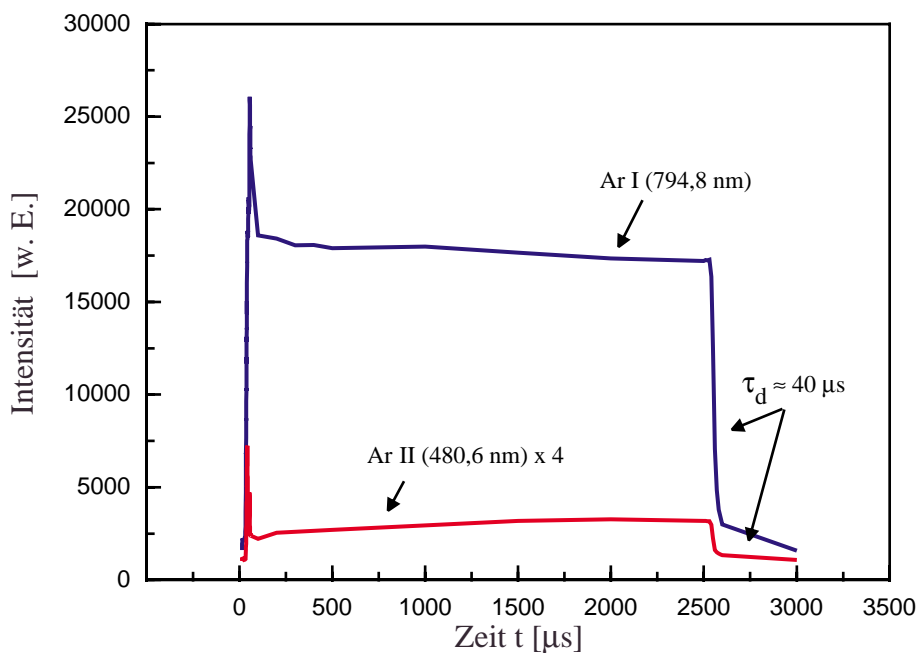


Abbildung 5.3: Zeitabhängige räumlich gemittelte Ar I und Ar II Emissionsintensität im Verlauf einer Pulsperiode eines mit 200 Hz gepulsten Argonplasmas. Plasmaparameter wie in Abb. 5.1.

Die aus dem Zeitverlauf der Ar I und Ar II Emission ableitbare Anstiegs- und Abfallszeit der Elektronentemperatur beträgt im Falle eines mit 200 Hz und 50% Tastverhältnis gepulsten 5 Pa Argonplasmas ca.  $\tau_{r,Te} \approx 5 \mu\text{s}$ , die Abfallszeit  $\tau_{d,Te} \approx 40 \mu\text{s}$  (Abb. 5.2/Abb. 5.3). Die aus der Ab-



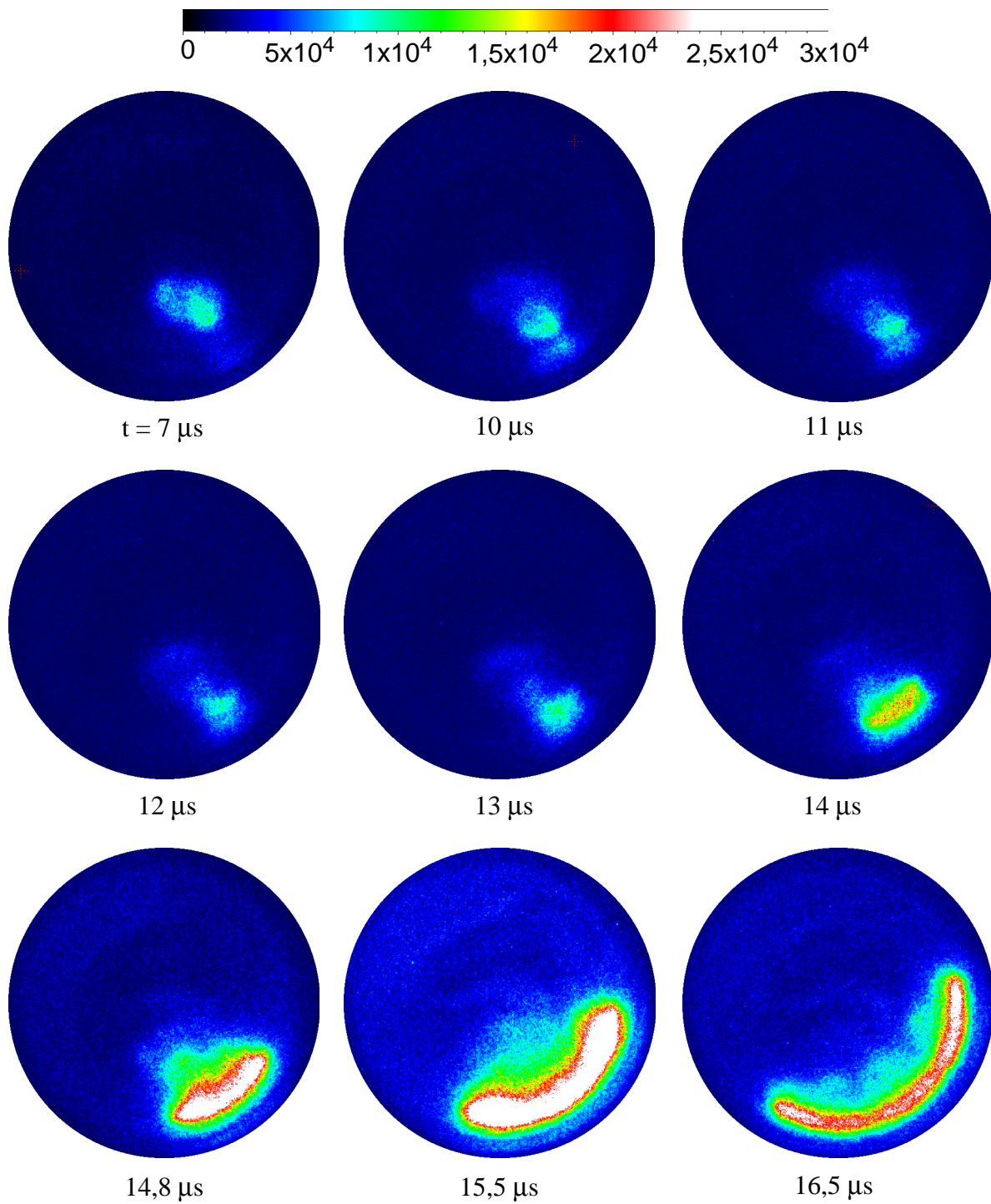
fallszeit der POES-Messungen ermittelte Abfallszeit der Elektronentemperatur  $\tau_{d,T_e}$  stellt allerdings eine untere Grenze der  $T_e(t)$  Abfallszeit dar. Die aus dem Intensitätsverlauf bestimmte Abfallszeit zeigt lediglich an, daß die Elektronenenergie nach dieser Zeit nicht mehr ausreicht, um die untersuchten Spezies weiterhin anregen zu können.

### 5.1.2 Angeregter atomarer Sauerstoff

Analog zur zeitaufgelösten POES-Messung an einem gepulsten Argonplasma ist in Abb. 5.4 die orts- und zeitabhängige Emission von Sauerstoffatomen während der gesamten Puls-, „an“-Phase vom Beginn der Zündphase bis zum Erreichen des Gleichgewichtszustandes dargestellt. Hierbei wurde die Emission der O I-Linie  $3p^3 \rightarrow 3s^3S$  bei einer Wellenlänge von  $\lambda = 844,6$  nm detektiert. Die Pulsfrequenz beträgt 200 Hz bei einem Tastverhältnis von 50%. Die zeitlich gemittelte MW-Vorwärtsleistung beträgt  $\bar{P}_{MW} = 1$  kW bei einem Druck von  $p = 20$  Pa. Die dargestellten POES-Aufnahmen sind integriert über 30.000 Aufnahmen. Die Öffnungszeit des elektronischen Verschlusses  $t_g$  beträgt 50 ns (Kapitel 4.6).

Analog zum beobachteten Verhalten der Ar-Emission zündet das Sauerstoffplasma ebenfalls auf der dem Abschlußschieber zugewandten Seite der Plasmakammer. In den ersten  $7 \mu\text{s}$  nach Anliegen des Mikrowellenpulses bewegt sich das Emissionsgebiet vom Zentrum in radialer Richtung zur Plasmakammerwand hin, ohne an Intensität oder Ausdehnung zuzunehmen. Zum Zeitpunkt  $t = 14 \mu\text{s}$  erreicht das gezündete Plasma einen Bereich am Rand der Quarzglocke zwischen zwei Schlitzantennen. Hierdurch erhöht sich im Vergleich zu den acht anderen Schlitzantennen, ähnlich wie im Fall des Argonplasmas, die Ankopplung der beiden betroffenen Schlitzantennen an die Plasmakammer. Aus der verbesserten Ankopplung beider Schlitzantennen und der damit verbundenen höheren abgestrahlten Mikrowellenleistung resultiert ein sehr hohes lokales  $E$ -Feld. Die hohe kinetische Energie, die die Elektronen in diesem Bereich aufnehmen, führt zu einer Steigerung der inelastischen Kollisionsprozesse und somit zu der beobachteten schlagartigen Zunahme der Emissionsintensität des atomaren Sauerstoffes. Ähnlich wie im Falle der POES-Messungen am gepulsten Argon (Abb. 5.5) läßt sich zu diesem Zeitpunkt der Zündphase ein absolutes Intensitätsmaximum der atomaren Sauerstoffemission detektieren (Abb. 5.5/Abb. 5.6). Das Plasma zündet! Hierbei breiten sich die angeregten Sauerstoffatome wie auch die Argonionen im wesentlichen in azimuthaler Richtung entlang der inneren Seite der Quarzplasmakammer aus, wobei die Intensität mit zunehmender Ausbreitung abnimmt. Nach ca.  $150 \mu\text{s}$  hat sich ein geschlossener

Ring mit zehn Emissionsmaxima annähernd gleicher Intensität ausgebildet. Der Gleichgewichtszustand der gepulsten Entladung ist erreicht.



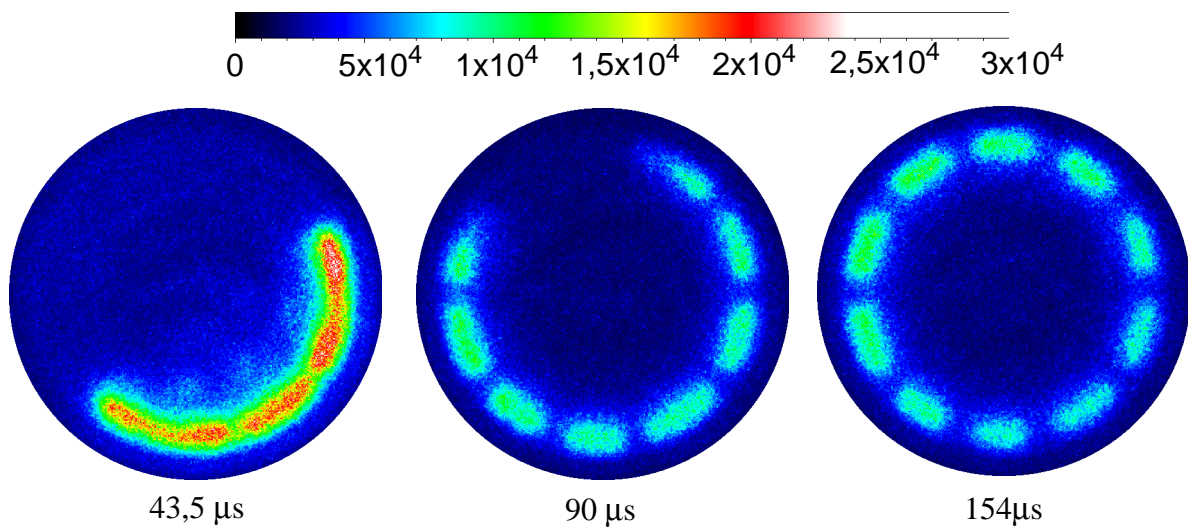


Abbildung 5.4: Entwicklung der orts- und zeitabhängigen O I Emissionsintensität, von der Zündphase bis zum Erreichen der Gleichgewichtsphase eines gepulsten Sauerstoffplasmas.  
Pulsfrequenz: 200 Hz, Tastverhältnis: 50%,  $p = 20 \text{ Pa}$ ,  $\bar{P}_{MW} = 1 \text{ kW}$ .

Während der Gleichgewichtszustandsphase ändert sich die ortsabhängige Emissionsverteilung nicht mehr. Die Intensität der zehn Emissionsmaxima nimmt jedoch noch leicht zu (Abb. 5.6). Die Position der Maxima korrespondiert ebenfalls, wie im Fall der Argonionen, mit den Bereichen maximaler  $E$ -Feldstärke zwischen den zehn Schlitzantennen.

Die im Vergleich zur POES-Messung an Argon zu beobachtende geringer ausgeprägte radiale Ausdehnung der Emission atomaren Sauerstoffs ist auf den vierfach höheren Druck und der damit verbundenen höheren Elektronenkollisionsfrequenz, bzw. abnehmenden mittleren freien Weglänge der Elektronen (Kapitel 2.2.2), zurückzuführen. Die Mikrowellenfelder werden durch das erzeugte Plasma abgeschirmt, so daß die am Rand „geheizten“ Elektronen in radialer Richtung ihre Energie über Stöße an das Plasma abgeben. POES-Untersuchungen an cw-Sauerstoffplasmen zeigen mit abnehmendem Druck eine zunehmend homogenere Emissionsintensitätsverteilung des atomaren Sauerstoffs (BEHLE et al., 1997a). Die Anstiegs- und Abfallszeiten (Abb. 5.5/Abb. 5.6) der Emission des atomaren Sauerstoffs sind -wie die Sonden und LIF-Messungen (Kapitel 5.2.2/ Kapitel 5.4.1) zeigen- wesentlich kürzer als die Anstiegs-, bzw. Abfallszeiten der Elektronen und auch atomaren Sauerstoffdichte im Grundzustand. So spiegelt sich auch in diesem Fall -analog zu den POES-Messungen an Argon- das zeit- und ortsabhängige Verhalten der Elektronentemperatur in den Emissionsmessungen wider. Die Anstiegszeit der Elektronentemperatur ist mit  $\tau_{r,Te} \approx 5 \mu\text{s}$  (Abb. 5.5) in etwa gleich der  $T_e(t)$  Anstiegszeit des gepulsten Ar-Plasmas. Die Anstiegszeit der

Elektronentemperatur  $T_e(t)$  in einem gepulsten großvolumigen Mikrowellenplasma scheint unabhängig von der Gasart, bzw. dem Druck zu sein. Desweiteren zeigt das gepulste Sauerstoffplasma, ähnlich wie das untersuchte Argonplasma, ein Überschießen der Intensität der atomaren Sauerstoffemission, verursacht durch ein Überschießen der  $T_e(t)$  während der Zündphase.

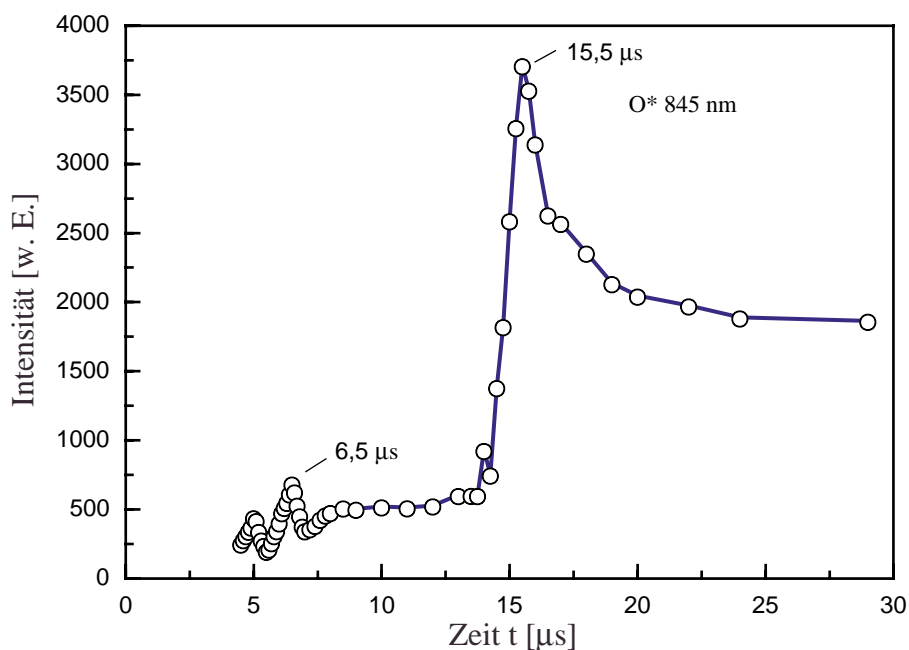


Abbildung 5.5: Zeitabhängige räumlich gemittelte O I Emissionsintensität im Verlauf der Zündphase eines mit 200 Hz gepulsten Sauerstoffplasmas. Plasmaparameter wie in Abb. 5.4.

Aufgrund der wegen des höheren Druckes gestiegenen Kollisionsfrequenz der Elektronen verlieren diese nach Abschalten des Mikrowellenleistungspulses ( $t_{off} = 2,5$  ms) schneller ihre Energie. Die Emission fällt im Vergleich zu den Messungen am gepulsten Argonplasma schneller ab. Als untere Grenze für die Abfallzeit der Elektronentemperatur  $kT_e(t)$  erhält man  $\tau_{d,ne} \approx 14$  μs (Abb. 5.6).

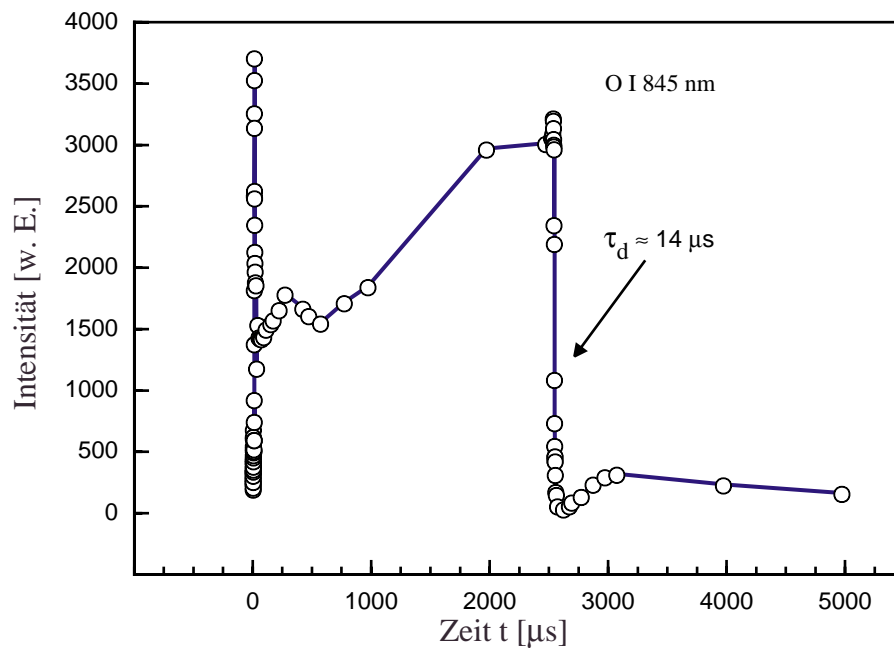


Abbildung 5.6: Zeitabhängige räumlich gemittelte O I Emission im Verlauf einer Pulsperiode eines mit 200 Hz gepulsten Sauerstoffplasmas. Plasmaparameter wie in Abb. 5.4.

### 5.1.3 Einfluß des Tastverhältnisses auf die zeitabhängige Emissionsintensität eines gepulsten Plasmas

Alle bislang durchgeführten POES-Messungen zeigen das Emissionsverhalten der untersuchten angeregten Zustände für ein Puls-Pausenverhältnis von 50%. Für dieses Tastverhältnis ergeben alle bisherigen Untersuchungen unabhängig vom Druck oder untersuchten Anregungszustand und Anregungsmechanismus einen sehr schnellen Anstieg der Emissionsintensität  $I$  mit einer Anstiegszeit  $\tau_{r,I}$  von ca. 5  $\mu\text{s}$ . Desweiteren zeigen alle Plasmen in der Zündphase ein Maximum ihrer Emissionsintensität mit anschließendem Abfall auf einen niedrigeren Intensitätswert in der Gleichgewichtsphase des Plasmas. Wie bereits im Kapitel 5.1.1 erläutert, läßt sich die Existenz des Intensitätsmaximums während der Zündphase mit einem Überschwingen der Elektronentemperatur hervorgerufen durch die niedrige Elektronendichte zu Beginn der Zündphase erklären. Sollte die zu Beginn der Zündphase geringe Elektronendichte (Abb. 5.11) als Ursache für den beobachteten  $T_e$ -Überschwinger in Frage kommen, so müßte dieser mit zunehmender Elektronendichte kurz vor dem Zündzeitpunkt abnehmen. Eine höhere Elektronendichte zu Beginn der Zündung läßt sich z.B. durch eine Verkürzung der Pulspause<sup>1</sup> erreichen. Daß dieser Fall eintritt, zeigt der Vergleich zwischen dem Zeitverlauf der räumlich gemittelten atomaren Sauerstoffemission

bei einem Tastverhältnis von 50% und 90%.

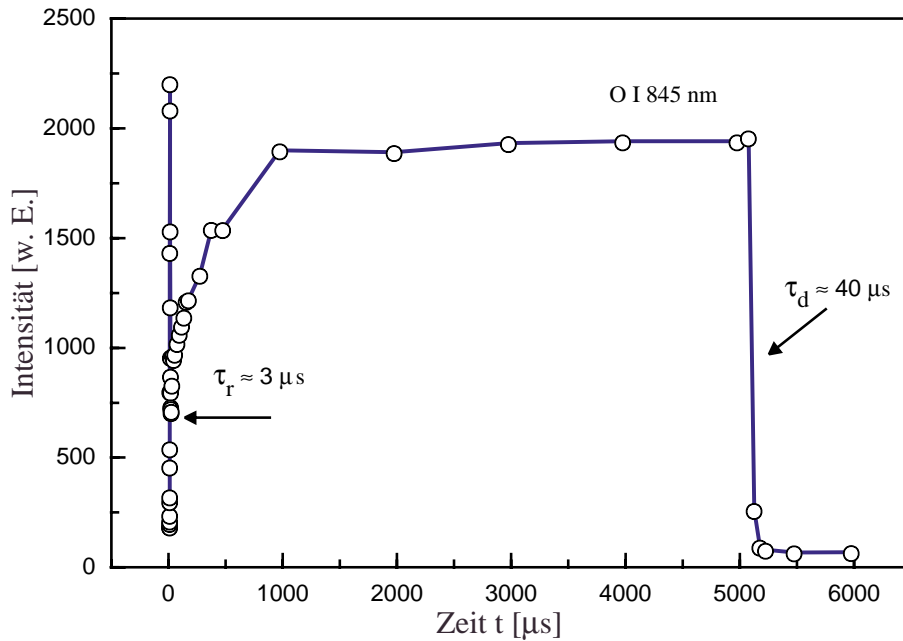


Abbildung 5.7: Zeitabhängige räumlich gemittelte O I Emissionsintensität, im Verlauf einer Pulsperiode eines gepulsten ECR-Sauerstoffplasmas. Pulsfrequenz: 100 Hz, Tastverhältnis: 50%,  $p = 0,15 \text{ Pa}$ ,  $\bar{P}_{MW} : 1 \text{ kW}$ .

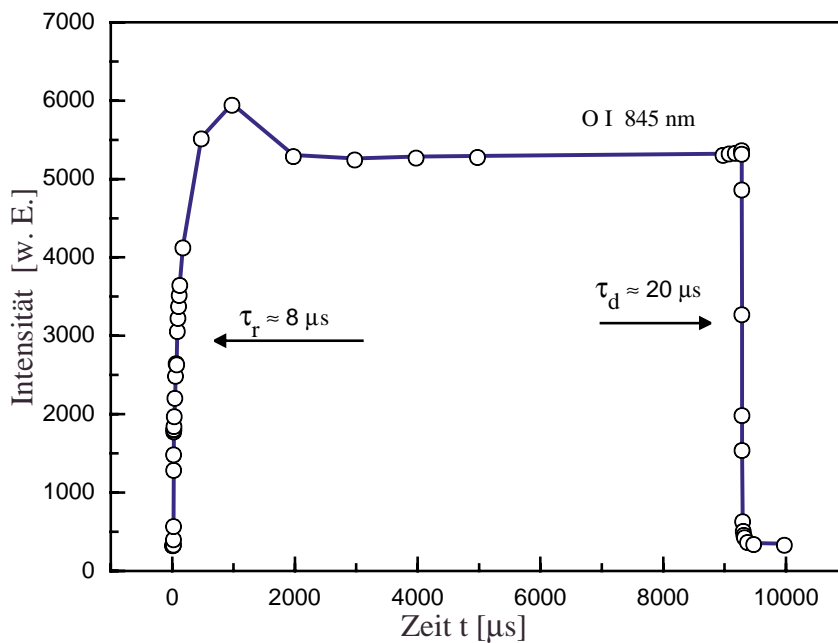


Abbildung 5.8: Zeitabhängige räumlich gemittelte O I Emissionsintensität im Verlauf einer Pulsperiode eines gepulsten ECR-Sauerstoffplasmas. Pulsfrequenz: 100 Hz, Tastverhältnis: 90%,  $p = 0,15 \text{ Pa}$ ,  $\bar{P}_{MW} = 1 \text{ kW}$ .

1. Oder auch durch eine Erhöhung der Pulsfrequenz

Bei ansonsten gleichen Entladungsbedingungen nimmt der Intensitätsüberschwinger zu Beginn der Zündphase - wie die Abb. 5.7 und Abb. 5.8 zeigen- mit zunehmendem Tastverhältnis deutlich ab. Die abnehmende Intensität weist darauf hin, daß sich durch die Wahl des Tastverhältnisses die maximale Elektronentemperatur und das Zeitverhalten während der Zündphase beeinflussen lassen.

#### 5.1.4 Zusammenfassung der Ergebnisse der POES-Messungen an gepulsten Plasmen

Generell lassen sich alle POES-Messungen der zeitabhängigen Plasmaemission gepulster großvolumiger Mikrowellenplasmen in drei zeitlich klar voneinander unterscheidbare Phasen während des Pulszyklus einteilen:

##### I. Zündphase

Ca. 10-30  $\mu$ s nach Anliegen des Mikrowellenpulses läßt sich die erste Emission als Hinweis darauf, daß das Plasma zündet, nachweisen. Unabhängig von Gasart (molekular/atomar) und Druck zündet die Quelle zuerst in dem Bereich der Resonatorebene, in der die Elektronen die höchste Energie aufnehmen können. In der SLAN-I ist dies der Bereich mit der höchsten elektrischen Feldstärke: Zwischen zwei Schlitzantennen am Rand der Plasmakammer und zwar auf der Seite, auf der der Abschlußschieber montiert ist. Der Symmetriebruch in der Abstrahlcharakteristik der Schlitzantennen wird verursacht durch eine höhere Strombedeckung der zylindersymmetrischen Koppelantenne auf der der Abschlußschieberseite zugewandenen Antennenoberfläche. Der Grund hierfür liegt in einer Feldüberhöhung zwischen Abschlußschieber und Antenne, hervorgerufen durch eine in diesem Bereich sich ausbildenden resonanten Mode (WALTER, 1999).

Die Anstiegszeit der Emission beträgt -unabhängig von Druck und Gasart- wenige  $\mu$ s.

Alle Plasmen weisen kurz nach der Zündung ein Emissionsmaximum in der Zündphase auf. Die Höhe des beobachteten Maximums nimmt mit zunehmendem Tastverhältnis ab. Nach Erreichen des Emissionsmaximums nimmt die Emission mit zunehmender Ausbreitung des Plasmas ab, bis sie ihren Gleichgewichtszustandswert erreicht.

Im Anschluß an die Plasmazündung kommt es, wie in Abb. 5.9 gezeigt, zu einer azimutalen Ausbreitung der Emission entlang den Bereichen maximaler Feldstärke. Die Geschwindigkeit, mit der sich die Emission ausbreitet, deutet auf eine Ionisationswelle als Ursache hin (BROCKHAUS et al., 1998, BÖHLE et al., 1996, BLOYET et al., 1981).



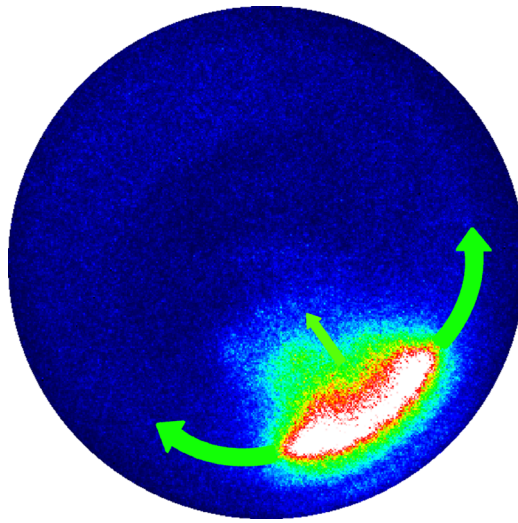


Abbildung 5.9: Prinzipielle Ausbreitung der Plasmaemission während der Zündphase eines gepulsten Plasmas.

Je nach Anregungsenergie des betrachteten Emissionsübergangs zeigt sich während der Zündphase eine mehr oder weniger starke Expansion der Emissionsintensität in radialer Richtung. Sie fällt um so geringer aus und setzt um so später ein, je höher die Anregungsenergie des betrachteten Übergangs und je höher der Druck der gepulsten Entladung ist.

## II. Gleichgewichtsphase

Ist die Leistungspulsdauer ausreichend lang, so erreicht die Entladung ihren stationären Zustand. In der Gleichgewichtsphase ändert sich die Emission kaum noch.

## III. Afterglowphase

Nach Abschalten des MW-Leistungspulses fällt die Emission innerhalb von einigen 10  $\mu\text{s}$  unter die Nachweisgrenze. Die Abfallzeit nimmt mit zunehmendem Druck aufgrund der höheren Elektronenstoßfrequenz ab.

## Zeit und orts aufgelöste Elektronentemperaturverteilung

Für die untersuchten gepulsten Argon- und Sauerstoffplasmen ergibt sich aus der beobachteten Anstiegszeit der Emissionsintensität die Anstiegszeit  $\tau_{r,T_e}$  der Elektronentemperatur  $kT_e$  von ca. 10  $\mu\text{s}$  (Abb. 5.2/Abb. 5.5). Für niedrige Pulsfrequenzen zeigt die Elektronentemperatur  $kT_e$  einen Überschwinger. Mit zunehmendem Tastverhältnis fällt der  $T_e$ -Überschwinger geringer aus (Abb. 5.8). Anschließend fällt die Elektronentemperatur auf einen innerhalb der Gleichgewichts-



phase konstanten Temperaturwert ab (Abb. 5.3/Abb. 5.6-Abb. 5.8). Aus der Abfallszeit der Emissionsintensität während der Afterglowphase läßt sich die Untergrenze (S. 94) für die Abfallszeit der Elektronentemperatur abschätzen. Die Abfallszeit im Druckbereich zwischen 0,15 Pa-5 Pa beträgt in etwa  $\tau_{r,I} \approx 40 \mu\text{s} \leq \tau_{r,T_e}$  und nimmt mit zunehmendem Druck bis auf 10  $\mu\text{s}$  bei 20 Pa ab.

Die an Argon- und Sauerstoffplasmen durchgeführten POES-Messungen zeigen, daß die Elektronen ihre Energie am Rand der Quelle in den zehn Bereichen hoher elektrischer Feldstärke zwischen den Schlitzantennen der SLAN aufnehmen. Auf dem Weg vom Rand zur Mitte der Resonatorebene verlieren die Elektronen durch Kollisionsprozesse einen Teil der aufgenommenen Energie. Dies resultiert in eine vom Rand der Plasmakammer in Richtung des Zentrums der Resonatorebene radial abnehmenden Elektronentemperatur  $kT_e(t,r)$ . Der Energieübertrag von der Mikrowellenleistung auf die Elektronen findet sowohl während der Zündphase als auch im Gleichgewichtszustand am Rand der Plasmakammer statt (Abb. 5.1/Abb. 5.4).

## 5.2 Zeit- und orts aufgelöste Elektronendichteverteilung

Im folgenden Abschnitt wird der Einfluß der Pulsfrequenz im Frequenzbereich zwischen 0,01 und 20 kHz und des Tastverhältnisses im Bereich zwischen 25 und 90% auf das zeit- und ortsabhängige Verhalten der Elektronendichte  $n_e(t)$  durch den Einsatz der Langmuir-Sonde und Mikrowelleninterferometrie untersucht. Die zeit- und orts aufgelöste Bestimmung der Elektronendichte in gepulsten Argon- und Sauerstoffplasmen ist entlang der Symmetrieachse des Versuchsaufbaus durchgeführt worden (Abb. 4.9). Die Sondenkennlinien wurden über 1000 Pulsperioden gemittelt. Die Auswertung der zeitaufgelösten Sondenkennlinien erfolgt per DRUYVESTYEN-Methode (Kapitel 3.1.3).

Die sichtlinienintegrierten MWI Messungen lassen sich nur dann mit den orts aufgelösten Sondenmessungen vergleichen, wenn das relative Elektronendichteprofil  $n_e(r,z)$  entlang des MWI Meßpfades bekannt ist. Aus diesem Grund sowie zur Bestimmung des Transportregimes (Kapitel 2.2.4) wurde die axiale und radiale Elektronendichteprofil innerhalb der Versuchsanlage durch orts aufgelöste Sondenmessungen bestimmt. Das Elektronendichteprofil innerhalb des Rezipienten (*Downstream-Zone*)  $z \geq 13$  cm wird beschrieben durch die Beziehung

$$n_e(r, z) = n_{ed} \exp\left(\frac{-z}{\Lambda}\right) J_0\left(2, 405 \frac{r}{r_p}\right) \quad (5.1)$$

mit  $n_{ed}$  als Elektronendichte am Anfang der Downstream-Zone,  $\Lambda = 6$  cm als effektiver Diffusionslänge der Versuchsanlage (Kapitel A.3/Kapitel 2.2.4),  $J_0$  als Besselfunktion nullter Ordnung und  $r_p = 20$  cm als Plasmaradius. Vergleicht man den durch Gl. 5.1 angegebenen Verlauf des Elektronendichteprofiles in der *Downstream*-Zone mit dem durch Gl. 2.36 vorgegebenen Verlauf, so ergibt sich ein Geometrie-Koeffizient für die untersuchte Quelle von  $\kappa \approx 1,5$ . Dieser Wert entspricht den von WERNER et al., 1996 für Stickstoff und Helium in einer SLAN-I ermittelten Geometrie-Koeffizienten. Für das oben aufgeführte Elektronendichteprofil ergibt sich pro Grad Phasendrehung des MWIs eine Elektronendichte im Zentrum ( $r = 0$ ) des MWI-Meßpfades von  $2,8 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$  (Gl. 3.9, Abb. 3.6)<sup>1</sup>.

### 5.2.1 Argonplasma

Der Vergleich des normierten Elektronendichteverlaufs in Abb. 5.10 zeigt eine sehr gute Übereinstimmung in der Bestimmung des zeitabhängigen Elektronendichteverlaufs zwischen LANGMUIR-Sondensystem und MWI.

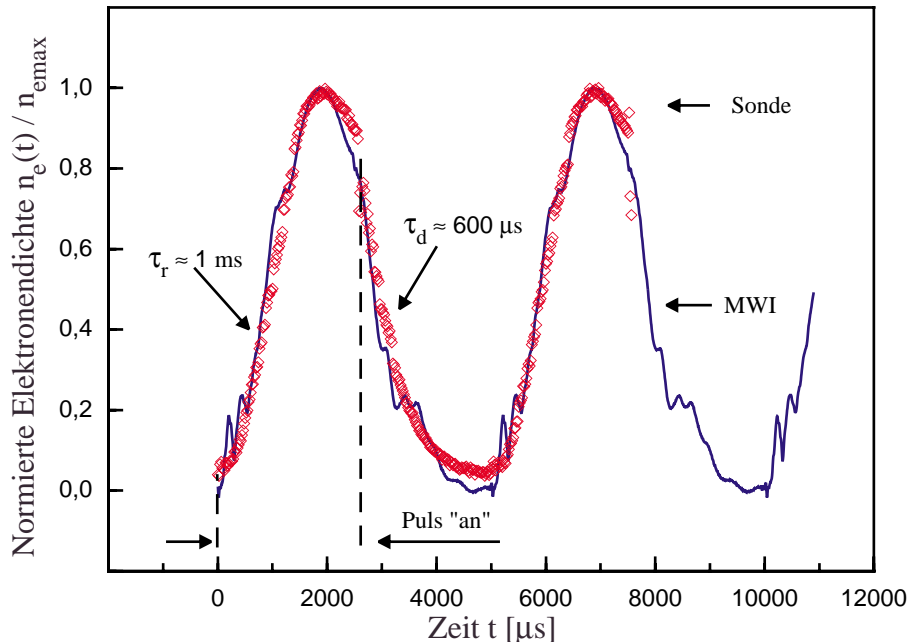


Abbildung 5.10: Normierter zeitlicher Elektronendichteverlauf  $\bar{n}_e(t)/n_{e,max}$  in einem gepulsten Argonplasma. Pulsfrequenz: 200 Hz, Tastverhältnis: 50,  $p = 5$  Pa,  $\bar{P}_{MW} = 1$  kW  
Sondenpos.:  $r = 0$  cm,  $z = 31$  cm (*downstream*).

