

**Dielektrisch behinderte
Barrierenentladungen
für großflächige Plasmabehandlungen**

**Dem Fachbereich
Elektrotechnik, Informationstechnik, Medientechnik
der Bergischen Universität Wuppertal
vorgelegte Dissertation zur Erlangung des akademischen Grades
eines Doktoringenieurs**

**von
Dipl.-Ing.
Emilia Gabriela Dinu
aus
Bukarest**

**Referent: Prof. Dr. Dr. h.c. Jürgen Engemann
Korreferent: Prof. Dr.-Ing. Hella-Christin Scheer
Tag der mündlichen Prüfung: 15. Juli 2005**

Wuppertal 2005

Diese Dissertation kann wie folgt zitiert werden:

urn:nbn:de:hbz:468-20050746

[<http://nbn-resolving.de/urn/resolver.pl?urn=urn%3Anbn%3Ade%3Ahbz%3A468-20050746>]

*Meinem neugeborenen Sohn, Alexandru Paul, gewidmet,
der ein neues Licht in mein Leben gebracht hat*

Inhaltsverzeichnis

Symbole und Abkürzungen	vi
Abbildungsverzeichnis	x
Tabellenverzeichnis	xviii
1 Einleitung	1
1.1 Motivation	1
1.2 Ziel der Arbeit	2
1.3 Struktur der Arbeit	3
2 Physikalische Grundlagen	5
2.1 Einleitung von Nichtgleichgewichtsplasmen	5
2.1.1 Relaxation ins thermodynamische Gleichgewicht	5
2.1.2 Gase geringer Stoßfrequenz	7
2.1.3 Lokal beschränkte Entladungen	8
2.1.4 Zeitlich transiente Plasmen	9
2.1.5 Durch andere Mechanismen unterstützte Entladungen	10
2.2 Gasentladungen	11
2.2.1 Unselbstständige Gasentladung	11
2.2.2 Durchschlag beim Nieder- und Hochdruck	12
2.2.3 Selbstständige Gasentladung	14
2.3 Dielektrisch behinderte Entladungen	15
2.3.1 Charakteristiken von DBDs	15
2.3.2 Filamentare Entladungen	16

2.3.2.1	Entladungsbildung	16
2.3.2.2	Eigenschaften der Mikroentladungen	19
2.4	Atmosphärendruck-Glimmentladungen (APGD)	20
2.5	Die Rolle der Metastabilen in APGD	21
2.6	Nachweismethoden für die Metastabilen	23
2.6.1	Elektrische Methoden	23
2.6.2	Spektroskopische Methoden	24
2.6.3	Wechselwirkungen mit Oberflächen	26
3	Planare dielektrisch behinderte Entladungen	27
3.1	Typische SBD-Entladungsstrukturen	27
3.2	Einfluss des Dielektrikums auf die Entladungseigenschaften	30
3.3	Realisierung der Struktur	31
3.4	Experimentelle Methoden	33
3.4.1	Strom-/Spannungsmessungen	34
3.4.2	Gesamtlichtemission (ICCD, Lichtdiode)	34
3.4.3	Diodenlaser-Atomabsorptionsspektroskopie	34
3.4.3.1	Absorptionsmessungen	36
3.4.3.2	Linienprofile	37
3.4.3.3	Experimenteller Aufbau für DLAAS	39
3.5	Konzepte der Spannungsversorgung	40
4	Charakterisierung des Betriebsverhaltens	44
4.1	Entladungstopologie der SBD in Luft	44
4.2	Elektrodengeometrie und Filmverschleiß	47
4.2.1	Verbesserung der Elektrodengeometrie	50
4.2.2	Vermeiden der parasitären Entladungen	51
4.3	Elektrodengeometrie und Elektrodenstrom	52
4.3.1	Elektrisches Ersatzschaltbild des Elektroden systems	52
4.3.2	Prinzip der digitalen Signalverarbeitung	57
4.4	Elektrodenversiegelung und Elektrodenstrom	60
4.5	Vergleich SBD-CBD	61
4.5.1	Schlussfolgerungen	67

5	Charakterisierung der He-Entladung	68
5.1	Mechanismen der Helium-Entladung	68
5.1.1	Ionenprozesse	68
5.1.2	Prozesse der Metastabilen	70
5.1.2.1	Diffusion der Metastabilen	72
5.1.2.2	Hohe Elektronenkonzentration	72
5.1.2.3	Niedrige Elektronenkonzentration	73
5.1.2.4	Metastabilenkonzentration	74
5.2	Entladungsstruktur der SBD	74
5.2.1	Entladungsmorphologie	75
5.2.2	Bestimmung der Elektronentemperatur	76
5.3	Konzentration der angeregten He-Atome	77
5.3.1	DLAAS	78
5.3.2	Räumliche Struktur der Absorption	79
5.3.3	Lock-in-Detektion	80
5.3.4	Effektive Absorptionslänge	80
5.3.5	Überlagerung des Laserstrahls und der Entladung	81
5.4	Zeitgemittelte Ergebnisse	83
5.4.1	Druckabhängigkeit der Metastabilenkonzentration	83
5.4.2	Horizontale Profile	84
5.4.3	Vertikale Profile	86
5.4.4	Bestimmung der Gastemperatur	86
5.5	Zeitentwicklung der Entladung	88
5.5.1	Antwort auf eine Pulsanregung	88
5.5.1.1	Strom	89
5.5.1.2	Lichtemission	90
5.5.1.3	Die Metastabilen	90
5.5.2	Muster der Lichtemission	91
5.5.2.1	Positiver Puls	98
5.5.2.2	Negativer Puls	98
5.5.2.3	Einfluss des Druckes	99

5.5.3	Zeitaufgelöste Absorptionsmessungen	100
5.5.3.1	Asymmetrie der katodischen und anodischen Halbperiode	100
5.5.3.2	Vergleich zwischen verschiedenen Absorptionslinien	100
5.5.4	Sinusanregung	103
5.6	Entladungsstruktur der CBD	103
5.7	Schlussfolgerungen	108
6	Anwendungen	109
6.1	Oberflächenbehandlung von Metallen	109
6.1.1	Die experimentelle Anordnung	110
6.1.2	Ergebnisse	111
6.1.2.1	Kontaktwinkelmessungen	111
6.1.2.2	XPS-Analyse	113
6.1.2.3	Das nasse Reiben	115
6.1.3	Schlussbemerkung	116
6.2	Oberflächenbehandlung von Polypropylen	116
6.2.1	Die experimentelle Anordnung	116
6.2.2	Kontaktwinkelmessungen	117
6.2.3	Einfluss der Behandlungszeit	117
6.2.4	Einfluss der Gasmischung	119
6.2.5	Einfluss des Abstandes von der Elektrode	119
6.2.6	Schlussbemerkung	120
6.3	Oberflächenbehandlung von Textilien	120
6.3.1	Behandlung von Wollgewebe	121
6.3.2	Behandlung von Polyestergewebe	121
6.3.3	Schlussbemerkung	123
6.4	Neuartiges Quellenkonzept	123
6.4.1	Vorrichtung der Plasmaquelle	124
6.4.2	Simulation des elektrischen Feldes am Modulrand	126
6.4.3	Schlussfolgerungen	127

7	Schlussbemerkungen/Ausblick	128
7.1	Schlussbemerkungen	128
7.2	Ausblick	131
A	Angaben der planaren Strukturen	132
A.1	SBD-Strukturen	132
A.2	ISD-Strukturen	132
A.3	CBD-Strukturen	132
B	Grotrian-Diagramm für atomares Helium	136
C	Fraktale Gasverteilung	137
	Literaturverzeichnis	138
	Danksagung	149

Symbole und Abkürzungen

Verzeichnis der verwendeten Symbole

a	Elektrodenabstand
A	Konstante im Paschengesetz/Fläche unter der Funktionskurve
A_{ik}	Einstein-Koeffizient der spontanen Emission
B	Konstante im Paschengesetz
B_{ki}	Einstein-Koeffizient der Absorption
c	Lichtgeschwindigkeit
C	Kapazität
C_N^+	Ratenkoeffizient der Elektronenstoßionisation
C_N^M	Ratenkoeffizient der Metastabilanregung durch Elektronenstoß
C_M^+	Ratenkoeffizient der Ionisation durch Elektronenstoß mit Metastabilen (Stufenweise-Ionisation)
C_{m+}^{mM}	Ratenkoeffizient der molekularen Metastabilenanregung durch Rekombination der Elektronen mit molekularen Ionen
C_N^+	Ratenkoeffizient der radiativen Rekombination der atomaren Ionen
C_{m+}^{mMf}	Ratenkoeffizient der radiativen Rekombination der molekularen Ionen
C_{m+}^M	Ratenkoeffizient der dissoziativen Rekombination der molekularen Ionen in einem atomaren metastabilen Zustand
C_{m+}^N	Ratenkoeffizient der dissoziativen Rekombination der molekularen Ionen im atomaren Grundzustand
d	Abstand zwischen den Elektroden im Paschengesetz/Dicke der Keramikplatte
D_a	Koeffizient der ambipolaren Diffusion
D_M	Diffusionskonstante der Metastabilen
e	elektrische Elementarladung
E	elektrische Feldstärke/Energie
E_i	Ionisierungsenergie
E_e	Elektronenenergie

$g(\nu)$	über das Linienprofil normierte Funktion
h	Planksches Wirkungsquantum
I	Strom
$I_0(\lambda)$	eingestrahelte Intensität
$I(\lambda)$	transmittierte Intensität
g_i, g_k	statistische Gewichte des i-bzw. k- Niveaus
J	Stromdichte
J_+	Stromdichte der positiven Ionen
J_e	Stromdichte der Elektronen
k	Boltzmann-Konstante
K_+^{m+}	Ratenkoeffizient der Ionen-Assoziation
K_M^{mM}	Ratenkoeffizient der Dreikörper-Anregungsübertragung
K_M^+	Ratenkoeffizient der atomaren Ionisation durch Zweikörperstöße von Metastabilen
K_M^{m+}	Ratenkoeffizient der molekularen Ionisation durch Zweikörperstöße von Metastabilen
K_{AL}	Absorptionslänge-Korrekturfaktor
K_{LI}	Lock-in-Korrekturfaktor
K_{LP}	Laser-Plasma-Korrekturfaktor
K_{tot}	gesamter Korrekturfaktor
l	geometrische Absorptionslänge/Drahtlänge
l_{eff}	effektive Absorptionslänge
L	gesamte geometrische Absorptionslänge/Induktivität
m	Masse
M	Massenzahl
m_e	Elektronenmasse
n	Teilchendichte
n_N	Neutralteilchendichte
n_M	Metastabilendichte
n_+	Dichte der atomaren Ionen
n_{m+}	Dichte der molekularen Ionen
n_e	Elektronendichte
n_{e0}	Dichte der an der Katode durch Photonenstöße erzeugten Elektronen
n_{ek}	Dichte der an der Katode erzeugten Elektronen
n_{es}	Dichte der an der Katode durch Ionenstöße erzeugten Elektronen (Sekundärelektronendichte)
n_{ik}	Dichte der auf die Katode aufprallenden Ionen
N_i, N_k	Besetzungsdichte des i-bzw.k- Niveaus

$N(x,y,z)$	dreidimensionale räumliche Verteilung der Teilchendichte
p	Druck
P_e	Vernichtungsrate der Elektronen-Ionen-Paare
P_M	Vernichtungsrate der Metastabilen
q	elektrische Ladung
Q	durch eine Teilentladung transferierte Ladung
r	Krümmungsradius der Elektroden
R	elektrischer Widerstand
S_e	Volumenproduktionsrate der Elektronen-Ionen-Paare
S_M	Volumenproduktionsrate der Metastabilen
t	Zeit
T	Periode/Temperatur
T_{damp}	Zeitkonstante der Signaldämpfung
T_{osc}	Periode der Eigenschwingung
T_{TE}	Dauer einer Teilentladung
ΔT	mittlerer Zeitabstand zweier aufeinander folgender Teilentladungen
T_e	Elektronentemperatur
T_g	Gastemperatur
U	Spannung
U_d	Durchschlagspannung
v	Geschwindigkeit
v_w	wahrscheinlichste Geschwindigkeit
V_i	Aktivierungspotential
w	volle Breite des Profils auf halber Höhe
w_l	volle Breite des Profils auf halber Höhe des Lorentzprofils
w_g	volle Breite des Profils auf halber Höhe des Gaußprofils
W_e	Ionisationsenergie
W_{kin}	kinetische Energie
W_M	Anregungsenergie des metastabilen Zustandes
x	kartesische Koordinate x
y	kartesische Koordinate y
$y_{Gau}(x)$	Gaußprofil
$y_{Lorentz}(x)$	Lorentzprofil
$y_{Voigt}(x)$	Voigtprofil
z	kartesische Koordinate z

α	Koeffizient der Volumenionisation (der erste Townsend'sche Ionisierungskoeffizient) /Absorptionskoeffizient
β	Verschiebungskoeffizient
γ	Koeffizient der Sekundärelektronenemission (der zweite Townsend'sche Ionisierungskoeffizient)/Stoßverbreiterungskoeffizient
γ_i	Koeffizient der Sekundärelektronenemission für Ionen
γ_m	Koeffizient der Sekundärelektronenemission für hochenergetische Atome, besonders für die metastabil angeregten Atome
γ_p	Koeffizient der Sekundärelektronenemission für Photonen
ϵ_0	Dielektrizitätskonstante
ϵ	relative Dielektrizitätskonstante
η	Konstante für die Berechnung der Diffusionskonstante
λ	mittlere freie Weglänge/Wellenlänge
λ_i	mittlere freie Weglänge für Ionisation
λ_0	Zentralwellenlänge
λ_D	Debye-Länge
Λ	Gradientlänge
Λ_e	Gradientlänge der Elektronendichte
Λ_M	Gradientlänge der Metastabilendichte
μ_e	Beweglichkeit der Elektronen
μ_+	Beweglichkeit der positiven Ionen
τ	Dauer der ersten Oszillation einer Teilentladung
ϕ	Austrittsarbeit des Metalls
σ	Wechselwirkungsquerschnitt/Absorptionsquerschnitt

Verzeichnis der verwendeten Abkürzungen

AAS	Atomic absorption spectroscopy
APGD	Atmospheric pressure glow discharge
APP	Atmospheric pressure plasma
CBD	Coplanar barrier discharge
CCD	Charged coupled device
DBD	Dielectric barrier discharge
DLAAS	Diode laser atomic absorption spectroscopy
DLC	Diamond-like carbon
FFT	Fast Fourier transformation
IFFT	Inverse fast Fourier transformation
ICCD	Intensified charged coupled device
ISD	Insulated surface discharge
PECVD	Plasma enhanced chemical vapor deposition
PM	Photomultiplier
PP	Polypropylen
SBD	Surface barrier discharge
UV	Ultra-violet
VUV	Vacuum ultra-violet
XPS	X-ray photoelectron spectroscopy

Abbildungsverzeichnis

2.1	Ausbildung einer Koronaentladung. Schematische Darstellung einer Elektrode mit Spitzen und der für verschiedene Polaritäten der angelegten Spannung ausgelösten Ladungsträgerbewegung [118]	9
2.2	Strom–Spannungs–Kennlinie einer DC-Gasentladung [61]	11
2.3	Paschenkurve einer dielektrisch behinderten Entladung, aus [121]	14
2.4	DBD-Volumenstrukturen: planare (a, b, c) und zylinderförmige (d, e, f) Anordnung	16
2.5	DBD-Oberflächenstrukturen: planare (a, b), koplanare (c) und zylinderförmig koplanare Anordnung (d)	17
2.6	Entwicklungsstufen in einer DBD-Elektronenlawine: a) Lawinenauslösung, b) Elektronenwolke erreicht die dielektrische Barriere auf der gegenüberliegenden Elektrode, c) Elektronen breiten sich auf die Oberfläche aus und lassen die positive Ionenwolke hinter sich [128], n_e , n_i Dichte der Elektronen, bzw. der Ionen, α Koeffizient der Volumenionisation, γ Koeffizient der Sekundärelektronenemission	18
3.1	a) Schematische Darstellung der Elektrodengeometrie und die Entladungsstrukturen sichtbar gemacht durch Staubbilder in einer klassischen SBD in Luft b) mit einem 20 kV positiven Puls, c) mit einem 20 kV negativen Puls, d) mit 10 kV Wechselspannung [47]	28
3.2	Länge der Entladungskanäle L in SBD mit positivem Puls (Kurve 1), Wechselspannung (Kurve 2), mit negativem Puls (Kurve 3) [47]	30
3.3	Querschnitt einer SBD-Struktur. Für die geometrischen Angaben der Struktur siehe Tabelle A.1 im Anhang A	31
3.4	Die isolierte Oberflächenentladung im Querschnitt. Für die geometrischen und elektrischen Angaben der Struktur siehe Tabelle A.3 im Anhang A	32
3.5	Die dielektrisch behinderte Koplanarentladung im Querschnitt. Für die geometrischen und elektrischen Angaben der Struktur siehe Tabelle A.4 im Anhang A	33
3.6	Versuchsanordnung zur zeitaufgelösten optischen und elektrischen Charakterisierung der Entladungsdynamik einer SBD	35