1. Falls nicht anders erwähnt ist, geben alle in dieser Arbeit präsentierten MWI-Messungen die Elektronendichte im Zentrum ( $r = 0$ ) der *Downstream*-Zone wieder.

Der normierte Elektronendichteverlauf in Abb. 5.10 sowie der absolute Elektronendichteverlauf in Abb. 5.11(c) zeigt das zeitaufgelöste Verhalten der Elektronendichte im *Downstream*-Bereich ( $z = 31$  cm) in einem mit 200 Hz und 50% Tastverhältnis gepulsten reinen Argonplasma.

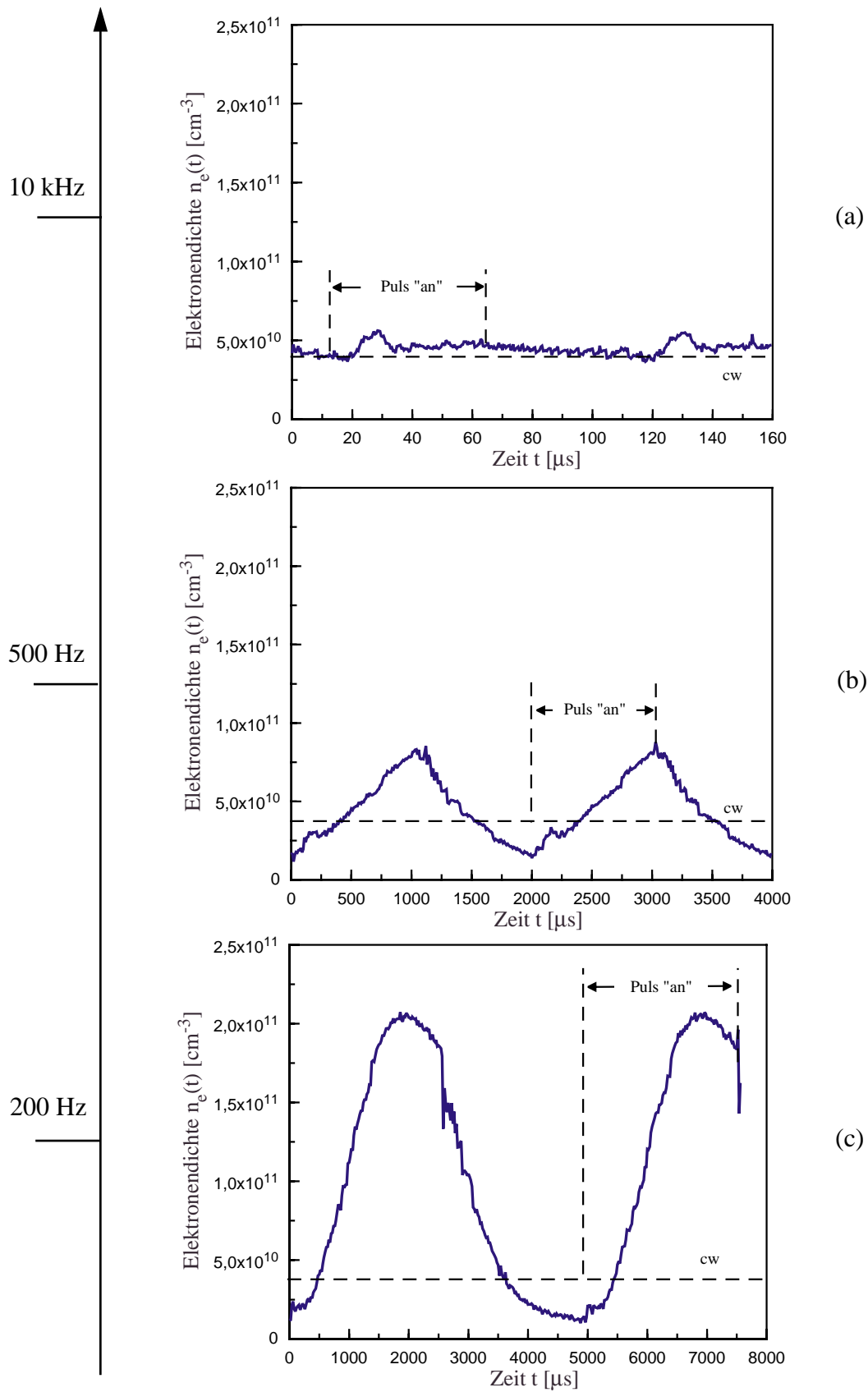
Die Bedingungen entsprechen exakt denen, für die die in Abb. 5.1 gezeigten POES-Aufnahmen aufgenommen wurden. Beide Meßmethoden zeigen eine Anstiegszeit der Elektronendichte von  $\tau_{r,ne} \approx 1$  ms und eine exponentielle Abfallszeit  $\tau_{d,ne} \approx 0,6$  ms. Die im Vergleich zur Anstiegs- und Abfallszeit der Ar I/Ar II Intensität langsamere Anstiegs- und Abfallszeit der Elektronendichte  $n_e(t)$  bestätigen, daß die Emissionsintensität in einem gepulsten Plasma in erster Linie vom Verhalten der Elektronentemperatur  $T_e(t)$  bestimmt wird.

### Frequenzabhängigkeit der Elektronendichte

Abb. 5.11.(a)-(c) zeigt die mit der Einzelsonde an der Position  $z = 31$  cm aufgenommenen pulsfrequenzabhängigen absoluten zeitlichen Elektronendichteverläufe für Pulsfrequenzen zwischen 200 Hz und 10 kHz. Die gestrichelte Linie zeigt den cw-Wert der Elektronendichte  $n_{e,cw}$  bei einer zur mittleren Mikrowellenleistung im Pulsbetrieb äquivalenten cw-Mikrowellenleistung. Wie man der Abb. 5.11 entnehmen kann, nimmt die  $n_e(t)$  Amplitude mit zunehmender Pulsfrequenz ab. Oberhalb einer Pulsfrequenz von 10 kHz folgt die Elektronendichte nicht mehr der Leistungsmodulation und nimmt der Wert  $n_e(t) \approx n_{e,cw}$  an. Für Argon bei einem Druck von 5 Pa wird die maximale Amplitude der Elektronendichte und auch das Maximum der zeitlich gemittelten Elektronendichte

$$\bar{n}_e = \frac{1}{T} \int_0^T n_e(t) dt \quad (5.2)$$

bei einer Pulsfrequenz von 200 Hz erreicht. Der bei dieser Frequenz erreichte  $\bar{n}_e$ -Wert beträgt ca. das dreifache der Elektronendichte im cw-Fall (Abb. 5.11c/Abb. 5.15).



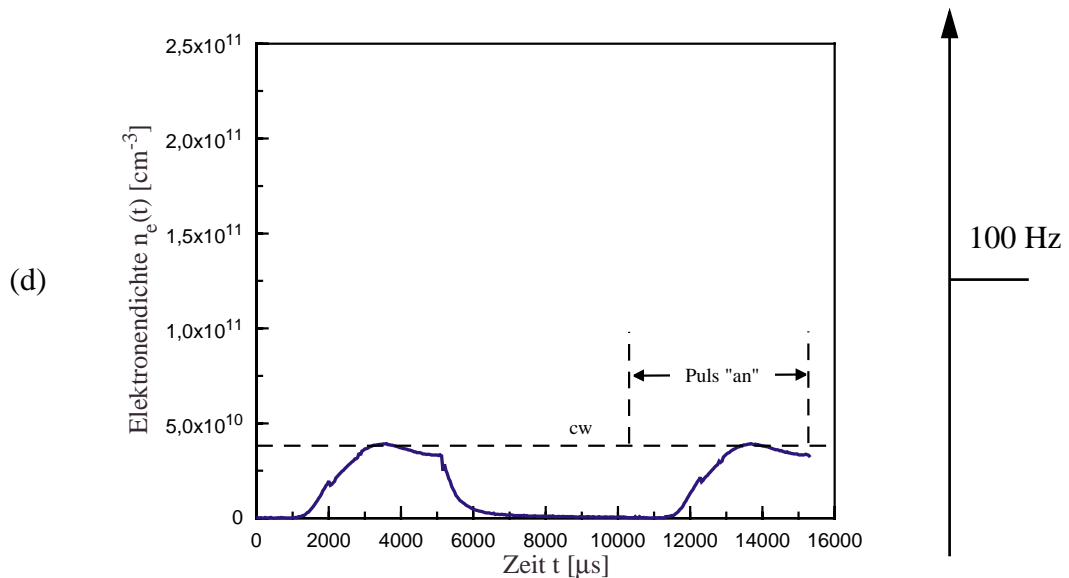
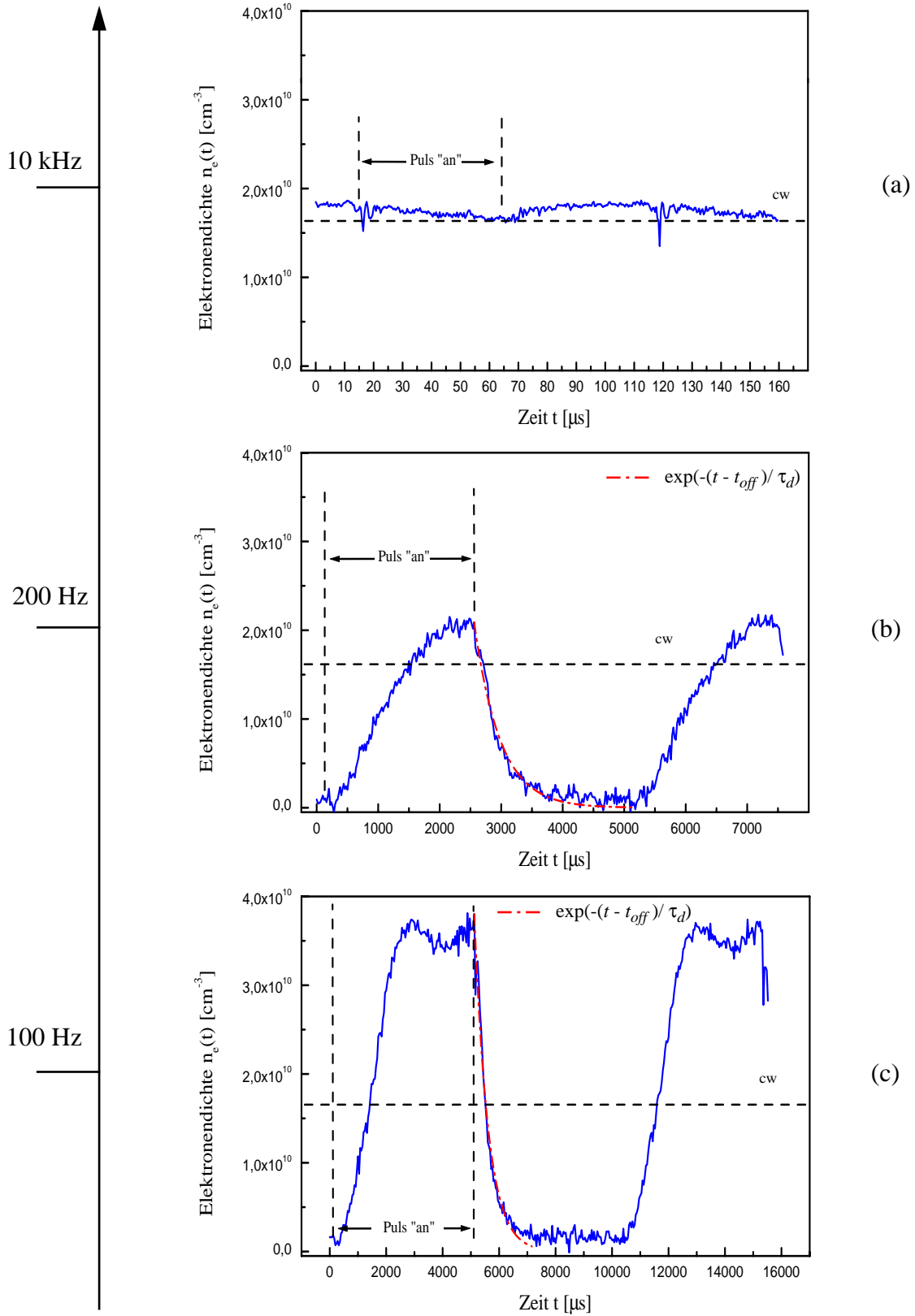


Abbildung 5.11: Pulsfrequenzabhängiger zeitlicher Elektronendichteverlauf  $n_e(t)$  in gepulsten Argonplasmen. Tastverhältnis: 50%,  $p = 5$  Pa,  $\bar{P}_{MW} = 1$  kW, Sondenpos.:  $r = 0$  cm,  $z = 31$  cm (downstream).

Mit weiter abnehmender Pulsfrequenz nimmt die Elektronendichte  $n_e(t)$  rapide ab und erreicht während der Puls- „an“ Phase in etwa den cw-Wert. Wie sich zeigt, zündet die Quelle unterhalb von 200 Hz im Vergleich zum anliegenden Mikrowellenpuls immer später. Dies deutet darauf hin, daß die Elektronendichte bei niedrigen Frequenzen innerhalb der Pulspause soweit absinkt, daß die Ionisationsfrequenz  $\nu_{iz}$  zu Beginn der Zündphase (Kapitel 2.3.1) nicht mehr ausreicht, um das Plasma sofort oder für sehr niedrige Pulsfrequenzen überhaupt noch zu zünden.

Unterhalb eines Druckes von 5 Pa läßt sich die SLAN mit Pulsfrequenzen unter 100 Hz nicht mehr betreiben. Im Übergangsdruckbereich zwischen 5 und 10 Pa verschiebt sich die untere Pulsfrequenzgrenze mit zunehmendem Druck zu niedrigeren Pulsfrequenzen hin. Oberhalb eines Druckes von 10 Pa läßt sich die Quelle mit Pulsfrequenzen von 1 Hz und weniger betreiben.

Wie die in Abb. 5.12 dargestellten Elektronendichteverläufe in einem Argonplasma mit einem Druck von 10 Pa zeigen, ändert sich für höhere Drücke am frequenzabhängigen zeitlichen Verlauf der Elektronendichte wenig. Lediglich die absoluten  $n_e(t)$ -Werte sind niedriger als für 5 Pa.



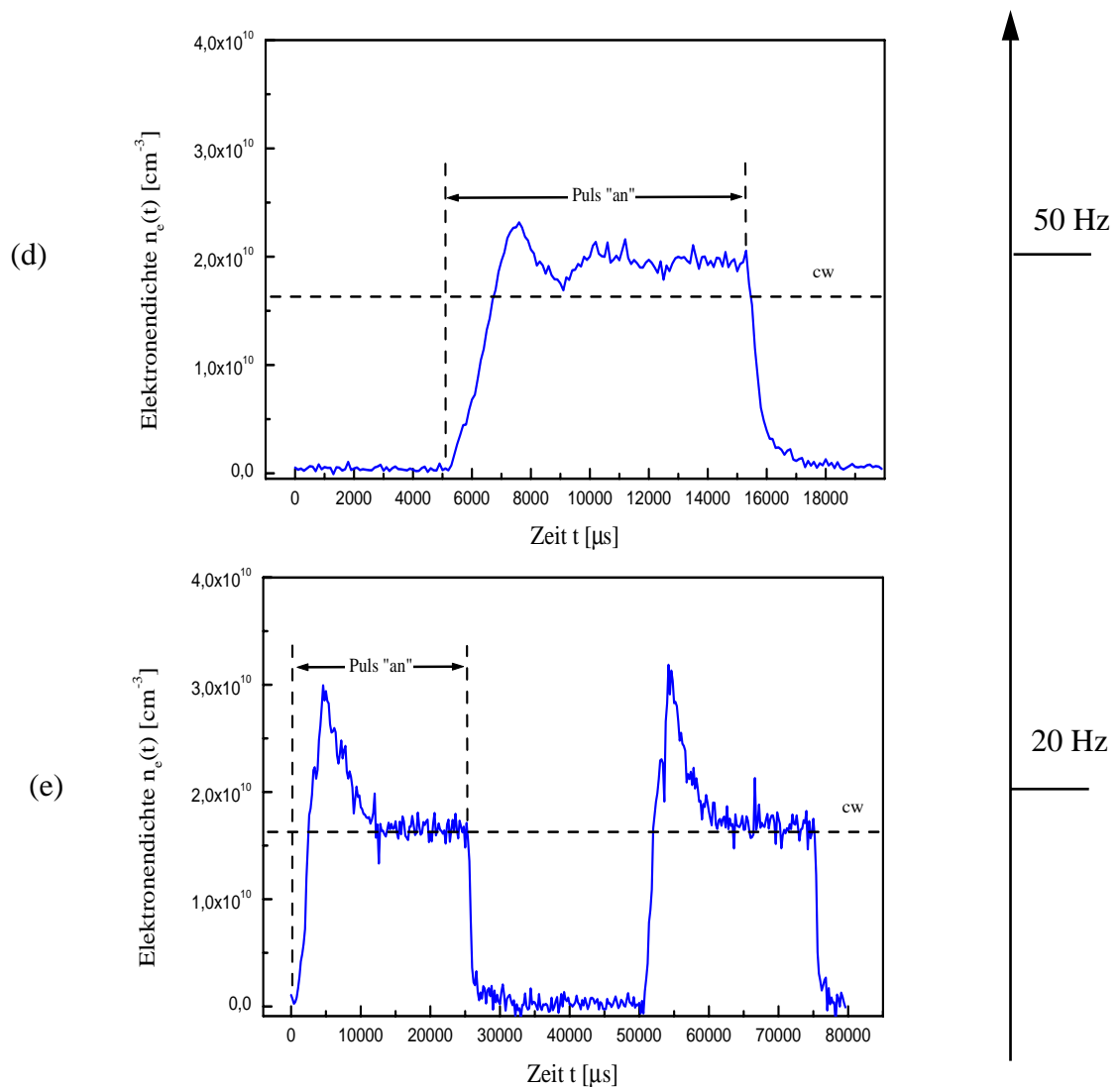


Abbildung 5.12: Pulsfrequenzabhängiger zeitlicher Elektronendichteverlauf  $n_e(t)$  in gepulsten Argonplasmen. Tastverhältnis: 50%,  $p = 10$  Pa,  $P_{MW} = 1$  kW, Sondenpos.  $r = 0$  cm,  $z = 31$  cm (downstream).

Die für hohe Pulsfrequenzen, wie z.B. in Abb. 5.12a zu Beginn des MW-Pulses zu erkennen- den Spitzen im  $n_e(t)$ -Verlauf, lassen sich auf Verschiebestrome in der Randschicht, bzw. die parasitäre Kapazität des Meßaufbaus, zurückführen (Kapitel 4.2.2). Mit zunehmendem Druck verschiebt sich das pulsfrequenzabhängige Maximum der mittleren Elektronendichte  $\bar{n}_e$  zu einer niedrigeren Frequenz. Für ein gepulstes Argonplasma mit einem Druck von 10 Pa liegt das  $\bar{n}_e$  Maximum, wie man Abb. 5.12(a)-(e) entnehmen kann, bei ca. 100 Hz. Für beide untersuchten Drücke ist zu beobachten, daß sowohl die sich für niedrige Pulsfrequenzen in der Gleichgewichtsphase einstellende Elektronendichte als auch die Dichte für sehr hohe Pulsfrequenzen annähernd

gleich dem äquivalenten cw-Wert sind (Vergl. Abb. 5.11a/Abb. 5.11d u. Abb. 5.12a/Abb. 5.12e). Sowohl für sehr hohe Pulsfrequenzen als auch in der Gleichgewichtsphase eines gepulsten Plasmas ist die Ionisationsfrequenz gleich der Ladungsträgerverlustfrequenz und es gilt:  $v_{iz} \approx v_{loss}$  (Kapitel 2.3.2). Da sowohl  $v_{iz}$  als auch  $v_{loss}$  Funktionen der Elektronentemperatur sind (Gl. 2.22), sollte die Elektronentemperatur für hohe Pulsfrequenzen sowie auch während der Gleichgewichtsphase annähernd konstant, und in etwa gleich dem äquivalenten cw-Wert der Elektronentemperatur, sein. Dies bestätigen die in Kapitel 5.3.1 ff. dargestellten Elektronentemperaturverläufe. Unterhalb einer Pulsfrequenz von 100 Hz ist ähnlich dem Überschwingen der Emissionsintensität zu Beginn der Pulsphase (Abb. 5.2) ein Überschwingen der Elektronendichte zu beobachten (Abb. 5.12(c)-(e)). Während die Überschwinger in der Emissionsintensität schon wenige  $\mu\text{s}$  nach der Plasmazündung zu erkennen sind, tritt der Überschwinger der Elektronendichte erst einige ms ( $t \approx 2\text{-}3$  ms) nach der Zündung auf und ist für Frequenzen oberhalb von 100 Hz nicht zu detektieren. Dieses Phänomen läßt sich sowohl mit dem MWI, als auch mit der Sonde beobachten. Aus diesem Grund läßt sich die Sonde als Ursache ausschließen (BEHLE et al., 1997b).

Parallel zur Sondenmessung durchgeführte zeitaufgelöste Messungen der reflektierten Leistung  $p_{ref}(t)$  (Abb. 5.13a) zeigen, daß dem zu beobachtenden Überschwinger der Elektronendichte ca. 1-2 ms vorher ein Maximum in der im Plasma absorbierten Leistung  $p_{abs}(t)$  ( $p_{abs}(t) = p_{MW}(t) - p_{ref}(t)$ ) vorausgeht. Oberhalb einer Pulsfrequenz von 100 Hz zeigt die reflektierte Leistung ein ideales Rechteckprofil und ein Überschwinger in der Elektronendichte ist im  $n_e(t)$ -Verlauf nicht zu detektieren (Abb. 5.13b). Der Überschwinger im zeitlichen Elektronendichteverlauf korreliert demzufolge mit einer höheren absorbierten Leistung. Die innerhalb der Zündphase sich stetig ändernde Quellenimpedanz (Abb. 5.2) führt insbesondere für niedrige Pulsfrequenzen zu einer länger andauernden erhöhten Leistungsanpassung der Quelle, so daß sich das Maximum in der absorbierten Leistung nicht nur auf die Elektronentemperatur sondern auch auf die Ionisationsrate und auf die Elektronendichte auswirkt.



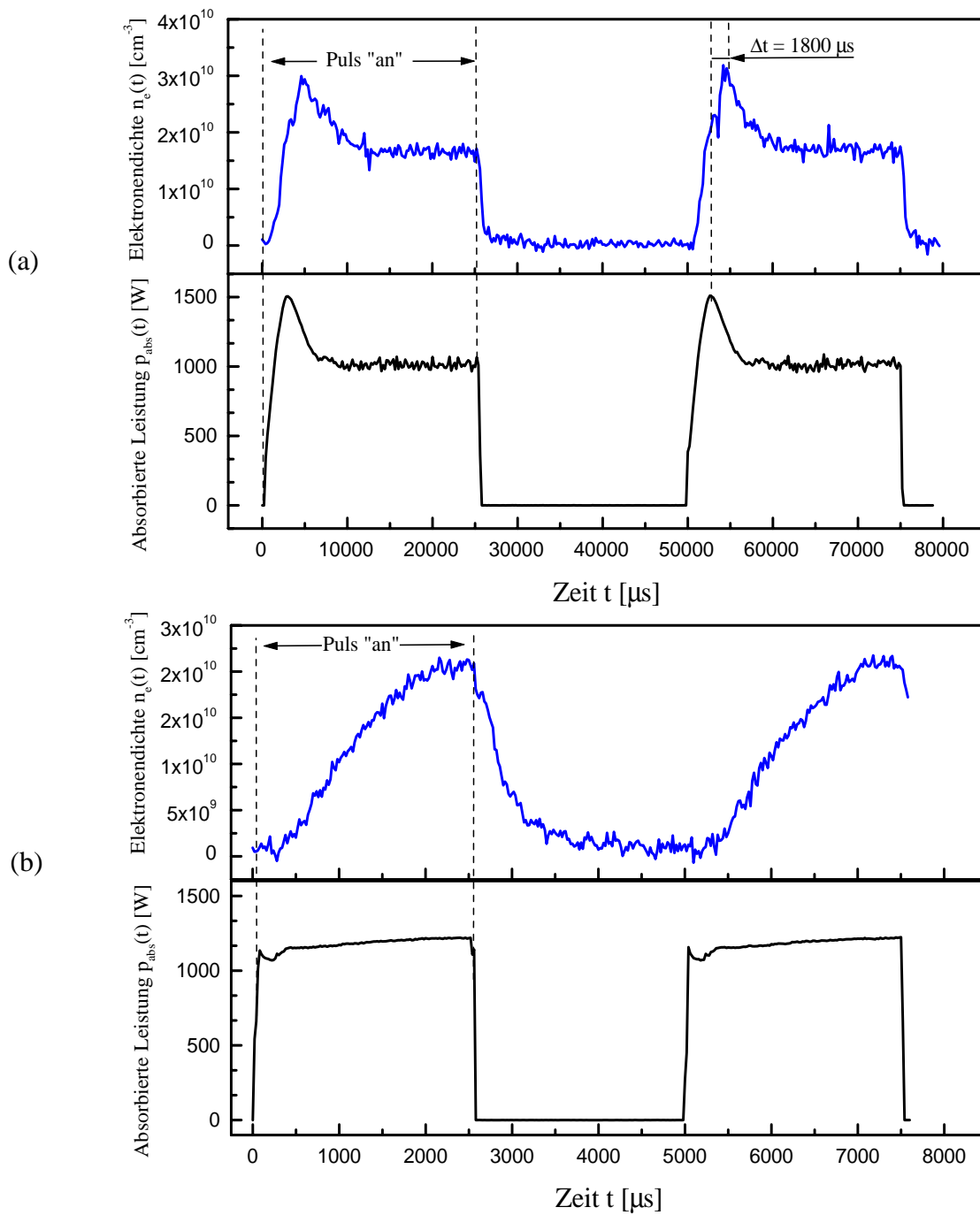


Abbildung 5.13: Vergleich des zeitlichen Elektronendichteverlaufs  $n_e(t)$  mit dem zeitlichen Verlauf der absorbierten Leistung  $p_{abs}(t)$  in einem gepulsten Argonplasma. Pulsfrequenz: (a) 20 Hz, (b) 200 Hz, Tastverhältnis: 50%,  $p = 10$  Pa,  $\bar{P}_{MW} = 1$  kW, Sondenpos.:  $r = 0$  cm,  $z = 31$  cm (downstream).

### Einfluß des Tastverhältnisses

Bislang wurde die Abhängigkeit des zeitlichen Verlaufs der Elektronendichte von der Pulsfrequenz bei konstantem Tastverhältnis untersucht. Abb. 5.14 zeigt die Abhängigkeit des zeitlichen Elektronendichteverlaufs vom Tastverhältnis am Beispiel einer mit 50 Hz gepulsten Argonentladung.

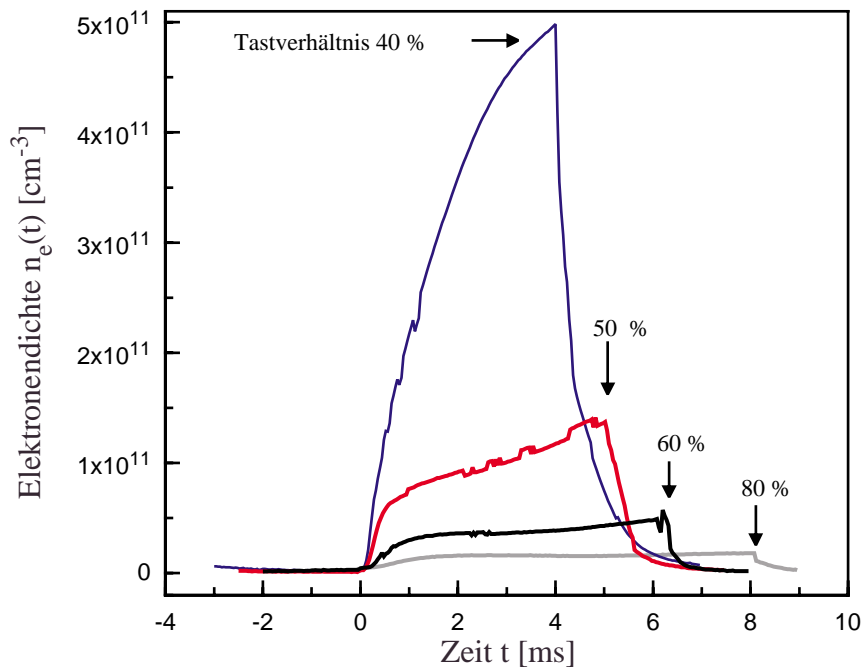


Abbildung 5.14: Einfluß des Tastverhältnisses auf den zeitlichen Elektronendichteverlauf  $n_e(t)$  in einem gepulsten Plasma. Pulsfrequenz 200 Hz,  $p = 20$  Pa,  $\bar{P}_{MW} = 0,5$  kW, Sondenpos.:  $r = 0$  cm,  $z = 17$  cm (*downstream*).

Man beobachtet, daß die Amplitude weitaus stärker zunimmt, als bei konstanter mittlerer Mikrowellenvorwärtsleistung mit abnehmendem Tastverhältnis zu erwarten wäre. Dies führt zu einer Zunahme der zeitlich gemittelten Elektronendichte mit abnehmendem Tastverhältnis (Abb. 5.15/Abb. 5.16). Die mit abnehmendem Tastverhältnis sinkende mittlere Elektronentemperatur bedingt eine geringere mittlere Verlustfrequenz  $\nu_{loss}$ . In Kombination mit der hohen Ionisationsfrequenz  $\nu_{iz}$  in der Zündphase führt dies zu einer Zunahme der  $n_e(t)$ -Amplitude sowie der zeitlich gemittelten Elektronendichte  $\bar{n}_e$  mit abnehmendem Tastverhältnis (LIEBERMAN und ASHIDA, 1996). Mit zunehmender Pulsdauer nimmt die mittlere Elektronentemperatur und somit die Verlustfrequenz zu. Die Elektronendichte und -temperatur nähern sich immer mehr ihrem Gleichgewichtszustandswert (Abb. 5.15). Ist die Pulsdauer ausreichend lang, so erreicht das gepulste Plas-

ma seine Gleichgewichtszustandsphase. In dieser Phase gilt, wie im cw-Fall  $v_{iz} = v_{loss}$  und die Elektronendichte (Abb. 5.12/Abb. 5.14), -temperatur (Abb. 5.21/Abb. 5.23) und die Plasmaemission (Abb. 5.3) sind konstant. Die in dieser Phase gemessenen Werte entsprechen annähernd denen, die sich in einem cw-Plasma bei gleicher Mikrowellenleistung ergeben.

Aufgrund der unterschiedlichen  $T_e(t)$ -Abhängigkeit der Ionisationsfrequenz  $v_{iz}(t)$  und Verlustfrequenz  $v_{loss}(t)$  erhält man je nach Wahl der Pulsfrequenz, bzw. des Tastverhältnisses, um bis zu zwei Größenordnungen über dem äquivalenten cw-Wert liegende  $\bar{n}_e$ -Werte (Abb. 5.15). Im Gegensatz zur Höhe des  $\bar{n}_e$ -Maximums wird die frequenzabhängige Position des Maximums vom Druck, Leistung oder Tastverhältnis beeinflusst.

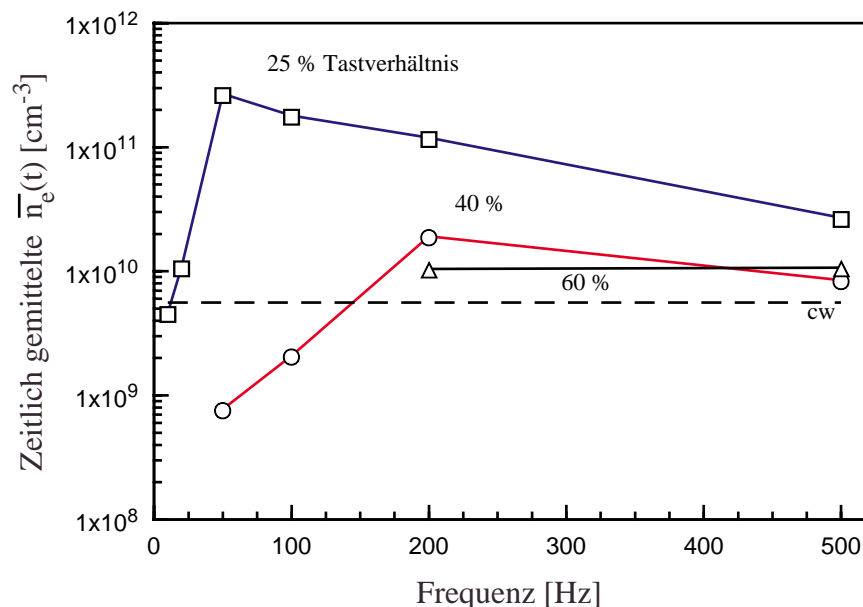


Abbildung 5.15: Pulsfrequenz- und tastverhältnisabhängige zeitlich gemittelte Elektronendichte  $\bar{n}_e(t)$ .  
 $p = 20$  Pa,  $\bar{P}_{MW} = 0,5$  kW, MWI-Pos.:  $z = 31$  cm (downstream).

### Frequenzabhängigkeit der maximalen zeitlich gemittelten Elektronendichte

Alle untersuchten gepulsten Argonplasmen zeigen je nach gewähltem Druck und Leistung ein eindeutiges pulsfrequenzabhängiges Maximum in der mittleren Elektronendichte  $\bar{n}_e$ . Die Sonden- und MWI-Messungen (Abb. 5.11/Abb. 5.12/Abb. 5.15/Abb. 5.16) zeigen, daß Änderungen im Druck, der Leistung oder des Tastverhältnisses zu einer Änderung der frequenzabhängigen Lage des  $\bar{n}_e$ -Maximums führen. Im Druckbereich zwischen 5 und 20 Pa, einer mittleren Pulsleistung  $0,5 \text{ kW} \leq \bar{P}_{MW} \leq 1 \text{ kW}$  und Tastverhältnissen zwischen 25 und 90% liegt das beob-

achtete  $\bar{n}_e$ -Maximum im Frequenzbereich zwischen 50 und 200 Hz (Abb. 5.15). Für hohe Pulsfrequenzen ( $\geq 1$  kHz) nähert sich die mittlere Elektronendichte dem äquivalenten cw-Wert  $n_{e,cw}$  an (Abb. 5.16).

Vergleicht man die in Abb. 5.11 und Abb. 5.12 dargestellten zeitlichen Elektronendichteverläufe für 5 Pa und 10 Pa, so zeigt sich mit zunehmendem Druck eine Verschiebung des  $n_e$ -Maximums hin zu niedrigeren Frequenzen (200 Hz, 5Pa  $\rightarrow$  100Hz, 10Pa). Für ein gepulstes Argonplasma mit einem Druck von 20 Pa,  $\bar{P}_{MW} = 0,5$  kW und einem Tastverhältnis von 25% verschiebt sich das  $\bar{n}_e$ -Maximum bis hinunter auf 50 Hz. Innerhalb des untersuchten Druckbereiches führt eine Verdopplung des Druckes in etwa zu einer Halbierung der Pulsfrequenz, bei der das  $\bar{n}_e$ -Maximum detektiert wird.

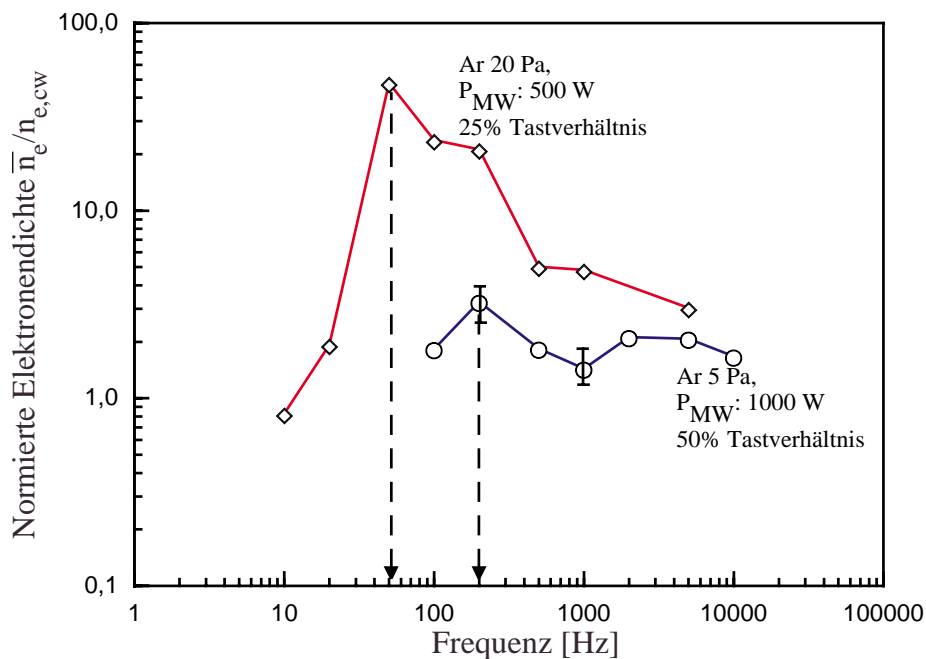


Abbildung 5.16: Frequenzabhängiger zeitlicher Verlauf der normierten zeitlich gemittelten Elektronendichte in gepulsten Argonplasmen in Abhängigkeit von Druck, Leistung, Tastverhältnis. Sondenpos.:  $r = 0$  cm,  $z = 31$  cm (*downstream*).

Wie die Messungen zeigen, sind die äußeren Plasmaparameter innerhalb des untersuchten Plasmaparameterbereiches nicht allein ausschlaggebend für das zeitabhängige Verhalten der Elektronendichte in gepulsten großvolumigen Mikrowellenentladungen. Das frequenzabhängige  $\bar{n}_e$ -Maximum liegt für die untersuchten Plasmaparameter im Bereich einer Pulsfrequenz von ca. 100 Hz. Wie bereits in Kapitel 2.4.1 gezeigt (Abb. 2.11), bestimmt im Falle stoßfreier gepulster Plasmen im wesentlichen die Ladungsträgerverlustfrequenz  $\nu_{loss}$  das Frequenzoptimum, bei der

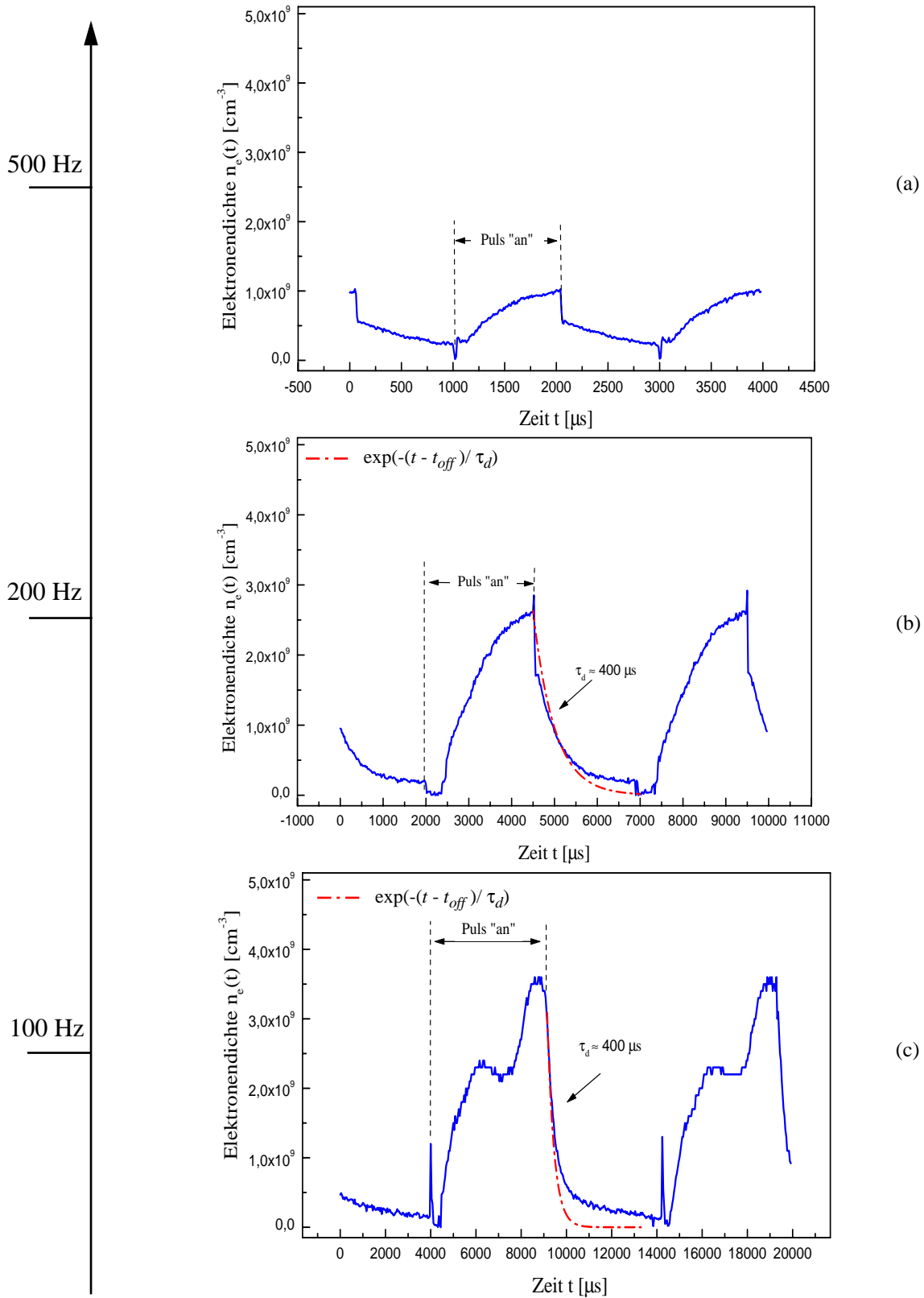
sich das  $\bar{n}_e$ -Maximum einstellt (Abb. 2.11a), während die Höhe des  $\bar{n}_e$ -Maximums durch das Tastverhältnis bestimmt wird (Abb. 2.11b).

### 5.2.2 Sauerstoffplasma

Aufgrund der im Vergleich zur Zündung von Argonplasmen zur Zündung von Sauerstoffplasmen wesentlich höheren Zündfeldstärke läßt sich die SLAN-I mit reinem Sauerstoff nur für Drücke oberhalb von 20 Pa leistungsmoduliert betreiben (KORZEC et al., 1996). Bei 20 Pa liegt die untere Pulsfrequenzgrenze bei 200 Hz. Analog zur vorangegangenen Untersuchung an gepulsten Argonplasmen verschiebt sich mit zunehmendem Druck die Frequenzuntergrenze, mit der die Quelle noch gepulst betrieben werden kann zu tieferliegenden Frequenzen. Ab einem Arbeitsdruck von  $p \geq 50$  Pa läßt sich die SLAN-I mit Pulsfrequenzen  $f \leq 10$  Hz betreiben.

In Abb. 5.17 sind die mit der Einzelsonde ermittelten  $n_e(t)$ -Verläufe in einem gepulsten Sauerstoffplasma für Pulsfrequenzen zwischen 20-500 Hz und einem Druck von 50 Pa gezeigt. Aufgrund der bei diesem Druck sehr niedrigen Elektronendichte wurde die Messung im Zentrum der Resonatorebene durchgeführt ( $z = 0$ ,  $r = 0$ , Abb. 4.9). Im grundlegenden Zeitverhalten zeigt sich kein wesentlicher Unterschied zu denen im vorangegangenen Abschnitt gezeigten frequenzabhängigen  $n_e(t)$  Verläufen in einem gepulsten Argonplasma (Abb. 5.11/Abb. 5.12).

Die Anstiegszeit liegt im ms- Bereich und die exponentielle Abfallzeit der Elektronendichte liegt für alle Pulsfrequenzen bei  $\tau_{d,ne} = 400 \mu\text{s}$  (Abb. 5.17(b)-(e)). Mit zunehmender Pulsfrequenz folgt der  $n_e(t)$ -Verlauf immer weniger der Rechteckmodulation der Leistung und nähert sich dem cw-Wert an. Für Pulsfrequenzen unterhalb von 50 Hz folgt die Elektronendichte zwar der gepulsten Leistung. Ihre Amplitude erreicht während der Gleichgewichtsphase allerdings ebenfalls nur den cw-Wert. Für Pulsfrequenzen zwischen 50 und 100 Hz zeigt der  $n_e(t)$ -Verlauf während der Gleichgewichtsphase stark ausgeprägte Oszillationen. Der Abstand der Oszillationsmaxima beträgt sowohl für 50 als auch für 100 Hz in etwa 2,5 ms. Aus diesem Grund sind sie für Pulsfrequenzen  $f \geq 200$  Hz nicht mehr zu detektieren. Diese Oszillationen korrespondieren mit vorangehenden Oszillationen in der reflektierten Mikrowellenleistung. Die Impedanzoszillationen werden durch eine zeitliche Variation der Schlitzantennenankopplung verursacht, wie zeitaufgelöste POES-Aufnahmen der atomaren Sauerstoffemission vermuten lassen.



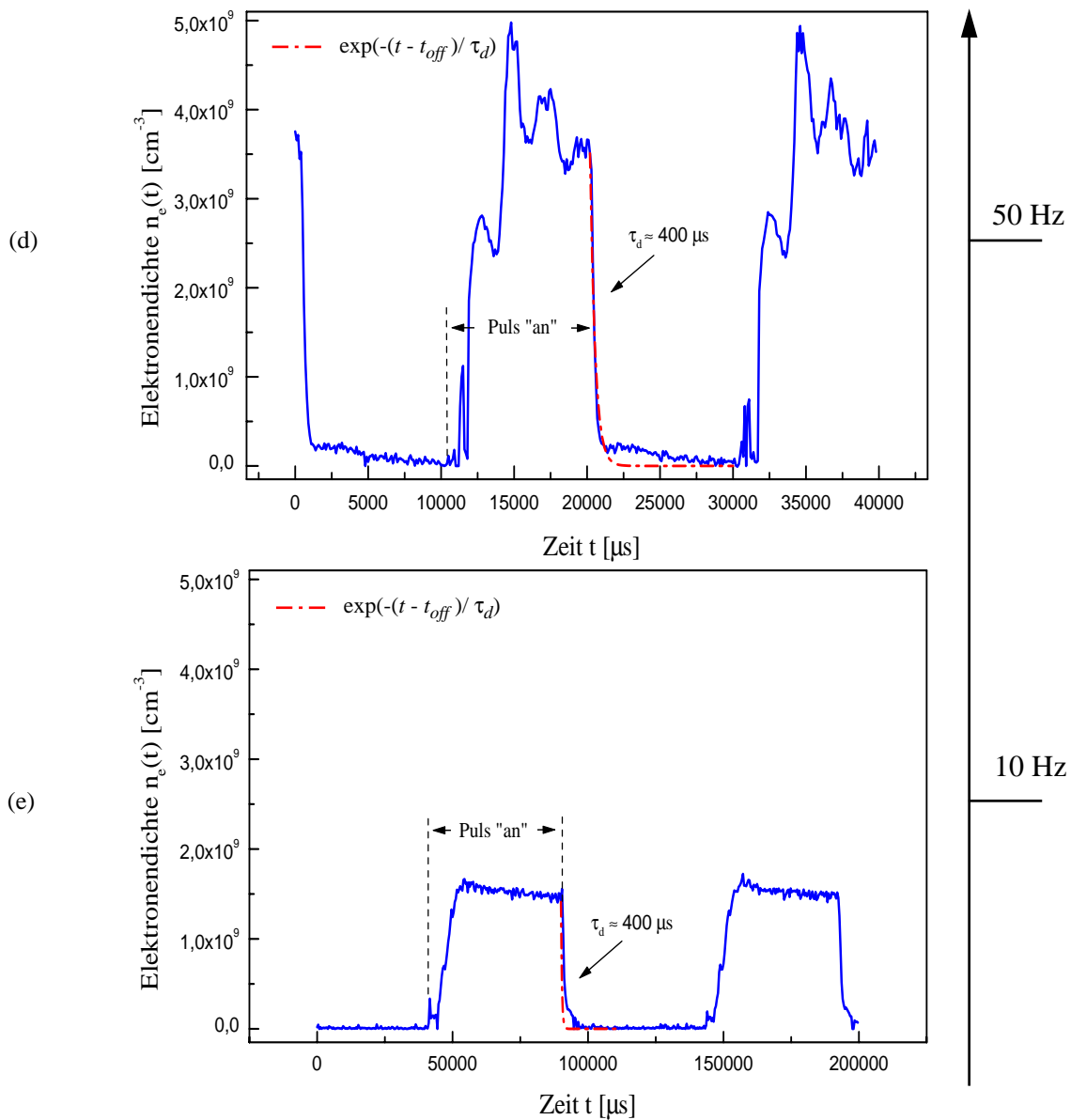


Abbildung 5.17: Pulsfrequenzabhängiger zeitlicher Elektronendichteverlauf  $n_e(t)$  in gepulsten Sauerstoffplasmen. Tastverhältnis: 50%,  $p = 50$  Pa,  $P_{MW} = 1$  kW, Sondenpos.:  $r = 0$ ,  $z = 0$  cm (Resonatormitte).

Oberhalb von 20 Pa zeigen die POES-Messungen, daß der während der Zündphase sich azimuthal ausbreitende Emissionsring über die gesamte Pulsperiode hinweg nicht schließt. Die zeit aufgelösten Beobachtungen während der Gleichgewichtsphase zeigen, das die emissionsfreie Stelle innerhalb des Emissionsringes mit der Zeit rotiert. Dies ist ein Hinweis auf eine zeitlich sich ändernde Schlitzantennenankopplung. Die hieraus resultierende Impedanzoszillation ist unter Umständen für die beobachtete  $n_e(t)$ -Oszillation verantwortlich.

Auch Sauerstoff zeigt ein klares pulsfrequenzabhängiges  $\bar{n}_e$ -Maximum. Für 50 Pa und einer mittleren Mikrowellenleistung  $\bar{P}_{MW} = 1 \text{ kW}$  wird  $n_e(t)$  bei einer Pulsfrequenz von 50 Hz maximal (Abb. 5.18/Abb. 5.17).

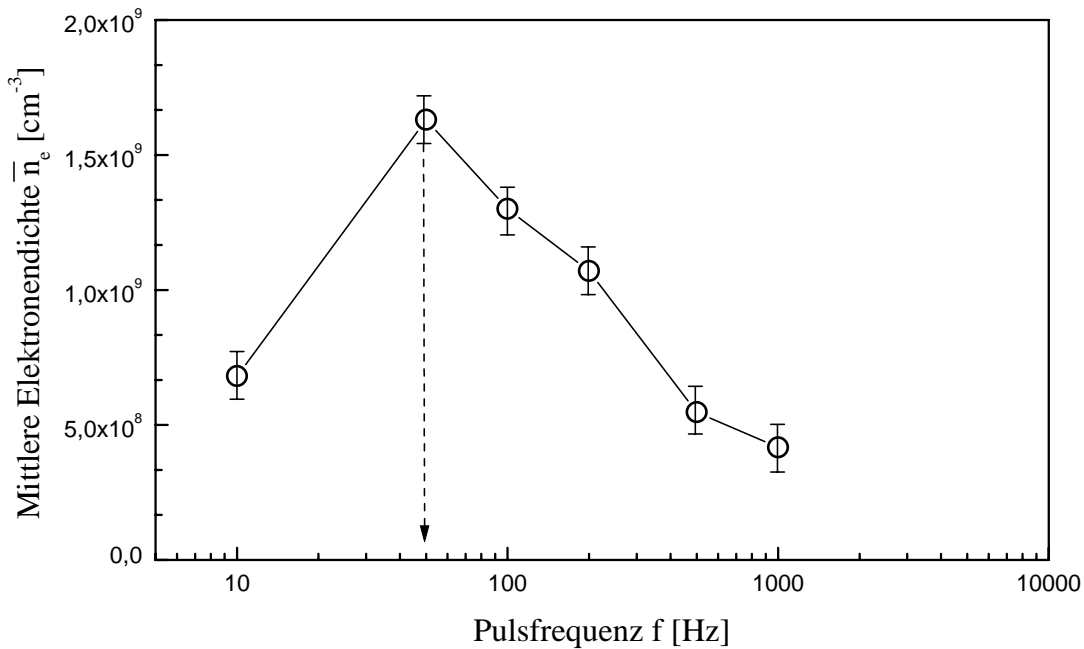


Abbildung 5.18: Pulsfrequenzabhängiger Verlauf der zeitlich gemittelten Elektronendichte  $\bar{n}_e(t)$  in gepulsten Sauerstoffplasmen. Tastverhältnis: 50%,  $p = 50 \text{ Pa}$ ,  $\bar{P}_{MW} = 1 \text{ kW}$ , Sondenpos.:  $r = 0 \text{ cm}$ ,  $z = 0 \text{ cm}$  (Resonatormitte).

### 5.2.3 Elektronendichteverlauf in gepulsten großvolumigen Mikrowellenplasmen

Wie die vorangehenden Sondenmessungen und der beispielhaft in Abb. 5.19 dargestellte Elektronendichteverlauf zeigen, ist der Elektronendichteabfall in großvolumigen stoßbestimmten gepulsten Mikrowellenplasmen exponentiell und nicht wie von LIEBERMAN und ASHIDA, 1996 für stoßfreie Plasmen angegeben, eine Funktion der Form  $t^{-1/2}$  (Gl. 2.59, Kapitel 2.4.1). Für alle untersuchten gepulsten Plasmen stimmt der Verlauf der Abfallszeit  $\tau_{d,ne}$  während der Afterglowphase  $t \geq t_{off}$  allerdings sehr gut mit dem Abklingen der Diffusionsgrundmode in einem stoßbestimmten diffusiven Plasma, gegeben durch

$$n_e(t \geq t_{off}) = n_e(t_{off}) \exp\left(-\frac{t - t_{off}}{\tau_{d,ne}}\right), \quad (5.3)$$

überein.



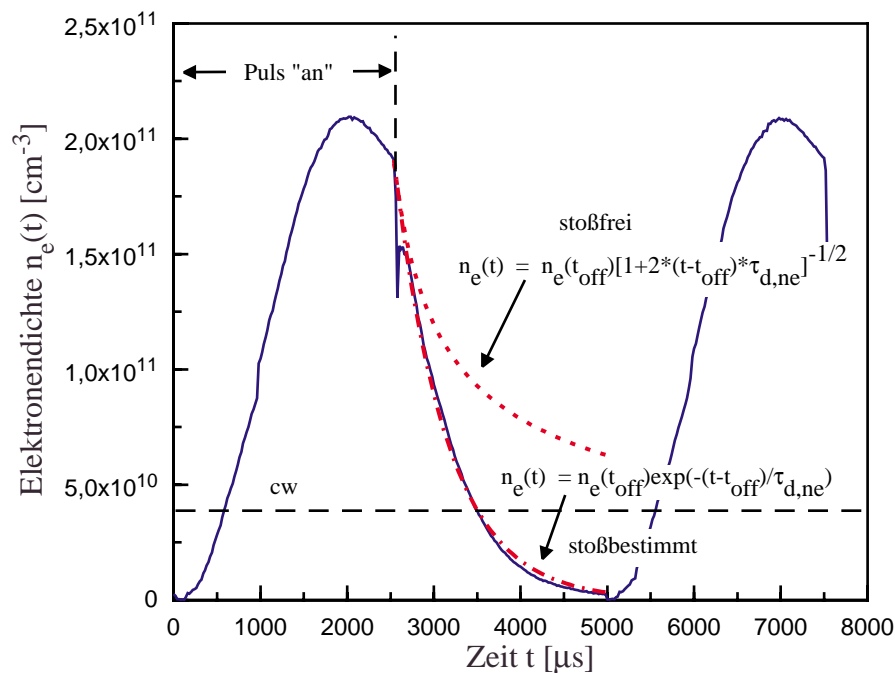


Abbildung 5.19: Zeitlicher Elektronendichteverlauf  $n_e(t)$  in einem mit 200 Hz gepulsten Argonplasma. Tastverhältnis: 50%,  $p = 5$  Pa,  $\bar{P}_{MW} = 1$  kW, Sondenposition:  $r = 0$  cm,  $z = 31$  cm (*downstream*).

In Abb. 5.12(b)-(c) und Abb. 5.17(b)-(e) ist ein exponentieller Abfall gemäß Gl. 5.3 als zusätzliche Kurve eingezeichnet. Die in Abb. 5.10 angegebene exponentielle Abfallszeit wurde ebenfalls mit Gl. 5.3 ermittelt.

Alle  $n_e(t)$ -Verläufe zeigen eine gute Übereinstimmung mit den qualitativen Vorhersagen des Global Model bezüglich des  $n_e(t)$  Verhaltens in gepulsten Plasmen (Kapitel 2.4.1):

1. Mit zunehmender Pulsfrequenz folgt  $n_e(t)$  immer weniger der Leistungsmodulation. Bei sehr hohen Pulsfrequenzen wird  $n_e(t)$  konstant und nimmt den cw-Wert an  $n_e(t) = n_{e,cw}$ .
2. Die  $n_e(t)$ -Amplitude und  $\bar{n}_e$  zeigt ein eindeutiges pulsfrequenzabhängiges Maximum im Bereich zwischen 50 -200 Hz. Mit zunehmendem Druck verschiebt sich das  $\bar{n}_e$  -Maximum zu niedrigeren Pulsfrequenzen.
3. Mit abnehmendem Tastverhältnis nimmt die  $n_e(t)$ -Amplitude zu.
4. Für konstante äußere Plasmaparameter ist das  $\bar{n}_e$  -Maximum von der Pulsfrequenz abhängig, während das Tastverhältnis die Höhe des  $\bar{n}_e$  -Maximums bestimmt.

5. Unterhalb der Pulsfrequenz des  $\bar{n}_e$ -Maximums nimmt mit abnehmender Pulsfrequenz auch die  $n_e(t)$ -Amplitude ab und erreicht in der Gleichgewichtsphase  $n_{e\infty} = n_{e,cw}$
6. Anstiegs- und Abfallzeit der Elektronendichte sind wesentlich langsamer als die Anstiegs- und Abfallzeit der Elektronentemperatur:
  - Anstiegszeit:  $\tau_{r,Te} (10 \mu\text{s}) \ll \tau_{r,ne} (1 \text{ ms})$
  - Abfallszeit:  $\tau_{d,Te} (65 \mu\text{s}) \ll \tau_{d,ne} (0,6 \text{ ms})$

### 5.3 Zeit- und orts aufgelöste Elektronentemperaturverteilung

Aus den per DRUYVESTYEN-Methode ausgewerteten LANGMUIR-Sondenmessungen läßt sich zusätzlich zum zeitabhängigen Verlauf der Elektronendichte  $n_e(t)$  auch das quantitative Verhalten der Elektronentemperatur  $kT_e(t)$  bestimmen (Kapitel 3.1.3).

Die theoretisch minimal auflösbare Elektronentemperatur ist durch die gewählte Schrittweite der Sondenspannung  $\Delta U_s$  vorgegeben. In der Afterglowphase beträgt die minimal detektierbare Elektronentemperatur aufgrund des niedrigen Signal/Rauschverhältnisses  $kT_{e,min} = 0,5 \text{ eV}$ .

#### 5.3.1 Argonplasma

Zum Vergleich mit den POES-Messungen (Abb. 5.3) und den daraus abgeleiteten Anstiegs- und Abfallzeiten der Elektronentemperatur ist in Abb. 5.21 das Verhalten der Elektronentemperatur für Pulsfrequenzen zwischen 0,2 kHz und 20 kHz dargestellt. Analog zu den Anstiegs- und Abfallszeiten der Elektronendichte  $n_e(t)$  sind die Anstiegs- und Abfallszeit der Elektronentemperatur  $kT_e(t)$  für den untersuchten Frequenzbereich konstant. Die Anstiegszeit liegt bei  $\tau_{r,Te} = 10 \mu\text{s}$  und ist in guter Übereinstimmung mit der aus der POES-Messung abgeleiteten Anstiegszeit. Allerdings konnte ein Überschwingen der Elektronentemperatur, wie sie die POES-Messungen bei einer Pulsfrequenz von 200 Hz zeigen und das „Global Model“ gepulster Plasmen während der Zündphase voraussagt, nicht detektiert werden. Eine Ursache hierfür ist möglicherweise, daß die Sondenmessung in der Downstream-Zone  $z = 31 \text{ cm}$  durchgeführt wurde, während die POES-Aufnahmen primär die Emission aus dem Zentrum zeigen. Ein durch die POES detektierter Überschwinger der Elektronentemperatur im Zentrum der SLAN wird bis zum Erreichen der Sondenposition durch Kollisionen so stark gedämpft, daß er nicht mehr eindeutig zu detektieren ist. Eine andere mögliche Ursache ist die im Bereich der Zeitauflösung des Sondensystems liegende ex-

trem kurze Dauer des Elektronentemperaturüberschwingers (1-2  $\mu\text{s}$ , Abb. 5.2, Kapitel 4.2.2). Für höhere Drücke und niedrigere Pulsfrequenzen ist ein Überschwinger der Elektronentemperatur detektierbar (Abb. 5.20).

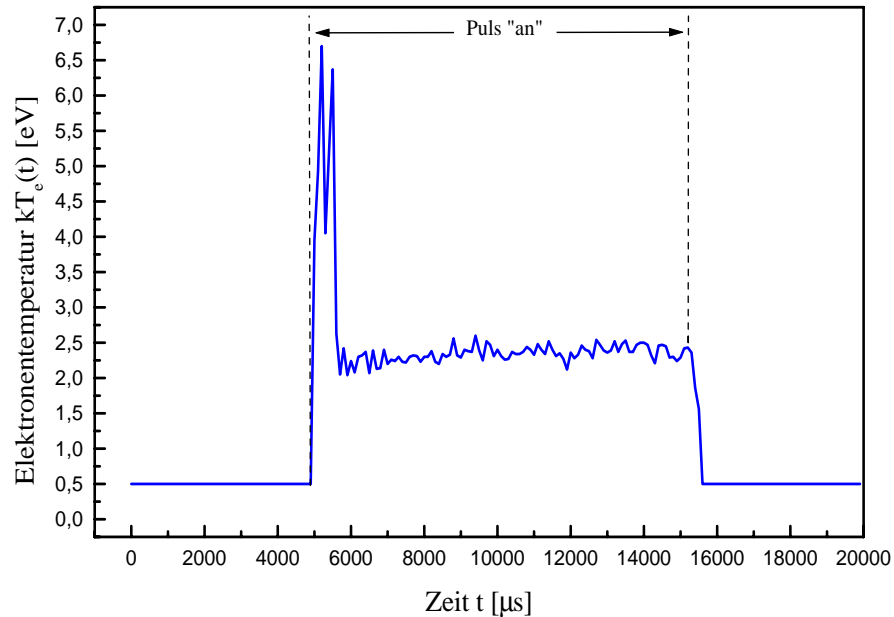


Abbildung 5.20: Zeitlicher Elektronentemperaturverlauf  $kT_e(t)$  in einem gepulsten Argonplasma. Pulsfrequenz: 50 Hz, Tastverhältnis: 50%,  $p = 10$  Pa,  $\bar{P}_{MW} = 1$  kW, Sondenpos.:  $r = 0$  cm,  $z = 31$  cm (*downstream*).

Während der Gleichgewichtsphase erreicht die Elektronentemperatur  $kT_e(t)$  den cw-Wert von ca. 2 eV. Die exakte Bestimmung der Abfallzeit der Elektronentemperatur ist aufgrund der begrenzten  $kT_e$ -Auflösung der Sonde schwierig. Die minimal detektierbare Temperatur von  $kT_e = 0,5$  eV wird ca. 50-60  $\mu\text{s}$  nach Abschalten des MW-Pulses erreicht (Abb. 5.21). Der in Abb. 5.21 eingezeichnete exponentielle Abfall ergibt sich aus den ersten 50  $\mu\text{s}$  des gemessenen Elektronentemperaturabfalls während der Afterglowphase. Die hieraus abgeleitete  $T_e(t)$  Abfallszeit beträgt  $\tau_{d,T_e} = 80$   $\mu\text{s}$ . Dies ist zweimal länger als der aus der POES-Messung abgeleitete Wert (Abb. 5.3). Allerdings stellt der POES Wert -wie bereits schon in Kapitel 5.1.4 diskutiert- den unteren Grenzwert des  $T_e(t)$ -Abfalls dar. Die  $T_e(t)$ -Abfallszeit ist acht bis neunmal niedriger als die  $n_e(t)$  Abfallszeit (Abb. 5.11). Dies ist doppelt so schnell, wie vom „Global Model“ gepulster stoßfreier Plasmen für Argon vorhergesagt wird. In stoßfreien Plasmen sollte der  $T_e(t)$ -Abfall für Argon viermal schneller erfolgen als der  $n_e(t)$ -Abfall. Wie man den Elektronentemperaturverläufen in Abb. 5.21 weiterhin entnehmen kann, nimmt die mittlere Elektronentemperatur  $\bar{T}_e$  mit ab-

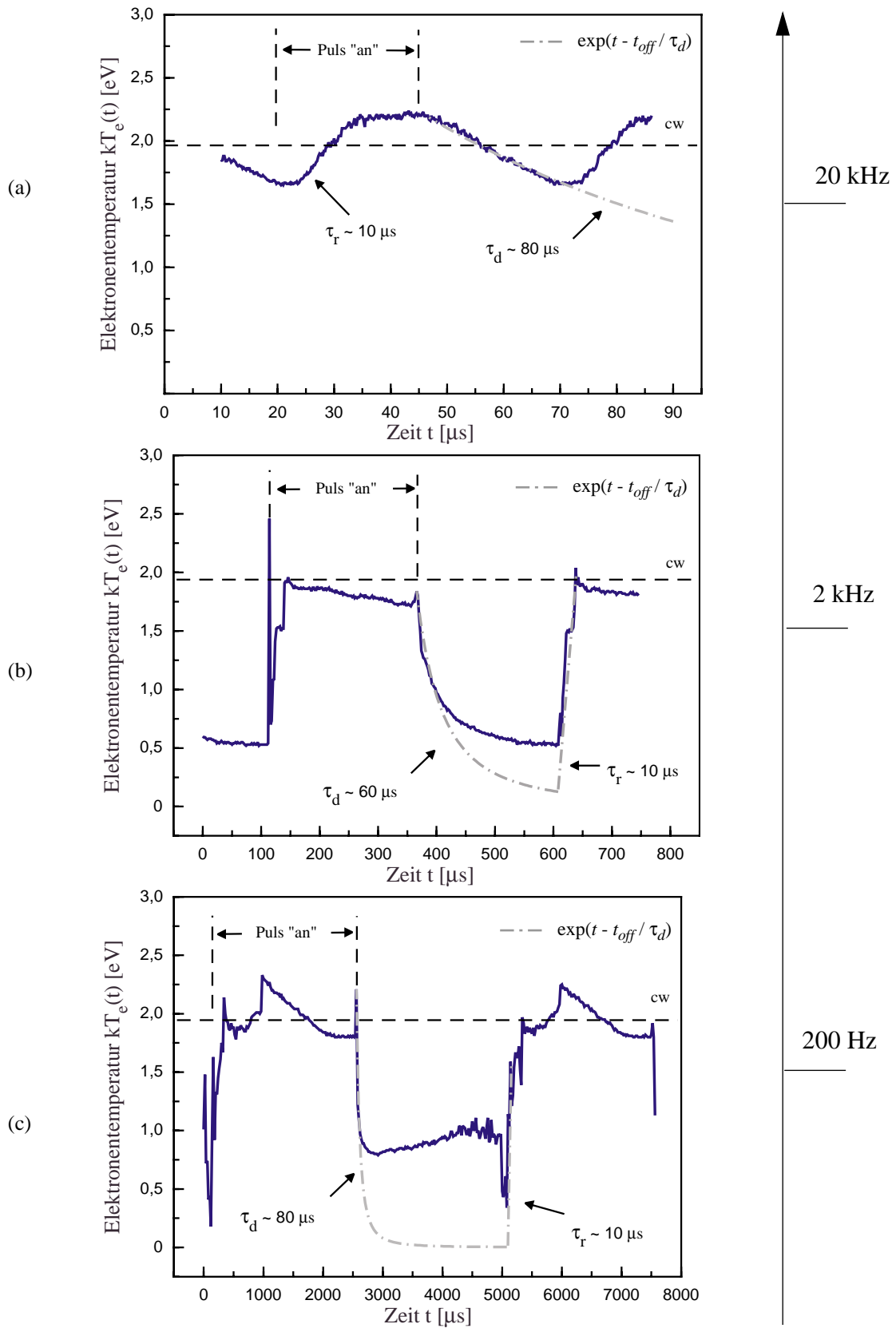


Abbildung 5.21: (Vorangegangene Seite) Pulsfrequenzabhängiger zeitlicher Elektronentemperaturverlauf  $kT_e(t)$  in einem gepulsten Argonplasma. Tastverhältnis: 50%,  $p = 5$  Pa,  $\bar{P}_{MW} = 1$  kW, Sondenpos.:  $r = 0$  cm,  $z = 31$  cm (*downstream*).

nehmender Pulsfrequenz ab. Während bei einer Pulsfrequenz von 20 kHz die zeitlich gemittelte Elektronentemperatur in etwa dem cw-Wert entspricht  $\bar{T}_e = T_{e, cw}$ , beträgt die mittlere Elektronentemperatur bei 200 Hz  $\bar{T}_e = T_{e, cw}/2$ .

### 5.3.2 Sauerstoffplasmen

Prinzipiell zeigt der Elektronentemperaturverlauf in gepulsten Sauerstoffplasmen kein anderes Verhalten als in gepulsten Argonplasmen. Auch für das  $T_e(t)$  in Sauerstoffplasmen gilt:  $\tau_{r,Te} \ll \tau_{r,ne}$  und  $\tau_{d,Te} \ll \tau_{d,ne}$ . Die mit der Sonde gemessene Anstiegszeit von  $\tau_{r,Te} = 10\mu\text{s}$  ist gleich der für Argonplasmen ermittelten Anstiegszeit. Sie korreliert ebenfalls mit der in den POES-Messungen ermittelten Anstiegszeit der Emission des atomaren Sauerstoffs (Abb. 5.4). Die von Druck und Gasart unabhängige konstante Anstiegszeit der Elektronentemperatur und Plasmaemission deutet darauf hin, daß die Anstiegszeit der Elektronentemperatur -wie auch im Global Model angenommen (Kapitel 2.4.1)- mit der Anstiegszeit der im Plasma absorbierten Mikrowellenenergie korreliert.

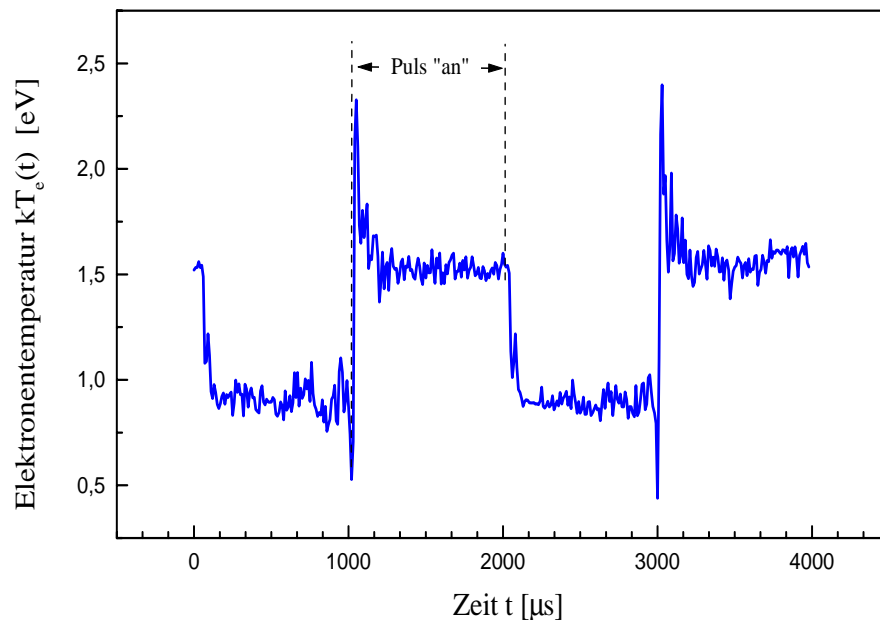


Abbildung 5.22: Pulsfrequenzabhängiger zeitlicher Elektronentemperaturverlauf  $kT_e(t)$  in einem mit 500 Hz gepulsten Sauerstoffplasma. Tastverhältnis: 50%,  $p = 50$  Pa,  $\bar{P}_{MW} = 1$  kW, Sondenpos.:  $r = 0$  cm,  $z = 0$  cm (Resonatormitte).

Für die atomare Sauerstoffemission wurde dieses Verhalten schon in gepulsten kapazitiv gekoppelten HF-Entladungen beobachtet (COLLART et al., 1991). Der einzige Unterschied im Verlauf der Elektronentemperatur zwischen Argon- und Sauerstoffplasmen ist der niedrigere Absolutwert der zeitlichen Elektronentemperatur in Sauerstoff (Abb. 5.22/Abb. 5.23).

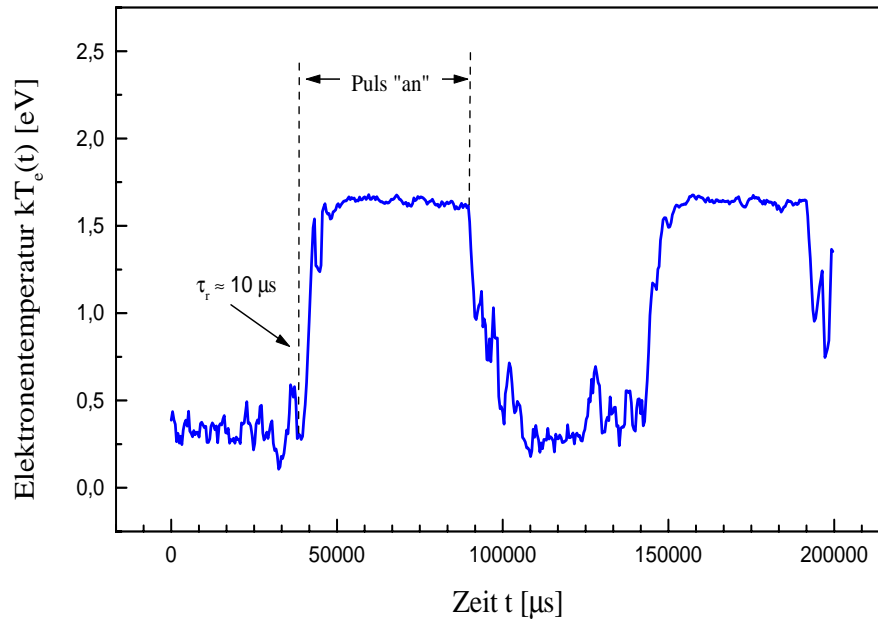


Abbildung 5.23: Pulsfrequenzabhängiger zeitlicher Elektronentemperaturverlauf  $kT_e(t)$  in einem mit 10 Hz gepulsten Sauerstoffplasma. Tastverhältnis: 50%,  $p = 50$  Pa,  $\bar{P}_{MW} = 1$  kW, Sondenpos.:  $r = 0$  cm,  $z = 0$  cm (Resonatormitte).