3.7	a) Absorption einer monochromatischen Welle durch eine Probe mit der Absorptionslänge L und dem Absorptionskoeffizienten α , b) Schematische Darstellung der unteren und oberen Niveaus, zwischen denen die Absorption stattfindet	36
3.8	a) Kartesisches Koordinatensystem in der SBD für DLAAS Messungen, b) Photo der Reaktionskammer	40
3.9	Experimenteller Aufbau für die DLAAS-Messungen des He metastabilen Zustandes 2^3S in der He-SBD: DL-Diodenlaser, KL-Kollimationslinse, ST-Strahlteiler, S-Spiegel, KfV-Kristall für die Frequenzverdopplung, IF-Interferenzfilter, PM-Photomultiplier	41
3.10	Elektrische Wirkung einer Verstärkerendstufe	42
3.11	a) Parallel- und b) Reihenresonanter Betrieb	42
3.12	Strom- und Spannungsverläufe beim Stromzwischenkreisumrichter	43
4.1	Einfluss der Elektrodenkantengeometrie auf die Zündung der Teilentladung. a) Die Elektrode ohne Plasma. Die dunkleren Bereiche stellen die Keramikfläche, die helleren die Elektrodenfläche dar. Invertierte Darstellung der Aufnahmen (die Entladung ist dunkel) der Entladung für zunehmende Spannung b) $U=3,5$ kV, c) $U=4$ kV, d) $U=4,5$ kV. Die Belichtungszeit ist 10 ms.	44
4.2	Invertierte Aufnahmen der Entladung im Loch mit einer Belichtungszeit von 10 ms (siehe Abb. 4.1 a). Die Elektrodenkante ist mit einem Kreis gekennzeichnet. Die Bilder stellen verschiedene zufällige Entladungsmuster bei der selben angelegten Spannung von 3,9 kV dar. Es ist zu bemerken, dass die Positionen des häufigsten Auftretens der Teilentladungen soweit wie möglich voneinander entfernt sind.	45
4.3	Invertierte Aufnahmen der Entladung im Loch. Die Elektrodenkante ist mit einem Kreis gekennzeichnet. Die angelegte Spannung ist a) 4,4 kV und b) 4,9 kV. Die Belichtungszeit beträgt 10 ms	45
4.4	Invertierte Aufnahmen der Entladung entlang des linearen Bereiches der Elektrodenkante (markiert mit einer Linie), aufgenommen mit den Belichtungszeiten: a) 10 ms, b) $10 \mu s$, c) $1 \mu s$ und d) $0,1 \mu s$ jeweils am gleichen Ort. Die Pfeile in d) zeigen die Positionen der einzelnen Teilentladungen. Die angelegte Spannung für alle Photos ist 4,9 kV	46
4.5	Die Abnutzung der Streifen a) nach 20 min und b) nach 8 h Betrieb im N_2 -Plasma	47
4.6	a) Photo und b) schematische Darstellung des Verschleißmusters für die isolierte Oberflächenentladung nach 8 h Betrieb im N_2 -Plasma	48
4.7	Ergebnis der Quick-Field Simulation für die ISD-Elektrodenstruktur: Dicke der Keramikplatte - 0,38 mm; Dielektrizitätskonstante der Keramik - 9,5; Dicke der Entladungselektrode - $10 \mu m$; Dicke des Isolierfilms - $10 \mu m$; Dielektrizitätskonstante des Isolierfilms - 3; angelegte Spannung - 2 kV	48

4.8	Normale Komponente des elektrischen Feldes (Quick-Field Simulation) für verschiedene Kantengeometrien der ISD-Struktur am Übergang Isolierfilm-Luft. Die angelegte Spannung beträgt 2 kV und der Krümmungsradius $\pm 0,5$ mm für die konvexe bzw. konkave Kantengeometrie	49
4.9	Transversale Komponente des elektrischen Feldes (Quick-Field Simulation) für verschiedene Kantengeometrien der ISD-Struktur am Übergang Isolierfilm-Luft. Die angelegte Spannung beträgt 2 kV und der Krümmungsradius $\pm 0,5$ mm für die konvexe bzw. konkave Kantengeometrie	50
4.10	Die Elektrode mit Lochstruktur nach 8 h Betrieb in N_2 -Plasma (zum Vergleich mit der Streifenstruktur, siehe Abb. 4.5 b)	51
4.11	Die Lochstruktur beim Betrieb in einem N_2 -Plasma. In der unteren Reihe der Löcher, am Rand der Elektrode, brennt die Entladung wegen der hier zusätzlich aufgebrachtten Isolierschicht nicht vollständig	52
4.12	Typische Stromverläufe für zwei verschiedene Elektrodengeometrien der in Luft betriebenen ISD: Streifenstruktur (Referenz R1) und Lochstruktur (Referenz R2). Geometrische Angaben der beiden SBD-Strukturen sind in Tabelle A.1 erläutert. Die gestrichelte rote Linie stellt Details der Stromverläufe der beiden Elektrodengeometrien dar, die in Zeitlupe in Abb. 4.13 gezeigt werden.	53
4.13	Typische Stromverläufe in Zeitlupe für die beiden ISD-Strukturen: Streifenstruktur (Referenz R1) und Lochstruktur (Referenz R2). Die gestrichelt rot markierten Details des Stromverlaufes für die jeweiligen Teilentladungen sind in Abb. 4.14 bzw. Abb. 4.15 dargestellt.	53
4.14	Stromantwort des RLC-Schaltkreises auf eine Teilentladungsanregung in Luft für die ISD-Streifenstruktur (das in Abb. 4.13 - Referenz R1 mit rot markierten Detail des Stromverlaufes); ΔI entspricht der Amplitude der ersten Stromschwingung, τ - die Dauer dieser ersten Stromschwingung. Die hier mit gestrichelter roter Linie dargestellte Fläche unter der $I(t)$ Kurve wird für die Berechnung der während der Teilentladung transferierten Ladung eingesetzt	54
4.15	Stromantwort des RLC-Schaltkreises auf eine Teilentladungsanregung in Luft für die ISD-Lochstruktur (das in Abb. 4.13 - Referenz R2 mit rot markierten Detail des Stromverlaufes); ΔI entspricht der Amplitude der ersten Stromschwingung, T_{osc} ist die Periode der Eigenschwingung	55
4.16	Der RLC-Schaltkreis; C entspricht sowohl der äquivalenten Kapazität des Elektrodenmoduls, als auch der parasitären Kapazität der in der Spannungsversorgung verwendeten Transformatorspule; L_{kHz} ist die Induktivität der Sekundärwicklung des Transformators; L_{MHz} entspricht der Induktivität der gesamten Drahtlänge und der Induktivität der Elektroden selber, R ist der gesamte Widerstand (Drähte, Spule, Elektrodenmodul, Plasma)	56
4.17	Elektrisches Ersatzschaltbild des Elektrodenmoduls a) vor und b) nach der Zündung	56

4.18 Die Antwort des Schaltkreises der ISD-Lochstruktur für zwei verschiedene Drahtlängen l : a) $l = 1$ m, $\nu_{osc} = 16,8$ MHz und b) $l = 0,5$ m, $\nu_{osc} = 20$ MHz. Gasmisch: 90% N₂ + 10% O₂. Entladungselektrode bedeckt mit einer Silikonharzschicht (siehe Anhang A, Tabelle A.3) 57

4.19 Prinzip der Bestimmung des Teilentladungstromes aus dem Messsignal. $x(t)$ - das gemessene Stromsignal; $g(t)$ - die gedämpfte RLC-Oszillation; $X(f)$, $G(f)$ - Fourier-Transformation des $x(t)$, bzw. $g(t)$ Signals; $Y(f)=X(f)/G(f)$ entspricht der Fourier-Transformation des $y(t)$ Signals - dem effektiven Teilentladungstrom (Erläuterung im Text) 58

4.20 Die gemessenen und entfalteten Entladungsströme für drei überlappende Teilentladungen. SBD in 90%N₂+10%O₂. Für die technischen Angaben der Struktur siehe Anhang A, Tabelle A.1 59

4.21 Die gemessenen und durch die Entfaltung errechneten Entladungsströme für zwei exemplarisch ausgewählte Teilentladungen in einer Gasmischung von 90% N₂+10% O₂ mit einer Entladungselektrode, die mit a) Silikonharz und b) DLC beschichtet ist. Für die elektrischen und geometrischen Eigenschaften der hier benutzten ISD-Strukturen siehe Anhang A, Tabelle A.3 60

4.22 Der Entladungsstrom und die Spannung zwischen den Elektroden in einer 60% N₂+40% O₂-Gasmischung aufgenommen in einer SBD während einer Anregungsperiode. Die Spannung wird auf der Induktionselektrode gemessen. Die Entladungselektrode liegt auf Massepotential. Für die technischen Angaben der Struktur siehe Anhang A, Tabelle A.1 61

4.23 Der Entladungsstrom und die Spannung zwischen den Elektroden in einer 60% N₂+40% O₂-Gasmischung aufgenommen in einer CBD während zweier Anregungsperioden. Für die technischen Angaben der Struktur siehe Anhang A, Tabelle A.4 62

4.24 Das mit Quick-Field berechnete elektrische Feld in einer SBD-Geometrie. Dicke der Keramikplatte - 1 mm; Dicke der Elektrode - 10 μ m; Angelegte Spannung - 2 kV (für weitere technische Daten der Struktur siehe Anhang A.1) 62

4.25 Das mit Quick-Field berechnete elektrische Feld in einer CBD-Geometrie; Dicke der Keramikplatte - 0,25 mm; Dicke der Elektrode - 10 μ m; Abstand zwischen den Elektroden - 0,45 mm; Angelegte Spannung - 2 kV 63

4.26 Detail der Simulation für die CBD mit dem Abstand zwischen den Elektroden als Parameter. Für die technischen Angaben der Struktur siehe Anhang A.3 64

4.27 Der typische Stromverlauf einer Teilentladung in reinem Stickstoff in der SBD. Für die technischen Angaben der Struktur siehe Anhang A, Tabelle A.1 65

4.28 Der typische Stromverlauf einer Teilentladung in reinem Stickstoff in der CBD. Der Abstand zwischen den Elektroden beträgt 0,5 mm, Dicke der Keramikplatte ist 0,25 mm 65

4.29	Die Abhängigkeit des mittleren Zeitabstandes zwischen zwei aufeinanderfolgenden Teilentladungen in SBD und CBD als Funktion der O ₂ -Prozent in O ₂ +N ₂ Gasmischung. Für die technischen Daten beider Strukturen siehe Anhang A	66
4.30	Die Abhängigkeit der mittleren durch eine Teilentladung transferierten Ladung in SBD und CBD als Funktion der O ₂ -Prozent in O ₂ +N ₂ Gasmischung (siehe Anhang A für die technischen Daten beider Strukturen)	66
5.1	Die Produktionsgeschwindigkeit der He ⁺ -Ionen, der Geschwindigkeit der ambipolaren Diffusion entsprechend (1) und die Verlustgeschwindigkeiten der He ₂ ⁺ -Ionen durch die Mechanismen (6), (11) und (12) aus Tabelle 5.1. Die Kennlinien sind als Funktion des Druckes für eine Elektronenkonzentration von $2 \times 10^{16} \text{ m}^{-3}$, für eine durch die Gleichung (5.17) gegebene Elektronentemperatur und für eine Gastemperatur von 310 K berechnet.	70
5.2	Reaktions- und Diffusionsraten von He(² S)-Atomen als Funktion des Druckes berechnet für eine durch die Gleichung (5.17) interpolierte Elektronentemperatur, eine Gastemperatur von 310 K und eine mittlere Elektronenkonzentration von a) $2 \times 10^{18} \text{ m}^{-3}$ (Heizphase) bzw. b) $2 \times 10^{14} \text{ m}^{-3}$ (Nachglimmen)[76]. Die Zahlen entsprechen der Nummerierung der Prozesse in Tabelle 5.1. . . .	71
5.3	ICCD-Aufnahme der SBD in Helium bei Atmosphärendruck angeregt von rechteckigen Spannungspulsen mit einer Amplitude von 700 V und einer Frequenz von 8 kHz. Die Abbildung wurde mit 10 ms Belichtungszeit aufgenommen. Die äußeren und inneren Linien bezeichnen die Ränder der Induktions- bzw. Entladungselektrode.	75
5.4	Die ICCD-Aufnahmen in Vorderansicht einer mit 700 V, 8 kHz angeregten SBD, für 50 und 200 mbar und bei 10 ms Belichtungszeit. Die weißen Linien kennzeichnen die Position der Entladungselektrode.	76
5.5	Vertikale Profile der Emissionsintensität gemessen im Maximum des horizontalen Emissionsverlaufs für den Druckbereich von 50 bis 1000 mbar.	77
5.6	Gradientenlängen (blaue Kurve ▲) und Elektronentemperaturen (rote Kurve ■) als Funktion des Druckes im Bereich von 50 bis 1000 mbar. Die Gradientenlängen wurden durch die Anpassung einer Exponentialfunktion an die abfallenden Flanken der Kennlinien in Abb. 5.5 laut Gleichung (5.6) ermittelt. Die Elektronentemperatur ergibt sich als eine iterative Lösung der Gleichung (5.7) aus den gegebenen Gradientenlängen.	78
5.7	Typisches Absorptionsprofil der Triplet (² S)-He-Linie bei 20 mbar	79
5.8	Profile der Lichtemission entlang der linken Seite der SBD-Elektrode (siehe Abb. 5.3) für 100 und 1000 mbar	81
5.9	Die effektive Absorptionslänge normiert auf die geometrische Absorptionslänge als Funktion des Druckes (berechnet entlang der linken Seite der SBD-Elektrode, siehe Abb. 5.3)	82

5.10	Horizontale Verteilung der Konzentration der He(2^3S)-Metastabilen bei 300 mbar: gemessene Werte (blaue Kurve ■) und mit einem gesamten Korrekturfaktor von 25 korrigierte Werte (rote Kurve ●)	83
5.11	Die maximalen Werte der Metastabilenkonzentration $n_{Mgemessen}$ als Funktion des Druckes (rote Kurve ●). Zum Vergleich dazu die aus Gl.(5.16) mit einer konstanten Elektronenkonzentration $2.0 \times 10^{17} \text{ m}^{-3}$ berechneten Werte der Metastabilenkonzentration $n_{Mberechnet}$. Schließlich die Anpassung der berechneten an die gemessenen Werte der Metastabilenkonzentration, wobei die Elektronenkonzentration n_e (blaue Kurve ■) diesmal als Fitparameter verwendet wurde	84
5.12	Die horizontale Verteilung der Metastabilenkonzentration für drei unterschiedliche Drücke: 100 mbar, 200 mbar und 700 mbar	85
5.13	Die aus den ICCD-Aufnahmen extrahierten horizontalen Profile der Emissionsintensität	85
5.14	Die vertikalen Verteilungen der Metastabilenkonzentration für 100 mbar und 300 mbar, gemessen an der horizontalen Position des maximalen Absorptionssignals	86
5.15	Die Bestimmung der Gastemperatur für 50 mbar als Schnittpunkt zweier Kurven (siehe Erläuterung im Text)	87
5.16	Die Bestimmung der Gastemperatur für 150 mbar als Schnittpunkt zweier Kurven (siehe Erläuterung im Text)	88
5.17	Die zeitabhängige Reaktion (relative Werte) der Spannung, des Stromes, des Absorptionssignals und der Intensität der gesamten Lichtemission bei 100 mbar für einen Umschaltvorgang.	89
5.18	Die aus der exponentiellen Anpassung an das zeitabhängige Absorptionssignal bestimmte Lebenszeit der He(2^3S)-Atome als Funktion des Druckes. Zum Vergleich werden ebenfalls die mittels exponentieller Anpassung bestimmten Abklingkonstanten des Stromes und der Emissionsintensität gezeigt	91
5.19	Die Zeitentwicklung der SBD in Helium bei positivem Spannungsanstieg für 1 bar. Die Belichtungszeit beträgt 100 ns. Die Anregungsfrequenz liegt bei 8 kHz und die Amplitude bei 514 V	92
5.20	Die Zeitentwicklung der SBD in Helium bei negativem Spannungsanstieg für 1 bar. Die Belichtungszeit ist 100 ns. Die Anregungsfrequenz beträgt 8 kHz und die Amplitude 514 V	93
5.21	Die Zeitentwicklung der SBD in Helium bei positivem Spannungsanstieg für 300 mbar. Die Belichtungszeit ist 100 ns. Die Anregungsfrequenz beträgt 8 kHz und die Amplitude 340 V	94
5.22	Die Zeitentwicklung der SBD in Helium bei negativem Spannungsanstieg für 300 mbar. Die Belichtungszeit ist 100 ns. Die Anregungsfrequenz beträgt 8 kHz und die Amplitude 340 V	95

5.23	Die Zeitentwicklung der SBD in Helium bei positivem Spannungsanstieg für 100 mbar. Die Belichtungszeit ist 100 ns. Die Anregungsfrequenz beträgt 8 kHz und die Amplitude 270 V	96
5.24	Die Zeitentwicklung der SBD in Helium bei negativem Spannungsanstieg für 100 mbar. Die Belichtungszeit ist 100 ns. Die Anregungsfrequenz beträgt 8 kHz und die Amplitude 270 V	97
5.25	Horizontale Verteilung des Absorptionssignals bei 50 mbar und bei einer Amplitude des Spannungspulses von 280 V	101
5.26	Der Vergleich des Absorptionssignals für die Linien bei 388 nm und 667 nm. Die über der Entladungselektrode gemessenen Werte werden bei 50 mbar für eine Amplitude des Spannungspulses von 280 V und eine Frequenz von 4 kHz aufgenommen	102
5.27	Ausschnitt aus dem Grotrian-Diagramm (siehe Anhang B) für atomares Helium	102
5.28	Druckabhängigkeit der Konzentration der He-Atome im angeregten Zustand 2^1P während der katodischen und anodischen Halbperiode bei einer Amplitude des Spannungspulses von 280 V	103
5.29	Intensität der Lichtemission der mit einer sinusförmigen Spannung betriebenen He-SBD ($U = 500$ V, $\nu = 5$ kHz) als Funktion der Zeit für Drücke zwischen 100 mbar und 1000 mbar. A und K bezeichnen die anodische und katodische Halbperiode des Anregungssignals	104
5.30	CBD-Photo beim Auftreten eines einzelnen Clusters in einer 50% He+50% N_2 Gasmischung und die entsprechenden Strom- und Spannungsverläufe . . .	105
5.31	CBD-Photo beim Auftreten eines einzelnen Clusters in einer 80% He+20% N_2 Gasmischung und die entsprechenden Strom- und Spannungsverläufe . . .	105
5.32	Cluster-Bildung für a) weniger als 5% N_2 ; b) von 5% N_2 bis 20% N_2 ; c) für mehr als 20% N_2 in einer He+ N_2 -Gasmischung	105
5.33	CBD-Photo beim Auftreten zweier Clusters in einer 80%He+20% N_2 Gasmischung und die entsprechenden Strom- und Spannungsverläufe	106
5.34	CBD-Photo beim Auftreten von vier Clustern in einer 90%He+10% N_2 Gasmischung und die entsprechenden Strom- und Spannungsverläufe	106
5.35	Vergleich der Teilentladungsströme für vier verschiedene Gasmischungen . .	107
6.1	Experimentelle Anordnung für die Behandlung der Cr-beschichteten Platte .	110
6.2	Struktur des oberen Bereichs einer Chromschicht	111
6.3	Der Einfluss der Lagerung auf den Kontaktwinkel für Wasser unter Umgebungsbedingungen nach der Plasmabehandlung	112
6.4	Die zeitliche Änderung der polaren und dispersiven Komponente der Oberflächenenergie nach der Plasmabehandlung	113