### 5.3.3 Elektronentemperaturverlauf in gepulsten großvolumigen Mikrowellenplasmen

Die Sondenmessungen zeigen, daß in großvolumigen, stoßbestimmten gepulsten Mikrowellenplasmen der  $T_e$ -Abfall ähnlich wie die Elektronendichte eher exponentiell und somit schneller abfällt als der für stoßfreie Plasmen von SUGAI et al., 1995 und LIEBERMAN und ASHIDA, 1996 angegebene  $t^{-2}$ -Abfall der Elektronentemperatur (Gl. 2.57, Kapitel 2.4.1). In stoßbestimmten Plasmen verlieren die Elektronen aufgrund der höheren Stoßfrequenz  $\nu_m$ , bzw. kürzeren mittleren freien Weglänge  $\lambda_e$ , einen Teil ihrer Energie bei ihrem Weg zur Wand durch Stöße im Volumen. Im Gegensatz dazu verlieren Elektronen in stoßfreien Plasmen ihre Energie, wenn sie an der Wand rekombinieren. Dies erklärt den Unterschied im schnelleren  $T_e(t)$ -Abfall, verglichen mit den Vorhersagen des „Global Model“ für stoßfreie Plasmen. Bis auf den bei 5 Pa nicht detektierbaren  $T_e$ -Überschwinger während der Zündphase und dem schnelleren  $T_e$ -Abfall zeigt aber der

$T_e(t)$ -Verlauf eine gute Übereinstimmung mit den Vorhersagen des „Global Model“:

1. Anstiegs- und Abfallszeit der Elektronentemperatur sind wesentlich schneller als die Anstiegs- und Abfallszeit der Elektronendichte.
2. Der  $T_e(t)$ -Anstieg ist unabhängig von Druck und Gasart und korreliert mit dem Anstieg der absorbierten Mikrowellenleistung während der Zündphase.
3. Aufgrund des schnellen Temperaturanstiegs erreicht  $kT_e$  wesentlich früher als  $n_e(t)$  die Gleichgewichtsphase. Während dieser Phase nimmt  $kT_e(t)$  den stationären Wert  $kT_{e\infty}$  an und ist gleich dem für cw-Plasmen.
4. Im Vergleich zur Elektronendichte folgt für hohe Pulsfrequenzen die zeitabhängige Elektronentemperatur  $T_e(t)$  der Pulsmodulation stärker.
5. Für hohe Pulsfrequenzen schwingt die  $T_e(t)$ -Amplitude um den cw-Wert.

Desweiteren zeigt der Vergleich zwischen den Anstiegs- und Abfallzeiten der mit POES bestimmten Emissionsintensität eine sehr gute Korrelation der Plasmaemission mit dem Zeitverhalten der Elektronentemperatur.

## 5.4 Zeit- und orts aufgelöste Neutralteilchendichte in gepulsten Plasmen

Abschließend wird am Beispiel der atomaren Sauerstoffdichte das zeitabhängige Verhalten von Neutralteilchen im Grundzustand untersucht. Zur Bestimmung der zeit- und orts aufgelösten absoluten Sauerstoffdichte  $n_o(t)$  wird die Zwei-Photonen laserinduzierte Fluoreszenz eingesetzt (Abb. 3.9). Da die Anregungsquerschnitte und die Übergangswahrscheinlichkeiten des beobachteten Niveaus recht gut bekannt sind, läßt sich durch die Kombination eines Ratengleichungsmodells mit der Kalibration der Detektionsoptik durch RAMAN-Streuung die absolute Sauerstoffdichte aus der beobachteten Emissionsintensität berechnen (Kapitel 3.3, Gl. 3.18-Gl. 3.26, BROCKHAUS et al., 1996). Für eine detailliertere Beschreibung der Zwei-Photonen laserinduzierten Fluoreszenz, der Absolutkalibration und des eingesetzten Versuchsaufbaus zur zeitaufgelösten Bestimmung der atomaren Sauerstoffdichte sei an dieser Stelle auf die Kapitel 3.3 und Kapitel 4.2.6 sowie auf die dort angegebene Literatur verwiesen.

### 5.4.1 Anstiegs- und Abfallszeit atomaren Sauerstoffs

In Abb. 5.24 ist der zeitliche Verlauf der absoluten atomaren Sauerstoffdichte  $n_o(t)$  für zwei unterschiedliche Pulsfrequenzen (10 Hz und 200 Hz) dargestellt.

Wie der Abb. 5.24(a) zu entnehmen ist, beträgt die Anstiegszeit der Dichte des atomaren Sauerstoffs ca.  $\tau_{r,no} = 9$  ms und korreliert sehr gut mit der Anstiegszeit der Elektronendichte  $\tau_{r,ne} = \tau_{r,no}$ . Während der Puls-, „an“ Phase folgt die  $n_o(t)$ -Dichte dem  $n_e(t)$  Verlauf und ist ca. dreimal höher als im cw-Fall. In der Afterglowphase fällt die atomare Sauerstoffdichte exponentiell ab. Die Abfallszeit der atomaren Sauerstoffdichte beträgt  $\tau_{d,no} \approx 20$  ms und ist damit langsamer als die Abfallszeiten der Elektronendichte und der Elektronentemperatur (Abb. 5.23b) ( $\tau_{d,no} \gg \tau_{d,ne}, \tau_{d,Te}$ ). Die extrem lange Lebensdauer des atomaren Sauerstoffs in der Afterglowphase führt dazu, daß bereits oberhalb einer Pulsfrequenz von  $f \geq 50$  Hz die atomare Sauerstoffdichte sowohl der Leistungsmodulation des Mikrowellenpulses als auch dem  $n_e(t)$ -Verlauf nicht mehr folgt. Wie in Abb. 5.24(b) am Beispiel einer mit 200 Hz gepulsten Sauerstoffentladung gezeigt, wird die atomare Sauerstoffdichte für bei dieser Frequenz über die gesamte Pulsperiode konstant und liegt noch 30% über der äquivalenten cw-Dichte. Bei einem Druck von 50 Pa und  $\bar{P}_{MW} = 1$  kW wird das Maximum der mittleren atomaren Sauerstoffdichte  $\bar{n}_o$  für Pulsfrequenzen zwischen 50 und 100 Hz erreicht. Dieses entspricht der Pulsfrequenz, für die die mittlere Elektro-



endichte  $\bar{n}_e$  ebenfalls ihren höchsten Wert annimmt (Abb. 5.20).

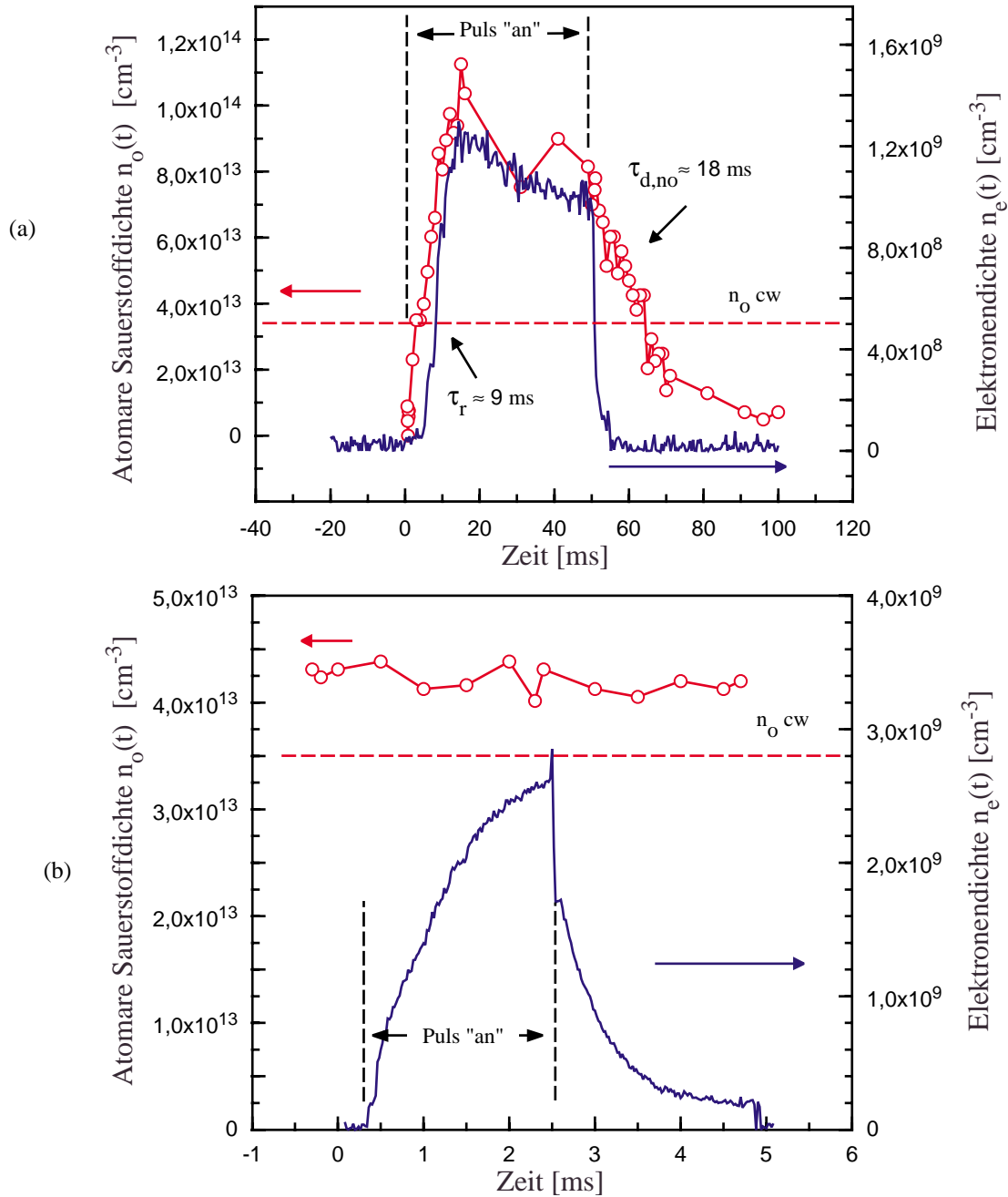


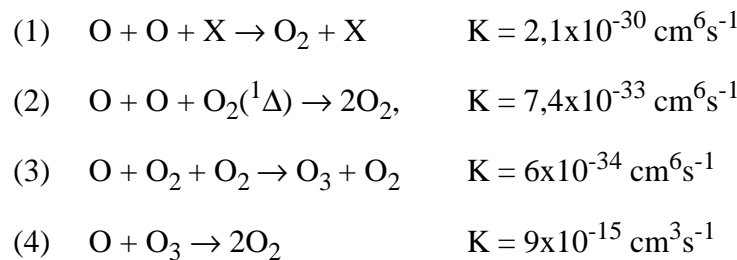
Abbildung 5.24: Pulsfrequenzabhängiger zeitlicher Verlauf der absoluten atomaren Sauerstoff  $n_o(t)$  und Elektronendichte  $n_e(t)$  in einem gepulsten Sauerstoffplasma. (a) 10 Hz, (b) 200 Hz.  
 Tastverhältnis: 50%,  $p = 50 \text{ Pa}$ ,  $\bar{P}_{MW} = 1 \text{ kW}$ ,  
 LIF-Pos.:  $r = 0 \text{ cm}$ ,  $z = 22 \text{ cm}$ , Sondenpos.:  $r = 0 \text{ cm}$ ,  $z = 0 \text{ cm}$ .

### Verlustprozesse des atomaren Sauerstoffs

Während der Anstieg der atomaren Sauerstoffdichte und die mittlere O-Dichte durch das zeitliche Verhalten der Elektronendichte  $n_e(t)$  bestimmt werden, weist der im Vergleich zu  $T_e(t)$  und  $n_e(t)$  extrem langsame Abfall der atomaren Sauerstoffdichte auf eine sehr geringe Verlustrate des Sauerstoffatoms hin. Als Ursache für die O-Verluste kommen zum einen Strömungsverluste durch die Vakuumpumpe, Gasphasenrekombination oder Diffusionsverluste, verursacht durch Diffusion des atomaren Sauerstoffs zur Wand mit anschließender Rekombination in Frage.

Die Verweilzeit des atomaren Sauerstoffs im beobachteten Volumen ist bei einem Druck von 50 Pa und 50 sccm Flußrate (Kapitel 2.2.4, Gl. 2.26) wesentlich länger als der beobachtete Dichteabfall  $\tau_{d,no}$ . Somit lassen sich Strömungsverluste als Ursache für den beobachteten Abfall ausschließen.

Als relevante Gasphasenprozesse kommen die folgenden Reaktionen in Frage (COLLART et al., 1995):



mit X in Reaktion 1 als beliebiger dritter Stoßpartner. Die Reaktionen (1) und (2)<sup>1</sup> hängen quadratisch von der atomaren Sauerstoffdichte ab und tragen somit kaum zum beobachteten exponentiellen Abfall der atomaren Sauerstoffdichte bei. Für eine typische Ozonkonzentration in einer Sauerstoffentladung von 0,1% der O<sub>2</sub>-Dichte (COLLART et al., 1995) sind die Ratenkonstanten für die dritte und vierte Gasphasenreaktion zu klein, um nennenswert zum exponentiellen Abfall beizutragen (COLLART et al., 1995). Der wahrscheinlichste Verlustprozeß für atomaren Sauerstoff sind die Diffusionsverluste, bzw. die Wandrekombination ( $\text{O} + \text{O} + \text{W} \rightarrow \text{O}_2$ ). Die Wand erreicht der atomare Sauerstoff durch Diffusion innerhalb der Plasmaanlage.

Für eine Zylindergeometrie erhält man aus der exponentiellen Abfallzeit die Diffusionskon-

---

1. Die Reaktionen (1)-(3) stellen sogenannte drei Körperstoßprozesse dar. Diese Prozesse werden durch einen Ratenkoeffizienten dritter Ordnung mit der Einheit [ $\text{m}^6/\text{s}$ ] beschrieben. Diese Koeffizienten ergeben sich, wenn man den Ausdruck in Gl. 2.20 um die Geschwindigkeit und Geschwindigkeitsverteilungsfunktion des dritten stoßenden Partikel erweitert (LIEBERMAN und LICHTENBERG, 1994).

stante des atomaren Sauerstoffs aus der Beziehung:

$$\tau_{d,no} = \frac{\Lambda^2}{D_o} \quad (5.4)$$

(MCDANIEL und MASON, 1972), mit  $\Lambda$  als mittlere Diffusionslänge der Versuchsanlage

$$\frac{1}{\Lambda^2} = \left(\frac{2,405}{R}\right)^2 + \left(\frac{\pi}{L}\right)^2. \quad (5.5)$$

Mit  $L = 60$  cm als Länge der Plasmaanlage und  $R = 15,8$  cm als mittlerem Radius<sup>1</sup> ergibt sich eine mittlere Diffusionslänge  $\Lambda = 6,6$  cm. Für diesen Wert und einer exponentiellen Abfallzeit von  $\tau_{d,no} = 20$  ms ergibt sich aus Gl. 5.4  $D_o = 2200$  cm<sup>2</sup>s<sup>-1</sup>. Dieser Wert ist in sehr guter Übereinstimmung mit dem von COLLART et al., 1995 bei ähnlichen Druckverhältnissen, in einem gepulsten hochfrequenzangeregten Parallelplattenreaktor ermittelten Wert von  $D_o = 2100$  cm<sup>2</sup>s<sup>-1</sup>.

Die Produktion des atomaren Sauerstoffs in einem gepulsten Plasma korreliert mit dem zeitabhängigen Verhalten der Elektronendichte  $n_e(t)$ . Die Verluste werden durch die Diffusion des atomaren Sauerstoffs zur Wand dominiert. Die unterschiedlichen Zeitskalen, auf denen die Erzeugungs- und die Verlustprozesse stattfinden, erklären den  $n_o(t)$ -Verlauf sowie die für Pulsfrequenzen zwischen 10 und 200 Hz höheren mittleren atomaren Sauerstoffdichte  $\bar{n}_o$ . Die Verlustrate des atomaren Sauerstoffs wird aufgrund der quadratischen Abhängigkeit der Abfallzeit  $\tau_{d,no}$  von  $\Lambda$  stark von der Quellengeometrie bestimmt. Durch Pulsen eines Sauerstoffplasmas lassen sich somit nicht nur Plasmaprozesse verbessern, sondern es lassen sich bei bekannter Entladungsgeometrie auch für den cw-Betrieb Erkenntnisse über die vorherrschenden Verlustmechanismen gewinnen und bedeutende Kenngrößen wie die Diffusionskonstante ermitteln.

Wie aber läßt sich der im Vergleich zur Anstiegszeit der Konzentration des atomaren Sauerstoffs im Grundzustand um drei Größenordnungen schnellere  $\tau_{rIo} = \tau_{rTe} = 10$   $\mu$ s (Abb. 5.5) Anstieg der atomaren Sauerstoffemission während der Zündphase erklären? Hierzu ist es notwendig, sich die wesentlichen Anregungsprozesse mit ihren Wirkungsquerschnitten genauer anzusehen. Für die Anregung des atomaren Sauerstoffs sowie für die Dissoziation des molekularen Sauerstoffs, existieren laut COLLART et al., 1991 und TRENNEPOHL et al., 1996 im wesentlichen die in

1. Den mittleren Radius  $R$  der Versuchsanlage erhält man aus:

$(R_{Slan} * L_{Slan} + R_{Rezipient} * L_{Rezipient}) / (L_{Slan} + L_{Rezipient})$  mit  $R_{Slan} = 7,5$  cm,  $L_{Slan} = 20$  cm,  $R_{Rezipient} = 20$  cm,  $L_{Rezipient} = 40$  cm. (Kapitel 4.1 und Abb. 4.9)

Tabelle 5.2 aufgeführten Anregungskanäle.

Prozeß		Schwellenenergie
Dissoziation	$O_2 + e \rightarrow O + O + e$	6 eV
Dissoziative Anregung	$O_2 + e \rightarrow O + O I + e$	16 eV
Direkte Anregung	$O + e \rightarrow O I + e$	11 eV

Tabelle 5.2: Anregungsprozesse des atomaren Sauerstoffübergangs  $3p^3P \rightarrow 3s^3S^0$  (845 nm).

Für die direkte und dissoziative Anregung ist in Abb. 5.25 der elektronentemperaturabhängige Verlauf der Produktionsraten  $P_{dir}$  und  $P_{diss}$  dargestellt. Die Produktionsraten<sup>1</sup> wurden aus den Ratenkonstanten  $K_{dir}$  und  $K_{diss}$  (Gl. 2.21, Kapitel 2.2.2) unter der Annahme einer maxwellverteilten Elektronenenergie und den in der Literatur angegebenen Wirkungsquerschnitten (LATHER und GILMORE, 1990, SCHULMAN et al., 1985) berechnet. Wie sich zeigt, überwiegt für Elektronenenergien oberhalb von 2 eV, wie sie gerade während der Zündphase des Plasmas vorherrschen, der dissoziative Anregungsprozeß im Vergleich zum direkten Anregungsprozeß. Abb. 5.25 ist zu entnehmen, daß der dissoziative Prozeß aufgrund der höheren molekularen Sauerstoffdichte auch für niedrigere Elektronenenergien bis ca. 1,5 eV einen nicht zu vernachlässigenden Prozeß darstellt. Hieraus folgt, daß die beobachtete Emission während der Zündphase -aufgrund des langsamen Anstiegs der atomaren Sauerstoffdichte und hohen Elektronentemperatur- aus dem dissoziativen Anregungsprozeß des Sauerstoffmoleküls stammt. Mit Beginn der Gleichgewichtsphase ( $\tau_{r,Te} = 10 \mu s$ ,  $kT_{e\infty} = 1,6$  eV, Abb. 5.23) erreichen die temperaturabhängigen Wirkungsquerschnitte beider Anregungskanäle ihren stationären Wert. In dieser Phase trägt die direkte Anregung in dem Maße zur beobachteten Emission bei, wie der Dissoziationsgrad des Sauerstoffs während der Pulsdauer ansteigt. Der maximal im Pulsbetrieb erreichbare Dissoziationsgrad liegt bei ca. 2% der  $O_2$ -Dichte (Abb. 5.24). Die Produktionsrate für die direkte Anregung beträgt dann  $P_{dir}(1,6 \text{ eV}) \approx 1 \times 10^6 \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$ , die für die dissoziative Anregung  $P_{dis}(1,6 \text{ eV}) \approx 5 \times 10^5 \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$ . Während der Gleichgewichtsphase trägt die direkte Anregung somit zu 2/3 zur detektierbaren

1. Die Produktionsrate berechnet sich aus der Ratenkonstante (Gl. 2.20) des jeweils betrachteten Prozesses multipliziert mit den Dichten der beteiligten Stoßpartner. Für einen Zweikörperstoß erhält man die Produktionsrate aus der Beziehung:  $P_r = K * n_1 * n_2$ .

Emission des atomaren Sauerstoffs bei.

Wie sich zeigt, ändern sich die Anteile beider Anregungskanäle an der zeitabhängigen Emissionsintensität eines gepulsten Sauerstoffplasmas von der Zündphase über die Gleichgewichtsphase. Mit Erreichen der  $T_e(t)$ -Gleichgewichtsphase nimmt der Anteil der dissoziativen Anregung in dem Maße ab, wie die  $n_o$ -Dichte ansteigt. Infolge des sehr schnellen  $T_e(t)$ -Abfalls in der *Afterglow*phase ist der Beitrag der dissoziativen Anregung zu vernachlässigen. Die in dieser Phase detektierbare Emission stammt nur noch von direkt angeregtem atomarem Sauerstoff.

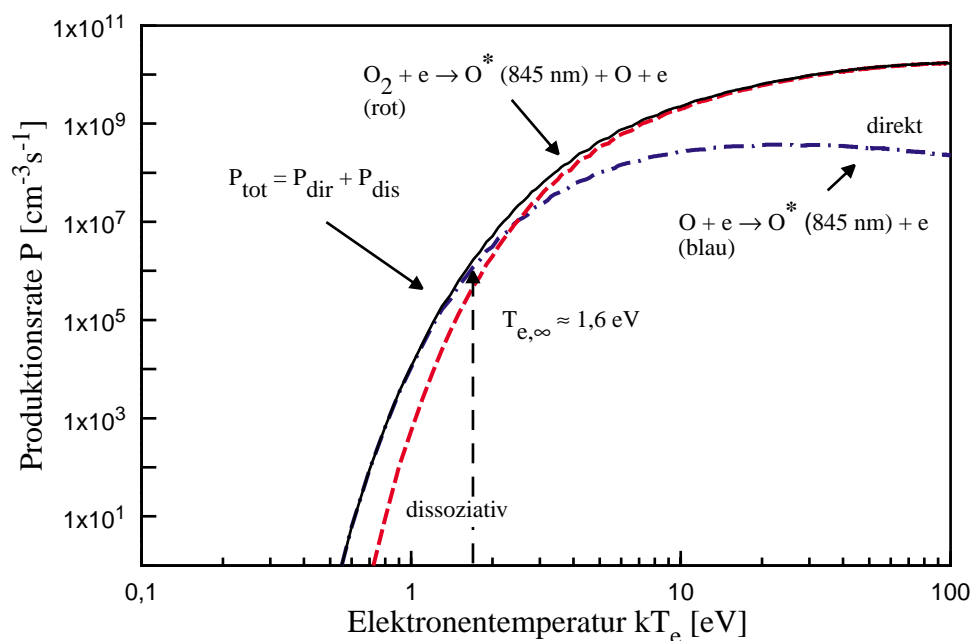


Abbildung 5.25: Elektronentemperaturabhängige Produktionsrate der dissoziativen Anregung des Sauerstoffmoleküls im Vergleich zur Produktionsrate der direkten Anregung des Sauerstoffatoms.  $p = 50 \text{ Pa}$ , Elektronendichte:  $3 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$  (Abb. 5.17), Dissoziationsgrad  $\text{O}/(\text{O}+\text{O}_2)$ : 2%. Zu Grunde liegende Wirkungsquerschnitte aus: LATHER und GILMORE, 1990 und SCHULMAN et al., 1985.

---

## Kapitel 6

### „Global Model“ stoßbestimmter diffusiver Plasmen

Die im vorangegangenen Kapitel dargestellten Meßergebnisse stimmen zumindest phänomenologisch sehr gut mit den Voraussagen des in Kapitel 2.4.1 beschriebenen „Global Model“ gepulster stoßfreier Plasmen überein. In einigen Punkten wie des Elektronendichte- und Temperaturabfalls weichen die untersuchten gepulsten großvolumigen Plasmen in ihrem Verhalten allerdings von den Vorhersagen des „Global Model“ gepulster stoßfreier Plasmen ab. Sowohl der Elektronendichte- als auch der Elektronentemperaturabfall lassen sich für alle untersuchten Plasmen durch einen exponentiellen Abfall beschreiben, wobei der  $T_e(t)$ -Abfall in etwa achtmal schneller abfällt als der  $n_e(t)$ -Abfall. Im Gegensatz dazu sollte laut „Global Model“ der  $T_e(t)$ -Abfall proportional zu  $t^{-2}$  und der  $n_e(t)$ -Abfall proportional zu  $t^{-1/2}$  sein. In anderen Punkten wie der Existenz eines pulsfrequenzabhängigen  $\bar{n}_e$ -Maximums, der tastverhältnisabhängigen Höhe des  $\bar{n}_e$ -Maximums sowie der in der Zündphase instantan ansteigenden Elektronentemperatur stimmen die Meßergebnisse mit den Vorhersagen des „Global Model“ sehr gut überein.

Die gute qualitative Übereinstimmung wirft die Frage auf, inwiefern und unter welchen Voraussetzungen sich der Ansatz des „Global Model“ modifizieren läßt, um auch quantitative Aussagen über das Pulsverhalten der inneren Plasmamaparameter Elektronendichte  $n_e(t)$  und die Elektronentemperatur  $kT_e(t)$  in großvolumigen mikrowellenangeregten Plasmen zu gewinnen.

#### 6.1 Stoßbestimmte diffusive Plasmen

Im Falle der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Plasmen ist es aufgrund des großen Volumens der Versuchsanlage (Quelle und Rezipient) sowie des untersuchten Druckbereiches  $5 \leq p \leq 50$  Pa nicht mehr möglich, von einem stoßfreien diffusiven Transportregime auszugehen, wie folgende Abschätzung zeigt:

Die Länge der Versuchsanordnung beträgt  $L \approx 60$  cm, der mittlere Radius  $R \approx 15,8$  cm (Abb. 4.9), die höchste im cw- oder Pulsbetrieb im Downstreambereich der Quelle gemessene Ionenenergie liegt bei ca.  $kT_e \approx 2$  eV (Abb. 5.21), die Ionenenergie bei  $T_i \approx 0,05$  eV. Der niedrigste Druck, bei dem die Elektronendichte  $n_e(t)$  und die Elektronentemperatur  $kT_e(t)$  bestimmt wurde,

beträgt 5 Pa (Abb. 5.11/Abb. 5.21). Für diesen Druck beträgt die mittlere freie Weglänge der Ionen  $\lambda_i \leq 0,2$  cm (Abb. 2.2). Für Drücke  $p \geq 5$  Pa ist für die untersuchte Mikrowellenplasmaanlage auf jeden Fall die Bedingung

$$\lambda_i < \begin{cases} R \frac{T_i}{T_e} (\approx 0.4 \text{ cm}) \\ L \frac{T_i}{T_e} (\approx 1.5 \text{ cm}) \end{cases} \quad (6.1)$$

für stoßbestimmte diffusive Plasmen erfüllt (Kapitel 2.2.4). In diesem Regime sind im Gegensatz zum stoßfreien Fall ( $\lambda_i > (R, L)$ ) die Stöße der Ladungsträger mit dem Hintergrundgas nicht mehr zu vernachlässigen. Bedingt durch die Stöße stellt sich radial ein steilerer Elektronendichteabfall  $n_e(r)$  ein als im stoßfreien Regime (Abb. 2.4). Dies bestätigen auch die im Anhang (Kapitel A.3) dargestellten orts aufgelösten Messungen des radialen und axialen Elektronendichteprofiles  $n_e(z, r)$  im cw-Betrieb der Quelle (Abb. A.5(a)-(b)). Der gemessene Elektronendichteverlauf innerhalb des Rezipienten (*Downstream-Zone*,  $z \geq 16$  cm, Abb. 4.9, Abb. A.5) läßt sich durch

$$n_e(r, z) = n_{ed} \exp\left(\frac{-z}{\Lambda}\right) J_0\left(2, 405 \frac{r}{r_p}\right) \quad (6.2)$$

mit  $n_{ed}$  als Elektronendichte am Anfang der *Downstream-Zone*,  $\Lambda$  als Diffusionslänge der Versuchsanlage (Kapitel 2.2.4),  $J_0$  als Besselfunktion erster Gattung nullter Ordnung und  $r_p$  als Plasmaradius, beschreiben. Das sich im *Downstream-Bereich* einstellende radiale Dichteprofil  $n_e(z \geq 16 \text{ cm}, r)$  zeigt sehr gute Übereinstimmung mit einer Besselfunktion (Abb. A.5b), der für stoßbestimmte diffusive Plasmen typischen radialen  $n_e$ -Verteilung in zylinderförmigen Entladungsgefäßen (Kapitel 2.2.4, Gl. 2.35). Nutzt man die in Kapitel 2.2.4 für ein überdichtetes Plasma in einer offenen Zylinderanordnung angegebene Beziehung (Gl. 2.35), so erhält man aus dem Elektronendichteprofil entlang der Längsachse eine effektive Diffusionslänge  $\Lambda_{eff} = 6$  cm (Abb. A.5(a)).

Um zu beurteilen, inwiefern sich der Ansatz des „Global Model“ gepulster stoßfreier Plasmen auch auf stoßbestimmte diffusive Plasmen anwenden läßt, muß man den Einfluß beider Transportregime auf die, das Pulsverhalten des Plasmas bestimmende, Verlustfrequenz betrachten.

## 6.2 Ladungsträgerverlustfrequenz in stoßbestimmten diffusiven Plasmen

Wie man den Gl. 2.56- Gl. 2.60 und den Abb. 2.10 und Abb. 2.11 in Kapitel 2.4.1 entnehmen kann, bestimmt im wesentlichen der Verlustfaktor  $\nu_{loss}$  das zeitabhängige Verhalten der Elektronendichte und Temperatur sowie das tastverhältnis- und frequenzabhängige  $\bar{n}_e$ -Maximum im Falle stoßfreier gepulster Plasmen. Im Gegensatz zu stoßfreien Plasmen ist für stoßbestimmte Plasmen (Kapitel 2.2.4) sowohl die Annahme einer homogenen ortsunabhängigen Ladungsträgerverteilung, als auch einer ortsunabhängigen Verlustfrequenz  $\nu_{loss}$  nicht mehr zulässig (Kapitel A.4, Gl. A.4.1ff.).

In stoßbestimmten diffusiven Plasmen erreicht die Verlustfrequenz erst direkt an der Randschicht den in stoßfreien Plasmen global geltenden Wert  $\nu_{loss} = u_B/\Lambda_{eff}$  (Kapitel 2.4.1/Kapitel A.4.1, Gl. A.4.7). Allerdings ist für den Fall einer offenen zylinderförmigen Entladungsstruktur der Verlustfaktor  $\nu_{loss}$  entlang der Längsachse der Entladung nur noch von der ambipolaren Diffusionskonstante und der effektiven Diffusionslänge abhängig:

$$\nu_{loss} = \frac{\bar{v}}{\Lambda_{eff}} = \frac{D_a}{\Lambda_{eff}^2}. \quad (6.3)$$

Für eine detaillierte Herleitung dieses Zusammenhanges sei auf den Anhang Kapitel A.4.1 verwiesen.

Aufgrund der umgekehrt proportionalen Abhängigkeit zum Quadrat der effektiven Diffusionslänge wird der Verlustfaktor in erster Linie bestimmt durch die Geometrie des Entladungsgefäßes. Je größer das Entladungsgefäß, desto niedriger wird die Verlustfrequenz und umgekehrt. Je niedriger die Verlustfrequenz, so die Aussage des „Global Model“, um so niedriger wird die Pulsfrequenz, bei der  $\bar{n}_e$  maximal wird (Abb. 2.11(a), Gl. 2.60). Die Abhängigkeit des Verlustfaktors von der die äußeren Plasmamparameter (Druck, Leistung) widerspiegelnden Diffusionskonstanten ist aufgrund des einfachen linearen Zusammenhangs schwächer ausgeprägt.

Eine weitere Voraussetzung der Anwendbarkeit des „Global Model“ gepulster Plasmen auf stoßbestimmte Plasmen ist die Bedingung, daß sich die relative ortsabhängige Dichteverteilung im Pulsbetrieb im Vergleich zum cw Betrieb nicht ändert. Diese Voraussetzung ist für die in dieser Arbeit untersuchten Quellegeometrie erfüllt, wie die im Anhang aufgeführten Messungen des zeitabhängigen Elektronendichteprofiles entlang der Längsachse zeigen (Abb. A.8). Ist die relative



Ladungsträgerverteilung bekannt, so läßt sich durch eine zeitabhängige Elektronendichtemessung auf der Längsachse der Entladung die orts- und zeitaufgelöste Ladungsträgerdichte  $n_e(r,z,t)$  bestimmen. Ist das Verhalten auf der Achse bekannt, so läßt sich aufgrund des bekannten Elektronendichteprofiles das Verhalten des Plasmas an jedem beliebigen Ort bestimmen. Messungen auf der Längsachse besitzen den weiteren Vorteil, unabhängig zu sein von inhomogenen  $E$ -Feldverteilungen, wie sie z.B. in der aktiven Zone von randbeheizten überdichten Mikrowellenplasmen auftreten. KORTSHAGEN et al. haben gezeigt, daß die sich auf der Längsachse einstellende  $EEVF$  in überdichten, randbeheizten Mikrowellenentladungen nahezu identisch ist mit der  $EEVF$  auf der Längsachse einer vergleichbaren Entladung mit radial homogener  $E$ -Feldverteilung (KORTSHAGEN et al 1993, 1994b). Somit eignen sich Messungen entlang der Längsachse (da sie generell unbeeinflusst sind von Randstörungen) besonders gut zur Bestimmung der globalen Entladungsparameter von Mikrowellenentladungen mit großem Durchmesser.

Unter Berücksichtigung der ortsabhängigen Ladungsträger- und Verlustfrequenzverteilung lassen sich die Methoden und Aussagen des „Global Model“ stoßfreier Plasmen auch auf gepulste stoßbestimmte diffusive Plasmen ausweiten. Durch Ermittlung des Verlustfaktors entlang der Längsachse der Entladung läßt sich das ortsabhängige und räumlich gemittelte Pulsverhalten der Elektronendichte  $n_e(t)$  und -temperatur  $kT_e(t)$  vorhersagen. Dies wird im folgenden am Beispiel der in Kapitel 5.2 und Kapitel 5.3 untersuchten  $n_e(t)$  und  $T_e(t)$ -Verläufe für ein mit 200 Hz gepulstes 5 Pa Argonplasma gezeigt (Abb. 5.11(c) -Abb. 5.21(c)).

### 6.2.1 Bestimmung der Elektronenverlustfrequenz im stoßbestimmten diffusiven Regime

Die Ladungsträgerverlustfrequenz läßt sich im cw Fall, bzw. dem stationären Zustand einer gepulsten Entladung durch Messung der Elektronentemperatur  $T_{e,cw}$  bzw.  $T_{e\infty}$  ermitteln. Die zeitabhängige Ionisationsfrequenz ist für eine maxwellverteilte  $EEVF$  typischerweise eine Funktion der Elektronentemperatur in der Form

$$v_{iz}(T_e(t)) \propto T_e^b \exp\left(\frac{-W_{iz}}{kT_e(t)}\right) n_n \quad (6.4)$$

mit  $b$  als konstantem Parameter,  $n_n$  als Neutralteilchendichte und  $W_{iz}$  als Ionisationsenergie in eV (Gl. 2.22, Kapitel 2.2.2). Im stationären Fall einer gepulsten Entladung, bzw. im cw Fall, gilt das globale Partikelgleichgewicht  $v_{iz} = v_{loss}$  (Gl. A.4.10ff., Kapitel A.4.1).

Bei bekannter Elektronentemperatur ( $T_{e,cw}$ ,  $T_{e\infty}$ ) läßt sich somit beispielsweise für Argon die Verlustfrequenz aus der Beziehung

$$v_{loss} = v_{iz} \approx 2,3 \times 10^{-14} (kT_e)^{0,68} \exp\left(\frac{-15,76}{kT_e}\right) n_n \text{ [1/s]} \quad (6.5)$$

mit  $n_n$  in  $\text{m}^{-3}$  ermitteln (Gl. 2.22, Kapitel 2.2.2).