6.5	XPS-Gesamtspektren der a) unbehandelten, b) der 10 s in Luft behandelten und c) der 20 s in Luft behandelten Probe	114
6.6	Cr 2p-Spektren einer a) unbehandelten, b) 10 s in Luft behandelten c) 20 s in Luft behandelten, d) behandelten und nass geriebenen Probe	114
6.7	XPS-Gesamtspektrum einer behandelten und anschließend nass geriebenen Probe (vergleiche mit Abb. 6.5)	115
6.8	Wasserkontaktwinkel als Funktion der Behandlungszeit mit dem Abstand zwischen der Platte und dem Substrat als Parameter (Arbeitsgas: Stickstoff; Leistung: 15 W)	118
6.9	Wasserkontaktwinkel als Funktion der Sauerstoffmenge in der Gasmischung .	118
6.10	Wasserkontaktwinkel als Funktion des Abstandes zwischen der Platte und dem Substrat	120
6.11	Die Wirkung der Plasmabehandlung auf Textilien a) unbehandelte Probe; b) 10s Luft-Plasma Behandlung (Einsinkzeit der Testtinte 40s); c) 10s N ₂ -Plasma Behandlung (Einsinkzeit der Testtinte 3s)	121
6.12	Einsinkzeit der Testtinte bei der Plasmabehandlung von 0,25 mm dickem Wollgewebe in Luft als Funktion der Behandlungszeit	122
6.13	Einsinkzeit der Testtinte bei der Plasmabehandlung von 0,25 mm dickem Wollgewebe in N ₂ und Ar als Funktion der Behandlungszeit	122
6.14	Einsinkzeit der Testtinte als Funktion der Behandlungszeit. Material: 0,1 mm dickes Polyester	123
6.15	Prinzipskizze des Plasmamoduls, Gaszufuhr und Anschlüsse zur Leistungsver-sorgung	124
6.16	Lineare Anordnung von vier Quellenmodulen mit dem Gasverteilungssystem und dargestellter Laufrichtung des Substrates	126
6.17	Detail der Simulation der elektrischen Feldlinien am Modulrand	127
A.1	Die Streifen-Struktur in Draufsicht	134
A.2	Die Loch-Struktur in Draufsicht	134
A.3	Die CBD-Struktur in Draufsicht	135
B.1	Grottrian-Diagramm für atomares Helium	136
C.1	Konstruktionsskizze der fraktalen Gasverteilung	137

Tabellenverzeichnis

2.1	Typische Parameter für eine Mikroentladung in Luft [68, 153]	19
2.2	Wellenlängen für die Absorptionsspektroskopie der metastabil angeregten He-Atome und Moleküle. ^{a)} Frequenzverdopplung. ^{b)} optisch gepumpt durch XeCl Laser.	25
3.1	Die für die DLAAS benutzten Laserdioden und die Betriebsparameter für die entsprechenden untersuchten Übergänge	40
5.1	Die wichtigsten atomaren und molekularen Prozesse in He. Die angenommene Elektronentemperatur beträgt 1,5 eV. Die zusätzlichen Ratenkoeffizienten für das Singulett He(1^1S) sind in [120] zu finden.	69
5.2	Die Eigenschaften der untersuchten He-angeregten Zustände [81]	78
A.1	Geometrische Angaben der beiden SBD-Strukturen: Streifen- und Lochstruktur	133
A.2	Angaben der mit der Absorptionsspektroskopie untersuchten SBD-Struktur .	133
A.3	Elektrische und geometrische Eigenschaften der bei der ISD-Struktur benutzten Materialien	134
A.4	Geometrische und elektrische Angaben der CBD-Struktur	135

Kapitel 1

Einleitung

1.1 Motivation

Der Niederdruckbereich, in dem zur Zeit die meisten Plasmaprozesse durchgeführt werden, erstreckt sich von 10^{-4} bis zu ca. 1 mbar. Während der etwa 150 Jahre „konventioneller“ Plasmatechnik wurden gute Kenntnisse über die bei Niederdruck ablaufenden Prozesse erworben. Diese Kenntnisse haben das Beherrschen der vielfältigen technologischen Plasmaverfahren ermöglicht.

Im Gegensatz zum Niederdruckbereich ist die Entwicklung von Atmosphärendruck-Plasmaquellen und -prozessen ein relativ junges Gebiet, in dem die zugrundeliegenden Wirkmechanismen noch nicht vollständig geklärt sind. Die Wirkung zahlreicher Plasmaquellen wurde häufig nur empirisch erkundet. Eine wissenschaftlich fundierte Untersuchung zur Quellenoptimierung und zum Verständnis der bei hohem Druck auftretenden Phänomene ist daher wünschenswert. Problematisch hierbei sind sowohl die Anforderungen an die Plasmaprozesse als auch die Komplexität der Plasmaphysik und -chemie bei Hochdruck. Zu den erwähnenswerten Vorteilen der Plasmaprozesse bei Atmosphärendruck zählen der Verzicht auf die kostenaufwendige Vakuumausrüstung, die wesentlich einfachere Integration in bestehende Fertigungseinrichtungen, höhere Prozessraten, somit die bessere Produktivität aufgrund der möglichen in-line Prozesse und der möglichen großflächigen Behandlung von Materialien. Wegen dieser wesentlichen Vorteile wird die Forschung und Optimierung der Atmosphärendruck-Plasmaquellen als sehr sinnvoll und einträglich betrachtet. Die aktuelle Tendenz in der Plasmatechnik, die Niederdruckprozesse durch Atmosphärendruckprozesse zu ersetzen, wird weiter fortgesetzt, bis alle wichtigen industriellen Plasmaanwendungen bei Atmosphärendruck durchführbar werden, oder bewiesen wird, dass in bestimmten Fällen der Verzicht auf die Vakuumtechnik nicht möglich ist.

Die Ausbreitung des Parameterbereiches von modularen und damit leichter skalierbaren Plasmaquellen auf Atmosphärendruck ist von zunehmender Bedeutung für eine Vielfalt industrieller Anwendungen. In den letzten Jahren ist eine ganze Reihe von Atmosphärendruckplasma-Anregungsprinzipien vorgeschlagen, realisiert und in ausgewählten Anwendungsbereichen erfolgreich eingesetzt worden. Dazu zählen insbesondere die Plasmabehandlung von Textilien und Wolle, die Modifikation von Oberflächen zur Steuerung der Benetzungseigenschaften, die Zersetzung von flüchtigen organischen Komponenten in der Abluft (VOC),

die Entkeimung von Wasser sowie auch die Abscheidung funktionaler dünner Schichten. Eine industrielle Umsetzung von Atmosphärendruckplasma-Beschichtungsverfahren hat bisher jedoch noch nicht stattgefunden, weil es bis heute keine auf große Flächen und hohe dynamische Behandlungsraten aufskalierbare Atmosphärendruck-Plasmaquellen gibt, die den Anforderungen an einen Dauerbetrieb ohne in kurzen Abständen notwendige Reinigung und Wartung genügen.

Der Einsatz von dielektrisch behinderten Entladungen (Barrierentladungen) bei Atmosphärendruck ist heute eine etablierte Methode für die oben genannten Plasmaanwendungen. Barrierentladungen existieren bei Atmosphärendruck in einer filamentierten und in einer homogenen Form. Bis heute arbeiten alle industriell eingesetzten Verfahren mit filamentierten Barrierentladungen. Ein großes Einsatzgebiet ist die Behandlung von Kunststoffen. Die Behandlungsanlagen für Folien haben eine Breite von bis zu 10 m. Dabei werden die Folien zum Teil mit Geschwindigkeiten von über 300 m/min bewegt. Die Behandlung findet hauptsächlich in Luft statt. Jedoch ist eine Behandlung in Luft, die eine Aktivierung der Substrate bewirkt, nicht für alle Materialien zufriedenstellend. Teilweise ist der Behandlungseffekt unzureichend und/oder es treten nicht tolerierbare Materialschädigungen auf. In solchen Fällen ist der Betrieb in einer homogenen Form der Entladung von Vorteil, denn die Oberflächen des zu behandelnden Materials werden gleichmäßiger von der Entladung erfasst. Besonders attraktiv ist der Betrieb des Plasmas im homogenen Modus für die Entwicklung hochwertiger Oberflächen und für den Einsatz neuer High-Tech-Materialien, bei denen die Homogenität der Behandlung bzw. Beschichtung eine immer größere Rolle spielt.

Demzufolge sind die Untersuchung dieser homogenen Form der Entladungen und die Ermittlung der Bedingungen, die erfüllt sein müssen, um zukünftige Prozesse effektiv und gut kontrollierbar einsetzen zu können, von großem Interesse.

1.2 Ziel der Arbeit

Ziel dieser Arbeit ist die Charakterisierung und Optimierung von auf Barrierentladungen beruhenden planaren Plasmaquellen. Diese Quellen können modular aufgebaut werden und sind daher im Prinzip für eine Behandlung von großflächigen planaren Oberflächen bei Atmosphärendruck geeignet.

Die Studien werden für die dielektrisch behinderte Oberflächenentladung (SBD, engl. **s**urface **b**arrier **d**ischarge), die isolierte Oberflächenentladung (ISD, engl. **i**nulated **s**urface **d**ischarge) und die koplanare Oberflächenentladung (CBD, engl. **c**oplanar **b**arrier **d**ischarge) durchgeführt. Zunächst steht die Klärung des Einflusses der Elektrodengeometrie und der verwendeten Materialien im Vordergrund.

Ein weiterer Schritt dieser Quellencharakterisierung ist das Verständnis des bis jetzt weniger untersuchten mittleren Druckbereiches (einige hundert mbar), um die grundlegenden Kenntnisse vom Niederdruckbereich auf den Hochdruckbereich zu übertragen und festzustellen, welche Prozesse für die Aufrechterhaltung des Plasmas am wichtigsten sind. Von zentraler Bedeutung ist dabei die zeitliche und räumliche Entladungsentwicklung, um einen tieferen Einblick in die komplexe Entladungsstruktur zu gewinnen. Ein besonderer Augenmerk liegt dabei auf den metastabil angeregten Spezies und der räumlichen und zeitlichen Bestimmung der absoluten Werte ihrer Konzentration.

In Rahmen dieser Arbeit werden ebenfalls verschiedene Prozessstudien durchgeführt, um die Anwendbarkeit derartiger planarer Plasmaquellen zu testen. Eine enge Kooperation mit Industriepartnern wird außerdem angestrebt, um einen erfolgreichen Technologietransfer zu erzielen.

1.3 Struktur der Arbeit

Die zum Verständnis dieser Arbeit notwendigen plasmaphysikalischen Grundlagen sind im nachfolgenden Kapitel dargestellt. Eine Einleitung in die entsprechend der thematischen Abgrenzung dieser Arbeit betrachteten Nichtgleichgewichtsplasmen, die Grundlage von Gasentladungen und dielektrisch behinderten Entladungen (DBD) sowie die wichtigsten Aspekte von Atmosphärendruck-Glimmentladungen (APGD) werden hier dargestellt. Es wird im Weiteren über die Rolle der metastabil angeregten Atome in APGD und ihre Nachweismethoden diskutiert.

In Kapitel 3 werden die typischen planaren DBD-Strukturen und die in dieser Arbeit für die Untersuchung dieser Strukturen eingesetzten experimentellen Methoden vorgestellt.

Weiterhin wird in Kapitel 4 das Betriebsverhalten der untersuchten DBD-Strukturen charakterisiert. Der Einfluss der Elektrodengeometrie auf den Verschleiß des Isolierfilms und auf den Elektrodenstrom bzw. der Einfluss der Elektrodenversiegelung auf den Elektrodenstrom werden dargestellt. Ein anderer Schwerpunkt dieses Kapitels liegt auf dem Vergleich zwischen dem Betriebsverhalten der dielektrisch behinderten Oberflächenentladung und dem der koplanaren Entladung.

In Kapitel 5 wird eine Beschreibung der wichtigsten Mechanismen in einer Helium-Entladung gegeben. Die Prozesse der Ionen und der Metastabilen werden im Detail dargestellt und diskutiert. Die zeitliche und räumliche Entladungsentwicklung wird mit Hilfe einer ICCD-Kamera analysiert. Für die Bestimmung der absoluten Konzentration der metastabil angeregten Helium-Atome wird hier das erste Mal die Diodenlaser-Absorptionsspektroskopie an einer dielektrisch behinderten Oberflächenentladung eingesetzt. Das in dieser Arbeit entwickelte Modell wird in Einklang mit den Messungen gebracht, was die Ermittlung von Elektronentemperatur und -konzentration ermöglicht. Die Gastemperatur lässt sich aus der Analyse der Absorptionsprofile bestimmen.

Einige Anwendungsbeispiele von dielektrisch behinderten Entladungen für die Behandlung verschiedener Materialien (Metalloberfläche, Kunststoff, Naturgewebe) werden in Kapitel 6 erläutert. In allen drei vorgestellten Fällen lassen sich gute Ergebnisse für die Behandlung planarer Oberflächen vorweisen. Im Weiteren wird ein neuartiges modulares Atmosphärendruck-Plasmaquellen-Konzept vorgestellt. Diese auch für die Schichtabscheidung geeignete Vorrichtung zur Plasmaerzeugung auf der Basis von koplanaren Barrierenentladungen wurde zum Patent angemeldet und ist bereits offengelegt.

Eine Zusammenfassung der Ergebnisse dieser Arbeit und ein Ausblick auf weitere Anwendungen schließt diese Arbeit ab (Kapitel 7).

Im Anhang sind die geometrischen und elektrischen Angaben der untersuchten planaren Strukturen (Anhang A), das für einen tieferen Einblick in die atomaren He-Prozesse not-

wendige Grotrian-Diagramm (Anhang B) und die für das in dieser Arbeit vorgestellte neuartige Plasmaquellenkonzept geforderte kontrollierte und gleichmäßige Gasführung über das gesamte Plasmamodul, die sogenannte „fraktale Gasverteilung“ (Anhang C), zu finden.

Kapitel 2

Physikalische Grundlagen

Als Plasma wird das quasineutrale, gasförmige Gemisch aus elektrisch positiv und negativ geladenen Ionen, Elektronen, Radikalen, Photonen und, soweit noch vorhanden, elektrisch neutralen Atomen und Molekülen bezeichnet. Der Übergang von einem neutralen Gas zu einem Plasma erfolgt im Labor durch Einkopplung von Energie jeglicher Art in das verwendete Gas, so dass geladene Teilchen gebildet werden. Die Energie kann in Form von thermischer Energie (Flammen), adiabatischer Kompression oder insbesondere elektrischer Energie zugeführt werden. Die Energieeinspeisung erfolgt in der Regel über elektrische Felder (Gleichstrom-, Mikrowellen-, RF-Entladungen). Zur Zündung der Entladung müssen freie Elektronen vorhanden sein. Diese können z. B. durch Hochspannungsfunken, Feldemission an Unebenheiten der Elektrodenoberfläche, aber auch durch kosmische Höhenstrahlung entstehen. Die Energiezufuhr erfolgt dann durch die Beschleunigung der Elektronen im elektrischen Feld. Durch Stöße mit anderen Gasparkeln übertragen sie einen Teil ihrer Energie und führen zur Aufheizung des Gases.

Entsprechend der thematischen Abgrenzung dieser Arbeit werden nur Plasmen im thermodynamischen Nichtgleichgewicht betrachtet, bei denen vorwiegend die leichten Elektronen eine im Vergleich mit der Energie der Schwerteilchen hohe kinetische Energie besitzen. Die Kriterien zur Einstellung dieses Zustands werden im ersten Abschnitt dieses Kapitels herausgearbeitet. Geeignete Gasentladungen umfassen Niederdruckplasmen, die den bei weitem überwiegenden Teil der eingesetzten Plasmatechnik ausmachen sowie Plasmen bei Atmosphärendruck, die heutzutage zunehmend an Bedeutung gewinnen.

2.1 Einleitung von Nichtgleichgewichtsplasmen

2.1.1 Relaxation ins thermodynamische Gleichgewicht

Energieeinkopplung

Bei der Anregung von Gasentladungen werden geladene Teilchen in elektrischen Feldern beschleunigt. Die erreichte kinetische Energie W_{kin} wird von der freien Weglänge $\lambda = 1/(\sqrt{2}\sigma n)$

zwischen zwei Stößen und der elektrischen Feldstärke E bestimmt:

$$W_{kin} = q \cdot E \cdot \lambda = \frac{q}{\sqrt{2}\sigma} \cdot \frac{E}{n} \quad (2.1)$$

so dass sich eine lineare Abhängigkeit von der reduzierten Feldstärke E/n , mit leichten Abweichungen aufgrund der Abhängigkeit des Wechselwirkungsquerschnitts σ von der Stoßenergie, ergibt.

Bei Atmosphärendruck liegen typische reduzierte Zündfeldstärken um $E/n = 200 \text{ Td}^1$. Nach der Zündung fällt die reduzierte Feldstärke jedoch rasch ab, so dass im Hinblick auf das thermische Nichtgleichgewicht auch der zeitliche Verlauf der Energieeinkopplung betrachtet werden muss.

Aufgrund ihrer geringen Masse ($m_e = 9,1 \times 10^{-31} \text{ kg}$, $m_{N_2} = 4,7 \times 10^{-26} \text{ kg}$) werden Elektronen stärker beschleunigt als Ionen und mit $\dot{v} = \frac{q}{m} \cdot E$ lässt sich $W_{kin} = \frac{1}{2}mv^2$ in Gleichung (2.1) einsetzen und man erhält:

$$t^2 = \frac{2m\lambda}{eE} \quad (2.2)$$

Nach dieser Abschätzung benötigen Elektronen nur $1,2 \times 10^{-12} \text{ s}$ um die obige kinetische Energie aufzunehmen, Stickstoff-Ionen dagegen $2,8 \times 10^{-10} \text{ s}$. Die Energie wird also zunächst bevorzugt in das Teilsystem der Elektronen eingekoppelt.

Thermalisierung

Durch Energieaustausch mit langsameren, thermische Energie besitzenden Teilchen thermalisieren die Elektronen nach einer gewissen Anzahl von Stößen (Relaxation). Beim elastischen Stoß zweier als kugelförmig angenommener Teilchen unter dem Winkel θ beträgt der Energieübertrag:

$$W_{kin} = \frac{m_B}{2} \left[\frac{v_B(m_A - m_B) + 2m_A v_A}{m_A + m_B} \right]^2 \times \cos^2\theta \quad (2.3)$$

Nimmt man an, dass Teilchen B vor dem Stoß in Ruhe war und drückt W_{kin} als Bruchteil der kinetischen Energie von Teilchen A vor dem Stoß aus, so ergibt sich:

$$\frac{\Delta W_{kin}}{W_{kin,A}} = \frac{4m_A m_B}{(m_A + m_B)^2} \cos^2\theta \quad (2.4)$$

Für gleich schwere Teilchen kann bei einem geraden ($\theta = 0$) zentralen Stoß maximal die gesamte Energie übertragen werden.

Die Thermalisierung der Elektronen untereinander würde mit verschiedenen Stoßwinkeln etwa zehn Stöße erfordern. Mit Gasmolekülen können Elektronen durch elastische Stöße

¹ 1 Td (Towsend) = 10^{17} Vm^2

aufgrund des Massenverhältnisses $m_{N_2}/m_e=50.000$ pro Stoß höchstens den 8×10^{-5} -ten Teil ihrer kinetischen Energie austauschen.

Zusätzlich treten inelastische Elektron-Molekül-Stöße auf, die insbesondere zu einer Vibrationsanregung des Moleküls führen. Der Beitrag der inelastischen Stöße zur Thermalisierung der Elektronen im Neutralgas ist insgesamt etwa zehnmal größer als der von elastischen Stößen, so dass zur Thermalisierung 10^3 bis 10^4 Stöße nötig sind.

Das Ziel bei der Erzeugung eines nichtthermischen Plasmas ist eine möglichst geringe Zahl von Elektronenstößen mit den schweren Teilchen. Dies wird meist durch einen niedrigen Gasdruck bewerkstelligt. In der Literatur ist es sogar gängig, dies als einzige Möglichkeit darzustellen. Im Folgenden wird jedoch gezeigt, dass der Energieaustausch durch Stöße auch beschränkt werden kann, indem die Ladungsträger einen begrenzten Raumbereich verlassen (Koronaentladung, Abschnitt 2.1.3), das plasmaerzeugende Feld nur von kurzer Zeitdauer ist (gepulste Plasmen und Barrierenentladung, Abschnitte 2.1.4 und 2.3) oder die Elektronenstöße im großen Umfang zur metastabilen Anregung, statt zur Elektronenstoßionisation führen.

2.1.2 Gase geringer Stoßfrequenz

Technische Verwendung von Niederdruckplasmen

Das Gesamtgebiet der Plasmatechnik ist bis heute nahezu deckungsgleich mit dem der Niederdruckplasmen. Ein Teil daraus betrifft plasmachemische Umsetzungen, wie die Polymerisation oder die plasmaunterstützte Abscheidung aus der Gasphase (plasma enhanced chemical vapour deposition oder kurz Plasma-CVD). Die Verweilzeit der Reaktionsgase bestimmt Radikalerzeugung und Reaktionsablauf und wird über Zufluss und Pumpleistung eingestellt. Der Druck von üblicherweise 1 bis 100 Pa ist dabei so gewählt, dass sich die Plasmen einerseits aufgrund großer freier Weglängen homogen ausbilden und andererseits eine möglichst hohe Dichte reaktiver Spezies im Volumen vorhanden ist.

Die Niederdruck-Plasmatechnik umfasst ferner den Beschuss von Oberflächen mit nichtthermischen Ionen aus einer Gasentladung, der als Ionenzerstäubung (engl. „sputtering“) bekannt ist. Eine Biasspannung zwischen Plasma und Target beschleunigt Ionen auf mehr als 100 eV, was nur bei ausreichender freier Weglänge, d.h. bei Drücken unterhalb 10^{-2} Pa, möglich ist. Der Einschlag des Ions reißt einzelne Atome aus dem Gefüge des Festkörpers, was zum Abtragen oder zur mikroskopischen Reinigung von Oberflächen verwendet wird. Die Redeposition der Atome auf eine andere Fläche wird als Sputter-Beschichtung bezeichnet. Bei dosierter Ionenenergie können auch die aus dem Plasma abgeschiedenen Schichten selektiv aufgetragen und so in ihrer chemischen Zusammensetzung oder ihrer Dichte verändert werden.

Für Niederdruckplasmen hat die Debye-Länge ²

$$\lambda_D = \sqrt{\frac{\epsilon_0 k T_e}{e^2 n_e}} \quad (2.5)$$

²Die Debye-Länge (oder Abschirmlänge) ist eine charakteristische Größe des Plasmas, mit deren Hilfe sich nun der Begriff der Quasineutralität definieren lässt: Quasineutralität bedeutet, dass Potentiale innerhalb von Distanzen abgeschirmt werden, die klein im Vergleich zur Ausdehnung des Plasmas sind, so dass sich dieses als Ganzes nach außen neutral verhält. Man spricht von Plasma nur in Volumen, die größer als eine Kugel vom Radius der Debye-Länge λ_D sind.

typischerweise Werte im unteren Millimeterbereich. Für ein Plasma z.B. mit der Elektronentemperatur $T_e=1$ eV und der Elektronendichte $n_e = 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ ergibt sich ein Wert von $\lambda_D = 7,43 \text{ }\mu\text{m}$. In solchen Fällen füllt das Plasma den gesamten Raum sowie Spalten bis in den Millimeterbereich homogen aus.

Zur Erzeugung des niedrigen Gasdruckes sind Pumpen und ein gegen die Umgebung abgedichtetes Vakuumgefäß (Rezipient) erforderlich, die je ein Drittel (Rest: elektrische Anregungstechnik) der Gesamtinvestition einer typischen Plasmaanlage ausmachen [118]. Vorteile der Vakuumtechnik sind reinraumähnliche Fertigungsbedingungen, so dass die Plasmabehandlung bisher Eingang in Halbleiterfertigung, Medizintechnik und Sensorherstellung fand. Sie steht jedoch auch gleichzeitig einer Verbreitung der Plasmatechnik über Spezialanwendungen hinaus entgegen, da für industrielle Anwendungen Prozesse bei Atmosphärendruck gewünscht werden.

2.1.3 Lokal beschränkte Entladungen

Die Zahl der Stöße kann auch durch die Beschränkung des Raumbereichs, in welchem geladene Teilchen erzeugt und beschleunigt werden, gering gehalten werden. In einem inhomogenen Feld entsteht ein Plasma nur in Bereichen hoher Feldstärke. Zwar geben die energiereichen Teilchen schließlich ihre Energie an das den Raumbereich umgebende Neutralgas ab, da dies in einem größeren Volumen geschieht, findet aber trotz Atmosphärendruck keine nennenswerten Aufheizung statt.

Die Koronaentladung

Die Anordnung für eine Koronaentladung besteht aus einer Elektrode mit Spitzen oder Kanten, an die eine hohe Spannung gegenüber der Umgebung mit Massebezug angelegt wird. Die sichtbare Entladung bleibt auf einen dünnen Leuchtraum um die Elektrode, die „Korona“, beschränkt. Aufgrund der stark inhomogenen Feldverteilung reicht bereits in kurzer Entfernung von den Spitzen die Feldstärke nicht mehr zur Aufrechterhaltung einer Gasentladung aus. Hier findet keine Vermehrung der Ladungsträger mehr statt und ihr Transport wird bestimmt von der langsamen Driftgeschwindigkeit; es entstehen nur geringe Stromstärken. Die Entfernung zur Gegenelektrode spielt eine untergeordnete Rolle solange sich kein leitfähiger Kanal zu einer geerdeten metallischen Fläche ausbildet und die Koronaentladung in eine Bogenentladung übergeht.

Man unterscheidet zwischen einer negativen Koronaentladung, die bei moderaten Spannungen durch Elektronenemission aus einer mit dem Minuspol verbundenen Spitze einsetzt und einer positiven Koronaentladung, die erheblich stromschwächer ist. Der Raumbereich, in dem die Feldstärke eine Vermehrung der Ladungsträger ermöglicht, ist für beide Polaritäten etwa gleich groß (gestrichelte Linie in Abb. 2.1). Bei der negativen Koronaentladung steht jedoch aufgrund der Elektronenemission eine höhere Ladungsträgerdichte zur Verfügung und der Bereich der Elektronenwolke ist in dieser Abbildung mit gepunkteter Linie gekennzeichnet. Die Drift der langlebigen Ladungsträger im Feld („Ionenwind“) ist in beiden Polaritäten von der Spitze weg gerichtet [61].

Außer durch Gleichspannung kann eine Koronaentladung auch durch Wechselspannung moderater Frequenzen angeregt werden, wobei fast die gesamte Leistung von der negativen

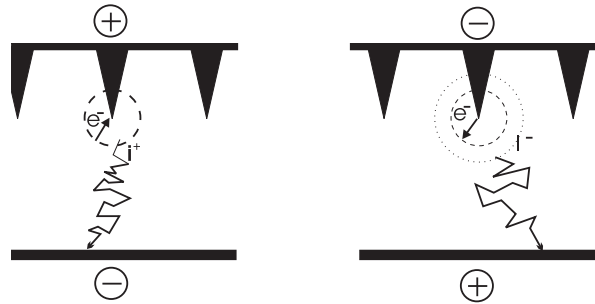


Abbildung 2.1: Ausbildung einer Koronaentladung. Schematische Darstellung einer Elektrode mit Spitzen und der für verschiedene Polaritäten der angelegten Spannung ausgelösten Ladungsträgerbewegung [118]

Koronaentladung aufgenommen wird. In Luft werden hauptsächlich negative O_2 -Ionen erzeugt. Eine zusätzliche Kapazität im Entladekreis (dielektrische Schicht) stört die elektrische Funktion nicht wesentlich, da sich die abwechselnd eintreffenden positiven und negativen Ionen dort gegenseitig neutralisieren.

Bei hoher Flächenladungsdichte, die sich bei kleinem Abstand zwischen Spitze und Dielektrikum einstellt, findet der Übergang zu einer Barrierenentladung statt. Dabei bestimmt das Verhältnis aus Elektrodenabstand und Krümmungsradius den Charakter der Entladung [33]. Bei kleinerem d/r verschieben noch vorhandene Spitzen die Zündung hin zu niederen Spannungen. Eine Sonderform der Koronaentladung entsteht im inhomogenen Feld zwischen zwei an einer Stelle über einen Isolator kontaktierten Elektroden. Ein derartiger keilförmiger Spalt kann durch einen Draht mit rundem Querschnitt, der auf einem Dielektrikum aufliegt [140], oder durch ein von einer isolierenden Walze abhebendes metallisches Band [15] erreicht werden.

Technische Verwendung

Koronaentladungen werden seit langem zur Behandlung von Oberflächen elektrisch isolierender Materialien eingesetzt. Das wichtigste Anwendungsgebiet ist das elektrische Aufladen von ansonsten schwer zu handhabenden dünnen Kunststofffolien oder deren Entladung von statischer Elektrizität. Es genügen stromschwache Entladungen negativer bzw. schnell wechselnder Polarität. Bei vielen Kunststoffen hat sich daneben eine Modifizierung der Oberfläche durch Koronaentladung als Vorbehandlung zum Kleben, Beschichten oder Lackieren bewährt [118]. Begrenzend sind dabei die Flächenleistungsdichte von typischerweise einigen Milliwatt pro Quadratzentimeter, oberhalb derer Elektrodenabbrand an den Spitzen einsetzt und die oft ungünstige Verteilung der Ladungsträger im Volumen. Diese werden in Bereichen hoher Feldstärke vor den Spitzen erzeugt und ihre Konzentration nimmt in Richtung der Gegenelektrode, wo sich die zu bearbeitende Oberfläche befindet, stark ab.

Weiterhin sind Koronaentladungen an Kanten von Elektroden und Zuleitungen als parasitäre Effekte der Hochspannungstechnik bekannt.

2.1.4 Zeitlich transiente Plasmen

Eine andere Methode zur Erzeugung nichtthermischer Plasmen sind kurzzeitige Entladungen, bei denen die Dauer eines einzelnen Zündereignisses kurz gegen die Thermalisierungszeit

ist.

Im Bereich des Atmosphärendrucks ist die Thermalisierungszeit des Plasmas auf wenige 10 Nanosekunden beschränkt, so dass ein aktives Ein- und Ausschalten der plasmaerzeugenden Spannung einen hohen technischen Aufwand erfordert. Einen grundsätzlich anderen Ansatz stellt die Barrierenentladung dar, wo typischerweise unabhängig von der Dauer der Anregung eine durch die Geometrie bedingte selbsttätige Abschaltung der einzelnen lokalen Entladungen erfolgt.

Der prinzipielle Aufbau zur Erzeugung einer Barrierenentladung enthält zwischen den beiden elektrisch leitfähigen Elektroden neben dem Entladungsspalt mindestens einen Isolator, die sogenannte dielektrische Barriere, die dieser Entladungsform den Namen gibt (siehe Abschnitt 2.3). Sobald während eines Spannungsanstiegs die Zündspannung überschritten wird, beginnt im Spalt eine Gasentladung zu zünden. Das Dielektrikum verhindert dabei ein Abfließen der in der Entladung erzeugten und transportierten Ladungsträger zur Elektrode. Auf der Isolatoroberfläche schirmen sie das von außen zur Plasmaerzeugung angelegte elektrische Feld bis unter die Brennspannung ab und bringen so die Entladung lokal bereits nach kurzer Zeit zum Erlöschen. Damit wird der Übergang in eine thermische Bogenentladung verhindert und es bilden sich eine Vielzahl zeitlich begrenzter Einzelentladungen, die homogen über die Elektrodenfläche verteilt sind.

An der gleichen Stelle kann erst bei Erhöhung der angelegten Spannung oder nach einer Spannungsumkehr eine weitere Entladung zünden. Bei einer kapazitiven Kopplung über ein Dielektrikum ist ohnehin die Anregung mit einer Wechselspannung Voraussetzung. Typische Anregungsfrequenzen liegen im Bereich von 1 bis 100 kHz.

2.1.5 Durch andere Mechanismen unterstützte Entladungen

In der letzten Zeit wurde der Untersuchung der homogenen, nichtthermischen Plasmen bei Atmosphärendruck, den so genannten Atmosphärendruck-Glimmentladungen (APGD, atmospheric pressure glow discharge) viel Aufmerksamkeit gewidmet. Mehrere Theorien versuchen, die Erzeugung und Aufrechterhaltung solcher Entladungen zu erklären. In den meisten spielt die Speicherung und nachträgliche Freisetzung der metastabil angeregten oder chemisch aktivierten Spezies eine wesentliche Rolle für die Verlängerung der Lebenszeit der Teilentladungen.

Viele Autoren vertreten die Idee, dass eine Gas-Präionisation erforderlich ist, um eine Freisetzung/Produktion der Elektronen vor der Zündung kontinuierlich im Gas zu fördern und dadurch die für die Bildung der filamentförmigen Mikroentladungen verantwortliche Raumladungszone zu unterdrücken und den Durchschlag in diesem homogenen Modus zu begünstigen. Als externe Präionisations-Quelle wurden Röntgen- und UV-Strahlung oder eine zusätzliche sekundäre Entladung vorgeschlagen [111, 1, 53]. Massines et al. schlagen die Präionisation durch Metastabilen-Metastabilen- oder Metastabilen-Oberflächen-Kollisionen als eine Bedingung für die APGD-Generierung vor. Die Beweise für diese Theorie bestehen in der Anwesenheit einer langen Nachglimmphase des Strompulses und in der Tatsache, dass die Erzeugung des Glimmmodus nur auftritt, wenn die Zeit zwischen aufeinanderfolgenden Strompulsen kleiner als die angenommene Lebenszeit der Metastabilen von 1 ms ist.

Andere Studien deuten als Präionisation-Mechanismus das Einfangen der Ionen („ion-trapping“) [130] oder die thermische Desorption von Elektronen [48] an. Vor kurzem wurde aber eine weitere Theorie in die Diskussion gebracht [9, 3]. Die Präionisation ist nicht erforderlich, um die APGD zu erzeugen und aufrechtzuerhalten. Nach Aldea's Meinung sind die Metastabilen in der Entladung für die Erzeugung des Glimmmodus nicht notwendig. Zusätzlich schließt er aus indirekten Messungen (Durchschlagsspannung sowie Strom- und Plasmaemissions-Verlauf) [2], dass die Metastabilen bei Atmosphärendruck nicht vorhanden sind. In seiner Theorie spielt die Oberfläche des Dielektrikums für die Erzeugung der APGD eine wesentliche Rolle und für die Stabilität dieses Modus ist der Glimm-Bogen-Übergang der wichtigste Schlüssel.

Alle zur Zeit bekannten Theorien wurden noch nicht endgültig bewiesen und eine weitere Erforschung dieses Themas bleibt eine Notwendigkeit und gleichzeitig eine Herausforderung für die Wissenschaftler.