Für die in Abb. 6.1(a)-(b) dargestellten Elektronentemperaturverläufe beträgt sowohl im stationären Zustand der gepulsten Entladung als auch im äquivalenten cw-Fall die Elektronentemperatur an der Sondenmeßposition  $z=31$  cm  $T_{e\infty} = T_{e,cw} \approx 1,7$  eV. Für diesen  $T_e$ -Wert ergibt sich aus Gl. 6.5 eine stationäre Ladungsträgerverlustfrequenz  $v_{loss} = 1660 \text{ s}^{-1}$  für ein Argonplasma mit einem Druck von 5 Pa.

Die zeitabhängige Diffusion der Elektronendichte erhält man im Fall der stoßbestimmten Diffusion aus der Diffusionsgleichung

$$\frac{\partial n_e(t)}{\partial t} = \nabla^2(D_a n_e(t)) + n_e(t)v_{iz} \quad (6.6)$$

mit  $D_a$  als ambipolarer Diffusionskonstante und  $v_{iz}$  als Ionisationsfrequenz. Die ambipolare Diffusionskonstante erhält man aus der gemessenen Abfallszeit der Elektronendichte  $\tau_{d,ne}$ . Nach Abschalten des Mikrowellenleistungspulses ( $v_{iz} = 0$ ) und unter Vernachlässigung höherer Diffusionsmoden erhält man aus Gl. 6.6 den Abfall der Elektronendichte  $n_e(t)$  in einem stoßbestimmten diffusiven Plasma

$$n_e(t) = n_{e0} \exp\left(-\frac{t-t_{off}}{\tau_{d,ne}}\right) = n_{e0} \exp\left(-(t-t_{off})\frac{D_a}{\Lambda_{eff}^2}\right) \quad (6.7)$$

mit  $\tau_{d,ne}$  als exponentielle Abfallszeit der Diffusionsgrundwelle

$$\tau_{d,ne} = \frac{\Lambda_{eff}^2}{D_a} = \frac{1}{v_{loss}} \quad (6.8)$$

(MCDANIEL und MASON, 1972, WIESEMANN, 1976).

Für die aus dem Partikelgleichgewicht bestimmte Verlustfrequenz von  $v_{loss} = 1660 \text{ s}^{-1}$  ergibt sich eine Abfallzeit der Elektronendichte von  $\tau_{d,ne} = 602 \text{ } \mu\text{s}$ . Dieser theoretisch zu erwartende exponentielle Elektronendichteabfall stimmt, wie Abb. 6.2 zeigt, sehr gut mit dem experimentell bestimmten Elektronendichteverlauf überein (Abb. 5.11(a)-(c)).

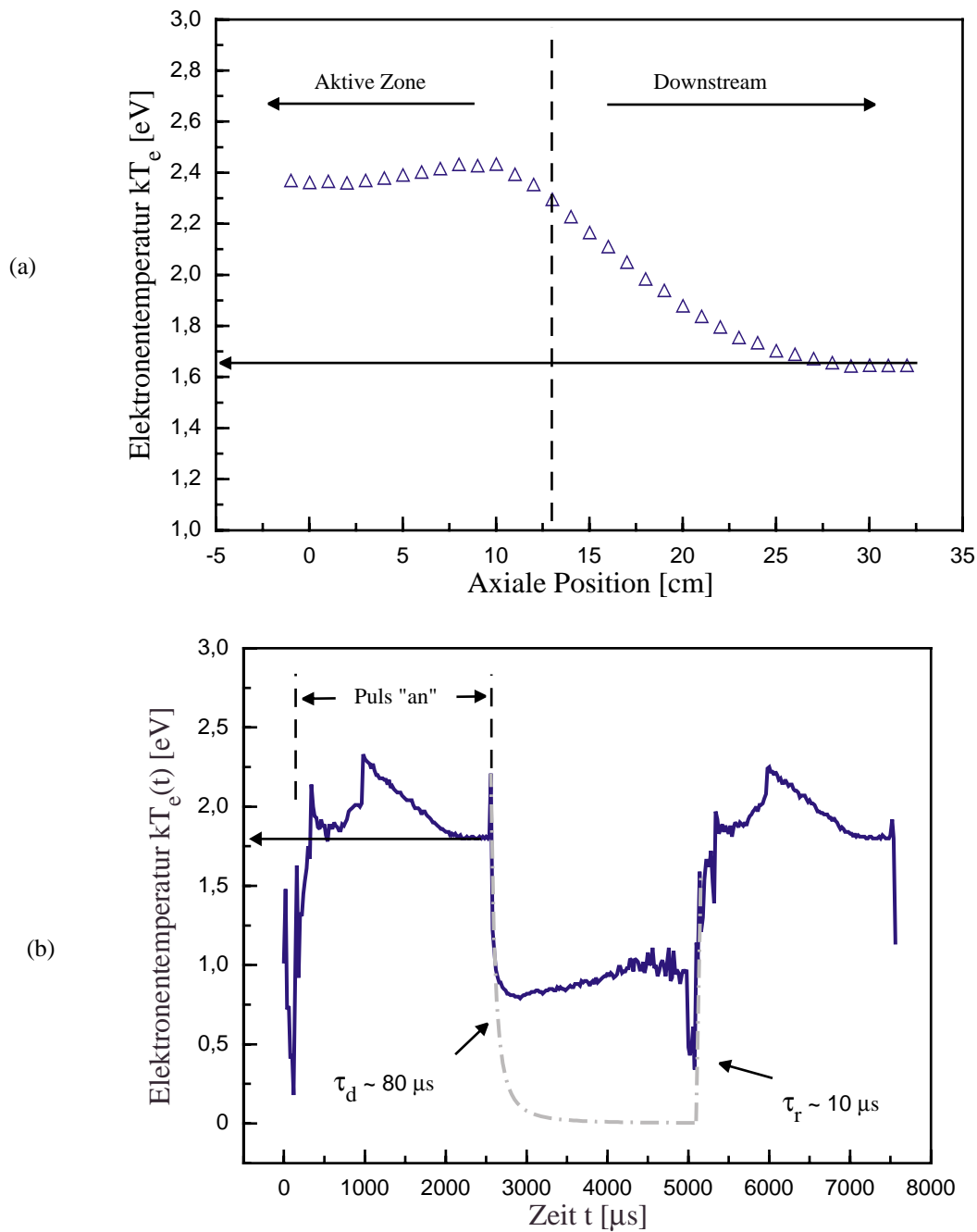


Abbildung 6.1: Vergleich zwischen der gemessenen Elektronentemperatur im eingeschwungenen Zustand einer gepulsten Entladung und im äquivalenten cw-Fall.

(a) Axialer Verlauf der Elektronentemperatur im cw-Fall.

$p = 5 \text{ Pa}$ ,  $P_{MW} = 1 \text{ kW}$ , Sondenpos.:  $r = 0 \text{ cm}$ .

(b) Zeitlicher Verlauf der Elektronentemperatur  $kT_e(t)$  in einem gepulsten Argonplasma.

Tastverhältnis 50%, Pulsfrequenz: 200 Hz,  $p = 5 \text{ Pa}$ ,  $\bar{P}_{MW} = 1 \text{ kW}$ , Sondenpos.:  $r = 0 \text{ cm}$ ,  $z = 31 \text{ cm}$  downstream.

Ebenso wie das zeitabhängige Verhalten der atomaren Sauerstoffdichte in gepulsten großvolumigen Plasmen (Kapitel 5.4.1) wird das zeitabhängige Verhalten der Elektronendichte bestimmt durch die Verluste an der Kammerwand. Die Verlustfrequenz  $\nu_{loss}$  lässt sich demnach auch aus dem Elektronendichteabfall eines gepulsten Plasmas bestimmen. Ist die effektive Diffusionslänge  $\Lambda_{eff}$  der Versuchsanlage bekannt, so lässt sich zusätzlich die ambipolare Diffusionskonstante  $D_a$  aus der Verlustfrequenz bzw. der Abfallszeit ermitteln.

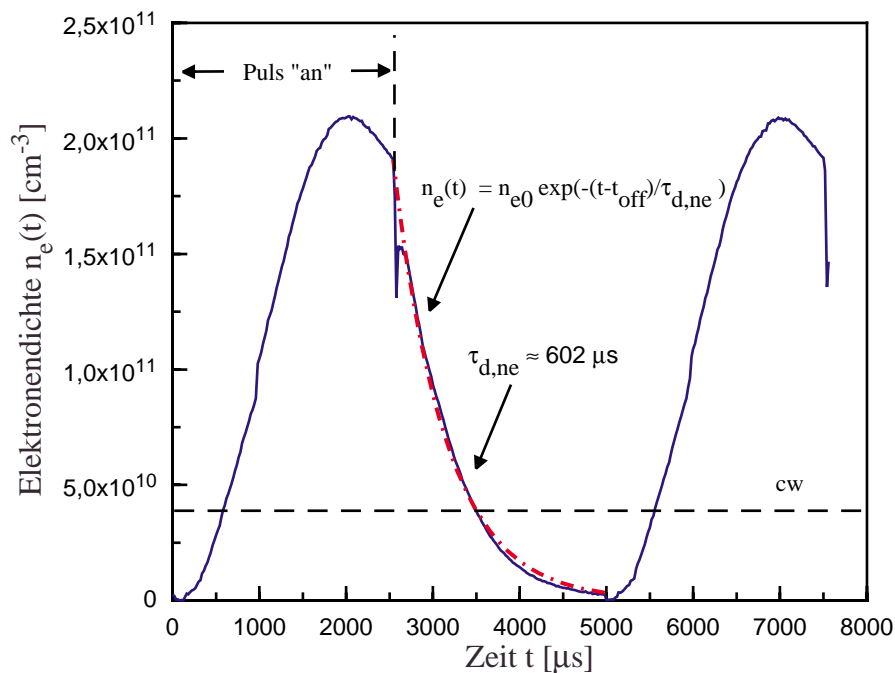


Abbildung 6.2: Zeitlicher Elektronendichteverlauf  $n_e(t)$  in einem mit 200 Hz gepulsten Argonplasma. Tastverhältnis: 50%,  $p = 5$  Pa,  $\bar{P}_{MW} = 1$  kW, Sondenposition:  $r = 0$  cm,  $z = 31$  cm (downstream).

### 6.2.2 Bestimmung der ambipolaren Diffusionskonstanten aus dem zeitlichen Abfall der Elektronendichte

Für einen Druck von  $p = 5$  Pa beträgt die effektive Diffusionslänge der in dieser Arbeit untersuchten Plasmaanlage  $\Lambda_{eff} = 6$  cm (Abb. A.5). Zusammen mit der Verlustfrequenz von  $\nu_{loss} = 1660$  s<sup>-1</sup>, bzw. des zeitlichen Elektronendichteabfalls von  $\tau_{d,ne} = 602$  μs ergibt Gl. 6.8 für ein Argonplasma mit  $p = 5$  Pa und einer mittleren Pulsleistung von  $\bar{P}_{MW} = 1$  kW eine ambipolare Diffusionskonstante von  $D_a = 6$  m<sup>2</sup>/s.

Kombiniert man die in Kapitel 2.2.4 hergeleitete Abschätzung für die ambipolare Diffusions-

konstante  $D_a$  (Gl. 2.34) mit Gl. 2.30, so läßt sich die Diffusionskonstante in grober Näherung auch durch den Ausdruck

$$D_a \approx \frac{\pi}{8} \lambda_i \bar{v}_i \left( 1 + \frac{T_e}{T_i} \right) \quad (6.9)$$

abschätzen. Hierbei ist  $\bar{v}_i$  die mittlere thermische Geschwindigkeit der Argonionen (Gl. 2.12, Kapitel 2.2.1). Für ein Argonplasma mit einem Druck von 5 Pa einer Iontemperatur  $kT_i \approx 0,05$  eV mit einer mittleren freien Weglänge der Ionen  $\lambda_i \approx 1-2$  mm (Abb. 2.2) und einer Elektronenenergie von  $kT_e \approx 1,7$  eV, (Abb. 6.1(a)-(b)) ergibt die Abschätzung durch Gl. 6.9 eine ambipolare Diffusionskonstante von  $D_a \approx 8$  m<sup>2</sup>/s. Dieser Wert stimmt gut mit dem aus dem  $n_e(t)$ -Abfall bestimmten Wert der Diffusionskonstanten überein.

### 6.3 Bestimmung der frequenzabhängigen mittleren Elektronendichte

Ist die Elektronenverlustfrequenz bekannt, so läßt sich Gl. 2.60 nutzen, um die zeitlich gemittelte Elektronendichte  $\bar{n}_e$  als Funktion der Pulsfrequenz und des Tastverhältnisses zu berechnen. Mit der vorangehend bestimmten Verlustfrequenz von  $\nu_{loss} = 1660$  s<sup>-1</sup> und einem Tastverhältnis von 50% ergibt sich aus Gl. 2.60 ein  $\bar{n}_e$ -Maximum bei einer Frequenz von 200 Hz. Dieses Resultat stimmt sehr gut mit den im vorangegangenen Kapitel dargestellten experimentellen Ergebnissen überein (Abb. 5.11(a)-(c)/Abb. 5.16). Der durch Gl. 2.60 bestimmte frequenzabhängige  $\bar{n}_e$ -Verlauf ist in Abb. 6.3 für drei unterschiedliche Tastverhältnisse dargestellt. Das frequenzabhängige  $\bar{n}_e$ -Maximum erhält man je nach Tastverhältnis für eine Pulsfrequenz zwischen 100 Hz und 250 Hz.

Mit abnehmendem Tastverhältnis verschiebt sich das  $\bar{n}_e$ -Maximum -wie auch in den Messungen beobachtet (Abb. 5.15/Abb. 5.16)- geringfügig zu kleineren Pulsfrequenzen hin. Das  $\bar{n}_e$ -Maximum nimmt, im Einklang mit den experimentellen Ergebnissen, mit abnehmendem Tastverhältnis zu.

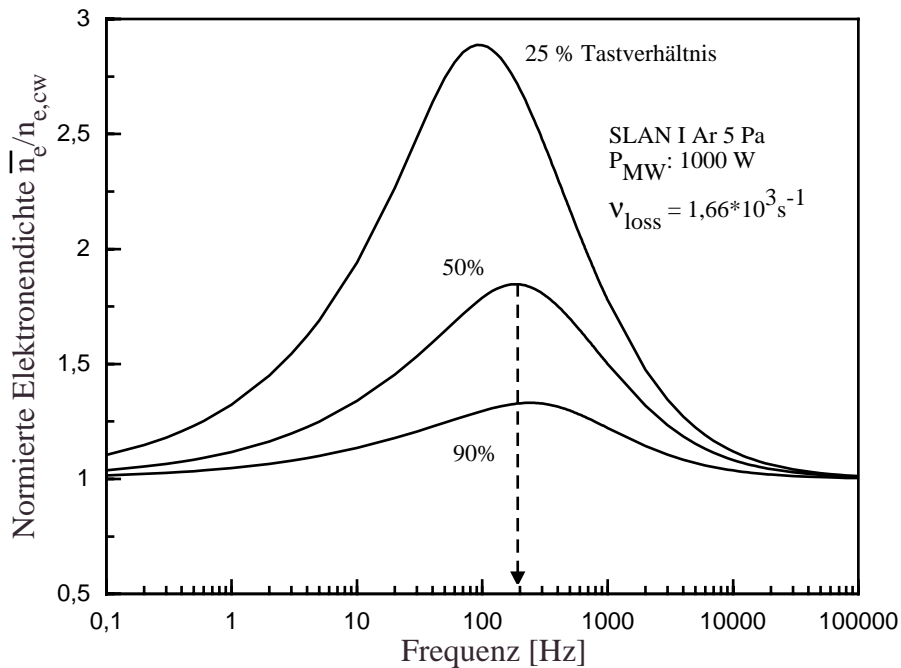


Abbildung 6.3: Normierte zeitlich gemittelte Elektronendichte in Abhängigkeit von Pulsfrequenz und Tastverhältnis nach Gl. 2.60. Verlustfaktor  $\nu_{loss} = 1660 \text{ s}^{-1}$ .

Obwohl die zeitlich gemittelte Elektronendichte als Funktion der Pulsfrequenz und des Tastverhältnisses durch das auf stoßbestimmte Plasmen erweiterte „Global Model“ korrekt beschrieben wird, sind die gemessenen  $\bar{n}_e$ -Werte um das drei bis 10 fache höher (Abb. 6.4 /Abb. 5.16) als die durch Gl. 2.60 bestimmten und in Abb. 6.3/Abb. 6.5 dargestellten theoretischen Werte. Dieser Effekt wurde ebenfalls von ASHIDA et al., 1996 für stoßfreie Plasmen beobachtet. Einer der Gründe für die Diskrepanz liegt in der in Gl. 2.60 nicht berücksichtigten ortsabhängigen Elektronendichteverteilung. Gl. 2.60 liefert die räumlich gemittelten  $\bar{n}_e$ -Werte, während die in Kapitel 5.2.1 und Kapitel 5.2.2 aufgeführten Sondenmessungen die ortsaufgelöste Elektronendichte entlang der Längsachse der Entladung zeigen. Dort ist, wie die in Kapitel A.3 dargestellten radialen Elektronendichteprofile zeigen (Abb. A.5(b)/Abb. A.7), die Elektronendichte maximal.

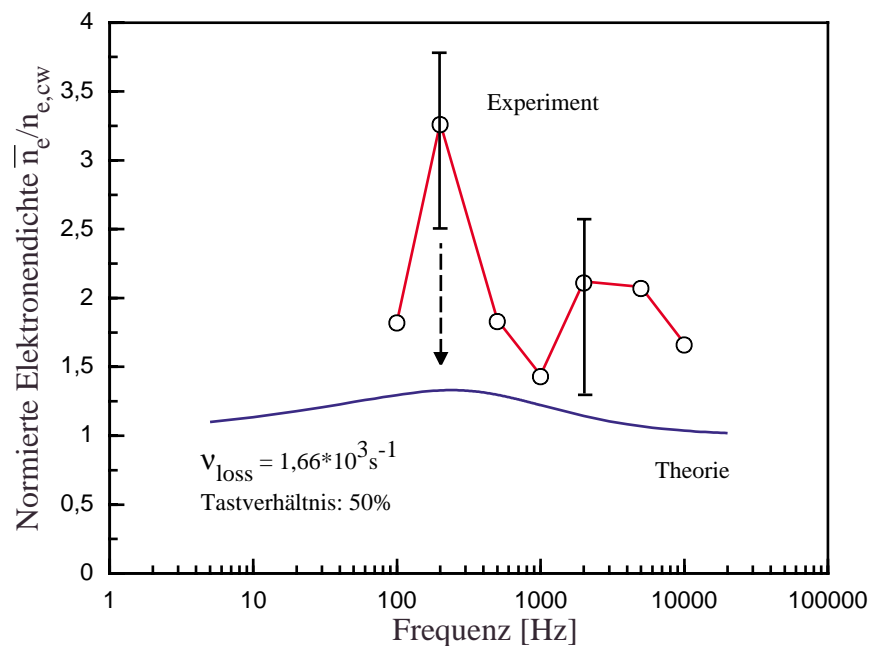


Abbildung 6.4: Vergleich zwischen der experimentell und theoretisch bestimmten pulsfrequenzabhängigen normierten zeitlich gemittelten Elektronendichte. Die experimentell bestimmte Kurve zeigt den  $\bar{n}_e$ -Verlauf normiert auf die gleiche mittlere absorbierte Mikrowellenleistung  $\bar{P}_{abs} = P_{abs,cw}$ . Gleiche Parameter wie für Abb. 6.2 und Abb. 5.11.

Die mit zunehmendem Entladungsdruck experimentell beobachtete Verschiebung des  $\bar{n}_e$ -Maximums hin zu niedrigeren Frequenzen (Abb. 5.11/Abb. 5.12/Abb. 5.15) lässt sich durch eine Abnahme der Verlustfrequenz erklären (Abb. 6.5). Zunehmender Druck, bzw. abnehmende mittlere Pulsleistung, führt aufgrund der abnehmenden mittleren freien Weglänge der Ionen  $\lambda_i$ , bzw. der abnehmenden Elektronentemperatur  $kT_e$ , zu einer Verringerung der ambipolaren Diffusionskonstanten  $D_a$  (Gl. 6.9). Mit abnehmendem  $D_a$  reduziert sich die Verlustfrequenz  $\nu_{loss}$  und das  $\bar{n}_e$ -Maximum verschiebt sich zu niedrigeren Pulsfrequenzen. Dies ist die Ursache für die experimentell beobachtete Verschiebung des  $\bar{n}_e$ -Maximum von  $f = 200$  Hz bei einem Entladungsdruck von 5 Pa auf ein Viertel des Pulsfrequenzwertes  $f = 50$  Hz (Abb. 5.16) bei einer Erhöhung des Druckes von 5 Pa auf 20 Pa. Aufgrund der umgekehrt quadratischen Abhängigkeit (Gl. 6.8) der Verlustfrequenz  $\nu_{loss}$  von der effektiven Diffusionslänge  $\Lambda_{eff}$  bestimmt im wesentlichen die Anlagengeometrie die Größenordnung der Frequenz, bei der die  $n_e(t)$ -Amplitude und  $\bar{n}_e$  maximal werden. Variationen der äußeren Plasmaparameter Druck und Leistung führen hingegen nur zu geringfügigen Verschiebungen des frequenzabhängigen  $\bar{n}_e$ -Maximums innerhalb des durch die Anlagengeometrie determinierten Frequenzbereiches.

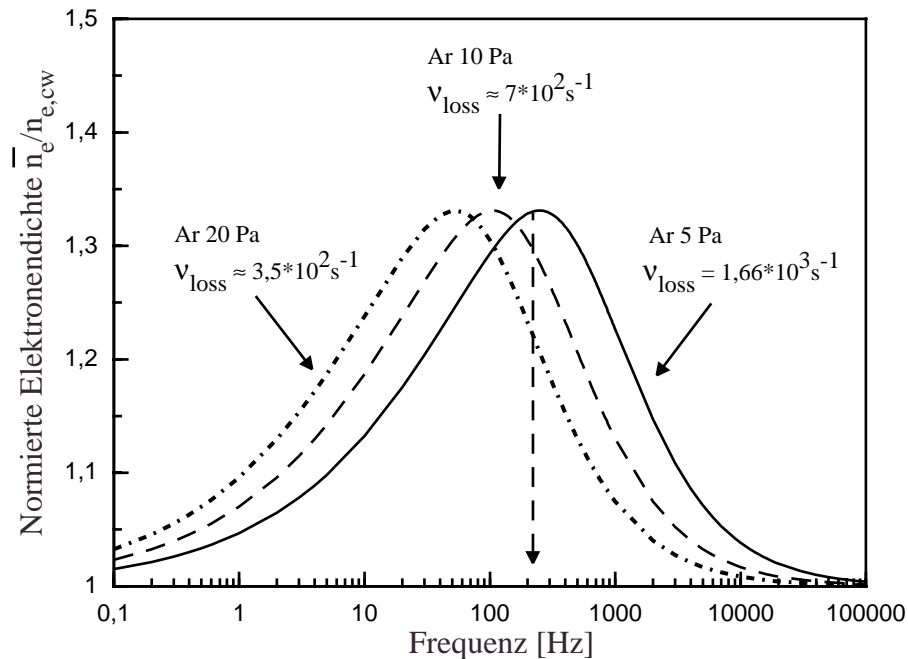


Abbildung 6.5: Pulsfrequenz- und Elektronenverlustfrequenzabhängige normierte zeitlich gemittelte Elektronendichte nach Gl. 2.60. Tastverhältnis 50%.

Wie die vorangegangenen Betrachtungen zeigen, läßt sich das Pulsverhalten der Elektronendichte auch für stoßbestimmte diffusive Plasmen mit den Ansätzen des „Global Model“ nicht nur qualitativ, sondern auch quantitativ recht gut beschreiben. Ebenso wie für stoßfreie Plasmen bestimmt auch die Verlustfrequenz  $\nu_{loss}$  das frequenz- und tastverhältnisabhängige Pulsverhalten der Elektronendichte. Entlang der Längsachse der Plasmaanlage läßt sich die Verlustfrequenz durch eine einzige Messung entweder des Elektronendichteabfalls in der Puls-, „aus“ Phase oder der Elektronentemperatur im äquivalenten cw-Betrieb in der Gleichgewichtsphase des gepulsten Plasmas bestimmen. Ist die Verlustfrequenz bekannt, so läßt sich das Pulsverhalten der Elektronendichte der untersuchten Anlage durch Gl. 2.60 vorhersagen. Die schnelle und einfache Bestimmung der Verlustfrequenz ermöglicht dem Prozeßentwickler, für eine vorhandene Anlage ohne großen Aufwand die optimale Pulsfrequenz/Tastverhältniskombination für seinen Prozeß zu ermitteln.

In Tabelle 6.1 ist eine zusammenfassende Übersicht über den Einfluß von Anlagengeometrie und Druck auf die Höhe der Elektronenverlustfrequenz und das pulsfrequenzabhängige Maximum der mittleren Elektronendichte angegeben.



Quellenvolumen	$\Lambda$	$v_{loss} = D_a / \Lambda_{eff}^2$	$\bar{n}_{e,max}$
Groß	Hoch	Niedrig	Niedrige Pulsfrequenz
Klein	Niedrig	Hoch	Hohe Pulsfrequenz

Druck	$D_a$	$v_{loss} = D_a / \Lambda_{eff}^2$	$\bar{n}_{e,max}$
Hoch	Niedrig	Niedrig	Niedrige Pulsfrequenz
Niedrig	Hoch	Hoch	Hohe Pulsfrequenz

Tabelle 6.1: Einfluß von Geometrie und Druck auf die Höhe der Elektronenverlustfrequenz und das frequenzabhängige Maximum der mittleren Elektronendichte.

### 6.3.1 Bestimmung des frequenzabhängigen mittleren Elektronendichte in gepulsten molekularen Plasmen

Die dem „Global Model“ zugrundeliegenden Energie- und Partikelbilanzgleichungen (Kapitel 2.4.1, Gl. 2.49-Gl. 2.51) werden bei der Betrachtung von molekularen und im Falle von Sauerstoff oder Chlor auch elektronegativen Gasen wesentlich komplizierter als für Argon. Zur Bestimmung des Verhaltens der Ladungsträger in molekularen Gasen und zur Bestimmung der Verlustfrequenz aus der Elektronentemperatur müssen zusätzliche Erzeugungs- und Verlustmechanismen von Dissoziationsfragmenten, molekularer und atomarer Ionen, Ladungsaustauschstöße und speziell in elektronegativen Gasen, wie dem in Kapitel 5.4.1 untersuchten Sauerstoff, die Bildung von negativen Ionen berücksichtigt werden.

Die Vielzahl von Reaktionsprozessen in gepulsten Sauerstoffplasmen führt, wie die Elektronendichtemessungen zeigen (Abb. 5.17(a)-(e)), zu einem etwas langsameren Elektronendichteanstieg und einem etwas schnelleren Elektronendichteabfall als in den untersuchten Argonplasmen (Abb. 5.11/Abb. 5.12). Aus diesem Grund ist auch die zeitliche gemittelte Elektronendichte niedriger als in den untersuchten Argonplasmen. Die pulsfrequenzabhängige zeitlich Elektronendichte weist jedoch eine gute Übereinstimmung mit dem „Global Model“ stoßbestimmter Plasmen auf (Abb. 5.17).

## 6.4 Bestimmung des zeitabhängigen Elektronentemperaturverlaufs

Wie die Elektronentemperaturmessungen  $kT_e(t)$  und Emissionsintensitätsmessungen  $I(t)$  in Kapitel 5.1.1ff. und Kapitel 5.3.1 ff. zeigen, ist die Anstiegszeit  $\tau_{r,Te}$  der Elektronentemperatur von Druck, Gasart und Pulsfrequenz unabhängig und beträgt für den in dieser Arbeit untersuchten Parameterbereich wenige  $\mu\text{s}$ . Wie auch für stoßfreie Plasmen korreliert der Elektronentemperaturanstieg mit der Anstiegszeit der im Plasma absorbierten Leistung  $p_{abs}(t)$  bzw. der Anstiegszeit der Mikrowellenleistung.

Im Gegensatz dazu ist die Abfallzeit der Elektronentemperatur in der Afterglowphase  $\tau_{d,Te}$ , nicht unabhängig vom Verlustfaktor  $\nu_{loss}$ . Wie die Messungen zeigen, fällt die Elektronentemperatur in stoßbestimmten Argonplasmen acht- bis zehnmal schneller ab als die Elektronendichte. Dies ist doppelt so schnell wie vom „Global Model“ für stoßfreie Argonplasmen theoretisch vorhergesagt. Darüber hinaus ist der gemessene Elektronentemperaturabfall in stoßbestimmten Plasmen eher exponentiell als der für stoßfreie Plasmen angegebene  $1/t^2$ -Abfall. Den  $kT_e(t)$ -Abfall erhält man aus Gl. 2.57 in Kombination mit Gl. 6.8 und Gl. 6.9:

$$\frac{1}{T_e} \frac{dT_e}{dt} = -\frac{2}{3} \left( \ln \left( \sqrt{\frac{M_i}{2\pi m_e}} \right) - 1 \right) \frac{D_i}{\Lambda_{eff}^2} \left( 1 + \frac{T_e}{T_i} \right). \quad (6.10)$$

Die Lösung der obigen Energiebilanzgleichung ergibt einen Abfall der Elektronentemperatur in der Afterglowphase stoßbestimmter diffusiver Plasmen der Form

$$T_e(t) = \frac{T_i}{\left( 1 + \frac{T_i}{T_{e,\infty}} \right) \exp(C(t - t_{off})) - 1}. \quad (6.11)$$

Hierbei ist  $T_{e,\infty}$  die Elektronentemperatur zum Zeitpunkt des Abschaltens des MW-Leistungspulses und  $C$  der Ausdruck

$$C = \frac{2}{3} \left( \ln \left( \sqrt{\frac{M_i}{2\pi m_e}} \right) - 1 \right) \frac{D_i}{\Lambda_{eff}^2}. \quad (6.12)$$

Der durch Gl. 6.11 beschriebene Temperaturverlauf in der Afterglowphase fällt zwar zu Beginn etwas schneller ab als der in Gl. 2.57 prognostizierte  $1/t^2$ -Abfall, ist aber mit einer Abfallzeit von  $\tau_{d,Te} = 200 \mu\text{s}$  (Argon  $p = 5 \text{ Pa}$ ,  $kT_{e,\infty} = 1,6 \text{ eV}$ ,  $kT_i = 0,05 \text{ eV}$ ,  $D_i = 0,25 \text{ m}^2/\text{s}$  und  $\Lambda_{eff} = 6 \text{ cm}$ );

noch viel zu langsam, um den beobachteten Temperaturabfall erklären zu können. Eine mögliche Ursache hierfür ist, daß  $T_i$  in der Afterglowphase nicht als zeitunabhängig angenommen werden kann, sondern ebenfalls mit der Zeit abfällt. Für eine niedrigere Ionentemperatur von  $kT_i = 0,024\text{eV}(273\text{K})$  verringert sich nach Gl. 6.11 die Abfallzeit auf  $\tau_{d,T_e} \approx 120\ \mu\text{s}$ , dem anderthalbfachen der maximal gemessenen  $T_e(t)$ -Abfallzeit.

Ein weiterer Grund für die zu hohe Abfallzeit liegt darin, daß zur Lösung der Gl. 6.10 bislang ausschließlich die Elektronenenergieverluste an der Kammerwand berücksichtigt wurden. Energieverluste durch Ionisation, Anregungs- und Ladungsaustauschstöße der Elektronen während der Afterglowphase wurden vernachlässigt. Berücksichtigt man z.B. die Ionisationsverluste in Gl. 6.10, so erweitert sich der Ausdruck für die Energiebilanz im Afterglow auf

$$\frac{1}{T_e} \frac{dT_e}{dt} = -\left(\frac{2\varepsilon_c}{3T_e} + 1\right)v_{iz} - C\left(1 + \frac{T_e}{T_i}\right) \quad (6.13)$$

mit  $\varepsilon_c$  als Energieverlust pro erzeugtem Elektron-Ionenpaar (Abb. 2.9) und  $v_{iz}$  als elektronentemperaturabhängige Ionisationsfrequenz (Gl. 6.5). Löst man Gl. 6.13 numerisch unter Berücksichtigung der Temperaturabhängigkeit von  $\varepsilon_c$ , so reduziert sich die exponentielle Abfallzeit der Elektronentemperatur auf  $\tau_{d,T_e} \approx 100\ \mu\text{s}$ . Wie die obige Abschätzung zeigt, sind in stoßbestimmten Plasmen zumindest für Elektronenenergien zwischen 1 und 2 eV die Energieverluste verursacht durch unelastische Stoßprozesse in der gleichen Größenordnung wie die Wandverluste und können aus diesem Grund nicht vernachlässigt werden. Unterhalb von  $kT_e(t) = 1\ \text{eV}$  dominieren die Energieverluste an der Wand den  $T_e(t)$ -Abfall.

## 6.5 Frequenzabhängiger Dichteverlauf neutraler Radikale am Beispiel des atomaren Sauerstoffs

Analog zur Bestimmung des zeitabhängigen Dichteverlaufs der Elektronen läßt sich bei der Bestimmung des Pulsverhaltens neutraler Sauerstoffatome vorgehen. Aus der Gleichung für das Partikelgleichgewicht des atomaren Sauerstoffs (Gl. 2.50, Kapitel 2.4.1)

$$\frac{dn_o}{dt} = 2K_{diss}n_en_{o_2} - v_on_o \quad (6.14)$$

erhält man analog dem von LIEBERMAN und ASHIDA, 1996 gezeigten Vorgehen für Chlor die Gleichungen für den Anstieg und Abfall der atomaren Sauerstoffdichte  $n_o(t)$  in einem gepulsten Sauerstoffplasma.

Für den Anstieg der atomaren Sauerstoffdichte erhält man

$$t_{on} < t < t_{off} \quad n_o(t) \approx n_{o\infty} - (n_{o\infty} - n_{omin}) \exp(-v_{diss}(t)t), \quad (6.15)$$

mit  $v_{diss}(t) = K_{diss}(t)n_e(t) + v_{loss}$  und  $K_{diss}(t)$ , gegeben durch die Summe der Ratenkonstanten für die beiden wesentlichen Dissoziationskanäle des molekularen Sauerstoffs

$$(1) \text{ O}_2 + e \rightarrow \text{O}(^3\text{P}) + \text{O}(^1\text{D}) + e: \quad K_{diss,1} \approx 5 \times 10^{-14} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1} \exp\left(-\frac{8,4 \text{ eV}}{kT_e(t)}\right) \quad (6.16)$$

$$(2) \text{ O}_2 + e \rightarrow \text{O}(^3\text{P}) + \text{O}(^3\text{P}) + e: \quad K_{diss,2} \approx 4,23 \times 10^{-14} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1} \exp\left(-\frac{5,56 \text{ eV}}{kT_e(t)}\right) \quad (6.17)$$

(LEE und LIEBERMAN, 1995).

Der Abfall der atomaren Sauerstoffdichte in der Pulspause wird durch die Verlustprozesse dominiert und es ergibt sich

$$t_{off} < t < T \quad n_o(t) \approx n_o \exp(-[t - t_{off}]v_o) \quad (6.18)$$

und  $v_o$  als Verlustfrequenz des atomaren Sauerstoffs bestimmt durch die Wandrekombinationsverluste

$$\tau_{d,no} = \frac{\Lambda^2}{D_o} = \frac{1}{v_o} \quad (6.19)$$

mit  $\Lambda$  als Diffusionslänge, gegeben durch die Anlagengeometrie (Kapitel 5.4.1).

Die Abfallzeit  $\tau_{d,no}$  für die atomare Sauerstoffdichte in einem mit 10 Hz gepulsten 50 Pa Sauerstoffplasma beträgt 20 ms (Abb. 5.24). Dies ergibt eine Verlustfrequenz  $\nu_o$  von  $\nu_o = 50 \text{ s}^{-1}$ . Die Produktionsfrequenz  $\nu_{diss}$  erhält man entweder aus den Ratengleichungen, die die Dissoziationskanäle des molekularen Sauerstoffs beschreiben (Gl. 6.16 u. Gl. 6.17), oder aus der  $n_o(t)$  Anstiegszeit.

Den frequenz- und tastverhältnisabhängigen Verlauf der zeitlich gemittelten Sauerstoffdichte erhält man aus der Integration von Gl. 6.15 und Gl. 6.18 über die Pulsperiode (LIEBERMAN und ASHIDA, 1996). Abhängig davon, ob das Produkt  $\nu_o t_{off}$  viel größer oder kleiner als eins ist, existieren zwei Pulsbereiche mit unterschiedlichem  $n_o(t)$ -Verhalten in gepulsten Plasmen.

Im ersten Bereich für  $\nu_o t_{off} \ll 1$  erhält man die mittlere atomare Sauerstoffdichte  $\bar{n}_o$  aus

$$\bar{n}_o = \frac{2K_{diss}n_{e\infty}}{2K_{diss}n_{e\infty} + \nu_o} n_{o_2} \quad (6.20)$$

mit  $n_{e\infty}$  als Elektronendichte während der Gleichgewichtsphase und  $K_{diss}$ , ermittelt aus der Summe von Gl. 6.16 und Gl. 6.17.