2.2 Gasentladungen

2.2.1 Unselbstständige Gasentladung

Wenn in einem verdünnten Gas zwischen zwei in einem Abstand d angebrachten parallelen Elektroden eine Spannung U anliegt, kommt es zu einem Stromfluss. Die Strom–Spannungs–Kennlinie einer solchen Elektrodenanordnung ist in der Abb. 2.2 gezeigt. Bei geringen Span-

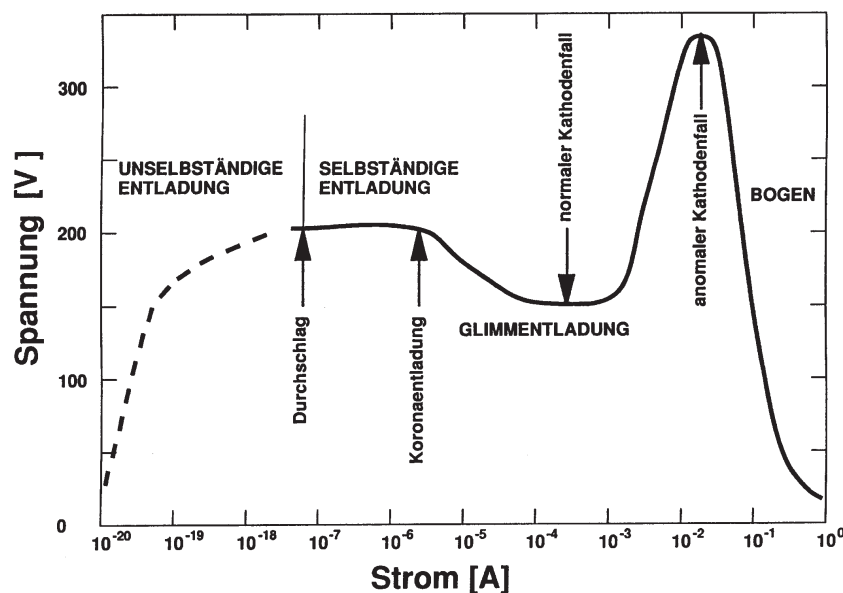


Abbildung 2.2: Strom–Spannungs–Kennlinie einer DC-Gasentladung [61]

nungen ist die Leitfähigkeit des Gases auf äußere Ionisationsquellen zurückzuführen, wie z.B. Höhenstrahlung. In diesem Fall spricht man von einer unselbstständigen Gasentladung. Die

Stromdichte einer solchen Entladung \vec{J} ist zur Feldstärke \vec{E} proportional:

$$\vec{J} = en_0(\mu_e + \mu_+) \vec{E} \quad (2.6)$$

In der Gleichung bedeuten μ_+ und μ_e die Beweglichkeiten der positiven Ionen und Elektronen (der Einfluss der negativen Ionen auf die Konduktivität wird vernachlässigt), n_0 ist die Anzahl der Paare aus Elektronen und einfach geladenen positiven Ionen je Volumeneinheit. Im Bereich zwischen 10^{-4} und 10^2 bar sind μ_+ und μ_e zum Gasdruck proportional. J setzt sich zusammen aus der Summe der Stromdichten der zur negativ polarisierten Elektrode (Katode) fließenden positiven Ionen $J_+ = en_0\mu_+\vec{E}$ und der zur positiv polarisierten Elektrode (Anode) fließenden Elektronen $J_e = en_0\mu_e\vec{E}$. Bei weiterer Erhöhung der Feldstärke \vec{E} nimmt die Ionenkonzentration in der Entladung ab und der Strom ist nicht mehr eine lineare Funktion der Spannung.

2.2.2 Durchschlag beim Nieder- und Hochdruck

Nach Überschreitung eines bestimmten Wertes des zwischen den Elektroden fließenden Stromes wird die elektrische Entladung im Gas auch nach Abschalten der Ionisationsquelle in Form einer selbstständigen Entladung weiterbestehen. Der Übergang einer unselbstständigen Gasentladung in die selbstständige wird als Durchschlag bezeichnet. Er tritt bei Erreichen der Durchschlagsspannung U_d ein.

Nach der Townsend'schen Näherungstheorie werden die Ladungsträger in Volumen- und in Oberflächenprozessen erzeugt. Die ersten werden durch den Ionisationskoeffizienten α und die zweiten durch den Koeffizienten der Sekundärelektronenemission γ beschrieben.

Schon zu Beginn des Plasmas liegen freie Elektronen vor. Die Bewegung der geladenen Teilchen ist eine Kombination aus zufälliger thermischer und gerichteter Bewegung in Richtung Anode (Drift), bis sie durch einen Stoß mit anderen Teilchen gestoppt werden. Hierbei können die Elektronen Atome ionisieren. Der mittlere Abstand zwischen zwei Ionisationen ist die freie Weglänge für die Ionisation λ_i . Nach dieser Strecke hat ein Elektron in der Regel ein Elektron-Ion-Paar gebildet. Die Zahl der Elektronen nach einer Strecke dx errechnet sich als

$$dn_e = n_e(x) \cdot dx/\lambda_i \quad (2.7)$$

Als Lösung dieser Differentialgleichung erhält man:

$$n_e(x) = n_{e0}e^{x/\lambda_i} \quad (2.8)$$

wobei n_e die Anzahl der Elektronen, λ_i die freie Weglänge für die Ionisation und x die zurückgelegte Strecke sind.

Es ergibt sich also eine exponentielle Zunahme der Elektronen (Gl. 2.8).

Der Townsend-Ionisationskoeffizient α ist gleich der reziproken mittleren freien Weglänge für die Ionisation und entspricht dem Mittelwert der Anzahl der Ionisationsakte eines Elektrons je Wegeinheit. Die Ionisation kann man in Beziehung zur mittleren freien Weglänge λ setzen, unter der Annahme, dass der Stoßprozess durch die Drift-Energie, die durch das Feld ($e\lambda E$) aufgenommen wird, erfolgt. Für diesen Prozess wird eine Aktivierungsenergie von eV_i benötigt.

$$\alpha = \frac{1}{\lambda_i} = \frac{const}{\lambda} \exp\left(\frac{-V_i}{E\lambda}\right) \quad (2.9)$$

Die freie Weglänge ist umgekehrt proportional zum Druck p , so dass der Koeffizient als

$$\alpha = Ap \cdot \exp\left(\frac{-Bp}{E}\right) \quad (2.10)$$

zusammengefasst werden kann, wobei A und B Konstanten des jeweiligen Gases und des Elektrodenmaterials sind.

Neben der Produktion geladener Teilchen durch Elektronen im Gasraum tritt auch eine durch den γ -Koeffizient beschriebene Sekundärelektronenemission auf. Dieser Koeffizient ist gleich der mittleren Anzahl der aus der Katode herausgeschlagenen Elektronen per einfallendem Teilchen und hängt vom Material der Katode, der Gasart und dem reduzierten elektrischen Feld E/p ab. Der effektive Koeffizient der Sekundärelektronenemission deckt die Effekte der Ionen (γ_i), der hochenergetischen Atome, besonders der metastabil angeregten Atome (γ_m) und der Photonen (γ_p) ab und kann durch:

$$\gamma = \gamma_i + \gamma_m + \gamma_p \quad (2.11)$$

beschrieben werden.

Bei Niederdruck werden die Sekundärelektronen hauptsächlich durch Ionenaufprall erzeugt, wobei bei hohem Druck neben den Ionen auch die Metastabilen und Photonen eine wichtige Rolle spielen.

Damit sich die Entladung selbst erhält, muss sich die Anzahl der so vernichteten und der gebildeten Ionen ausgleichen. Gemäß Gleichung (2.8) werden die n_{e0} Elektronen $n_{e0} \exp(\alpha d)$ Elektronen und Ionen entlang der Strecke d erzeugen. Im Entladungsvolumen werden daher $n_o[\exp(\alpha d) - 1]$ Ionen vorhanden sein. Diese produzieren $\gamma n_{e0}[\exp(\alpha d) - 1]$ Elektronen an der Katode. Zur Selbsterhaltung muss also

$$\gamma n_{e0}[\exp(\alpha d) - 1] = n_{e0} \Leftrightarrow \alpha d = \ln\left(1 + \frac{1}{\gamma}\right) \quad (2.12)$$

gelten. Kombiniert man die beiden Gleichungen (2.12) und (2.10), so erhält man

$$Apd \exp\left(\frac{-Bp}{E}\right) = \ln\left(1 + \frac{1}{\gamma}\right) \quad (2.13)$$

In planaren Geometrien gilt für die Spannung $U = Ed$. Damit ergibt sich für die Spannung U_d , ab der die Entladung selbstständig läuft:

$$U_d = B \frac{pd}{\ln(pd) + \ln \frac{A}{\ln \left(1 + \frac{1}{\gamma}\right)}} \quad (2.14)$$

Diese Gleichung nennt man Paschengesetz. Ein Beispiel für die im Abschnitt 2.3 beschriebene dielektrisch behinderte Entladung ist in Abb. 2.3 gegeben.

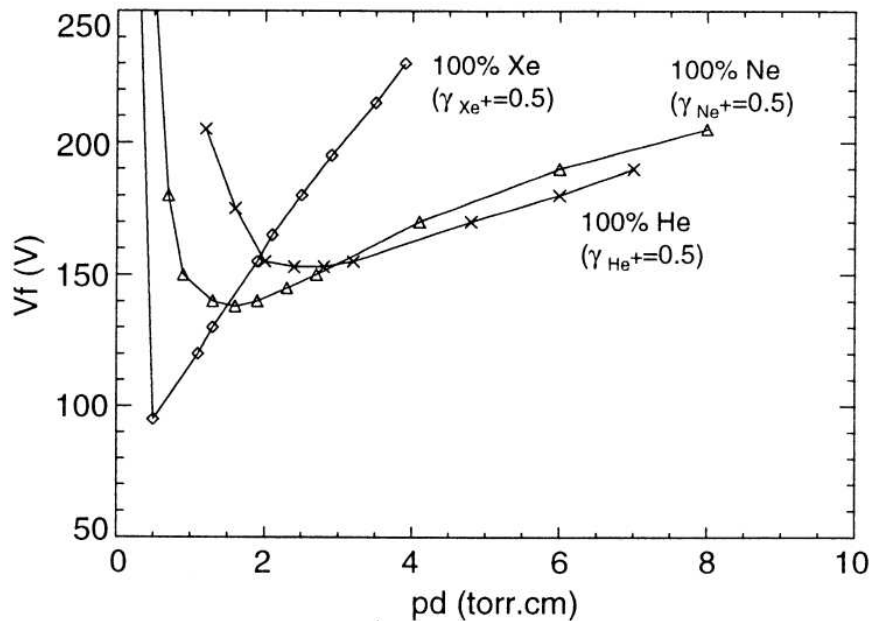


Abbildung 2.3: Paschenkurve einer dielektrisch behinderten Entladung, aus [121]

Der Wert von U_d nimmt mit der Ionisierungsenergie der Gaspartikel und der Austrittsarbeit³ der Elektronen aus der Katode unter sonst gleichen Bedingungen ab. Bei kleinen Produkten pd hat die Durchbruchspannung ein Minimum. Sie beträgt beispielsweise für Wolframelektroden in Argon 230 V bei einem pd -Wert von 2 mbar·cm. Weitere Verringerungen des Druckes oder des Elektrodenabstandes führen wieder zu einem Anstieg von U_d . Ursache dafür ist die sinkende Wahrscheinlichkeit für ionisierende Stöße.

2.2.3 Selbstständige Gasentladung

Nach dem Durchschlag kann sich in Abhängigkeit vom fließenden Strom einer der drei Entladungstypen stabilisieren (siehe Abb. 2.2) [61]: die Koronaentladung, die Glimmentladung oder die Bogenentladung. Die Glimmentladung besteht im Allgemeinen aus vier Hauptbereichen (in der Reihenfolge von der Katode bis zur Anode): dem Dunkelraum der Katode, dem negativen Glimmlicht, dem Faraday'schen Dunkelraum und der positiven Säule.

³Austrittsarbeit aus einem Metall ist die Energie, die benötigt wird, um ein Elektron aus dem Fermi-Niveau im Metall auf ein Null-Potential außerhalb des Metalls zu versetzen.

Die positive Säule verbindet die Katodenfallräume mit der positiven Elektrode und wird deshalb auch oft „vorgeschobene Anode“ bezeichnet. Wegen seiner Quasineutralität, seiner frei wählbaren Länge (z.B. 10 cm bis 1 m) und der Konstanz des elektrischen Feldes in axialer Richtung (einige V/cm) ist dieses Plasma wohl eines der am meisten untersuchten und am häufigsten verwendeten [61]. Das Plasma der positiven Säule ist ein typisches Nichtgleichgewichtplasma mit niedrigen Ionen- und neutral Gastemperaturen (zwischen Raumtemperatur bei niedrigen und wenigen hundert Grad Celsius bei höheren Entladungströmen) und hohen Elektronentemperaturen (typischerweise einige Zehntausend Grad, entsprechend Energien von einigen Elektronenvolt).

Wenn der Abstand zwischen den Elektroden sinkt, schrumpft die positive Säule und bei einem bestimmten, druck- und gasartabhängigen Abstand ist sie nicht mehr vorhanden. Die Entladung besteht dann aus zwei Dunkelräumen an den Elektroden und dem negativen Glimmlicht. Der dunkle Raum vor der Katode ist für die Glimmentladung der wichtigste Bereich. In ihm spielen sich die zur Aufrechterhaltung der Entladung notwendigen Prozesse der Volumenionisation des Gases ab. Die Potentialänderung längs des katodischen Dunkelraumes ist der Katodenfall. Die Elektronen werden in diesem Katodenfall stark beschleunigt, und ihre Energie kurz vor dem Glimmraum entspricht nahezu der Katodenfallspannung.

2.3 Dielektrisch behinderte Entladungen

Dielektrisch behinderte Entladungen (Englisch: dielectric barrier discharge-DBD) sind selbstständige, sich nicht im Gleichgewicht befindende elektrische Gasentladungen. Charakteristisch für diesen Entladungstyp sind Isolierschichten auf einer oder beiden Elektroden oder dielektrische Strukturen zwischen den beiden Elektroden. Eine Wechsel- oder Pulsspannung wird zwischen den Elektroden angelegt. Der Hauptvorteil der dielektrisch behinderten Entladung ist, dass die Nichtgleichgewichtsbedingungen auch unter Atmosphärendruck auf eine ökonomische und zuverlässige Weise hergestellt werden können. Die bei Atmosphärendruck funktionierenden dielektrisch behinderten Entladungen haben eine lange Geschichte. Die erste Publikation wurde von W. Siemens im Jahre 1857 veröffentlicht [136]. Als Anwendung wurde die Ozon-Herstellung für die Desinfektion der allgemeinen Wasserversorgung genannt. Bis jetzt bleibt die Ozon-Herstellung die Hauptanwendung dieser Technologie. Außer dieser, machen die Zersetzung von Stäuben und Partikulaten [24], die Neutralisierung unerwünschter oder schädlicher Bestandteile in Abgasen [31], die Dekontamination von belastetem Wasser [32], die Reinigung und Entfettung von metallischen Oberflächen [148], die Oberflächenmodifikation von Textilien zur Verbesserung der Adhäsion und Färbbarkeit [60], die Synthese von ultrafeinen Partikeln [154], die Abscheidung dünner Filme [133], die Anregung von CO₂-Lasern, die Excimer Lampen, die PDPs (plasma display panel) [102] und viele andere [36] die DBDs zu einem interessanten und vielversprechenden Plasmawerkzeug.

2.3.1 Charakteristiken von DBDs

Normalerweise bestehen die Atmosphärendruck-DBDs aus vielen kleinen parallelen Filamenten, die als Mikroentladungen bezeichnet werden. Unter speziellen Bedingungen können

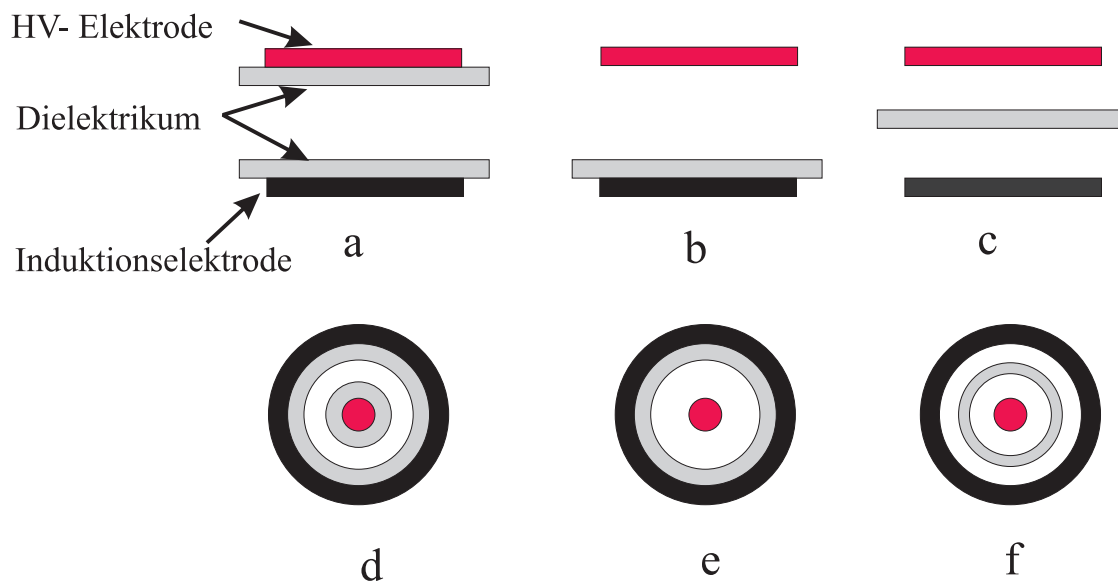


Abbildung 2.4: DBD-Volumenstrukturen: planare (a, b, c) und zylinderförmige (d, e, f) Anordnung

auch homogene Entladungen erreicht werden. Die meisten bisherigen Anwendungen basieren auf filamentaren Entladungen, jedoch sind die homogenen Entladungen im Kommen und eröffnen neue technologische Perspektiven. Unterschiedliche Elektrodenkonfigurationen für DBDs sind in Abb. 2.4 und Abb. 2.5 zusammengestellt.

Die Volumenstrukturen (VD-Volume Discharge) werden in planare (Abb. 2.4 a, b und c) und zylindrische (Abb. 2.4 d, e und f) Konfigurationen unterteilt. Die DBD-Oberflächenstrukturen können in Form einer planaren (Abb. 2.5 a, b), koplanaren (Abb. 2.5 c) oder zylinderförmig koplanaren Entladung (Abb. 2.5 d) ausgeführt werden.

Die dielektrische Barriere ist die Voraussetzung für die Funktion der Entladung. Sie begrenzt die durch die Entladung transportierte elektrische Aufladung, d.h. sie begrenzt den Stromfluss im System und verteilt die Entladung über die Elektrodenfläche. Übliche Materialien für die dielektrische Barriere sind Glas, Quarz, Keramik oder Emaille. Auch Kunststoff, insbesondere Teflon oder Silikon können benutzt werden.

Die durch DBDs transferierte und auf dem Dielektrikum angesammelte Ladung beeinflusst das elektrische Feld zwischen den Elektroden und spielt eine wichtige Rolle für die Eigenschaften der DBD. In vielen Anwendungen ist die Ladung ein wesentlicher Faktor für ihre optimale Leistungsfähigkeit und die entsprechenden Eigenschaften. In Ozon-Generatoren und in den UV-Strahlungsquellen sind beispielsweise Ozon-Produktion und Excimer-Anregung zu der durch die Entladung transferierten Ladung proportional.

2.3.2 Filamentare Entladungen

2.3.2.1 Entladungsbildung

In Abb. 2.6 wird schematisch die Entwicklung eines einzelnen Filamentes dargestellt. Diese Art der filamentaren Entladung wird eingeleitet, wenn zwischen den Elektroden eine Span-

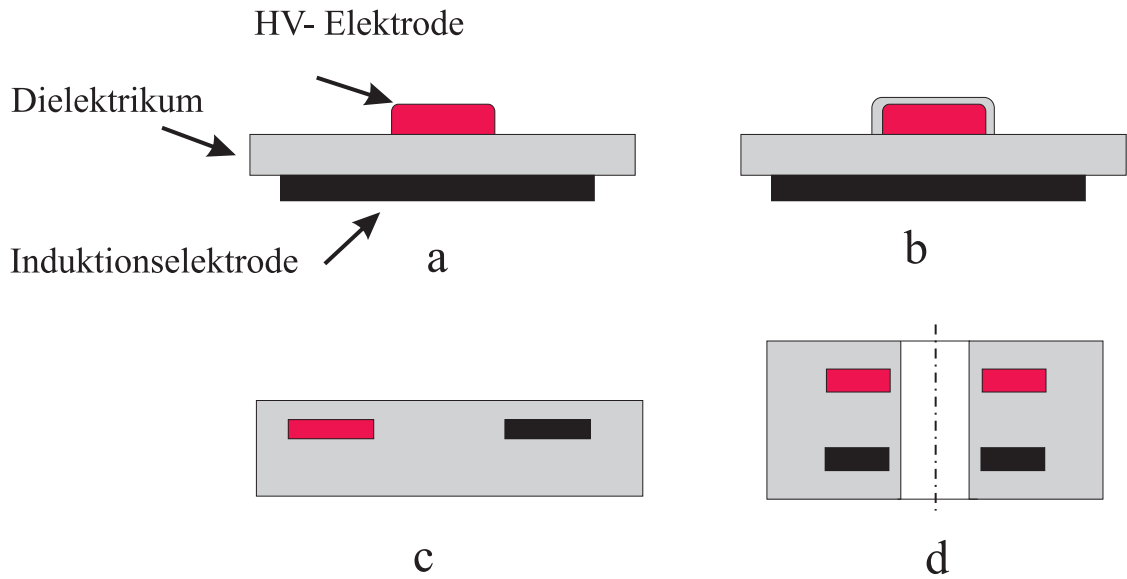


Abbildung 2.5: DBD-Oberflächenstrukturen: planare (a, b), koplanare (c) und zylinderförmig koplanare Anordnung (d)

nung angelegt wird, die gleich oder größer als die Durchbruchspannung des umgebenden Gases ist. Die Sekundärelektronen können aus der Oberfläche des Dielektrikums an der Kathode in Folge des Ionenbeschusses oder der UV-Strahlung freigesetzt werden. Die Elektronen werden beschleunigt, erreichen die für das Gas charakteristische Ionisierungsenergie und bilden eine Lawine aus, in der sich die Elektronenzahl mit jedem ionisierenden Zusammenstoß verdoppelt.

Wegen der im Vergleich mit den Ionen höheren Mobilität der Elektronen, kann die Elektronenlawine den Elektrodenspalt in wenigen Nanosekunden überwinden. Die Elektronen hinterlassen Ionen und verschiedene angeregte oder aktive Spezies, die weitere chemische Reaktionen induzieren können.

Wenn die Elektronenwolke die gegenüberliegende Elektrode erreicht, verbreiten sich die Elektronen über die isolierende Oberfläche und wirken der positiven Ladung auf der momentanen Anode entgegen. Dieser Einfluss kombiniert mit der Wirkung der langsameren Ionen verringert das elektrische Feld in der Nähe des Filamentes und verhindert jede weitere Ionisierung entlang der Filamentspur innerhalb von wenigen Nanosekunden [128].

Typischerweise für Luft als Arbeitsgas bei 1 atm bleiben diese aktiven Spezies in einem eingefrorenen chemischen Gleichgewicht und die DBD produziert Ozon als die dominierende aktive Spezies [95].

Der Durchmesser der durch jede Lawine produzierten Filamente beträgt durchschnittlich 10 bis zu einigen $100 \mu\text{m}$. An den Stellen des Kontaktes mit der Oberfläche verursachen die Filamente verschiedene Arten von Beschädigungen („pitting“ oder „pinholing“).

Die Entwicklung des Filamentes kann durch Staub oder Unebenheiten/Rauheit der Isolierungsoberfläche begünstigt werden. Der gesamte Behandlungseffekt auf dem Werkstück kann dadurch ziemlich ungleichmäßig werden. Bei einigen Anwendungen wird die Behandlung durch die Wirkung der aktiven Spezies erreicht, die in der primären Entladung oder

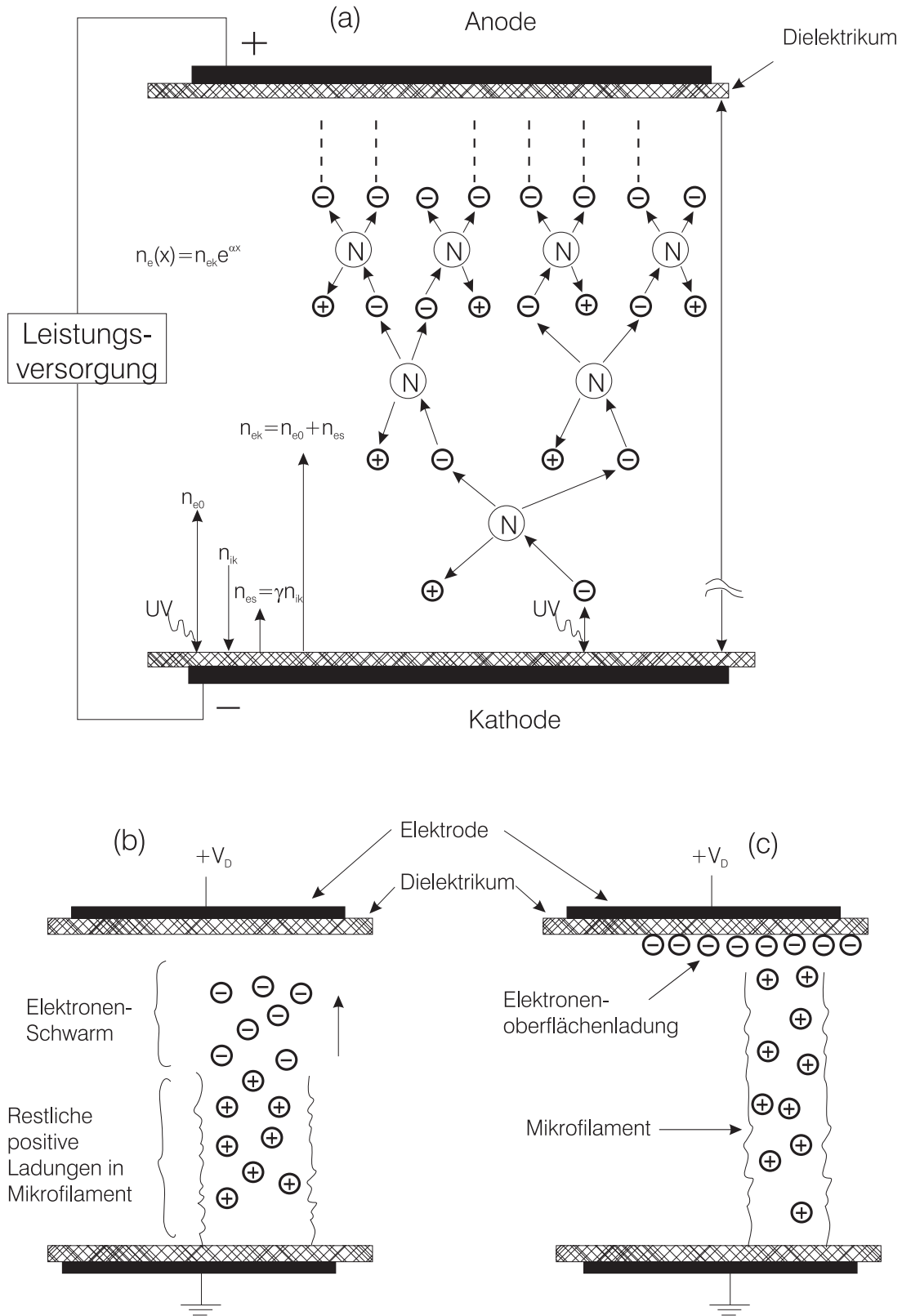


Abbildung 2.6: Entwicklungsstufen in einer DBD-Elektronenlawine: a) Lawinen-auslösung, b) Elektronenwolke erreicht die dielektrische Barriere auf der gegenüberliegenden Elektrode, c) Elektronen breiten sich auf die Oberfläche aus und lassen die positive Ionenwolke hinter sich [128], n_e , n_i Dichte der Elektronen, bzw. der Ionen, α Koeffizient der Volumenionisation, γ Koeffizient der Sekundärelektronen-emission

Dauer	1-10 ns	Elektronendichte	$10^{14} - 10^{15} \text{ cm}^{-3}$
Filamentenradius	100 μm	Mittlere Elektronenenergie	1-10 eV
Stromspitze	0,1 A	Gastemperatur	300-400 K
Stromdichte	100 A/cm ²	Energiedichte	1-10 mJ/cm ³
Ionisierungsgrad	10^{-4}	Umgesetzte Energie	1 mJ
Gesamte Ladung	0,1-1 nC		

Tabelle 2.1: Typische Parameter für eine Mikroentladung in Luft [68, 153]

als Folge der Reaktionsketten erzeugt werden. Durch die Vermischung dieser Spezies mit dem Arbeitsgas lässt sich eine relativ gleichmäßige Bearbeitung erreichen. Die Energiedichte von industriell verwendeten DBDs ist nicht kleiner als ca. 50 mW/cm³ und nicht größer als 1 W/cm³, um einen ausreichenden Effekt für die Oberflächenbehandlung zu erzielen, und die durch den Hitzeffluss auf dem Dielektrikum- und der Werkstückoberfläche bewirkte Beschädigung zu vermeiden [128].

2.3.2.2 Eigenschaften der Mikroentladungen

Die DBD-Strukturen sind von der Gaszusammensetzung und dem Druck, von der Entladungskonfiguration, von der Frequenz und von der Polarität der verwendeten Spannung abhängig. In den Volumenentladungen hängt die Mikroentladungsdichte pro Zeiteinheit von der Breite der Entladungsstrecke, der Amplitude und der Spannungsfrequenz ab. Je kleiner der Abstand ist, desto höher ist die Zahl der Mikroentladungen pro Flächeneinheit und desto „schwächer“ sind die einzelnen Mikroentladungen, weil die Abhängigkeit zu den benachbarten Mikroentladungen schwächer wird. Je höher die Spannungsamplitude ist, desto homogener ist die Ladungsverteilung auf der dielektrischen Oberfläche, kombiniert mit einer zufälligen Migration der Mikroentladung auf die Oberfläche. Eine Mehrfachaufladung der Oberfläche ist auch möglich. Eine gleichmäßige Ladungsverteilung kann durch langlebige angeregte Spezies oder Ionen und durch hohe Betriebsfrequenzen verbessert werden. Für niedrige Spannungsamplituden, die größer als die Durchbruchspannung sind, brennen die Mikroentladungen immer auf den gleichen Stellen. Um dies zu vermeiden, sollten bestimmte Oberflächenrauigkeiten erreicht werden.

Aufgrund der komplizierten Entwicklungsprozesse der Entladung ist es nicht einfach, Entladungseigenschaften zu definieren, die allgemein gültig sind. Es kann angegeben werden, dass die Mikroentladungen bei Atmosphärendruck eine Dauer von wenigen Nanosekunden haben und eine Stromdichte von ca. 100 A/cm² in dünnen, zylinderförmigen Filamenten von ca. 100 μm Radius erreichen können [68]. In solchen Entladungskanälen und in der zugehörigen Oberflächenentladung baut sich ein transientes Hochdruckplasma auf. Diese Bedingungen sind für die Erzeugung von Ionen und angeregten Atomen oder molekularen Spezies geeignet, die für Volumen- oder Oberflächenreaktionen und für eine effiziente Erzeugung von sichtbarer oder UV-Strahlung verwendet werden können. Die typischen Mikroentladungseigenschaften für 1 mm Luftspalt bei 1 bar sind in der Tabelle 2.1 zusammengefasst.

2.4 Atmosphärendruck-Glimmentladungen (APGD)

Die sehr kurzlebigen und mikrofilamentaren Teilentladungen, die sich in klassischen DBDs aufbauen, sind in vielen Fällen für Oberflächenprozesse nicht geeignet, besonders wenn es auf Homogenität und Großflächigkeit ankommt. Vielversprechend für solche Anwendungen ist der Betrieb von Atmosphärendruckentladungen im Modus einer Atmosphärendruck-Glimmentladung (engl. atmospheric pressure glow discharge, APGD). Die APGDs weisen viele Eigenschaften eines Niederdruck-Plasmas auf. An erster Stelle sind hierbei das thermodynamische Nichtgleichgewicht der verschiedenen Plasmaspezies und die Ausbildung einer im Volumen homogenen „kalten“ Gasentladung zu nennen.

Der Frequenzbereich von ca. 1 kHz bis zu wenigen 10 kHz reicht aus, um im Betriebsmodus der Atmosphärendruck-Glimmentladung zu arbeiten und ermöglicht die kapazitive Leistungseinkopplung durch eine dielektrische Barriere. Dank des Betriebs im niedrigen kHz Bereich kann auf eine teure, für den MHz Bereich erforderliche Abstimmereinheit verzichtet werden. Auch die dielektrischen Verluste sind im Vergleich zur Hochfrequenz- oder Mikrowellen-Anregung wesentlich kleiner.

S. Okazaki und ihre Gruppe an der Sophia Universität in Tokyo haben die Pionierarbeit auf diesem Gebiet geleistet [65]. Um homogene Glimmentladungen bei Atmosphärendruck in Helium, Luft, Argon, Sauerstoff und Stickstoff zu erzeugen, haben sie unter Verwendung einer sinusförmigen Anregungsspannung mit einer Frequenz von 50 Hz eine Elektrodenkonfiguration verwendet, die aus zwei mit keramischen Platten und einer speziellen Metallmasche bedeckten Elektroden besteht. Sie zeigten, dass einige spezifische Bedingungen erforderlich sind, damit sich eine stabile und homogene Entladung bildet. Helium oder einige Argon- und Azeton-Gasmischungen sollen in einer bestimmten geometrischen Konfiguration benutzt werden, bei der mindestens eine der Elektroden mit einer Isolierschicht abgedeckt ist. Außerdem muss eine Wechselspannung mit einer Frequenz größer als 1 kHz verwendet werden.

Ausführliche Untersuchungen sind von F. Massines und ihrer Gruppe in Toulouse durchgeführt worden [89, 91, 92, 93]. Sie behandelten Polypropylen-Substrate sowohl in APGD- als auch im filamentarischen Modus in Helium, Stickstoff oder in Luft, maßen die Benetzbarkeit und führten Oberflächenanalysen durch [90]. Sie stellten fest, dass APGD ein wirkungsvoller Prozess ist, der niedrigere Wasserkontaktwinkel und längerfristige Stabilität der Oberflächenbehandlung garantiert. Die an der behandelten Polymeroberfläche durchgeführten XPS-Messungen zeigten in Abhängigkeit vom Gas und dem Betriebsmodus sehr unterschiedliche chemische Bindungen.

Die auf der Basis von metastabil angeregten Atomen betriebenen Entladungen ermöglichen nicht nur die Modifikation von Oberflächen, sondern auch die Abscheidung dünner Schichten unter Atmosphärendruck, z.B. die Abscheidung von Siliziumdioxid [46] oder von Polymer-schichten [131].