In diesem Fall wird  $n_o(t)$ -Verlauf gar nicht oder nur noch schwach durch den Mikrowellenleistungspuls moduliert. Der zeitliche Verlauf der  $n_o(t)$ -Dichte bleibt, wie auch die zeitaufgelöste LIF-Messung in Abb. 5.24(b) (Kapitel 5.4.1) bestätigt, konstant über die gesamte MW-Pulsperiode hinweg. In diesem Bereich wird laut Gl. 6.20 die  $\bar{n}_o$ -Dichte nur noch durch die mittlere Elektronendichte bestimmt und ist unabhängig vom Tastverhältnis  $t_{on}/T$ . Dies beinhaltet als interessante Konsequenz, daß sich für einen Bruchteil der mittleren Mikrowellenleistung dieselbe atomare Sauerstoffkonzentration im Pulsbetrieb erzeugen lassen müßte wie im äquivalenten cw-Fall (LIEBERMAN und ASHIDA, 1996). Für den in Abb. 5.24(b) dargestellten atomaren Sauerstoff- und Elektronendichteverlauf bei einer MW-Pulsfrequenz von 200 Hz ergibt Gl. 6.20 für eine Elektronentemperatur von  $kT_e \approx 1,6 \text{ eV}$  (Abb. 5.23) und  $n_{e\infty} \approx 2,7 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$  (Abb. 5.24(b)) einen  $\bar{n}_o$ -Dichtewert von  $\approx 4,1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ . Dies ist in guter Übereinstimmung mit der in Abb. 5.24(b) dargestellten experimentell ermittelten atomaren Sauerstoffdichte  $n_o(t) \approx 4,3 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ .

Das zeitliche Verhalten der atomaren Sauerstoffdichte ändert sich, wenn die Bedingung  $\nu_o t_{off} \gg 1$  erfüllt ist. Für MW-Pulsfrequenzen oder Tastverhältnisse in diesem Bereich folgt die  $n_o(t)$ -Dichte dem zeitlichen Verlauf der Elektronendichte  $n_e(t)$  und die mittlere atomare Sauer-

stoffdichte  $\bar{n}_o$  läßt sich durch die Gleichung

$$\bar{n}_o = \frac{2K_{diss}n_{e,cw}}{2K_{diss}n_{e,cw}\left(1 + \frac{T}{t_{on}}\right) + v_o} n_{o_2} \quad (6.21)$$

ermitteln. Die Abhängigkeit der atomaren Sauerstoffdichte von Pulsfrequenz und Tastverhältnis sowie vom zeitlichen Verlauf der  $n_e(t)$ -Dichte ist zusammengefaßt in Tabelle 6.2 dargestellt.

	Pulsregime 1	Pulsregime 2	Pulsregime 3	Pulsregime 4
	$v_{loss} * T \ll 1$	$v_{loss} * T = 1$	$v_{loss} * T \gg 1$	$v_{loss} * T \gg 1$
	$v_{rise} * t_{on} / T \ll 1$	$v_{rise} * t_{on} / T \ll 1$	$v_{rise} * t_{on} / T \gg 1$	$v_{rise} * t_{on} / T \gg 1$
	$v_o * t_{off} \ll 1$	$v_o * t_{off} \ll 1$	$v_o * t_{off} \ll 1$	$v_o * t_{off} \gg 1$
$n_e(t)$	konstant	geringfügige Modulation	folgt dem MW-Leistungspuls	folgt dem MW-Leistungspuls
$n_o(t)$	konstant	konstant	konstant	abhängig vom Tastverhältnis $t_{on}/T$ und $n_{e,cw}$
$\frac{n_o(t)}{n_{o_2}(t) + n_o(t)}$	gleich dem cw-Fall	abhängig von $\bar{n}_e$	abhängig von der Elektronendichte $n_{e\infty}$	

Tabelle 6.2: Pulsregimeabhängiges Verhalten der Elektronendichte  $n_e(t)$  und der atomaren Sauerstoffdichte  $n_o(t)$ . Mit  $v_{loss}/v_{rise}$  als Verlust-, bzw. Produktionsfrequenz der Elektronendichte,  $v_o$  als Verlustfrequenz des atomaren Sauerstoffs,  $T$ : Pulsperiode,  $t_{on}$ : Pulsdauer und  $t_{off}$ : Pulspausendauer.

Für den in Abb. 5.24(a) gezeigten atomaren Sauerstoffdichteverlauf bei einer MW-Pulsfrequenz von 10 Hz ergibt sich für  $v_o t_{off}$  ein Wert von 0,25. Dieser Wert liegt im Übergangsbereich zwischen Regime 3 und 4. In diesem Bereich beginnt  $n_o(t)$  in der Zündphase dem  $n_e(t)$ -Verlauf zu folgen, aber aufgrund der im Vergleich zur Elektronenverlustfrequenz niedrigeren Verlustfrequenz des atomaren Sauerstoffs  $v_o \ll v_{loss}$  fällt die  $n_o(t)$ -Dichte in der *Afterglow*phase langsamer ab als die Elektronendichte. In diesem Bereich läßt sich die frequenz- und tastverhältnisabhängige  $\bar{n}_o$ -Dichte bislang nur durch numerische Integration der Gl. 6.15 und Gl. 6.18 oder experimentell ermitteln.

---

## Kapitel 7

### Schlußbetrachtung

#### 7.1 Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurde das zeit- und ortsabhängige Verhalten der für die meisten Pulsplasmaprozesse wesentlichen „inneren“ Plasmaparameter Elektronendichte, -temperatur und Radikalendichte am Beispiel leistungsmodulierter (gepulster) großvolumiger mikrowellenangeregter Argon- und Sauerstoffplasmen untersucht. Durch den kombinierten Einsatz der LANGMUIR-Sondentechnik, der Mikrowelleninterferometrie (MWI), der planaren optischen Emissionsspektroskopie (POES) und der laserinduzierten Fluoreszenz (LIF) ließ sich sowohl das Verhalten der inneren Plasmaparameter als auch die grundlegenden Mechanismen und Zusammenhänge in gepulsten Plasmen ermitteln. Wie gezeigt werden konnte, läßt sich das quantitative und qualitative Verhalten der Meßergebnisse gut mit dem in dieser Arbeit hergeleiteten Modell gepulster stoßbestimmter Plasmen beschreiben.

Die planare optische Emissionsspektroskopie (POES) wurde genutzt, um das orts- und zeit aufgelöste Verhalten der Emissionsintensität angeregter Argonatome und -ionen sowie atomaren Sauerstoffs innerhalb einer gepulsten großvolumigen Mikrowellenquelle vom Typ SLAN-I zu untersuchen. Aus den POES-Aufnahmen lassen sich Rückschlüsse über das zeitliche Verhalten der Elektronentemperatur sowie über die  $E$ -Feldverteilung im Pulsbetrieb der Plasmaanlage gewinnen. Der Vergleich der Anstiegs- und Abfallzeit der zeitaufgelösten Emissionsintensität mit der Anstiegs- und Abfallszeit der Elektronendichte und der Elektronentemperatur ergibt, daß unabhängig von den gewählten äußeren Parametern die zeit- und orts aufgelöste Plasmaemission über den gesamten Pulszyklus hinweg mit der zeit- und orts aufgelösten Elektronentemperatur korreliert.

Die vergleichende POES-Messung zwischen der Ar II- und Ar I-Emissionsintensität in einem gepulsten Argonplasma sowie die Emission atomaren Sauerstoffs in einem gepulsten Sauerstoffplasma zeigen, daß der Energieübertrag von der Mikrowelle auf die Elektronen am Rand der Plasmakammer stattfindet. Die Elektronen nehmen die Energie in den Bereichen hoher elektrischer

Feldstärke zwischen den zehn Schlitzantennen der SLAN-I auf und verlieren einen Teil der dort aufgenommenen Energie durch Stöße mit dem Hintergrundgas auf dem Weg vom Rand zur Mitte der Resonatorebene. Dies führt zu einer vom Rand der Plasmakammer zum Zentrum der Resonatorebene hin radial abnehmenden Elektronentemperaturverteilung  $kT_e(t, r)$ .

Die Sonden- und POES-Messungen ergaben unabhängig von den gewählten Parametern eine annähernd konstante Anstiegszeit der Elektronentemperatur  $kT_e$   $\tau_{r,I} \approx \tau_{r,T_e}$  von  $\leq 10 \mu\text{s}$ . Wie zusätzlich durchgeführte Messungen der zeitaufgelösten reflektierten Leistung zeigen, korreliert die Anstiegszeit der Elektronentemperatur mit der Anstiegszeit der im Plasma absorbierten Mikrowellenleistung. Für niedrige Pulsfrequenzen zeigt sowohl die Emissionsintensität als auch die Elektronentemperatur  $kT_e$  einen Überschwinger während der Zündphase. Das Emissionsmaximum nimmt mit zunehmendem Tastverhältnis ab. Ist die Leistungspulsdauer ausreichend lang, so nimmt die Emission mit zunehmender Ausbreitung des Plasmas ab, bis sie ihren konstanten Gleichgewichtszustandswert erreicht. Analog zum zeitabhängigen Verhalten der Emissionsintensität fällt die Elektronentemperatur nach dem Zündüberschwinger mit Erreichen der Gleichgewichtsphase auf einen konstanten Temperaturwert  $kT_{e\infty}$  ab. Dieser Wert ist gleich der sich unter äquivalenten Druck- und Leistungsbedingungen im cw Fall einstellenden Elektronentemperatur. Die Abfallszeit der Elektronentemperatur in der *Afterglow*phase ist unabhängig, von der Pulsfrequenz, jedoch abhängig vom gewählten Druck. Für ein 5 Pa Argonplasma beträgt die Abfallszeit  $\tau_{r,T_e} \approx 65 \mu\text{s}$ . Mit zunehmendem Druck nimmt die Abfallszeit der Elektronentemperatur ab. Es ließ sich zeigen, daß sowohl die Anstiegs- als auch die Abfallszeit der Elektronentemperatur und der Elektronendichte unabhängig von der Pulsfrequenz sind. Hierbei ist die Anstiegs- und Abfallszeit der Elektronentemperatur ein bis zwei Größenordnungen geringer als die der Elektronendichte. Die Pulsfrequenzabhängigkeit der Elektronentemperatur  $T_e(t)$  ist im Vergleich zur Elektronendichte stärker ausgeprägt. Für hohe Pulsfrequenzen schwingt die zeitabhängige  $T_e(t)$ -Amplitude dicht um den cw-Wert. Die zeitlich gemittelte Elektronentemperatur  $\bar{T}_e$  sinkt mit abnehmender Pulsfrequenz von  $\bar{T}_e \approx T_{e,cw}$  auf minimal  $\bar{T}_e \approx T_{e,cw}/2$  ab.

Die Ergebnisse der Mikrowelleninterferometrie bzw. der LANGMUIR-Sondenmessung zeigen, daß die Elektronendichte  $n_e(t)$  mit zunehmender Pulsfrequenz der Leistungsmodulation weitaus weniger folgt als die Elektronentemperatur. Mit zunehmender Pulsfrequenz nimmt die Amplitude des zeitabhängigen Elektronendichteverlaufs  $n_e(t)$  ab und erreicht bei sehr hohen Pulsfrequenzen



den konstanten Wert  $n_e(t) = n_{e,cw}$ .

Die MWI- und Sondenmessungen zeigen für beide untersuchten Gasarten ein Maximum der zeitlich gemittelten Elektronendichte  $\bar{n}_e$  im Bereich zwischen 50 -200 Hz. Mit zunehmendem Druck und abnehmendem Tastverhältnis verschiebt sich das  $\bar{n}_e$ -Maximum zu niedrigeren Pulsfrequenzen. Mit abnehmendem Tastverhältnis nimmt das  $\bar{n}_e$ -Maximum zu. Je nach Wahl des Tastverhältnisses oder der Pulsfrequenz lassen sich im gepulsten Betrieb zeitlich gemittelte Elektronendichten erzielen, die um bis zu zwei Größenordnungen über dem äquivalenten cw -Wert liegen.

Der zeitabhängige Verlauf neutraler Radikale in einem gepulsten Plasma wurde am Beispiel der zeitaufgelösten absoluten atomaren Sauerstoffdichte in der *Downstream-Zone* untersucht. Hierzu wurde das laserspektroskopische Verfahren der Zweiphotonen laserinduzierten Fluoreszenz (2P-LIF) eingesetzt. Wie der Vergleich zwischen LIF-Messung und Sondenmessung zeigt, korreliert der Anstieg der atomaren Sauerstoffdichte für Pulsfrequenzen unterhalb von 50 Hz mit dem Anstieg der Elektronendichte. Die Abfallszeit der atomaren Sauerstoffdichte ( $\tau_{d,no} = 20$  ms) hingegen ist wesentlich langsamer als der Elektronendichteabfall und wird bestimmt durch die Diffusion des atomaren Sauerstoffs zur Wand, wo er rekombiniert oder adsorbiert wird. Oberhalb von Pulsfrequenzen von 50 Hz folgt die atomare Sauerstoffdichte aufgrund ihres langsamen Abfalls nicht mehr der Leistungsmodulation, bzw. dem Elektronendichteverlauf, sondern nimmt einen zeitlich konstanten Wert an. Das Maximum der zeitlich gemittelten atomaren Sauerstoffdichte korreliert mit dem Maximum der zeitlich gemittelten Elektronendichte. Die zeitlich gemittelte atomare Sauerstoffdichte ist um einen Faktor 1,5 höher als der äquivalente cw-Dichtewert und beträgt  $5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$  in einem 50 Pa Sauerstoffplasma. Dies entspricht einem Dissoziationsgrad von ca. 2%.

Aufbauend auf den vorangehend beschriebenen experimentellen Ergebnissen konnte gezeigt werden, daß sich sowohl das qualitative als auch quantitative zeitabhängige Verhalten der untersuchten inneren Plasmaparameter durch ein modifiziertes „Global Model“ *stoßbestimmter* Plasmen beschreiben läßt. Das in dieser Arbeit entwickelte Model basiert auf dem von ASHIDA und LIEBERMAN 1995 entwickelten „Global Model“ gepulster *stoßfreier* Plasmen. Der Unterschied zwischen beiden Modellen liegt zum einen in der grundsätzlich unterschiedlich zu bestimmenden Ladungsträgerverlustfrequenz, zum anderen in der durch die Stöße bedingten geringeren Elektro-

nentemperaturabfallszeit in stoßbestimmten Plasmen.

Wie gezeigt werden konnte, wird das Pulsverhalten der Elektronendichte und der Elektronentemperaturabfall in der Afterglowphase durch die Elektronenverlustfrequenz  $\nu_{loss}$  bestimmt. Der Abfall der atomaren Sauerstoffdichte in der Afterglowphase ist abhängig von der Verlustfrequenz  $\nu_o$  des atomaren Sauerstoffs. Die Elektronenverlustfrequenz und die Verlustfrequenz des atomaren Sauerstoffs ergeben sich aus Wandverlusten beider Spezies. Die Elektronen erreichen die Wände durch stoßbestimmten ampibolaren diffusiven Transport der neutrale atomare Sauerstoff hingegen durch stoßbestimmte Diffusion. Aufgrund der umgekehrt quadratischen Abhängigkeit von der Diffusionslänge  $\Lambda$  entscheidet die Geometrie der untersuchten Plasmaanlage bzw. das Plasmavolumen über die Größenordnung der Verlustfrequenz und somit über das Pulsverhalten. Als Faustregel kann gelten: Je größer das Plasmavolumen, um so geringer die Pulsfrequenz, bei der die mittlere Elektronendichte, bzw. die mittlere atomare Sauerstoffdichte maximal wird und beide Spezies der Leistungsmodulation noch Folge leisten können. Die externen Plasmaparameter Druck und Leistung beeinflussen das Pulsverhalten der Elektronen- respektive Sauerstoffdichte über die Diffusionskonstante  $D$ , von der die Verlustfrequenz linear abhängig ist. In zylinderförmigen Entladungsgeometrien erhält man die Elektronenverlustfrequenz entlang der Längsachse entweder aus der Bestimmung:

1. der Elektronendichteabfallszeit in der *Afterglow*phase,
2. der Elektronentemperatur in der Gleichgewichtsphase des gepulsten Plasmas  
oder
3. der Elektronentemperatur im äquivalenten cw-Fall.

Die beiden zuletzt genannten Meßmethoden setzen allerdings die genaue Kenntnis der Ionisationsratenkonstanten voraus.

Analog erhält man die Verlustrate der atomaren Sauerstoffdichte aus der mit laserinduzierten Fluoreszenz bestimmten Abfallszeit.

Ist die jeweilige Verlustrate bekannt, so läßt sich das pulsfrequenz- und tastverhältnisabhängige zeitliche Verhalten der Elektronendichte, -temperatur und der radikalen Dichte durch das stoßbestimmte „Global Model“ gepulster Plasmen ermitteln.

## 7.2 Ausblick

Die vorliegende Arbeit gibt einen ersten umfassenden Einblick in die grundlegenden plasma-physikalischen Mechanismen und Zusammenhänge gepulster großvolumiger Plasmen. Durch die Resultate dieser Arbeit wird der Anwender in die Lage versetzt, das zeit- und orts aufgelöste Verhalten der wesentlichen, die Plasmaprozesse steuernden, „inneren“ Plasmaparameter: Elektrodendichte, -temperatur und Radikaldichte in Abhängigkeit von Pulsfrequenz und Tastverhältnis bestimmen zu können. Mit Hilfe des hergeleiteten „Global Model“ stoßbestimmter Plasmen läßt sich der für den jeweiligen Plasmaprozeß optimale Pulsfrequenz- und Tastverhältnisbereich bestimmen. Der Umfang von zeit- und kostenaufwendigen Parameterstudien, wie sie in der Vergangenheit zur Prozeßentwicklung nötig waren, kann erheblich reduziert werden. Sind die optimalen Parameter für den jeweiligen Puls-Plasmaprozess bekannt, so lassen sich mit Hilfe der Ergebnisse dieser Arbeit „maßgeschneiderte“ plasmaerzeugende Systeme entwickeln.

Darüber hinaus wurden durch die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Entwicklung der POES, des Einzelsondensystems und der laserinduzierten Fluoreszenz zeitaufgelöste Diagnostikverfahren bereitgestellt, mit denen sich in Zukunft eine Vielzahl von weiteren Erkenntnissen über gepulste großvolumige Plasmen gewinnen lassen. Speziell die Untersuchung gepulster molekularer Gase bzw. von Gasgemischen, wie sie u.a. zur Plasmapolymerisation eingesetzt werden, gewinnt hier zunehmend an Bedeutung. Erste Untersuchungsergebnisse zeigen, daß die in diesen Plasmen festgestellten Phänomene sich durch die Anwendung der Ergebnisse dieser Arbeit deuten lassen (GEORG et al., 1999, NINGEL, 1998). Ein erster Hinweis darauf, daß die in dieser Arbeit aufgezeigten wesentlichen Mechanismen gepulster großvolumiger Plasmen auch für komplexere Gasgemische ihre Gültigkeit beibehalten.

Zusätzlich läßt sich durch den Einsatz gepulster Plasmen in Kombination mit der zeitaufgelösten Sondendiagnostik oder der LIF die auch für cw-Plasmen bedeutende Diffusionskonstante bestimmen (ARAI et al., 1994). Der Einsatz gepulster Plasmen lohnt sich somit nicht nur aus prozeß-technischen Gründen, sondern es lassen sich auch wesentliche Kennzahlen des Plasmas und der eingesetzten Plasmaanlage auf einfache Art und Weise ermitteln.

# Anhang

## A.1 Wechselwirkungsquerschnitte

Im folgenden sind die wichtigsten Ionisations-, Dissoziationsenergien und Wirkungsquerschnitte der in dieser Arbeit untersuchten Sauerstoff und Argonplasma aufgeführt.

	Argon	O	O <sub>2</sub>	O <sub>2</sub> <sup>-</sup>	O <sub>2</sub> <sup>+</sup>
Ionisierungsenergie eV (einfache Ionisierung)	15,76	13,61	12,07	0,4	-
Dissoziationsenergie	-	-	5,12	4,06	6,59

Tabelle A.1: Ionisierungsenergien von Argon und molekularem/atomarem Sauerstoff.

Die in Kap. 2.2.2 aufgeführte Gleichung Gl. 2.22 zur Bestimmung der Ionisationsratenkonstante

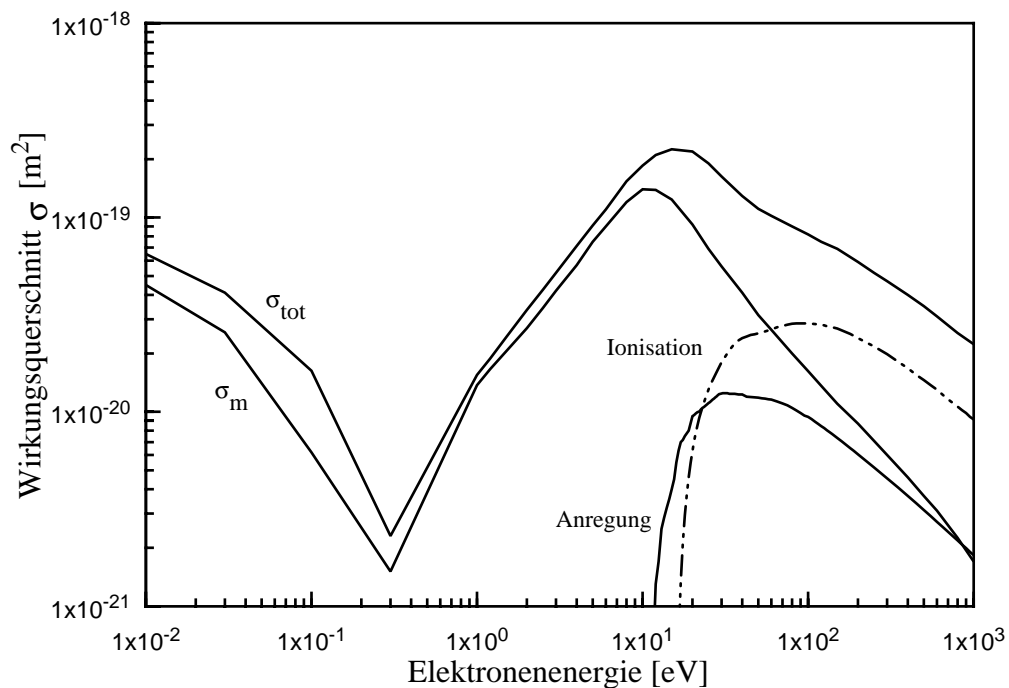


Abbildung A.1: Energieabhängige elastische/inelastische Wirkungsquerschnitte für Ar. Elastische Querschnitte  $\sigma_{\text{tot}}$ ,  $\sigma_m$ : HAYASHI, 1981, totaler Anregungsquerschnitt: EGGARTER, 1975, FERREIRA und LOUREIRO, 1983, Ionisationsquerschnitt (einfach Ionisation): RAPP UND ENGLANDER-GOLDEN 1965.

$K_{iz}$  des atomaren Argons leitet sich ab aus der Integration der in Abb. A.1 dargestellten Wirkungsquerschnittsverläufe für elastische/inelastische Argon/Elektronenkollisionen durch Gl. 2.21 (Kap. 2.2.2). Als Resultat ergeben sich -unter Voraussetzung einer MAXWELSCHEM EEVF die in Abb. A.2 dargestellten energieabhängigen Ratenkonstanten  $K(kT_e)$  für elastische bzw. inelastische Elektronenstreuung an Argon.

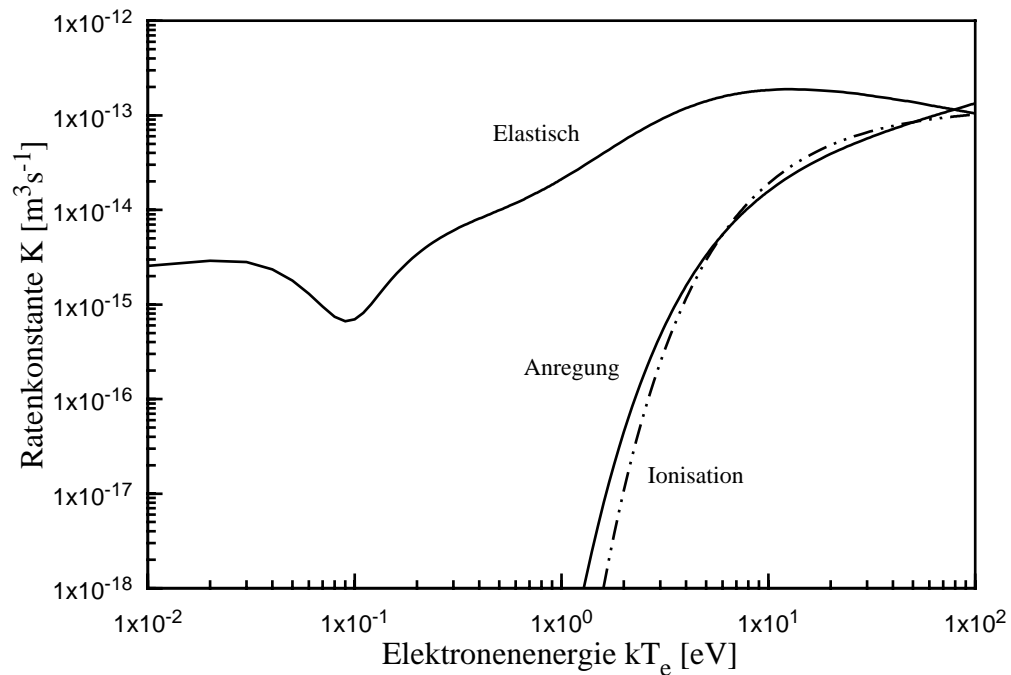


Abbildung A.2: Ratenkonstanten  $K(kT_e)$  für elastische und inelastische Argon-Elektronenstreuung.

Die Ionisationsratenkonstante  $K_{iz}$  in Abb. A.2 wird durch die Gleichung

$$K_{iz} \approx 2,3 \times 10^{-14} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1} \left( \frac{kT_e}{\text{eV}} \right)^{0,68} \exp \left( \frac{-15,76 \text{ eV}}{\frac{kT_e}{\text{eV}}} \right) \quad (\text{A.1.1})$$

näherungsweise beschreiben.

## A.2 CCD-Kamerasystem

Um die Abhängigkeit der detektierten Emissionsintensitäten von der Belichtungszeit, dem Verstärkungsfaktor und der Wellenlänge zu bestimmen, wurde die Kamera mit einer kalibrierten Wolfram-Bandlampe (250 -2400 nm, *Oriel 63358*) mit bekannter wellenlängenabhängiger Strahlungsleistung ausgeleuchtet und die Emissionsdetektion der Kamera in Abhängigkeit vom Verstärkungsfaktor und der Belichtungszeit bestimmt. Die von der eingesetzten ICCD-Kamera gemessene Intensität ist, wie Abb. A.3-Abb. A.4 zeigen, von der beobachteten Wellenlänge und exponentiell vom eingestellten Verstärkungsfaktor  $g$  der MCP abhängig.

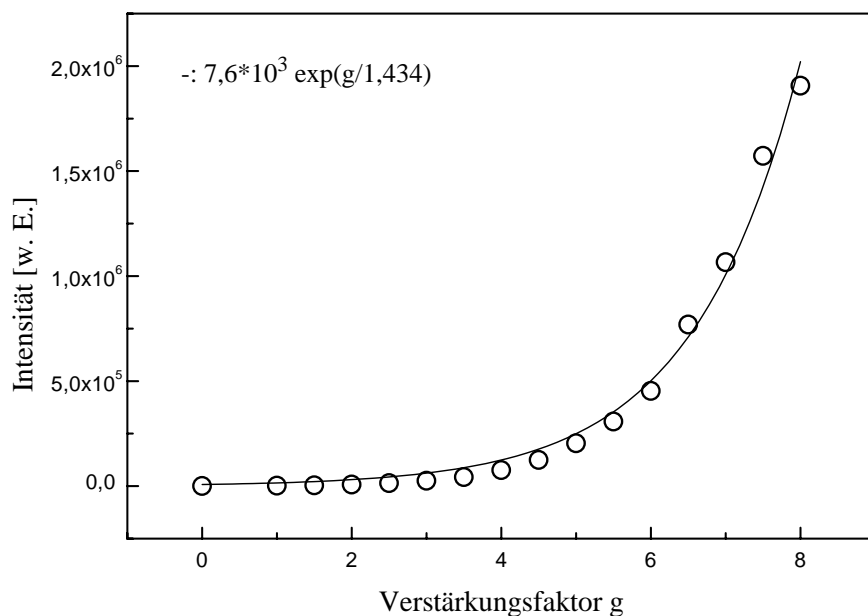


Abbildung A.3: Verstärkungsfaktorabhängiger Intensitätsverlauf der ICCD-Kamera bei einer Wellenlänge von 480,6 nm. Gesamtbelichtungszeit:  $t_{exp} = 150$  ms, Gatebreite:  $t_g = 50$  ns, Pulsfrequenz: 1 kHz.

Beide Darstellungen zeigen die Emissionsintensität, skaliert auf eine Gesamtbelichtungszeit von  $t = 150$  ms, einer Öffnungsdauer  $t_g = 50$  ns sowie bei einer Pulsfrequenz der Kamera von 1 kHz.

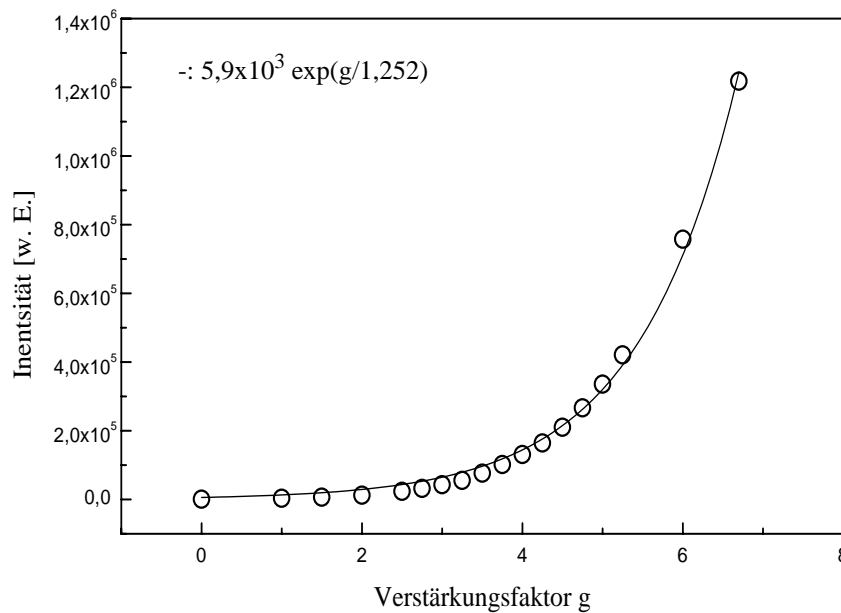


Abbildung A.4: Verstärkungsfaktorabhängiger Intensitätsverlauf der ICCD-Kamera bei einer Wellenlänge von 795 nm. Gesamtbelichtungszeit:  $t_{exp} = 150$  ms, Gatebreite:  $t_g = 50$  ns, Pulsfrequenz: 1 kHz.

### A.3 Bestimmung der Ladungsträgerverteilung im cw Betrieb

Zur Bestimmung des Transportregimes (Kap. 2.2.4) sowie zur Bestimmung des Elektronendichteprofiles entlang der Meßachse des MWIs wurde die räumliche Elektronendichteverteilung  $n_e(r, z)$  in radialer und axialer Richtung im cw-Betrieb der Quelle untersucht.

In Bild Abb. A.5a und Abb. A.6 ist die axiale Elektronendichteverteilung  $n_e(z)$  entlang der Längsachse vom Zentrum der Resonatorebene  $z = 0$  cm bis in den *Downstream*bereich des Rezipienten dargestellt. Aufgrund der nicht definierten Wandpotentiale im Bereich der Quarzglocke der SLAN ( $z \leq 13$  cm, Abb. 4.9) ist diese Messung mit einer verschiebbaren Doppelsonde (BROCKHAUS et al., 1994) durchgeführt worden.

Die per Einzelsonde bestimmte radiale Elektronendichteverteilung  $n_e(r)$  entlang des Meßpfades des MWIs ( $z = 30$  cm) ist in Abb. A.5b und Abb. A.7 dargestellt. Wie die in Abb. A.5a-b dargestellten Messungen zeigen, läßt sich die Elektronendichteverteilung in der *Downstream*-Zone ( $z \geq 13$  cm) beschreiben durch

$$n_e(r, z) = n_{ed} \exp\left(\frac{-z}{\Lambda_{eff}}\right) J_0\left(2,405 \frac{r}{R}\right) \quad (\text{A.3.2})$$

mit  $n_{ed}$  als Elektronendichte zu Beginn der *Downstream*-Zone,  $\Lambda_{eff}$  als effektiver Diffusionslänge der Versuchsanlage (Kap. 2.2.4),  $J_0$  als Besselfunktion erster Gattung nullter Ordnung und  $R$  als Radius der Plasmakammer. Nutzt man die in Kap. 2.2.4 für ein überdichtetes Plasma in einer offenen Zylinderanordnung angegebene Beziehung (Gl. A.3.2), so erhält man aus dem Elektronendichteprofil eine effektive Diffusionslänge  $\Lambda_{eff} = 6$  cm. In Abbildung Abb. A.5a und Abb. A.6 läßt sich deutlich zwischen zwei Entladungsgebieten unterscheiden: der aktiven Zone innerhalb der Quarzglocke der SLAN ( $z \leq 13$ cm) (Abb. 4.9) und dem Bereich, in dem die Elektronendichte exponentiell abfällt.

Wie man den Abbildungen Abb. A.5a bzw. Abb. A.6 entnehmen kann, nimmt die Elektronendichte im Zentrum der Resonatorebene  $n_{e0}$  mit ansteigender Leistung nicht weiter zu, sondern das Dichteprofil ändert sich von einem cosinusförmigen Profil mit einem Maximum im Zentrum der Resonatorebene zu einem mit maximaler Dichte am Rand der Quarzglocke. Als Ursache für dieses Verhalten kommt in erster Linie die Ausbildung einer stehenden Welle im Raum zwischen Plasma, Quellenflansch und der Mikrowellenabschirmung an der gegenüberliegenden Stirnseite der Quelle in Frage (Abb. 4.3). In Verbindung mit dem Gaseinlaß in der Höhe der Austrittsöffnung der SLAN-I (Abb. 4.3) führt dies zu einem Elektronendichtemaximum am Ende der aktiven Zone. Die Überhöhung des Elektronendichteprofiles am Rand der aktiven Zone führt zu einer Verschiebung des Bereichs mit exponentiellem Dichteabfalls um einige Zentimeter ( $\approx 2$  cm) in den *Downstream*-Bereich hinein. Da alle MWI- und LANGMUIR-Sondenmessungen in gepulsten Argonplasmen weit in der *Downstream*-Zone durchgeführt werden ( $z \geq 20$ -35 cm,) werden sie durch diesen Effekt nicht beeinflusst.

Mit zunehmendem Druck läßt sich dieses Phänomen erst bei höheren Mikrowellenleistungen beobachten (Abb. A.6).

Für Sauerstoffplasmen läßt sich dieser Effekt innerhalb des untersuchten Parameterbereiches nicht nachweisen.

Das sich im *Downstream*-Bereich einstellende radiale Dichteprofil  $n_e(z \geq 16$  cm,  $r$ ) zeigt sehr gute Übereinstimmung mit einer Besselfunktion, der typischen radialen  $n_e$ -Verteilung in zylinderförmigen Entladungsgefäßen für stoßbestimmte diffusive Plasmen (Kap. 2.2.4, Gl. 2.35). Legt man das Besselprofil zugrunde so ergeben die radialen Messungen einen Plasmaradius von  $r_p = 203$  mm was recht gut mit der effektiven radialen Abmessung des Rezipienten übereinstimmt



(Kap. 4.1.3).

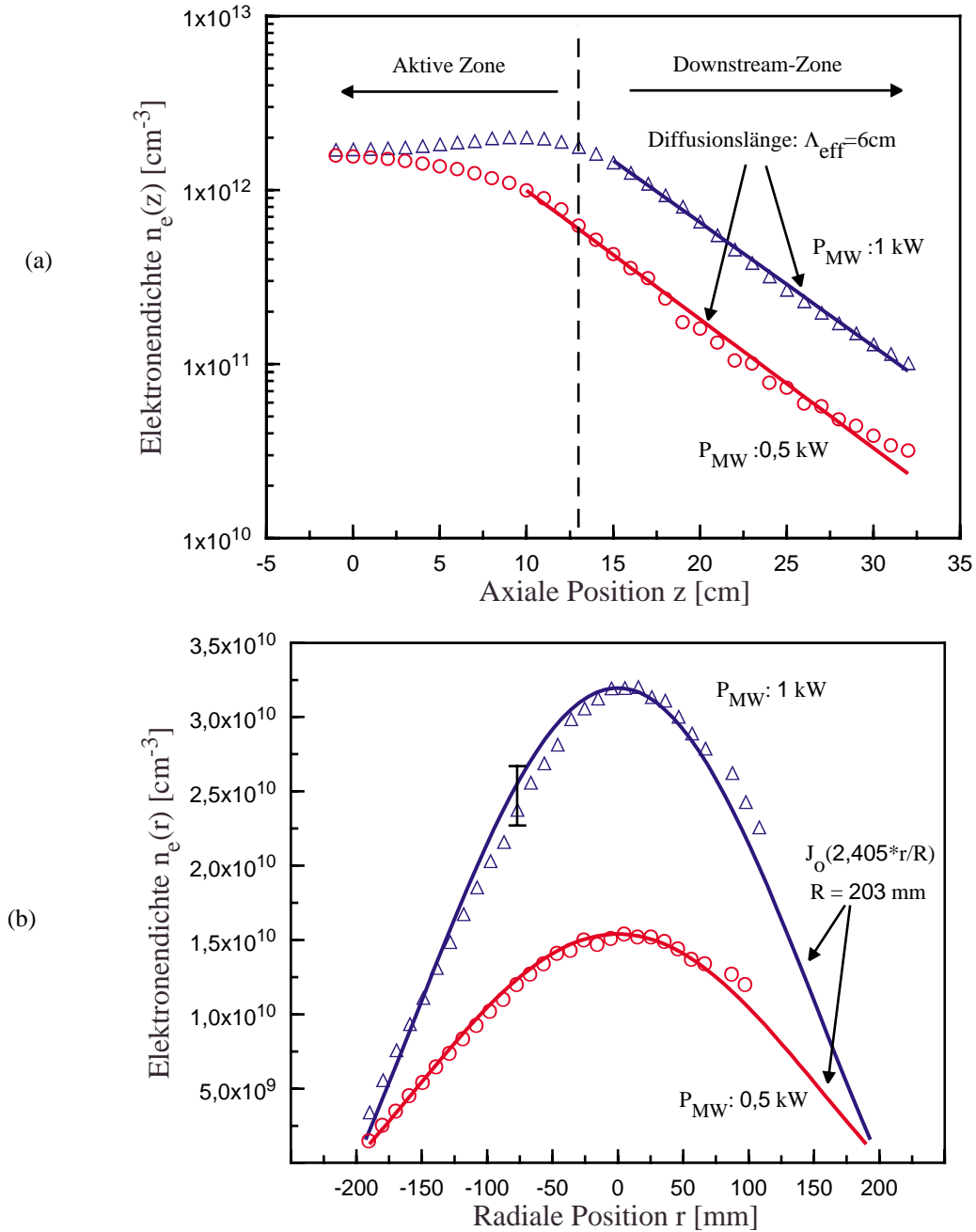


Abbildung A.5: Leistungsabhängiges axiales und radiales Elektronendichteprofil  $n_e(z, r)$ .  
 (a) Axialer Verlauf  $n_e(z, r = 0 \text{ cm})$ , Resonatorebene der SLAN:  $z = 0 \text{ cm}$ .  
 (b) Radialer Verlauf  $n_e(z = 30 \text{ cm}, r)$ , Längsachse :  $r = 0 \text{ cm}$ .  
 Gasart: Argon,  $p = 5 \text{ Pa}$ .

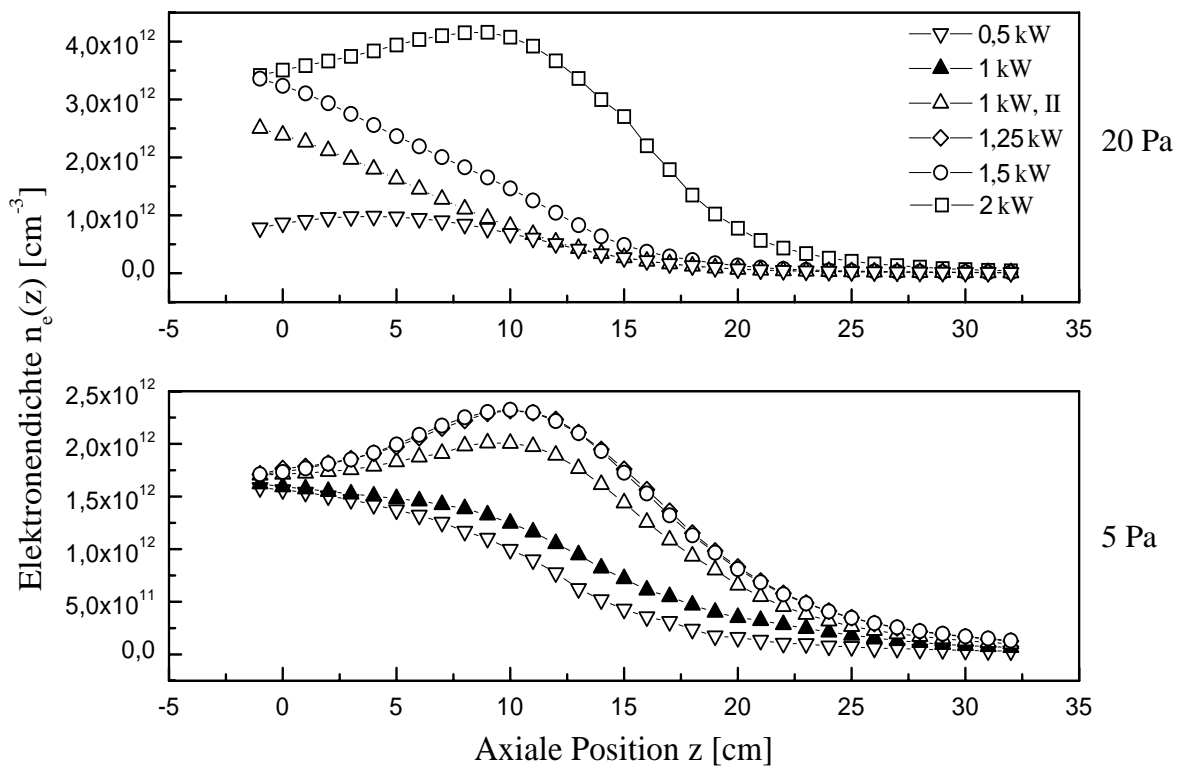


Abbildung A.6: Druck- und leistungsabhängiges Elektronendichteprofil entlang der Längsachse der Versuchsanlage.  
Resonatorebene der SLAN:  $z = 0$  cm. Gasart: Argon,  $\nabla$  1 kW, II: geringere reflektierte Leistung.

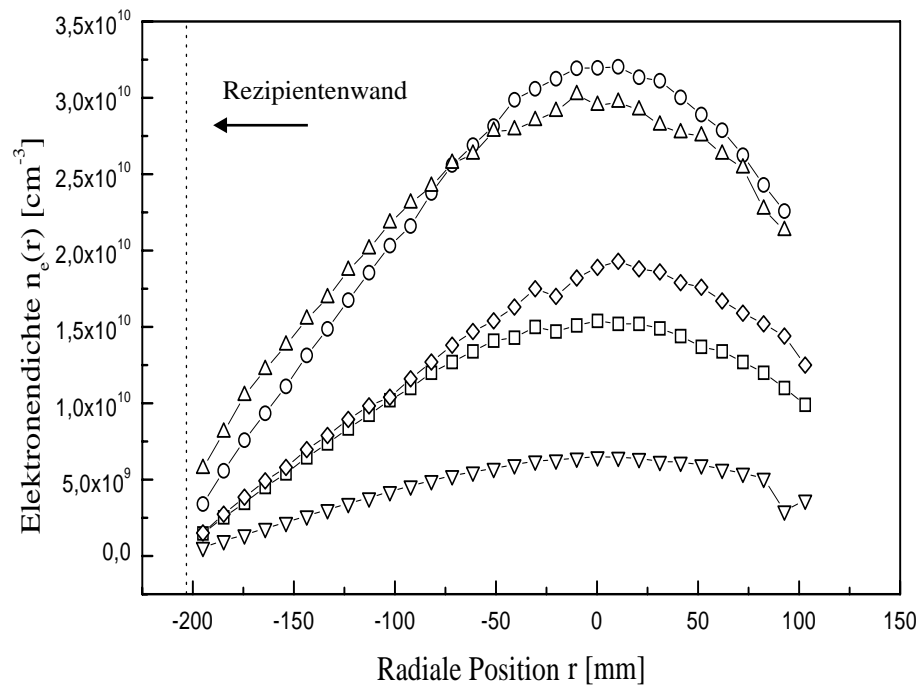


Abbildung A.7: Leistungs- und druckabhängiges radiales Elektronendichteprofil  $n_e(z = 30 \text{ cm})$ .  
 Mitte des Rezipienten:  $r = 0 \text{ cm}$ ,  
 $p = 5 \text{ Pa}$ ,  $P_{MW}$ :  $\circ$  2 kW,  $\Delta$  1 kW,  $\diamond$  0,5 kW,  $p = 10 \text{ Pa}$ ,  $P_{MW}$ :  $\square$  1 kW,  $\nabla$  0,5 kW.

### A.3.1 Zeitabhängiges Elektronendichteprofil entlang der Längsachse

Daß sich am exponentiellen Abfall des Elektronendichteprofiles entlang der Längsachse der Versuchsanordnung im gepulsten Betrieb nichts wesentliches ändert, zeigen die in Abb. A.8 dargestellten normierten Elektronendichteverläufe  $n_e(z, t)$ . Die für drei unterschiedliche Pulsfrequenzen dargestellten Profile zeigen übereinstimmend einen ähnlichen exponentiellen Dichteabfall in der *Downstream*-Zone wie der in Abb. A.5(a) dargestellte  $n_e(z)$  Abfall für den cw Betrieb.

Die in Abb. A.8 präsentierten Dichteverläufe wurden aus der zeit- und orts aufgelösten Messung des Ionensättigungsstroms mit einer konstanten Sondenspannung von  $U_s = -80 \text{ V}$  bestimmt.

Die dargestellten Verläufe wurden auf das Elektronendichtemaximum normiert. Aufgrund des hohen Druckes ( $p = 20 \text{ Pa}$ ) und der niedrigen Leistung ( $\bar{P}_{MW} = 1 \text{ kW}$ ) ist eine Überhöhung der Elektronendichte am Rand ( $z = 10 \text{ cm}$ ) der aktiven Zone - wie in Abb. A.6- nicht zu beobachten. Die maximale Elektronendichte wird für alle Pulsfrequenzen im Zentrum der Resonatorebene der SLAN (Abb. 4.9) erreicht.

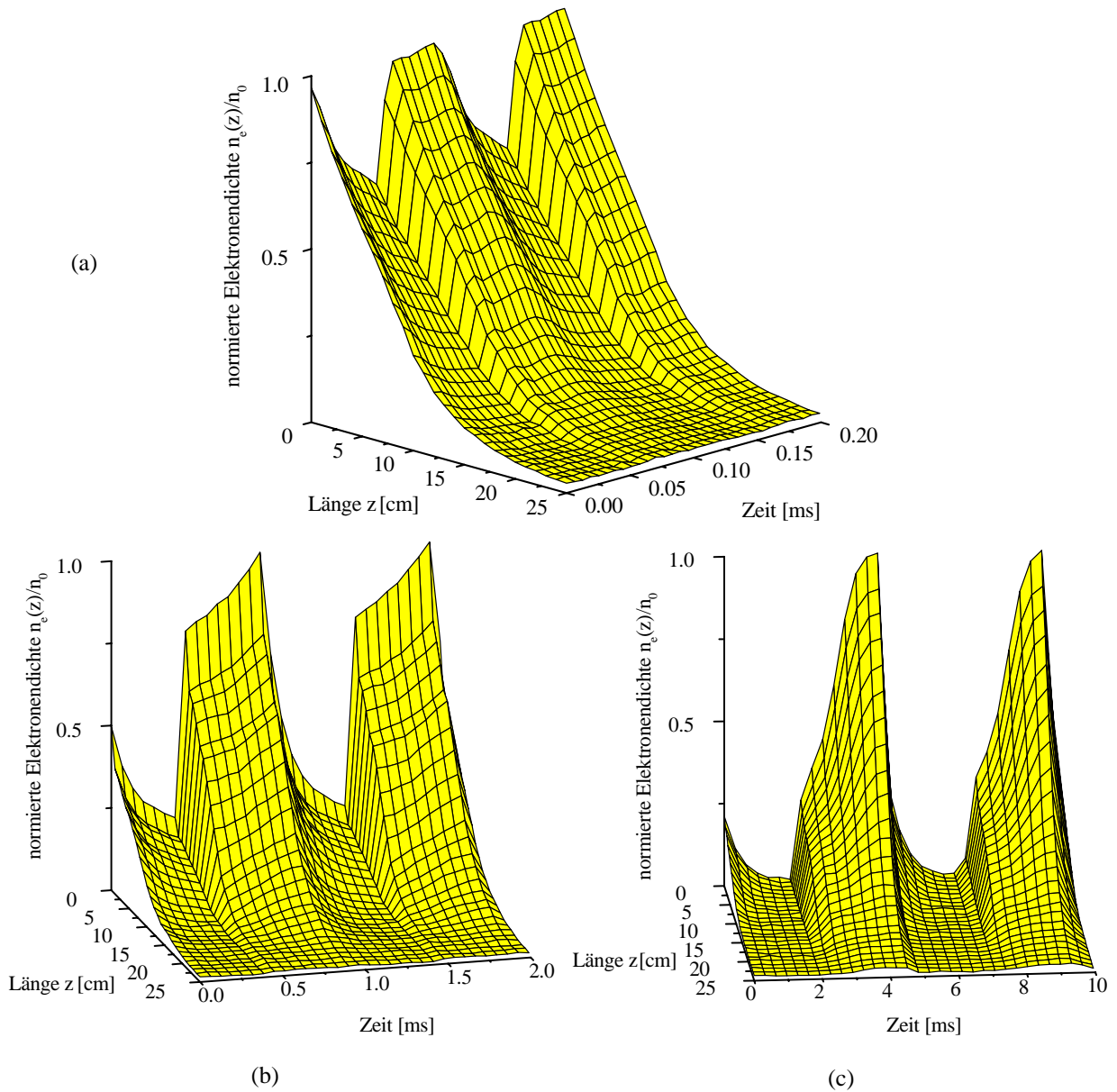


Abbildung A.8: Pulsfrequenzabhängiger normierter zeitaufgelöster Elektronendichteverlauf  $n_e(z, r = 0 \text{ cm})$  entlang der Längsachse der Entladung. (a) 10 kHz, (b) 1 kHz, (c) 200 Hz  
 Gasart: Argon,  $p = 20 \text{ Pa}$ ,  $\bar{P}_{MW} = 1 \text{ kW}$ , Mitte der Resonatorebene:  $z = 0 \text{ cm}$ .

## A.4 Herleitung des „Global Model“ für den feldfreien Bereich einer offenen Zylinderstruktur

Die wesentlichen Bedingungen zur räumlich gemittelten (globalen) Beschreibung eines Plasmas sind:

1. Globales Ladungsträgergleichgewicht
2. Globale Leistungsbilanz

(MOISAN und PELLETIER, 1992, LIEBERMAN und LICHTENBERG, 1994).

Aus dem Ladungsträgergleichgewicht erhält man Informationen über die globale effektive Elektronentemperatur  $T_e$  im Plasma, während die Leistungsbilanz die globale Ladungsträgerdichte bestimmt.

Die folgenden Berechnungen werden durchgeführt für die in Kap. A.3 bestimmte Elektronenverteilung  $n_e(r, z)$ , wie sie im feldfreien Teil einer offenen Zylindergeometrie (*Downstream-Zone*, Abb. A.5a) der in dieser Arbeit untersuchten Versuchsanlage existiert

$$n_e(r, z) = n_{ed} J_0\left(\chi_{01} \frac{r}{R}\right) \exp\left(-\frac{z}{\Lambda_{eff}}\right) \quad (\text{A.4.1})$$

mit  $R$  als Länge, bzw. als Radius des Zylinders und  $\chi_{01}$  als erste Nullstelle der Besselfunktion nullter Ordnung ( $\chi_{01} \approx 2,405$ ).

### A.4.1 Globales Ladungsträgergleichgewicht

Ist das Ladungsträgerdichteprofil bekannt, so erhält man den zugehörigen Partikelfluß  $\Gamma$  unter der Annahme einer ortsunabhängigen Diffusionskonstanten  $D_a$  aus der Beziehung

$$\vec{\Gamma} = -D_a \nabla n_e(r, z). \quad (\text{A.4.2})$$

Die Flußkomponente  $\Gamma_z$  in axialer Richtung beträgt im Falle des durch Gl. A.4.1 beschriebenen Elektronendichteprofiles

$$\Gamma_z(r, z) = \frac{D_a}{\Lambda_{eff}} n_0 J_0\left(\frac{\chi_{01} r}{R}\right) \exp\left(-\frac{z}{\Lambda_{eff}}\right) \quad (\text{A.4.3})$$

und die radiale Flußkomponente wird beschrieben durch

$$\Gamma_r(r, z) = \frac{\chi_{01} D_a n_0}{R} J_1\left(\frac{\chi_{01} r}{R}\right) \exp\left(-\frac{z}{\Lambda_{eff}}\right). \quad (\text{A.4.4})$$

Die Teilchen bewegen sich im Volumen mit der ortsabhängigen mittleren Diffusionsgeschwindigkeit  $\vec{v}$ , definiert durch

$$\vec{v} = \frac{\vec{\Gamma}}{n_e(r, z)}. \quad (\text{A.4.5})$$

Die  $r$ , bzw.  $z$ -Komponente der Diffusionsgeschwindigkeit, läßt sich aus Gl. A.4.3, bzw. Gl. A.4.4 ermitteln.

Die radiale Komponente der Diffusionsgeschwindigkeit  $v_r$  ist eine von  $r$  abhängige Funktion, wie man Gl. A.4.6 entnehmen kann

$$\bar{v}_r = \frac{\Gamma_{er}}{n_e(r, z)} = \frac{2,405 D_a}{R} \frac{J_1\left(\frac{2,405 r}{R}\right)}{J_0\left(\frac{2,405 r}{R}\right)}. \quad (\text{A.4.6})$$

Die radiale Komponente der Diffusionsgeschwindigkeit  $v_r$  steigt von  $v_r(r=0) = 0$  auf der Längsachse der Entladung mit zunehmendem  $r$  an. Für  $r \rightarrow R$  würde  $v_r$  laut Gl. A.4.6 unendlich hohe Werte annehmen  $v \rightarrow \infty$ . Daß dies in der Realität nicht zu beobachten ist, liegt daran, daß die Annahme der Randbedingung  $n_e(R) = 0$  nicht korrekt ist. In der Realität muß die Randschicht zwischen Wand und Plasma mitberücksichtigt werden. Mit Erreichen der Grenzfläche zwischen Plasma und Randschicht  $r = R' = R - s$  nimmt die Diffusionsgeschwindigkeit nicht weiter zu und erreicht einen konstanten Wert, die sogenannte BOHM-Geschwindigkeit  $u_B$ , definiert als

$$u_B = \sqrt{\frac{k T_e}{M}}. \quad (\text{A.4.7})$$

Die Diffusionsgeschwindigkeit entlang der Längsachse  $v_z$  ist ortsunabhängig und lediglich eine Funktion der globalen Größen  $D_a$  und  $\Lambda_{eff}$ :

$$\bar{v}_z = \frac{\Gamma_{ez}}{n_e(r, z)} = \frac{D_a}{\Lambda_{eff}}. \quad (\text{A.4.8})$$

Die lokale Verlustrate  $v_{loss}(r, z)$  ergibt sich aus der Teilchengeschwindigkeit, mit der die Ladungsträger das betrachtete Volumen verlassen, bezogen auf die effektive Diffusionslänge

$$v_{loss}(r, z) = \frac{\vec{v}}{\Lambda_{eff}} = \frac{\vec{\Gamma}}{n_e(r, z)\Lambda_{eff}} \quad (\text{A.4.9})$$

Entlang der Längsachse der Entladung gilt dann für die Verlustrate

$$v_{loss} = \frac{\bar{v}}{\Lambda_{eff}} = \frac{D_a}{\Lambda_{eff}^2}. \quad (\text{A.4.10})$$

Unter Berücksichtigung der lokalen Ladungsträgerbilanz (Gl. 2.42) gilt im stationären Fall entlang der Längsachse einer offenen Zylindergeometrie

$$v_{loss} = \frac{D_a}{\Lambda_{eff}^2} = v_{iz}. \quad (\text{A.4.11})$$

D.h., im stationären Zustand sind Verlustfrequenz und Ionisationsfrequenz gleich und entlang der Längsachse der zylinderförmigen Entladung lediglich vom Verhältnis der ambipolaren Diffusionskonstante zur Entladungsgeometrie ( $\Lambda_{eff}$ ) abhängig. Diese Tatsache läßt sich ausnutzen, um Diffusionskonstante  $D_a$  zu bestimmen. Ist die Elektronentemperaturabhängigkeit der Ionisationsfrequenz bekannt (Kap. 2.2.2, Gl. 2.21), so läßt sich im stationären Zustand durch die Bestimmung der Elektronentemperatur  $T_e$  auf der Längsachse, die Verlustrate  $v_{loss}$ , bzw. die Ionisationsfrequenz  $v_{iz}$  ermitteln. Aufgrund des bekannten Ladungsträgerprofils ergeben sich die globalen Größen aus der Mittelung über das Volumen.

### Bestimmung der Ladungsträgerbilanz aus der Diffusionsgleichung

Die Ladungsträgerbilanz läßt sich bei bekannter Ladungsträgerverteilung und Transportbedingungen auch direkt aus der Diffusionsgleichung ableiten (Gl. 2.31). Im Gegensatz zum üblichen Lösungsansatz der Diffusionsgleichung ist die Annahme einer ortsunabhängigen Ionisationsfrequenz in einem feldfreien stoßbestimmten Plasma nicht mehr gerechtfertigt. Der Quellterm in der Diffusionsgleichung muß zum einen die aus der Plasmaquelle in den Rezipienten nachströmenden Ladungsträger und zum anderen die Ladungsträgergenerierung im Volumen berücksichtigen. Diese wiederum ist in feldfreien Plasmen eine Funktion der Elektronentemperatur (Gl. A.1.1). Wie der in Abb. 6.1 dargestellte axiale Elektronentemperaturverlauf zeigt, nimmt die Elektronentemperatur aufgrund von Kollisionen entlang der Längsachse der *Downstream*-Zone exponentiell ab. Dies führt angesichts der exponentiellen Temperaturabhängigkeit der Ionisationsrate zu einer stark ortsabhängig variierenden Ionisationsrate (Gl. A.1.1). Somit kann im Ge-

gensatz zur üblichen Vorgehensweise bei der Lösung der Diffusionsgleichung in diesem Fall  $v_{iz}$  nicht als ortsunabhängig angenommen werden. Streng genommen gilt dies auch für die Diffusionskonstante  $D_a$ . Allerdings ist in diesem Fall aufgrund der linearen Abhängigkeit der Diffusionskonstante vom Quotienten  $T_e/T_i$  die Ortsabhängigkeit deutlich schwächer ausgeprägt und kann im Vergleich zur Ortsabhängigkeit der Ionisationskonstanten vernachlässigt werden.

Die Ortsabhängigkeit der Ionisationsfrequenz führt im Gegensatz zur Herleitung der Ladungsträgerbilanz aus den Flußgleichungen zu einer nur noch numerisch lösbaren Diffusionsgleichung der Form

$$-D_a \nabla^2 n_e(r, z) = v_{iz}(r, z) n_e(r, z). \quad (\text{A.4.12})$$

Die numerische Lösung der obigen DGL wird zusätzlich erschwert durch die aufgrund des exponentiellen Elektronendichteabfalls in z-Richtung an dieser Stelle nicht exakt definierten radialen und axialen Randbedingung.

Aufgrund dieser Problematik und aus Gründen der Anschaulichkeit sei zur Bestimmung der Ladungsträgerbilanz und der Verlustfrequenz auf die vorangehend aufgeführte Herleitung aus den Flußgleichungen verwiesen (Gl. A.4.2-Gl. A.4.11).

#### A.4.2 Globale Leistungsbilanz

Die globale Leistungsbilanz ist die zweite Beziehung, die man zur räumlich gemittelten Beschreibung eines Plasmas braucht. Aus ihr läßt sich die Ladungsträgerdichte ermitteln, der neben der Elektronentemperatur zweite wesentliche Plasmaparameter.

Die absorbierte Leistung  $P_{abs}$  ergibt sich aus der Summe der Leistungsverluste, verursacht durch Wandverluste sowie durch Verluste, die durch inelastische Kollisionsprozesse erzeugt werden. Die Wandverluste erhält man aus den jeweiligen Integralen über die Flüsse  $\Gamma_z(L, r)$  und  $\Gamma_r(z, R)$ , multipliziert mit dem Energieverlust der auf die Wand treffenden Ionen  $\varepsilon_i$  und Elektronen  $\varepsilon_e$

$$P_{v, w} = e(\varepsilon_e + \varepsilon_i) \left( 2\pi \left( \int_0^R \Gamma_{ez}(L, r) dr + R \int_0^L \Gamma_{er}(z, R) dz \right) - 2\pi \int_0^R \Gamma_{ez}(0, r) dr \right) \quad (\text{A.4.13})$$

wobei der Energieverlust, verursacht durch die Elektronenwandverluste,  $\varepsilon_e = 2kT_e$  beträgt. Die Energieverluste der Ionen ergeben sich aus der folgenden Beziehung:



$$\varepsilon_i = eV_s + \frac{1}{2}kT_e \quad (\text{A.4.14})$$

mit  $V_s$  als Randschichtpotential einer *floatenden* Plasmakammerwand

$$V_s = \frac{kT_e}{2e} \ln\left(\frac{M_i}{2m_e}\right). \quad (\text{A.4.15})$$

Für Argon erhält man z.B. eine Randschichtspannung von  $eV_s \approx 4,7kT_e$  und für  $\varepsilon_i \approx 5,2kT_e$ . Unter der Bedingung, daß die Ionen und Elektronenflüsse sich nicht zu stark unterscheiden, stellt Gl. A.4.15 ebenfalls eine gute Näherung dar für das Randschichtpotential vor einer geerdeten, leitenden Wand (LIEBERMAN und LICHTENBERG, 1994).

Die Leistungsverluste pro erzeugtem Ionen-Elektronenpaar liefert die Integration über

$$P_{v,i} = 2\pi e \varepsilon_c v_{iz} \int n_e(r, z) r dr dz, \quad (\text{A.4.16})$$

mit  $\varepsilon_c$  als stoßbedingtem Energieverlust pro erzeugtem Ionen-Elektronenpaar

$$\varepsilon_c = \frac{1}{K_{iz}} (K_{el} \varepsilon_{el} + \sum_i K_{iz,i} \varepsilon_{iz,i} + \sum_i K_{ex,i} \varepsilon_{ex,i}). \quad (\text{A.4.17})$$

Auf der rechten Seite der obigen Gleichung stehen  $K_{el} \varepsilon_{el}$ ,  $K_{iz,i} \varepsilon_{iz,i}$ ,  $K_{ex,i} \varepsilon_{ex,i}$  für die Energieverluste verursacht durch elastische, ionisierende, anregende Stöße des  $i$ 'ten Niveaus. Bei molekularen Gasen kämen noch die Energieverluste durch Anregung von Rotations- und Vibrationsniveaus sowie durch Dissoziation hinzu. In elektronegativen Plasmen müssen die Energieverluste durch die Bildung negativer Ionen berücksichtigt werden.

Die gesamte im feldfreien Bereich pro Fläche absorbierte Leistung beträgt

$$P_{abs} = P_{vw} + P_{vi} \quad (\text{A.4.18})$$

Nutzt man die Ladungsträgerbilanz

$$\oint_S \Gamma_e dS = 2\pi \int v_{iz}(r, z) n_e(r, z) r dr dz, \quad (\text{A.4.19})$$

um die Stoßverluste  $P_{vi}$  in Gl. A.4.18 zu eliminieren, so erhält man

$$P_v = e(\varepsilon_T) 2\pi \left( \int_0^R \Gamma_{ez}(L, r) dr + R \int_0^L \Gamma_{er}(z, R) dz \right) - 2\pi \int_0^R \Gamma_{ez}(0, r) dr. \quad (\text{A.4.20})$$

Integriert man die obige Gleichung, so läßt sich die Ladungsträgerdichte  $n_o$  bestimmen aus der

Beziehung

$$n_0 = \frac{P_{abs} \chi_{01} \Lambda_{eff}}{2\pi J_1(\chi_{01}) R^2 D_a \left(1 - \frac{\chi_{01}^2 \Lambda_{eff}^2}{R}\right) \left(1 - \exp\left(-\frac{L}{\Lambda_{eff}}\right)\right) e \epsilon_T} . \quad (\text{A.4.21})$$

Analog zu dem oben beschriebenen Vorgehen läßt sich auch die räumlich gemittelte Elektronentemperatur und -dichte für den aktiven Bereich einer Plasmaanlage bestimmen. Berücksichtigt man die Randbedingungen zwischen feldfreiem Bereich und aktiver Zone, lassen sich beide Lösungen miteinander verbinden und man erhält eine Lösung für das Gesamtsystem. Auf diese Art und Weise lassen sich zylinderförmige Geometrien in einfach zu berechnende Teilgebiete unterteilen indem man jeweils die Leistungs- und Ladungsträgerbilanzgleichung löst. Eine Gesamtaussage über das System erhält man dann durch Zusammenfügen der Teillösungen unter Beachtung der Randbedingungen.

---

## Literaturverzeichnis

- AHN, T. H., K. Nakamura und H. Sugai (1996). Negative ion measurements and etching in a pulsed-power inductively coupled plasma in chlorine, *Plasma Sources Sci. Technol.*, S.139-144.
- ALDÉN, M., H. Edner, G. Holmstedt, S. Svanberg und T. Högberg (1982). Single-pulse laser-induced OH fluorescence in an atmospheric flame, spatially resolved with a diode array detector, *Applied Optics* **21**, S. 1236-1240.
- ALDÉN, M., U. Westblom, and J. E. M. Goldsmith (1989). Two-photon-excited stimulated emission from atomic oxygen in flames and cold gases, *Opt. Lett.* **14**, S. 305- 307.
- AMIROV, R. H., E. I. Asinovsky, I. S. Samoilov und A. V. Shepelin (1993). Oxidation characteristic of nitrogen monoxide by nanosecond pulse corona discharge in a methane combustion flue gas, *Plasma Sources Sci. Technol.*, S. 289 - 295.
- AMORIM, J., G. Bavarian, M. Touzeau und J. Jolly (1994). Two-photon laser induced fluorescence and amplified spontaneous emission atom concentration measurements in O<sub>2</sub> and H<sub>2</sub> discharges, *J. Appl. Phys.* **76**, S. 1487-1493.
- ANANDAN C., C. Mukherjee, T. Seth, P. N. Dixit and R. Bhattacharyya (1995). Effect of pulsed parameters on the deposition rate of hydrogenated amorphous silicon in a modified pulsed plasma discharge, *Appl. Phys. Lett.* **66** (1), S.85-87.
- ARAI, T., M. Goto, D. Takayama, T. Shimizu und M. Murakami (1994). Measurements of diffusion coefficient of CF<sub>2</sub> radical in dc pulsed CF<sub>4</sub>/O<sub>2</sub> discharge plasma, *Jpn. J. Appl. Phys.* **33**, S. 4170-4172.
- ARAI, T., M. Goto, Y. Asoh, D. Takayama und T. Shimizu (1993). Measurements of diffusion coefficient of CF<sub>2</sub> radical in dc pulsed CF<sub>4</sub> discharge plasma, *Jpn. J. Appl. Phys.* **32**, S. 1469-1470.
- ARSLANBEKOV, R. R., N. A. Khromov und A. A. Kudryavtsev (1994). Probe measurements of electron energy distribution function at intermediate and high pressures and in a magnetic field. *Plasma Sources Sci. Technol.* **3**, S. 528-538.
- ASHIDA, S., M.R. Shim und M. A. Lieberman (1996). Measurements of pulsed-power modulated argon plasmas in an inductively coupled plasma source, *J. Vac. Sci. Technol. A* **14**(2), S. 391-397.
- ASHIDA, S., C. Lee und M.A. Lieberman (1995). Spatially averaged (global) model of time modulated high density argon plasmas, *J. Vac. Sci. Technol. A* **13**(5), S. 2498-2507.

- ASMUSSEN, J. (1989). Electron cyclotron resonance microwave discharges for etching and thin-film deposition, *J. Vac. Sci. Technol. A* **7**, S. 883-893.
- BAEVA, M., X. Luo, J. H. Schäfer, J. Uhlenbusch und Z. Zhang (1998). Experimental and theoretical studies of a pulsed microwave excited Ar/CF<sub>4</sub> plasma, *Plasma Chemistry and Plasma Processing* **18**, S. 429-446.
- BAEVA, M., X. Luo, B. Pfelzer, J. H. Schäfer, J. Uhlenbusch und Z. Zhang (1999). Experimental and theoretical studies of pulsed microwave discharges in nitrogen, *Plasma Sources Sci. Technol.* **8**, S. 142-150.
- BALK, L. J. (1994). Meßtechnik in der Elektronik, *Vorlesungsskript, Lehrstuhl Elektronik BUGH Wuppertal*, S. 12-22, S. 35-38.
- BAMFORD, D. J., L. E. Jusinski, und W. K. Bishel (1986). Absolute two-photon absorption and three-photon ionization cross sections for atomic oxygen, *Phys. Rev. A* **34**, S. 185-198.
- BEHLE, St. A. Brockhaus und J. Engemann (1999). Time-resolved investigations of Pulsed microwave excited plasmas, zur Veröffentlichung angenommen, *Plasma Sources Sci. & Technol.*
- BEHLE, St. A. Georg, Y. Yuan, J. Engemann and A. Brockhaus, Characteristics of pulsed microwave excited plasma studied by time-resolved diagnostics (1998), *Sixth International Conference on Plasma Engineering (PSE'98)*, Garmisch-Partenkirchen.
- BEHLE, St., A. Georg, M. Gülzow, S. Lagrou, J. Engemann und A. Brockhaus (1997c). Time-resolved investigations of pulsed microwave excited plasma, *Abstracts 44th National Symp., American Vacuum Society, San Jose*, S. 91.
- BEHLE, St., A. Georg, M. Gülzow, S. Lagrou, A. Brockhaus und J. Engemann (1997b). Time resolved measurement of electron density and -temperature in a pulsed microwave excited plasma, *Frontiers in Low Temperature Plasma Diagnostics II: Papers*, Bad Honnef, S. 91.
- BEHLE, St., A. Georg, Y. Yuan, J. Engemann und A. Brockhaus (1997a). Imaging of atomic oxygen in a microwave excited oxygen plasma with two-dimensional optical emission spectroscopy, *Surface and Coatings Technol.* **97**, S. 734-741.
- BEHNISCH, J., F. Mehdorn, A. Holländer und H. Zimmermann (1998). Mechanistic approach to the plasma polymerization of acrylic acid by a pulsed MW (ECR) plasma, *Surface and Coatings Technology* **98**, S. 875-878.
- BIRDSALL, C. K. und A. B. Langdon (1991). *Plasma Physics via Computer Simulation*, Adam Hilger, Bristol.
- BISCHEL, W. K., D. J. Bamford, und L. E. Jusinski (1986). Absolute calibration of a fluorescence collection system by Raman scattering in H<sub>2</sub>, *Appl. Opt.* **25**, S. 1215-1221.
- BISCHEL, W. K., B. E. Perry und D. R. Crosley (1981). Two-photon laser-induced fluorescence

- in oxygen and nitrogen atoms, *Chem. Phys. Lett.* **82**, S. 85-88.
- BLOYET, E., P. Leprince, M. LLamas Blasco und J. Marec (1981). Ionisation by a pulsed plasma surface wave, *Physics Letters* **83A** (8), S. 391-392.
- BÖHLE, A., O. Ivanov, A. Kolisko, U. Kortshagen, H. Schlüter and A. Vikharev (1996). Pulsed discharges produced by high-power surface waves, *J. Phys. D:* **29**, S. 369-377.
- BOOTH, J. P. und N. Sadeghi (1991). Oxygen and fluorine atom kinetics in electron cyclotron resonance plasmas by time-resolved actinometry, *J. Appl. Phys.* **70** (2), S. 611-620.
- BOSWELL, R. W. und D. Vender (1995), An experimental study of breakdown in a pulsed Helicon plasma, *Plasma Sources Sci. Technol.* **4**, S. 534-540.
- BOSWELL, R. W. und D. Vender (1991). Simulation of pulsed electropositive and electronegative plasmas, *IEEE Trans. on Plasma Science* **19**(2), S.141-143.
- BOUCHOULE, A., A. Plain, L. Boufendi, J. Ph. Blondeau und C. Laure (1991). Particle generation and behaviour in a silane-argon low pressure discharge under continuous or pulsed radio-frequency excitation, *J. Appl. Phys. D: Appl. Phys* **70**(4), S. 1991-2000.
- BOUGDIRA, J., G. Henrion und Michel Fabry (1991). Effects of hydrogen on iron nitriding in a pulsed plasma, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **24**, S. 1076-1080.
- BRAITHWAITE, N. St. J. (1990). Electron energy distribution functions in processing plasmas, *Pure&Appl. Chem.* **62**(9), S. 1721-1728.
- BRAKE, M., J. Hinkle, J. Asmussen, M. Haeley und R. Kerber (1983). Dissociation and recombination of oxygen atoms produced in a microwave discharge. Part I Experiment, *Plasma Chemistry and Plasma Processing* **3**(1), S. 63-78.
- BRAKE, M. und R. Kerber (1983). Dissociation and recombination of oxygen atoms produced in a microwave discharge. Part II theoretical calculations, *Plasma Chemistry and Plasma Processing* **3**(1), S. 79-95.
- BROCKHAUS, A., St. Behle, A. Georg und J. Engemann (1998). Ignition phase of a pulsed microwave excited oxygen plasma, *Les Editions de Physique IV* **8**, S. 297-306.
- BROCKHAUS, A., Y. Yuan, St. Behle und J. Engemann (1996). Determination of chemically active species in a novel microwave plasma source by laser-induced fluorescence, *J. Vac. Sci. Technol. A.* **14**, S. 1882-1887.
- BROCKHAUS, A., D. Korzec, F. Werner, Y. Yuan und J. Engemann (1995). Characterization of a microwave plasma by in situ diagnostics, *Surf. and Coat. Tech.* **74-75**, S. 431-442.
- BROCKHAUS, A., C. Borchardt und J. Engemann (1994). Langmuir probe measurements in commercial plasma plants, *Plasma Sources Sci. Technol* **3**, S. 539-544.
- BROWN, S.C. (1978). *A short history of gaseous electronics*, in: Gaseous Electronics Vol. 1

- Electric discharges, Hrsg. M. N. Merle und H. J. Oskam, Academic Press Inc., New York.
- CHAPMAN, B. (1980). Glow Discharge Processes: Sputtering and Plasma Etching, *John Wiley & Sons*, New York.
- CHARLES, C. und R. W. Boswell (1995). Breakdown, steady-state, and decay regimes in pulsed oxygen helicon diffusion plasmas, *J. Appl. Phys.* **78**(4), S. 766-773.
- CHEN, F. F. (1985). *Introduction to plasma physics and controlled fusion Volume 1: Plasma Physics*, 2'te Auflage, Plenum Press, New York.
- CICALA, G., M. Losurdo, P. Capezzuto und G. Bruno (1992). Time-resolved optical emission spectroscopy of modulated plasmas for amorphous silicon deposition, *Plasma Sources Sci. Technol* **2**, S.156-165.
- COLLART, E. J. H., J. A. G. Baggermann und R. Visser (1995). On the role of atomic oxygen in the etching of organic polymers in a radio-frequency oxygen discharge, *J. Appl. Phys.* **78**, S. 47-54.
- COLLART, E. J. H., J. A. G. Baggermann und R. Visser (1991). Excitation mechanisms of oxygen atoms in a low pressure O<sub>2</sub> radio-frequency plasma, *J. Appl. Phys.* **70**, S. 5278-5281.
- CONRADS, H. et al. (1995). *Stand und Perspektiven der Plasmatechnologie*, Untersuchung im Auftrage des Bundesministeriums für Bildung Forschung und Technologie, Abschlußbericht des Projektes PTSP-94, FKZ 13N6182 an das BMBF.
- CONWAY, G. D., A. J. Perry und R. W. Boswell, Evolution of ion and electron energy distributions in pulsed helicon plasma discharges (1998). *Plasma Sources Sci. Technol.* **7**, S. 337-347.
- COURTEILLE, C., J.L. Dorier, Ch. Hollenstein, L. Sansonnens und A. A. Howling (1996). Partial-depth modulation of anions and neutrals in low-pressure silane plasmas, *Plasma Sources Sci. Technol.* **5**, S. 210-215.
- COX, T., I. V. G. I. Deshmukh, D. A. O. Hope, A. J. Hydes, N. St. J. Braithwaite und N. M. P. Benjamin (1987). The use of Langmuir probes and optical emission spectroscopy to measure electron energy distribution functions in rf-generated argon plasmas, *J. Appl. Phys. D: Appl. Phys.* **20**, S. 820-831.
- CRAMER, W. H. (1959). Elastic and Inelastic Scattering of Low-Velocity Ions: Ne<sup>+</sup> in A, A<sup>+</sup> in Ne, and A<sup>+</sup> in A\*, *J. Chem. Phys.* **30**, 641-642.
- DE BENEDICTIS, S. und G. Dilecce (1996). Time resolved diagnostics for kinetic studies in N<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> pulsed rf discharges, *J. Phys. III France* **6**, S. 1189-1204.
- DE BENEDICTIS, S. und G. Dilecce (1995). Laser-induced fluorescence measurements of He(2<sup>3</sup>S) decay in He-N<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> pulsed RF discharges: Penning ionization, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **28**, S. 2067-2076.