Das technologische Potential der Atmosphärendruck-Glimmentladung inspirierte zahlreiche erfinderische Aktivitäten. J. R. Roth und P. P. Tsai z.B. beschreiben [129] eine Vorrichtung zur beidseitigen Behandlung von bahnförmigen Materialien mit Hilfe einer Atmosphärendruck-Glimmentladung. Die Entladung wird in einem Volumen zwischen zwei Elektroden gezündet. Die perforierten dielektrischen Platten auf beiden Elektroden unterdrücken den Übergang von der Glimmentladung zu einer Bogenentladung. Das bahnförmige Material wird in der

Mitte zwischen den beiden Elektroden durchgeführt. Nachteil dieser Vorrichtung ist, dass sie sich nur mit Helium- oder Argon-haltigen Gasmischungen betreiben lässt, da der Abstand zwischen den Elektroden relativ groß (im cm-Bereich) ist. Darüber hinaus fließt der gesamte Hochfrequenzstrom von einer Elektrode zur anderen durch das zu behandelnde Material. Dies kann zur Beschädigung des Materials infolge einer dielektrischen Aufwärmung oder aber zu direkten elektrischen Durchschlägen führen.

Andere Autoren berichten über eine Vorrichtung zur Erzeugung einer Atmosphärendruck-Glimmentladung, die mit Hilfe der Hochfrequenzanregung (13.56 MHz) in Form eines Jets erzeugt wird [84]. Als Anwendungsbeispiel wird die Modifikation von Kunststoffoberflächen genannt. Die Vorrichtung ist vorwiegend als Einzeljet konzipiert und eignet sich deshalb nur bedingt zur Behandlung von großflächigen bahnförmigen Materialien.

Eine Vorrichtung zur Erzeugung einer großflächigen Atmosphärendruck-Glimmentladung wurde von Kunhardt et al. vorgeschlagen [79], in der eine auf der Katode angebrachte dielektrische Mikrokanalplatte den Übergang des Arbeitspunktes der Entladung von einer Glimmentladung zu einer Bogenentladung unterdrückt. Nachteil dieser Vorrichtung ist die Geometrie, bei der die zwischen Anode und Katode eingeführten Substrate die Stromlinien unterbrechen und aus diesem Grunde einen starken Einfluss auf die Entladung haben.

Schoenbach et al. zeigen in einem Beitrag „High-pressure hollow cathode discharges“, [134] eine Vorrichtung zur Erzeugung eines Atmosphärendruck-Plasmas. Die Entladung findet in einem Loch zwischen zwei parallelen Elektroden an beiden Rändern des Loches statt. Die Voraussetzung für die Aufrechterhaltung dieser Entladung ist ein Durchmesser des Loches, der mit der freien Weglänge der Elektronen vergleichbar ist. Dies bedeutet bei Atmosphärendruck einen Durchmesser im Mikrometer-Bereich.

Eine andere erfinderische Vorrichtung zur Erzeugung eines Atmosphärendruck-Plasmajets mit Hilfe einer kapazitiven Hochfrequenzanregung von 13.56 MHz [135] wurde von Selwyn vorgestellt. Im Gegensatz zu einer thermischen Plasmafackel bleibt die Temperatur der Neutralteilchen in einem solchen Plasma unter 250°C. Ein wesentliches Merkmal dieser Vorrichtung ist die Übertragung der Energie vom Entladungsort zum Prozessort mit Hilfe von langlebigen metastabil angeregten Atomen und chemisch angeregten Spezies. Die Anwendung von Helium-Sauerstoff-Gasgemischen ermöglicht die Anwendung der Vorrichtung zur Hochraten-Abtragung von organischen Schichten. Die Bauweise der Vorrichtung schränkt jedoch die Anwendbarkeit auf kleine Flächen ein, da mit den eingesetzten konstruktiven Merkmalen im wesentlichen ein Einzeljet erzeugt wird.

Bis jetzt wurde die APGD als eine homogene Entladung, im Sinne einer Abwesenheit der einzelnen Filamente, betrachtet. Jedoch ist es nicht ganz klar, ob diese Entladung das gleiche Verhalten wie eine Niederdruck-Glimmentladung hat oder aus einer Summe von vielen mehr oder weniger verbundenen Filamenten besteht. Daher sind für ein besseres Verständnis der Physik dieser Entladung weitere Untersuchungen erforderlich.

2.5 Die Rolle der Metastabilen in APGD

Es ist bekannt, dass eine Energiespeicherung in den metastabil angeregten Spezies [103] über längere Zeiträume möglich ist. Sie trägt wesentlich zu Verhinderung von Filamenten in

Atmosphärendruckentladungen bei [55].

Besondere Bedeutung haben die langlebigen metastabil angeregten Spezies für die Aufrechterhaltung von APGDs, wie von F. Massines et al. [89] und N.G. Gherardi et al. [45] etwa für Helium bzw. Stickstoff experimentell nachgewiesen wurde. Sie besteht darin, dass die Metastabilen über einen längeren Zeitraum durch Stöße Elektronen freisetzen können, wodurch die Dauer der Teilentladungen und die Zeitabstände zwischen den Entladungen wesentlich erweitert werden [90]. Es ist nachgewiesen, dass bereits eine Restkonzentration an Elektronen von 10^6 cm^{-3} ausreicht, um die Zündspannung der nachfolgenden Teilentladung sehr stark herabzusetzen [62]. Elektronen-Ionen-Paare werden z.B. in Helium in Folge von Stufenionisation [17] oder in Folge einer Abregung erzeugt, die durch binäre Stöße von metastabil angeregten Atomen initiiert wird [16].

Die Lösung der Bilanzgleichungen [29] unter Vernachlässigung der Diffusion [115] und mit Berücksichtigung der quadratischen Abhängigkeit der Verluste von der Konzentration der metastabil angeregten Atome [116] liefert für eine typische Konzentration von metastabil angeregten Atomen in Helium-APGDs von $2,4 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$ für das Abklingen der Konzentration eine Zeitkonstante von ca. 3 bis 7 μs . Dies ist um 3 Größenordnungen länger als die typische Abklingzeit einer Teilentladung in Luft [144]. Eine ausführliche Darstellung der molekularen und atomaren Prozesse in Helium ist in Kapitel 5 beschrieben.

Dank so langer effektiver Lebenszeiten können metastabil angeregte Helium-Atome ohne Relaxation über mehrere cm transportiert werden. Auf diese Weise lässt sich der Ort der Erzeugung von dem der anschließenden Relaxation deutlich trennen. Remote-Prozesse, bei denen elektrisch geladene Partikel aus der eigentlichen Entladungszone nur eine untergeordnete Rolle spielen, werden so möglich. Bei Beimischung von molekularen Gasen in die Heliumentladung erfolgt die Freisetzung der Elektronen in Folge von Penning-Stößen. Die metastabil gespeicherte Energie kann dann auf molekulare Gase wie Stickstoff [27], Wasserstoff [100], Sauerstoff [119], Methan [5], Kohlendioxid [107] und andere übertragen werden.

Die wichtigsten metastabilen Zustände des molekularen Stickstoffs sind $\text{N}_2(\text{A}^3\Sigma_u^+)$ mit einer Anregungsenergie von 6,22 eV und einer radiativen Lebenszeit von 10 s und $\text{N}_2(\text{a}^1\Sigma_u^-)$ mit einer Anregungsenergie von 8,45 eV und einer radiativen Lebenszeit von 500 ms. Die Untersuchung der effektiven Lebenszeit der metastabil angeregten Zustände in Stickstoffentladungen und des Einflusses der Abregungsmechanismen weisen auf die große Bedeutung von $\text{N}_2(\text{A}^3\Sigma_u^+)$ hin [19]. Diese Spezies spielt eine primäre Rolle nicht nur bei der Aufrechterhaltung der APGD in reinem Stickstoff, sondern auch bei der Energieübertragung in Stickstoff-Sauerstoff-Gasgemischen [77]. Ihre Präsenz kann sehr weit entfernt von Entstehungsort nachgewiesen werden [14]. Deshalb kann sie als Energieträger bei Remote-Prozessen unter Atmosphärendruck eingesetzt werden.

Durch den vergleichsweise großen Diffusionskoeffizienten und den sich daran anschließenden Energieübertrag dieser metastabil angeregten Spezies sind Hochratenprozesse auch bei nichtplanaren Substratgeometrien im Prinzip möglich. Beispiel eines subtraktiven Prozesses ist das Ätzen von Silizium, Siliziumnitrid und Siliziumdioxid in einer Tetrafluormethan-APGD [67]. Zu den zahlreichen publizierten Beispielen für die additiven Prozesse gehören die Schichtabscheidung von Siliziumdioxid [46], Siliziumnitrid [106], Polymeren auf Kohlenstoff-Basis [125], oxidierten Kohlenwasserstoffpolymeren [78], Fluoropolymeren [122], Polymeren auf Silizium-Basis [131] oder auch amorphe Kohlenstoffschichten (engl. diamond-like-carbon

- DLC) [85]. Schichtqualitäten, die mit denen aus Niederdruck-Plasmaprozessen konkurrieren könnten, wurden allerdings noch nicht erreicht.

2.6 Nachweismethoden für die Metastabilen

2.6.1 Elektrische Methoden

Es gibt zwei Hauptinteraktionen von Metastabilen, die einen Stromfluss bewirken: (i) die Sekundärelektronen-Emission in Folge der Auger-Prozesse an den Metallflächen und (ii) die Freisetzung der Elektronen im Gasvolumen während der Penning-Stöße von Metastabilen. Beide Mechanismen können für die Diagnose der Metastabilen benutzt werden.

Sekundärelektronen-Emission

Die Freisetzung der Elektronen von der Metalloberfläche durch Stöße mit metastabilen Atomen wurde zuerst für die metastabilen Atome des Quecksilbers auf einer Nickeloberfläche [151] beobachtet. Erst später wurden die durch die Stöße der Helium-Metastabilen von einer Metalloberfläche freigesetzten Elektronen [109] studiert. Umfangreiche Forschung wurde für die Untersuchung der Metastabilen und ihre Wechselwirkung mit den Metalloberflächen bei Niederdruck [52] betrieben. Der Sekundärelektronenstrom wird für die Bestimmung des Flusses der metastabil angeregten Spezies in unterschiedlichen Anordnungen unter Vakuumbedingungen [38] gemessen. Diese Technik erfordert eine große freie Weglänge für die Elektronen und demzufolge kann sie nicht direkt für die Atmosphärendruck-Entladungen verwendet werden.

Sondenmessungen

Der Einfluss der metastabil angeregten Atome auf die Strom-Spannungs-Kennlinie einer elektrostatischen Sonde ist bereits seit langer Zeit als ein parasitärer Effekt bekannt [155], der die Bestimmung der Ionenkonzentrationen bei höherem Druck schwierig macht [149]. Wegen der Auger-Abregungen der metastabil angeregten Atome, kann ein hoher Sekundärelektronen-Emissionsstrom beobachtet werden.

In bestimmten Fällen, wie z.B. bei hochdichten Niedertemperatur-Plasmen, kann die Sondentechnik für die Bestimmung der Metastabilenkonzentration auch bei Atmosphärendruck [71] verwendet werden. In einem mit Mikrowellen angeregten Plasma unter einem Druck von 130 bis 1000 mbar wurden die Strom-Spannungs-Charakteristiken aufgenommen. Der Strom des positiven Astes der Kennlinie setzt sich aus den Ionenströmen und den durch den Auger-Effekt verursachten Sekundärelektronenstrom zusammen. Da die Anzahl der emittierten Elektronen mit der Anzahl der auf die Sondenfläche auftreffenden metastabil angeregten Atome zusammenhängt, lässt sich die Sekundärelektronenstromdichte zur Bestimmung des Flusses der metastabil angeregten Atome nutzen. Unter Anwendung von bekannten Diffusionskonstanten von metastabil angeregten Spezies lässt sich auf dieser Basis auch deren Konzentration ausrechnen.

Die Energie der Elektronen, die von der metallischen Oberfläche freigesetzt werden, entspricht der Ionisierungsenergie, die um die verdoppelte Austrittsarbeit [51] verringert wird:

$$E_e = E_i - 2\phi \quad (2.15)$$

wobei E_e die Energie der freigesetzten Elektronen, E_i Ionisationsenergie der zu untersuchenden Atome und ϕ die Austrittsarbeit des Metalls sind.

Durch die Nutzung zweier Sonden, die aus Metallen mit sehr unterschiedlichen Austrittsarbeiten gebaut sind, werden Elektronen mit unterschiedlichen mittleren Energien von ihren Oberflächen emittiert. Dieser Effekt könnte auch verwendet werden, um die Metastabilenkonzentration zu bestimmen. Der Abstand zwischen den Sonden muss kleiner als die freie Weglänge der Elektronen sein, liegt also bei Atmosphärendruck im Mikrometerbereich.

Eine wesentliche Beschränkung der Sondentechnik bei höheren Drücken stellen die parasitären Entladungen dar, die in Folge der Interferenz mit den elektrischen Feldern des Anregungssystems entstehen und damit zur Störung des zu diagnostizierenden Plasmas führen.

Analyse des Entladungsstromes

Informationen über die Abklingzeit der metastabil angeregten Spezies [137] in einer Entladung und eine Abschätzung deren Konzentration können durch die Analyse der durch eine DBD-Teilentladung fließenden Ströme erhalten werden. Diese Technik ist auf die Barrierentladungen beschränkt und bietet keinerlei Einblick in die räumlichen Verteilungen. Eine Möglichkeit, solche räumlichen Angaben zu erhalten, besteht in der Kombination dieser Technik mit den ICCD-Aufnahmen der Entladung.

2.6.2 Spektroskopische Methoden

Emissionsspektroskopie

Die 2^1S He Metastabilen können mittels der 501,57 nm Emissionslinie beobachtet werden, die dem Übergang $3^1P^0 \rightarrow 2^1S$ entspricht. In Hochdruckentladungen können auch die Emissionslinien der metastabil angeregten Helium-Moleküle beobachtet werden. Zu diesem Zweck werden normalerweise die Bänder um die Wellenlängen 464,8 nm, 513,3 nm, 573,3 nm und 639,8 nm benutzt [150]. Der Nachteil aller Methoden der Emissionsspektroskopie ist die schwierige Ermittlung der absoluten Spezieskonzentration.

Absorptionsspektroskopie

Eine leistungsfähige Methode für die Bestimmung der Konzentration des metastabil angeregten Heliums ist die Absorptionsspektroskopie. Die am meisten verwendeten Spektrallinien dieser Technik sind in Tabelle 2.2 zusammengefasst. Eine seit kurzem angewendete Technik ist die Diodenlaser-Absorptionsspektroskopie (DLAAS), die auf einem Diodenlaser basiert [152]. Die Diodenlaser haben ein sehr schmales Emissionsband mit Wellenlängen, die durch den Diodenstrom und die Diodenbetriebstemperatur abgestimmt werden können. Dies erlaubt ein präzises Abtasten der gesamten Absorptionslinie [112]. Die Vorteile der 1083 nm Absorptions-Wellenlänge, die durch den IR-Diodenlaser erreicht wird, bestehen im Vergleich zu den sichtbaren oder UV-Absorptionslinien in einem stärkeren Absorptionssignal und in

Wellenlänge	Übergang	Lichtquelle	Referenz.
501,57 nm	$2^1S \rightarrow 3^1P^o$	Helium-Lampe	[116, 4]
396,47 nm	$2^1S \rightarrow 4^1P^o$	Farbstofflaser	[54]
388,86 nm	$2^3S \rightarrow 3^3P^o$	Helium-Lampe	[82]
		Diodenlaser	[80]
318,77 nm	$2^3S \rightarrow 4^3P^o$	Xenon-Lampe	[104]
294,51 nm	$2^3S \rightarrow 5^3P^o$	Farbstofflaser ^{a)}	[66]
1083,0 nm	$2^3S_1 \rightarrow 2^3P_J$	Diodenlaser	[98]
463,7 nm	$a^3\Sigma_u^+ \rightarrow e^3\Pi_u$	Farbstofflaser ^{b)}	[150]
513,4 nm	$A^1\Sigma_u^+ \rightarrow E^1\Pi_g$	Farbstofflaser ^{b)}	[150]

Tabelle 2.2: Wellenlängen für die Absorptionsspektroskopie der metastabil angeregten He-Atome und Moleküle. ^{a)}Frequenzverdopplung. ^{b)}optisch gepumpt durch XeCl Laser.

dem Verzicht auf eine Frequenzverdoppelung [113]. Der Nachteil dieser Technik ist die Anwendung der unsichtbaren Strahlung im nahen IR-Bereich. Infolgedessen müssen spezielle Ausrüstungen für die Visualisierung des Lichtstrahls und für die Lichtdetektion (InGaAs-Fotodiode) benutzt werden. In letzter Zeit wurde die Anwendbarkeit der Absorptionstechniken auch für die Diagnose bei Atmosphärendruck demonstriert.

Laserinduzierte Fluoreszenz

Die laserinduzierte Fluoreszenz (LIF) kann für die Ermittlung der qualitativen 3D-Verteilung der metastabil angeregten Spezies verwendet werden. Die Lumineszenz um die Wellenlänge von 667,8 nm und von 706,5 nm kann für die Bestimmung der Konzentration der 2^1S He-Singlet-Metastabilen beziehungsweise der 2^3S He-Triplet-Metastabilen benutzt werden [56]. Die Ermittlung der absoluten Werte erfordert die Kalibrierung der LIF-Methode durch Absorptionstechnik.

Penning-Anregung

Eine kleine Menge von Stickstoff, die in ein Gas mit einer hohen Konzentration von metastabil angeregten Heliumatomen zugeführt wird [20], verursacht eine starke Lichtemission in Folge der Penning-Prozesse. Ein titrationsähnliches Diagnostikverfahren kann für eine quantitative Ermittlung der Metastabilenkonzentration eingesetzt werden. Diese Methode erlaubt auch eine 3D-Charakterisierung der Metastabilen [20], beeinflusst aber deren Konzentration durch zusätzliches Quenching.

2.6.3 Wechselwirkungen mit Oberflächen

Bestrahlung mit metastabil angeregten Spezies

Die Bestrahlung eines elektronenempfindlichen Materials mit den metastabil angeregten Spezies verursacht chemische Reaktionen einer bestimmten Menge des Materials, die zur Dosis der Metastabilen proportional ist [96]. Da die Dosis proportional zu der Metastabilenkonzentration ist, kann diese Methode zur Bestimmung der Konzentration verwendet werden. Die auf diesem Effekt basierenden Methoden sind aber nicht zeitaufgelöst, da ein kompliziertes Entwicklungsverfahren für die elektronenempfindlichen Materialien benötigt wird.