- DE BENEDICTIS, S., G. Dilecce and M.Simek (1993). Time-resolved LIF spectroscopy on N<sub>2</sub> (A) metastable in a He / N<sub>2</sub> pulsed RF discharges, *Chemical Phys.* **178**, S. 547 - 560.
- DEMTRÖDER, W. (1991). *Laserspektroskopie: Grundlagen und Techniken*, 2. überarb. und erw. Aufl., Springer, Berlin.
- DILECE, G. und S. de Benedictis (1993). Relaxation of the electron energy in the post-discharge of an He-N<sub>2</sub> mixture, *Plasma Sources Sci. Technol* **2**, S.119-122.
- DING, G., J. E. Scharer, und K. L. Kelly (1998). Effects of rapidly decaying plasmas on Langmuir probe measurements, *J. Appl. Phys.* **84**(3), S. 1236-1240.
- DJUROVIC, S., J. R. Roberts, M. A. Sobolewski und J. K. Olthoff (1993). Absolute spatially- and temporally-resolved optical emission measurements of Rf glow discharges in argon, *J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol.* **98**, S. 195-179.
- DÖBELE, H. F. (1995). *Methoden der optischen Plasmadiagnostik für technische Plasmen*, in: Vakuum Beschichtung 1: Plasmaphysik-Plasmadiagnostik-Analytik, Hrsg. H. Frey, VDI-Verlag, Düsseldorf, S. 173-232.
- DREYFUS, R. W., J. M. Jasinski, R. E. Walkup und G. S. Selwyn (1985). Optical diagnostics of low pressure plasmas, *Pure & Appl. Chem.* **57**(9), S. 1265-1276.
- DRUYVESTEYN, M. J. (1930). Der Niedervoltbogen, *Z. Phys.* **64**, S.781-798.
- DYER, M. J. und D. R. Crosley (1982). Two-dimensional imaging of OH laser-induced fluorescence in a flame, *Optics Letters* **7**, S.382-384.
- ENGEMANN, J., M. Schott, F. Werner, und D. Korzec (1995a). Large volume electron cyclotron resonance plasma generation by use of the slotted antenna microwave source, *J. Vac. Sci. Technol. A* **13**, S. 875-882.
- ENGEMANN, J. (1995b). Plasmabasierte Verfahrenstechniken: Grundlagen, Anwendungen und Prozeßintegration, *Galvanotechnik* **86**, S.4034-4043.
- EGGARTER, E. (1975). Comprehensive optical and collision data for radiation action. II. Ar\*, *J. Chem. Phys.* **62**, S. 833-847.
- ERSHOV, A. und J. Borysow (1995). Dynamics of OH (X<sup>2</sup>Π, v=0) in high-energy atmospheric pressure electrical pulsed discharge, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **28**, S. 68-74.
- FERREIRA, C. M. und J. Loureiro (1983). Electron transport parameters and excitation rates in argon, *J. Phys.D: Appl. Phys.* **16**, S.1611-1621.
- FLENDER, U., B.H. Nguyen, K. Wiesemann, N. A. Khromov und N. B. Kolokolov (1996). RF harmonic suppression in Langmuir probe measurements in RF discharges, *Plasma Sources Sci. Technol.* **5**, S. 61-69.
- GARSCADDEN, A. (1978). *Ionisation waves in glow discharges*, in Gaseous Electronics Vol. 1

- Electric discharges, Hrsg. M. N. Merle und H. J. Oskam, Academic Press Inc., New York.
- GEORG, A., Ch. Soll, St. Behle, A. Brockhaus und J. Engemann (1999). Investigation of pulsed reactive Microwave plasmas by time-resolved laser-induced fluorescence, *Frontiers in Low Temperature Plasma Diagnostics III*, Book of Papers, S. 233- 236.
- GEORG, A., St. Behle, V. Wingsch, A. Brockhaus und J. Engemann (1997). Characterization of a pulsed inductively-coupled rf plasma by time-resolved electrical and optical measurements, *Proc. 12'th international conference on gas discharges GD'97 Vol. I*, Greifswald, S. 366- 369.
- GILARDINI, A. (1972). Low energy electron collisions in gases: Swarm and Plasma methods applied to their study, *J. Wiley & Sons, Inc.*, New York.
- GLANZ, J. (1996). *The pervasive plasma state*, Division of Plasma Physics of the American Physical Society, Austin.
- GLEIZES, A., F. Mbolidi und A. A. Habib (1993). Kinetic model of a decaying SF<sub>6</sub> plasma over the temperature range 12000 K to 3000 K, *Plasma Sources Sci. Technol* **2**, S.173-179.
- GOECKNER, M. J., S. M. Malik, J. R. Conrad und R. A. Breun (1994). Laser-induced fluorescence measurement of the dynamic of a pulsed planar sheath, *Phys. Plasmas*, **1**(4), S. 1064-1074.
- GOLDSMITH, J. E. M. (1987). Photochemical effects in two-photon-excited fluorescence detection of atomic oxygen in flames, *Appl. Opt.* **26**, S. 3566-3572.
- GÖPPERT-MAYER, M. (1931). Über Elementarakte mit zwei Quantensprüngen, *Ann. Physik* **9**, 273.
- GREENBERG, K. E. und G. A. Hebner (1993). Electron and metastable densities in parallel-plate radio-frequency discharges, *J. Appl. Phys.* **73**, S. 8126-8133.
- GRIEM, H. R. (1964). *Plasma Spectroscopy*, Mc Graw-Hill, New York.
- GODYAK, V. A., R. B. Piejak und B. M. Alexandrovich (1995). The electron-energy distribution function in a shielded argon radio frequency inductive discharge, *Plasma Sources Sci. Technol.* **4**, S. 332-336.
- GODYAK, V. A., R. B. Piejak und B. M. Alexandrovich (1993). Probe diagnostics of non-Maxwellian plasmas, *J. Appl. Phys.* **73**, S. 3657-3663.
- GODYAK, V. A., R. B. Piejak und B. M. Alexandrovich (1992). Measurements of electron energy distribution in low-pressure RF discharges, *Plasma Sources Sci. Technol.* **1**, S. 36-57.
- GOTTSCHO, R. A. und T. A. Miller (1984). Optical techniques in plasma diagnostics, *Pure&Appl. Chem.* **56**, S.189-208.



- 
- HANCOCK, G. (1995). Diagnostics of active species in plasmas, *Surf. and Coat. Tech.* **74-75**, S. 10-14.
- HAYASHI, M. (1981). Recommended values of transport cross sections for elastic collisions and total collision cross section for electrons in atomic and molecular gases, *Nagoya Institute of Technology IPPJ-AM-19*, S.20-21, S.30-31.
- HEALD, M. A. und C.B. Wharton (1978). *Plasma diagnostics with microwaves*, Robert E. Krieger Publishing Company, Huntington.
- HEBNER, G. A. und C. B. Fleddermann, Characterization of pulse-modulated inductively coupled plasmas in argon and chlorine (1997). *J. Appl. Phys.* **82**, S. 2814-2821.
- HEMING, M., B. Danielzik, J. Otto, V. Paquet und Ch. Fattinger (1992a). Plasma impulse CVD deposited TiO<sub>2</sub> waveguiding films: properties and potential applications in integrated optical sensor systems, *Mat Res. Soc. Symp. Proc.*, **276**, S.117-123.
- HEMING, M., J. Hochaus, J. Otto und J. Segner (1992b). Plasma impulse chemical vapour deposition- A novel technique for optical coatings, *5<sup>th</sup> International Conference on Optical Coatings*, Tucson, S.296-298.
- HENRION, G., M. Fabry, R. Hugon und J. Bougdira (1992). Spectroscopic investigation of a temporal post-discharge plasma for iron nitriding, *Plasma Sources Sci. Technol* **2**, S.119-122.
- HERSHKOWITZ, N. und H. L. Maynard (1993). Plasma characterization and process control diagnostics, *J. Vac. Sci. Technol. A* **11**, S.1172-1178.
- HOPKINS, M. B., and W. G. Graham (1991). Time-resolved electron energy distribution function measurements in a pulsed magnetic multipole hydrogen discharge, *J. Appl. Phys.* **69**, S. 3461-3466.
- HOTSTON, E. und M. Seidel (1964). A microwave interferometer for the measurement of small phase angles, *J. Sci. Instrum.* **42**, S. 225-230.
- HUGON, R., G. Henrion und M. Fabry (1996). Time-resolved determination of the electron energy distribution function in a DC pulsed plasma, *Meas. Sci. Technol.* **7**, S. 553-559.
- HUGON, R., G. Henrion und F. Fabry (1993). Diagnostics on a d.c pulsed-plasma-assisted nitriding process, *Surface and Coatings Technology*, **59**, S.82-85.
- HWANG, G. S., J. Kenny, K. P. Giapis (1997). Reduction of charging damage in pulsed plasma etching: negative ions vs. electrons, *Abstracts 44st National Symp., American Vacuum Society, 20-24 Oktober, San Jose*, S. 90.
- KERSTEN, R. Th., J. Otto und V. Paquet (1991). Thick coatings of doped synthetic silica glass by plasma impulse CVD, *the Centennial Memorial Issue of the Ceramic Society of Japan*, **99**(10), S.894-902.

- KONO, A., A. Haverlag, G.M.W. Kroessen und F. J. de Hoog (1991). Temporal behaviour of the electron and negative ion densities in a pulsed radio-frequency  $\text{CF}_4$  plasma, *J. Appl. Phys.* **70**, S.2939-2946.
- KORTSHAGEN, U., I. Pukropski und M. Zethoff (1994a). Spatial variation of the electron distribution function in a rf inductively coupled plasma: Experiment and theoretical study, *J. Appl. Phys.* **76**, S. 2048-2058.
- KORTSHAGEN, U., A. Shivarova, E. Tatarova und D. Zamfirov (1994b). Electron energy distribution function in a microwave discharge created by propagating surface waves, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **27**, S. 301-311.
- KORTSHAGEN, U., I. Pukropski und M. Zethoff (1994a). Spatial variation of the electron distribution function in a rf inductively coupled plasma: Experimental and theoretical study, *J. Appl. Phys.* **76**, S. 2048-2058.
- KORTSHAGEN, U., A. Shivarova, E. Tatarova und D. Zamfirov (1994b). Electron energy distribution function in a microwave discharge created by propagating surface waves, *Phys. D: Appl. Phys.* **27**, S. 301-311.
- KORTSHAGEN U. (1993). A non-local kinetic model applied to microwave produced plasmas in cylindrical geometry, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **26**, S.1691-1699.
- KORTSHAGEN, U., H. Schlüter und A. Shivarova (1991a). Determination of electron energy distribution functions in surface wave produced plasmas: I. Modelling, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **24**, S. 1571-1584.
- KORTSHAGEN, U. und H. Schlüter (1991b). Determination of electron energy distribution functions in surface wave produced plasmas: II. Measurements, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **24** (1991), S. 1585-1593.
- KORZEC, D., F. Werner, R. Winter und J. Engemann (1996). Scaling of microwave slot antenna (SLAN): a concept for efficient plasma generation, *Plasma Sources Sci. Technol.* **5**, S. 216-234.
- KREHER, J., Pfau S. und M. Stieber (1994). Beiträge zur Auswertung und physikalischen Interpretation von Sondenkennlinien, *BMFT- Forschungsbericht (13 N 5975)*, Greifswald.
- LAFRAMBOISE, J. G. (1966). Theory of spherical and cylindrical Langmuir Probes in a collisionless Maxwellian plasma at rest, *Inst. of Aerospace Studies Utias Report No. 100*, University of Toronto.
- LATHER, R. R. und F. R. Gilmore (1990). Updated excitation and ionization crosssections for electron impact an atomic oxygen, *J. Phys. Chem. Ref. Data* **19**, S.277-305.
- LEE, C. und M. A. Lieberman (1995). Global Model of Ar,  $\text{O}_2$ ,  $\text{Cl}_2$ , and Ar/ $\text{O}_2$  high-density plasma discharges, *J. Vac. Sci. Technol. A* **13**(2), S. 368-380.

- LEE, C., D. B. Graves, M. A. Lieberman und D. W. Hess (1994). Global model of plasma chemistry in a high density oxygen discharge, *J. Electrochem. Soc.* **141**(6), S. 1546-1555.
- LIEBERMAN, M. A., R. W. Boswell, C. Charles, A. Durandet, S. Hatch und H. Smith (1997). pulsed-power processing discharges for materials processing. *Abstracts 44st National Symp., American Vacuum Society, 20-24 Oktober, San Jose*, S. 90.
- LIEBERMAN, M. A. und S. Ashida (1996). Global model of pulse-power-modulated high density, low-pressure discharges, *Plasma Sources Sci. Technol.* **5**, S. 145-158.
- LIEBERMAN, M. A. und A. J. Lichtenberg (1994). *Principles of Plasma Discharges and Materials Processing*, J. Wiley & Sons Inc., New York.
- LOCHE-HOLTGREVEN, W. (1995). *Evaluation of plasma parameters*, in: Plasma Diagnostics, Hrsg.: W. Lochte-Holtgreven, WAIP Press, New York, S. 136ff.
- MURAOKA, K., C. Honda, K. Uchino, T. Kjiwara, K. Matsuo, M. Bowden, W. Z. Park, Y. Hirakawa, K. Tanaka, M. Maeda, und T. Okada (1992). Laser Diagnostics of edge plasmas and laser diagnostics of plasmas for industrial applications, *Rev. Sci. Instrum.* **63**, S.4913-4919.
- MCDANIEL, Earl W.,(1989). *Atomic collisions: Electron and Photon Projectiles*, J. Wiley & Sons, Inc., New York.
- MCDANIEL und Mason (1972). *The Mobility and Diffusion of Ions in Gases*, J. Wiley & Sons, Inc., New York.
- MCDANIEL, Earl W., (1964). *Collision Phenomena in Ionized Gases*, J. Wiley & Sons, Inc., New York.
- MACDONALD, A. D. und S. J. Tetenbaum (1978). *High Frequency and Microwave Discharges*, in: Gaseous Electronics Vol. 1 Electric discharges, Hrsg.: M. N. Merle und H. J. Oskam, Academic Press., New York.
- MACDONALD, A. D. (1966). *Microwave Breakdown in Gases*, J. Wiley & Sons, Inc., New York.
- MACKIE M. N., D. G. Castner und E. R. Fisher (1998). Characterization of pulsed-plasma-polymerized aromatic films, *Langmuir* **14**, S. 1227-1235.
- MACLEOD, H. A. (1969). *Thin-film Optical filters*, American Elsevier Publishing Company Inc., New York.
- MATSUSHITA, J., K. Sasaki und K. Kadota (1997). Dynamic variation of the sticking coefficient of oxygen atoms in helicon-wave excited high-density oxygen plasmas, *Jpn. J. Appl. Phys.* **36**, S. 4747-4751.
- MELLON, K. N., B. P. Coonan und M. B. Hopkins (1995). Spatially dependent photodetach-

- ment measurements in a low-pressure high-power modulated volume ion source, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **28**, S.473-478.
- MÖLLER, W. (1999). *Plasma Based Ion Implantation, in Advanced Technologies Based on Wave and Beam Generated Plasmas*, in: *Advanced Technologies Based on Wave and Beam excited Generated Plasmas*, Hrsg. Schlüter H. und A. Shivarova, Kluwer Academic Publishers, S. 191-244.
- MOISAN, M. und J. Pelletier (1992). *Microwave excited plasmas*, Elsevier, Amsterdam.
- MOISAN, M. und M. R. Wertheimer (1991). Comparison of microwave and R.F. plasmas: fundamentals and applications, *Surface and Coatings Technology* **59**, S. 1-13.
- MOISAN, M. C. Barbeau, R. Claude, C. M. Ferreira, J. Margot, J. Paraszczak, A. B. Sá, G. Sauvé und M. R. Wertheimer (1990). Radio frequency or microwave plasma reactors? Factors determining the optimum frequency of operation, *J. Vac. Sci. Technol B* **9**, S. 8-25.
- MORIOKA, H., D. Matsunaga und H. Yagi (1998). Suppression of notching by lowering the bias frequency in electron cyclotron resonance plasma with a divergent magnetic field, *J. Vac. Sci. Technol. A* **16**(3), S. 1588-1593.
- MOSBACH, T., H-M. Katsch und H. F. Döbele (1998). Temporal behaviour of the H-minus density in a pulsed multipole discharge investigated by the photodetachment technique, *Plasma Sources Sci. Technol.* **7**, S. 75-81.
- MOTT-SMITH, H. und I. Langmuir (1926). The Theory of collectors in gaseous discharges, *Phys. Rev.* **28**, S. 727.
- NAKANO, T., N. Sadeghi und R. A. Gottscho (1991). Ion and neutral temperatures in electron cyclotron plasma reactors, *Appl. Phys. Lett.* **58**, S.458-460.
- NEUMANN, G., U. Bänzinger, M. Kammeyer und M. Lange (1993). Plasma-density measurements by microwave interferometry and Langmuir probes in an rf discharge, *Rev. Sci. Instrum.* **64**, S. 19-25.
- NEUERT, H. (1984). *Atomare Stoßprozesse*, B.G. Teubner, Stuttgart.
- NINGEL, K.-P. (1998). *Plasmapolymerization: Untersuchung von Direkt- und „remote“-Prozessen mit hoher Depositionsrates zur großflächigen Abscheidung homogener Schichten*, Verlag Mainz, Aachen.
- NORMAND, F., A. Garnier, P. Leprince, J. Marec, M. K. Shi und F. Clouet (1995). Polymer treatment in the flowing afterglow of an oxygen microwave discharge: active species profile concentrations and kinetics of the functionalization, *Plasma Chemistry and Plasma Processing* **15**, S. 173-198.
- NORMAND, F., J. Marec, Ph. Leprince und A. Granier (1991). Surface treatment of polypropylene by oxygen microwave discharge, *Materials Science and Engineering A***139**, S. 103-109.

- OTTO, J., V. Paquet, R. Th. Kersten und H.-W. Etzkorn (1990). Radio frequency and microwave plasma for optical thin film deposition, *SPIE 1323 Optical Thin Films III: New Developments*, S.39-50.
- OVERZET, J. L. und J. Kleber (1998). Effect of metastable atom reactions on the electron energy probability functions in afterglows, *Plasma Sources Sci. Technol.* **7**, S. 512-523.
- OVERZET, J. L. (1995). Microwave diagnostic results from the gaseous electronics conference RF reference Cell, *J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol.* **100**, S. 401-414.
- OVERZET, L. J. und M. B. Hopkins (1993a). Comparison of electron-density measurements made using a Langmuir probe and microwave interferometer in the gaseous electronics conference reference reactor, *J. Appl. Phys.* **74**(7), S. 4323-4330.
- OVERZET, L. J. und M. B. Hopkins (1993b). Spatial variations in the charge density of argon discharges in the gaseous electronics conference reference reactor, *Appl. Phys. Lett.* **63** (18), S 2484-2486.
- ÖZLÜK, S. (1999). Entwicklung eines planaren optischen Emissionsspektroskopieverfahrens zur Untersuchung von Argon mit Hilfe einer ICCD Kamera, *Diplomarbeit Fachbereich Elektrotechnik*, Forschungszentrum für Mikrostrukturtechnik, Bergische Universität GH Wuppertal.
- PARK, Y. J., P. O’Keeffe, K. Ozasa, H. Mutoh, Y. Aoyagi und S.-K. Min (1997). Oxygen atomic flux O\* enhancement by gas-pulsed electron cyclotron resonance plasma, *J. Appl. Phys.* **81**, S.2114-2118.
- PERES, I. und M. J. Kushner (1993). Pulsed plasma methods in remote plasma enhanced chemical vapour deposition, *IEEE Int. Conf. on Plasma Science ‘93*, IEEE Conference Record-Abstracts, Piscataway, New York, S. 226
- PETERSON, L. R. und J. E. Allen (1972). Electron impact cross sections for argon\*. *J. Chem. Phys.* **56**, S. 6068-6076.
- PEZÉ, P., A. Paillous, J. Siffre, B. Dubreuil (1992). Quantitative measurements of oxygen atom density using LIF, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **26**, S. 1622-1629.
- PLANCK, H. (1999). Materialien für medizinische Anwendungen, *9. BFPT 3-5. März Stuttgart Tagungsband*. S. 15.
- POPP, H.-P. (1999) Lichtquellen, *9. BFPT 3-5. März Stuttgart Tagungsband*, S.11.
- PRINCETON INSTRUMENTS (1994). High performance digital CCD cameras, *Princeton Instruments Catalogue*, Trenton, S. 20, S.29, S.45-53.
- RAPP, D. und P. Englandert-Golden (1965). Total cross sections for ionization and attachment in gases by electron impact. I. Positive ionization, *J. Chem. Phys.* **43**, S. 1464-1479.

- ROTH, J. R. (1995). *Industrial Plasma Engineering*, Volume 1 Principles, IOP Publishing Ltd, Bristol.
- ROUSSEAU, V., C. Boisse-Laporte, Ph. Leprince und J. Marec (1994). Electron density determination using phase measurement in a pulsed surface wave discharge at high pressure, *J. Appl. Phys.* **75** (3), S. 1846-1848.
- SARFATY, M., C. Baum, M. Harper, N. Hershkowitz und J. L. Shohet (1998). Real-time determination of plasma etch-rate selectivity, *Plasma Sources Sci. Technol.* **7**, S. 581-589.
- SAMUKAWA, S. und T. Tsukada (1997). Essential points for precise etching processes in pulse-time-modulated ultrahigh-frequency plasma, *J. Vac. Sci. Technol. A* **15**, S. 391-397.
- SAMUKAWA, S. und T. Mieno (1996). Pulse-time modulated plasma discharge for highly selective, highly anisotropic and charge-free etching, *Plasma Sources Sci. Technol.* **5**, S. 132-138.
- SAMUKAWA, S. (1994). Pulse-time-modulated electron cyclotron resonance plasma etching for highly selective, highly anisotropic, and notch-free polycrystalline silicon patterning, *Appl. Phys. Lett.* **64** (25), S. 3398-3400.
- SAMUKAWA, S. und S. Furuoya (1993). Time-modulated electron cyclotron resonance plasma discharge for controlling generation of reactive species, *Appl. Phys. Lett.*, **63**, S. 2044-2046.
- SAMUKAWA, S. (1993). Time-Modulated electron cyclotron resonance plasma discharge for controlling the polymerization in SiO<sub>2</sub> etching, *Jpn. J. Appl. Phys.* **32**, S. 6080-6087.
- SCHILLER, S. (1997). Pulsed Plasma Technology - A new era of PVD-Technology, *Proc. of the 4th ISSP*, S. 666-676.
- SCHULMAN, M. B., F. A. Sharpton, S. Chung, C. C. Lin und L. W. Anderson (1985). Emission from oxygen atoms produced by electron-impact dissociative excitation of oxygen molecules, *Physical Review A* **32**, S. 2100-2116.
- SCHWABEDISSEN A., C. Soll, A. Brockhaus und J. Engemann (1999). Electron density measurements in a slot antenna microwave plasma source by means of the plasma oscillation method *Plasma Sources Sci. Technol.* **8**, S. 440-447.
- SCHWABEDISSEN A., E. C. Benck und J. R. Roberts (1998). Comparison of electron density measurements in planar inductively coupled plasmas by means of the plasma oscillation method and Langmuir probes. *Plasma Sources Sci. Technol.* **7**, S.119-129.
- SEMENOV V. E. (1982). Breakdown wave in the self-consistent field of an electromagnetic wave beam. *Sov. J. Plasma Phys.* **8**, S. 347-350.
- SHATAS, A. A., Y. Z. Hu und E. A. Irene (1992). Langmuir probe and optical emission studies of Ar, O<sub>2</sub>, and N<sub>2</sub> plasmas produced by an electron cyclotron resonance microwave source, *J. Vac. Sci. Technol. A* **10**, S. 3119-3124.

- SMITH, B.A., und L. J. Overzet (1998). Improvements to the floating double probe for time-resolved measurements in pulsed rf plasmas, *Rev. Sci. Instrum.* **69**, S. 1372-1377.
- SMITH, B.A., und L. J. Overzet (1999). Observation of the ion-ion transition in an SF<sub>6</sub> discharge using a fast floating double probe, *Plasma Sources Sci. Technol.* **8**, S. 70-78.
- SMITH H.B., D. Vender und R.W. Boswell (1997a). Simulation of plasma breakdown in a low pressure rf plasma, conference paper, S. 99-100.
- SMITH, H. B., C. Charles und R. W. Boswell (1997b). Bias formation in a pulsed radio frequency argon discharge, *J. Appl. Phys.* **82**, S. 561-565.
- SÖDER, B.(1999). Plasmagestützte Großflächenabscheidung, 9. BFPT 3-5. März Stuttgart, Tagungsband, S. 7.
- SOLTWITSCH, H. und M. Kaczor (1999). Potential and limitations of Thomson Scattering in reactive plasmas, *Frontiers in Low Temperature Plasma Diagnostics III*, Book of Papers, S. 9- 15.
- SPATSCHEK, K. H. (1990). *Theoretische Plasmaphysik: Eine Einführung*, B.G. Teubner, Stuttgart.
- SPRANG, N., D. Theirich und J. Engemann (1995). Plasma and Ion Beam Surface Treatment of Polyethylene, *Surface and Coatings Technology* **74-75**, S. 689-695.
- STRIGANOV, A. R. und N.S. Sventitskii (1968). *Tables of spectral lines of neutrals and ionized atoms*, IFI/Plenum, New York.
- STRÜDER, L. und C. Zanthier (1998). Elektronische Bildwandlung, *Phys. Bl.* **54**, S. 519-523.
- SUGAI, H., K. Nakamura, Y. Hikosaki und M. Nakamura (1995). Diagnostics and control of radicals in an inductively coupled etching reactor, *J. Vac. Sci. Technol. A* **13**, S. 887-893.
- SUZUKI, C. und K. Kadota (1995). Space- and time-resolved measurements of CF and CF<sub>2</sub> radicals in high density CF<sub>4</sub> plasmas by laser-induced fluorescence, *Appl. Phys. Lett.* **67**, S. 2569-2571.
- TOMASINI, L., A. Rousseau, G. Baravian, G. Gousset, und P. Leprince (1996). Laser induced stimulated emission for hydrogen atom density measurements in a hydrogen pulsed microwave discharge, *Appl. Phys. Lett.* **69**, S. 1553-1555.
- TRENNEPOHL, Jr., W., J. Bretagne, G. Gousset, D. Pagnon und M. Touzeau (1996). Modelling of an Ar-O<sub>2</sub> reactive magnetron discharge used for deposition of chromium oxide, *Plasma Sources Sci. Technol.* **5**, S. 607-621.
- TSEREPI, A. D., J. Derouard, J. P. Booth und N. Sadeghi (1996). CF<sub>2</sub> kinetics and related mechanisms in the presence of polymers in fluorocarbon plasmas, *J. Appl. Phys.* **81**, S. 2124-2130.
- TSEREPI, A. D. und T. A. Miller (1995). Spatially and temporally resolved absolute O-atom

- concentrations in etching plasmas, *J. Appl. Phys.*, **77**, S. 505-511.
- TUSZEWSKI, M. und J. A. Tobin (1996). The accuracy of Langmuir Probe ion density measurements in low-frequency RF discharges, *Plasma Sources Sci. Technol.* **5**, S. 640-647.
- UCHIDA, T., K. Senda, G. K. Vinogradov, S. Morita (1996). Plasma polymerized acetylene thin film by pulsed discharge, *Thin Solid Films* **281-282**, S. 536-538.
- VAHEDI, V., G. DiPeso, C. K. Birdsall, M. A. Lieberman und T. D. Rognlien (1993a). Capacitive rf discharges modelled by particle-in-cell Monte Carlo simulation. I: analysis of numerical techniques, *Plasma Sources Sci. Technol.* **2**, S. 261-272.
- VAHEDI, V., C. K. Birdsall, M. A. Lieberman, G. DiPeso und T. D. Rognlien (1993b). Capacitive rf discharges modelled by particle-in-cell Monte Carlo simulation. II. comparisons with laboratory measurements of electron energy distribution functions, *Plasma Sources Sci. Technol.* **2**, S. 273-278.
- VISSER, R. J., J. A. G. Baggermann, J. P. Poppelaars und J. H. Collart (1992). The time evolution of the ion density and gas temperature in a pulsed radio frequency plasmas, *J. Appl. Phys.*, **71**(12), S. 5792-5798.
- VON ENGEL, A. (1983). *Electric plasmas: Their nature and uses*, Taylor & Francis Ltd., London.
- VUJNOVC, V. und W.L. Wiese (1992). A critical compilation of atomic transition probabilities for singly ionized argon, *J. Phys. Chem. Ref. Data.* **21**, S. 919-939.
- WALTER, M. (1999). *ECAD mikrowellenangeregter Plasmaquellen*, Dissertationsschrift Fachbereich Elektrotechnik, BUGH Wuppertal.
- WALTER, M., D. Korzec, M. Hütten und J. Engemann (1997). Computer-aided design of microwave plasma sources: potential and applications, *Jpn. Appl. Phys.* **36**, S. 4777-4783.
- WATANABE, Y., M. Shiratani, Y. Kubo, I. Ogawa und S. Ogi (1988). Effects of low-frequency modulation on rf discharge chemical vapour deposition, *Appl. Phys. Lett.* **53**, S. 1263-1265.
- WATANABE, Y., M. Shiratani, S. Ogi und N. Kunihiro (1987). Study on electron density dependence of metastable Ar<sup>+</sup> density in pulsed-discharge plasma by using LIF method, *Jpn. J. Appl. Phys.* **26**, S. 184-185.
- WIESEMANN, K. (1976). *Einführung in die Gaselektronik*, B. G. Teubner, Stuttgart.
- WINKLER, R., H. Deutsch, J. Wilhelm und Ch. Wilke (1984). Electron kinetics of weakly ionized plasmas I. Direct treatment and Fourier expansion, *Beitr. Plasmaphys.* **24**, S. 285-302.
- WINKLER, R., M. Capitelli, M. Dilonardo, C. Gorse und J. Wilhelm (1986). Electron kinetics of weakly ionized collision-dominated RF plasmas in CO, *Plasma Chemistry and Plasma Processing* **6**, S. 437-456.



- 
- WERNER, F. (1997). *Großvolumige 2,45-GHz- Mikrowellenplasmaquelle nach dem Schlitzantennenprinzip (SLAN)*, Fortschritt-Berichte Reihe 21: Elektrotechnik, Nr. 221, VDI-Verlag, Düsseldorf.
- WERNER, F., D. Korzec und J. Engemann (1996). Surface Wave Operation Mode of the Slot Antenna Microwave Plasma Source SLAN, *J. Vac. Sci. Technol. A* **14**, S. 3065-3070.
- WILLIAMS, J. A. (1979). Ion collection by cylindrical Langmuir probes in a strong axial magnetic field, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **7**, S.2205-2217.
- WOOD, B.P., M. A. Lieberman, A. J. Lichtenberg (1991). Sheath Motion in a Capacitively Coupled Radio Frequency Discharge, *IEEE Trans. Plasma Sci.* **19**, S. 619-627.
- WYSONG, L.J., J.B. Jeffries und D.R. Crosley (1989). Laser-induced fluorescence of O( $3p^3P$ ), O<sub>2</sub> and NO near 226 nm: Photolytic Interferences and Simultaneous Excitation in Flames, *Opt. Lett.* **14**, S. 767-769.
- ZAKRZEWSKI, Z., M. Moisan, J. Margot und G. Sauvé (1992). Spatial distributions of electron density and electric field in discharges sustained within microwave circuits, *Plasma Sources Sci. Technol.* **1**, S. 28-35.

---

## Danksagung

In erster Linie danke ich meinem Doktorvater Herrn Prof. Dr. Dr. h.c. J. Engemann, der durch seine tatkräftige ideelle und materielle Unterstützung wesentlich zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen hat.

Ebenfalls danke ich Herrn Prof. Dr. Döbele für die Übernahme des Koreferates.

Für die wohlwollende finanzielle Förderung möchte ich mich stellvertretend für den gesamten Vorstand des Graduiertenkollegs Hochtemperaturplasmaphysik bei den Leitern des Graduiertenkollegs Herrn Prof. Dr. K. H. Spatschek und Herrn Prof. Dr. W. Kies bedanken. Ohne die bereitwillige Unterstützung des wissenschaftlichen Austausches durch das Graduiertenkolleg wäre diese Arbeit so nicht zustandegekommen.

Mein besonderer Dank gilt dem Leiter der Plasmadiagnostikgruppe Dr. Albrecht Brockhaus und den Kollegen Axel Georg, Frank Osenberg und Dr. Axel Schwabedissen für die kritischen Diskussionen und die sorgfältige Durchsicht meiner Arbeit.

Bei Herrn M. Friederichs bedanke ich mich für seine Soft- und Hardware „Hot-Line“, ohne die so manch ein Bit seinen Weg nicht auf dieses Papier gefunden hätte und bei den Herren der „Technik“ G. Kaul, K.-H. Schumann und K.-H. Weggässer für Ihren Beistand.

Weiter gilt mein Dank den ehemaligen Studenten des *fmt*'s, die im Rahmen ihrer durch mich betreuten Studien- und Diplomarbeiten, bzw. als studentische Hilfskraft, mit zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben, namentlich: Marc Gültzow, Andreas Küchenhoff, Said Lagrou, Seyffertim Özlük, und Omid Yaghootfam.

Schließlich geht mein Dank an meine Eltern, die mir das Studium ermöglichten und an Elisabeth Gödde, für Ihre sorgfältige und kritische Korrektur des Manuskriptes und alle Unterstützung.

Stephan Behle

Wuppertal, September 1999