Durch metastabil angeregte Spezies induzierte Lumineszenz

Eine auf der elektronenstoßinduzierten Lumineszenz basierende Methode wurde vor kurzem vorgeschlagen: da die Elektronen durch die Abregung der metastabil angeregten Spezies freigesetzt werden, kann dieses Verfahren als alternative Methode zur Bestimmung der Metastabilenkonzentration eingesehen werden. Die schnelle Entwicklung im Bereich der elektronenempfindlichen Materialien ermöglicht die Detektion der Elektronen mit Energien unter 4 eV. Die auf ZnS:Ag, ZnS:Cu und Y₂O₂S:Eu basierenden Leuchtstoffe erlauben z.B. die Erzeugung des blauen, grünen, beziehungsweise roten Lichtes [87]. Der Phosphor wird auf der Oberseite einer optischen Faser aufgebracht. Das vom Phosphor emittierte Licht wird über eine optische Faser zur einer Fotodiode geführt. Durch die Verwendung mehrerer Leuchtstoff-Typen mit unterschiedlichen Aktivierungsenergien und Farben ist die Ermittlung der Art der metastabilen Spezies möglich. Um die Elektronenenergie zu erhöhen, sind Metalle mit möglichst niedriger Austrittsarbeit bevorzugt.

Kapitel 3

Planare dielektrisch behinderte Entladungen

Zu den Nachteilen der klassischen Volumen-Barrierenentladung gehören eine für großflächige Prozesse ungeeignete Entladungsgeometrie (die Entladungskanäle können das zu behandelnde Material durchdringen und Beschädigungen verursachen), hohe Spannungen und eine relativ hohe Wärmeentwicklung. Eine für viele technologische Anwendungen besonders attraktive Variante der Barrierenentladung ist die sogenannte Oberflächenentladung, die ursprünglich zur Ozonerzeugung verwendet wurde [95].

Die klassische dielektrisch behinderte Oberflächenentladung (engl. surface barrier discharge, SBD) lässt sich relativ einfach realisieren. Auf einem Dielektrikum (typischerweise Keramik, Glas, Quarz oder Polymersubstrat) werden die Entladungselektrode auf einer Seite und die Induktionselektrode auf der anderen Seite beschichtet.

Diese Konfiguration ist sehr stabil, benötigt nur eine geringe Betriebsspannung und besitzt dadurch eine hohe Lebensdauer. Sie ist leicht herstellbar und ermöglicht niedrige Konstruktionskosten. Dank ihrer Geometrie sind Oberflächen-Barrierenentladungen zur Behandlung von planaren Substraten (z.B. Oberflächenaktivierung) besonders gut geeignet.

Viele wichtige Informationen zur Physik der Entladung (Entladungsmechanismus und -struktur) lassen sich durch Simulationen, durch zeitaufgelöste Strom- und Spannungsmessungen, durch Emissions- und Absorptionsspektroskopie oder durch die optische Beobachtung der gesamten Entladung sowie lokaler Abschnitte erfassen.

3.1 Typische SBD-Entladungsstrukturen

Es wurde gezeigt [47], dass der Strom in einer typischen Oberflächenentladung in Luft aus vielen kurzen Strompulsen (genannt „Entladungsschritte“) besteht. Die in einer dünnen Schicht über das Dielektrikum transferierte Ladung wird auf der Fläche als Oberflächenladung angelagert. Mit zunehmender Spannung wird die Entladungsfläche und demzufolge auch die Oberflächenladung auf dem Dielektrikum größer.

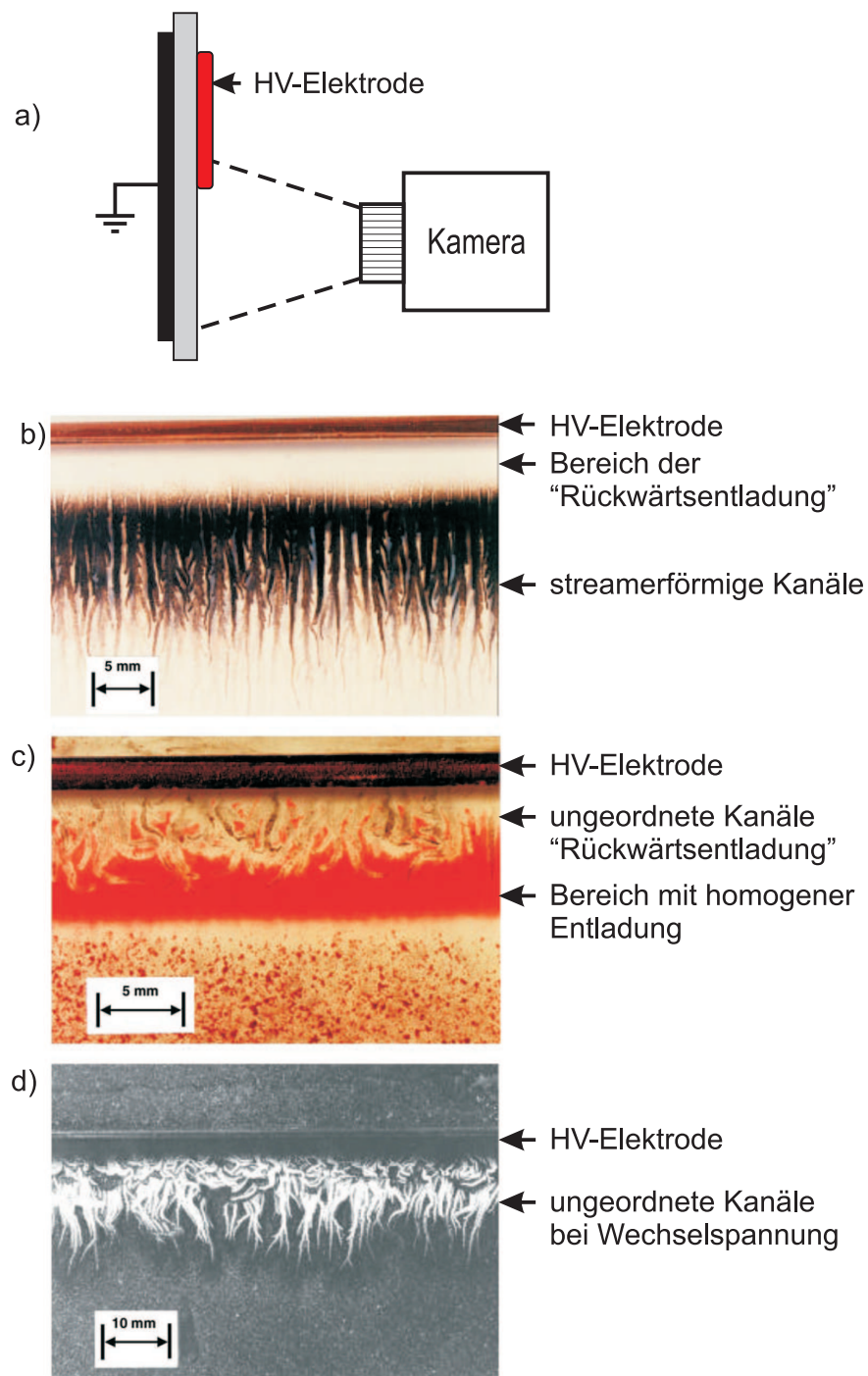


Abbildung 3.1: a) Schematische Darstellung der Elektrodengeometrie und die Entladungsstrukturen sichtbar gemacht durch Staubbilder in einer klassischen SBD in Luft b) mit einem 20 kV positiven Puls, c) mit einem 20 kV negativen Puls, d) mit 10 kV Wechselfspannung [47]

Die Struktur der Entladung ist von der Spannungspolarität abhängig. Wenn an der Entladungselektrode ein positiver Hochspannungspuls angelegt wird (positive Polarität), dann treten nach einem homogenen Entladungsbereich ausgeprägte Kanäle mit einem Durchmesser von ca 1 mm auf (Abb. 3.1 b).

Bei negativer Polarität hat die Entladung die umgekehrte Struktur: entlang der Elektrode sieht es streamerförmig aus und darunter homogen (Abb. 3.1 c).

Diese beide Bereiche werden folgendermaßen erklärt: Während des positiven Pulses entwickelt sich eine streamerförmige Entladung, die eine Oberflächenentladung auf der Keramik verursacht. Wenn der Puls abgeschaltet wird, ist in Folge der Oberflächenentladung ein elektrisches Feld umgekehrte Polarität vorhanden, das zu einer sogenannten „Rückwärtsentladung“ führt. In der Summe ergibt sich dabei eine Struktur, wie in Abb. 3.1 b gezeigt wird.

Bei negativer Polarität sind die Verhältnisse relativ gleich, allerdings ist Oberflächenentladung durch Elektronen gebildet. Es ergibt sich in der Summe eine Struktur, wie in Abb. 3.1 c zu sehen ist. Nach [47] haben die Rückwärtsentladungen die Struktur der umgekehrten Polarität: Bei positiver Polarität sehen sie homogen aus und bei der negativen Polarität bestehen sie aus ungeordneten Kanälen.

Mit einer angelegten Wechselspannung kann man ein Gemisch aus beiden Strukturen beobachten (siehe Abb. 3.1 d).

Die Länge der Entladungskanäle, die der Breite des Bereiches mit der angelagerten Oberflächenentladung entspricht, hat eine von der Kante der Entladungselektrode berechnete Länge L (siehe Abb. 3.2) von ungefähr einigen Millimetern bei der negativen Polarität (Kurve 3), aber eine viel größere bei der positiven Polarität (Kurve 1). Beide Werte hängen von der angelegten Spannung ab. Im Fall einer Wechselspannung hat diese Breite einen Wert, der kleiner als für die positive Polarität, aber größer als für die negative Polarität ist, wie in Abb. 3.2, Kurve 2 gezeigt wird.

Die äußere Grenze des aufgeladenen Bereichs wird durch den ersten positiven Halbzyklus der angelegten Spannung bestimmt. In der folgenden negativen Halbperiode wird die negativ aufgeladene Fläche durch die angelagerte positive Ladung vergrößert und die transversale Komponente des elektrischen Feldes verstärkt. Es ist experimentell nachgewiesen, dass der äußere Bereich der aufgeladenen Fläche bei einer Wechselspannung positiv geladen ist [126].

Wie bereits erwähnt, hängt die Breite der aufgeladenen Fläche bei der SBD-Anordnung auch von der Amplitude der Spannung ab. Das bedeutet, dass die an der Entladung beteiligte Fläche (d.h. der mit der Oberflächenentladung bedeckte Bereich der Keramikplatte) nicht konstant bleibt und folglich die Kapazität der Entladung von der Spannungsamplitude abhängt. Manche Autoren [47] vertreten die Idee, dass die SBD-Charakteristiken hauptsächlich von der Kapazität des Aufbaus abhängen, aber von dem Entladungsgas unabhängig sind. In Kapitel 5 wird nachgewiesen, dass sich die Entladungsstruktur in einer Atmosphärendruck-Glimmentladung anders als in dem oben beschriebenen filamentarischen Modus verhält und dadurch ihre Eigenschaften vom verwendeten Entladungsgas abhängen.

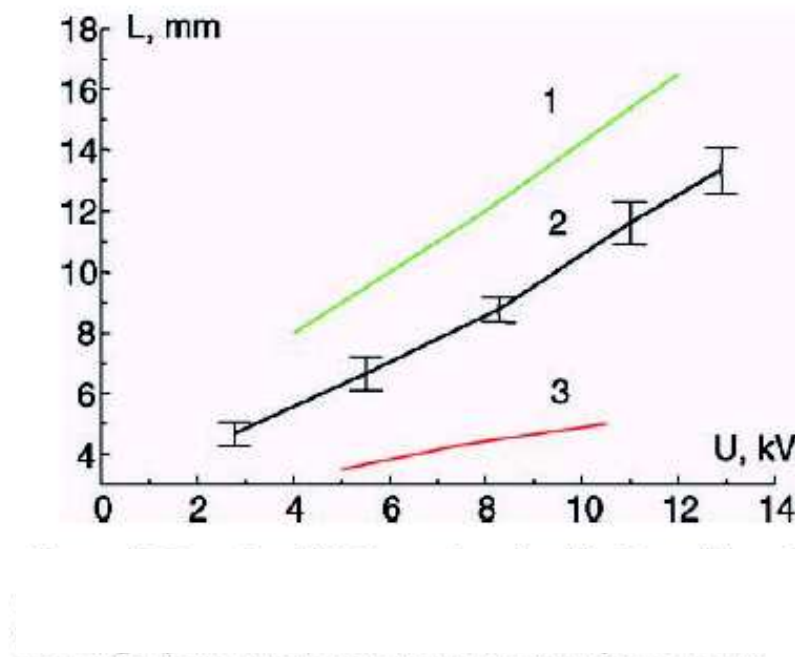


Abbildung 3.2: Länge der Entladungskanäle L in SBD mit positivem Puls (Kurve 1), Wechselfspannung (Kurve 2), mit negativem Puls (Kurve 3) [47]

3.2 Einfluss des Dielektrikums auf die Entladungseigenschaften

Es wurde der Einfluss des Dielektrikums auf die verschiedenen Entladungseigenschaften untersucht [47]. Die Messungen haben gezeigt, dass bei konstanter Amplitude der angelegten Spannung die Länge der Entladungskanäle von der relativen Dielektrizitätskonstante des Dielektrikums abhängt. Je größer die Dielektrizitätskonstante ist, desto kürzer werden die Kanallängen.

Die Al_2O_3 -Keramik ist wegen ihrer ausgezeichneten Wärmeleitfähigkeit, ihrer hohen Durchschlagfestigkeit und ihrer chemischen Resistenz das meist verwendete Dielektrikum für die SBD. Aus diesem Grunde wurde sie auch für unsere Experimente gewählt. Ein Nachteil der Al_2O_3 -Keramik ist die Erzeugung der an ihrer Fläche fest gebundenen Aufladung, die dort die Bewegung der freien elektrischen Ladung verzögert. Andererseits trägt diese Eigenschaft zu der relativ homogenen räumlichen Verteilung der Mikroentladungen bei.

Auf eine starke Empfindlichkeit der SBD-Eigenschaften auf die Verunreinigung des Al_2O_3 -Materials wurde von Van Brunt und al. [143] hingewiesen. Im Fall eines hohen Reinheitsgrades (99.9%) von Al_2O_3 verschwinden die durch einen positiven Hochspannungspuls erzeugten Entladungen kurze Zeit nach dem Pulsanfang, während die negativen Entladungen fort dauern. Das Erlöschen der positiven Entladung wurde für Al_2O_3 -Keramiken mit einer Reinheit von weniger als 96% nicht beobachtet. Der Grund dafür und die Mechanismen der Anhaftung der positiven Ladung, ihre Migration und die Streuung sind noch nicht ganz geklärt. Diese Mechanismen steuern die Ladungsdichte auf der Keramikoberfläche.

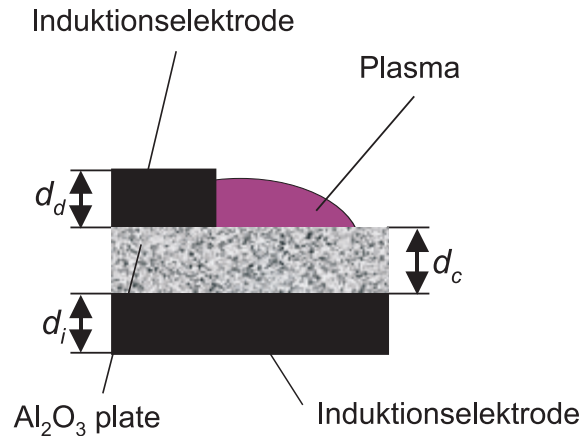


Abbildung 3.3: Querschnitt einer SBD-Struktur. Für die geometrischen Angaben der Struktur siehe Tabelle A.1 im Anhang A

Vom Einfluss des Al_2O_3 auf den Entladungsstrom wurde auch von Gherardi et al. [45] bei der Untersuchung der APGD in Stickstoff berichtet. Mit Al_2O_3 als Dielektrikum ändert sich der APGD-Stromverlauf während der Entladung. Nach einigen Minuten steigt die Stromamplitude, sinken die Durchbruchspannung und die Anstiegszeit, während sich die Aufladungszeit und die der Entladung zugeführte Leistung erhöhen. Durch die Analyse der Emissionsspektren haben sie festgestellt, dass dieses Verhalten durch die Porosität der keramischen Oberfläche und hieraus folgende sehr leichte Verunreinigungen durch die Gasumgebung erklärt werden kann.

Die für diese Verunreinigung verantwortlichen Hauptstoffe sind N_2 , O_2 , H_2O und auch C_xH_x . Während der Entladung werden die Verunreinigungen von der Keramikoberfläche entfernt und demzufolge wird die Abregung der metastabil angeregten N_2 -Spezies schwächer. Dies verursacht einen allmählichen Anstieg der Konzentration der durch die Penning-Ionisation erzeugten Elektronen. Die zwischen zwei aufeinander folgenden Pulsen vorhandenen Elektronen unterstützen den Betrieb der Entladung im APGD-Modus.

3.3 Realisierung der Struktur

Das in unserem Experiment für die SBD verwendete Entladungssystem besteht aus zwei auf einer Keramikplatte mittels Sputtern oder per Siebdruckverfahren aufgetragenen Wolframelektroden. Die Keramikplatte mit einer Dicke von 0,38 mm wurde aus Aluminiumoxyd (Al_2O_3) mit einer Reinheit von 99% hergestellt.

Für die Entladungselektrode wurden zwei Geometrien, die Streifenstruktur und die Lochstruktur, entworfen. Der Querschnitt der Anregungsstrukturen beider Systeme wird in Abb. 3.3 gezeigt.

Die Streifenstruktur besteht aus 1 mm breiten Metallstreifen, die in einem Abstand von 1,5 mm parallel voneinander verlaufen und mit einem senkrechten Streifen verbunden sind (siehe Anhang A, Abb. A.1). Die Lochstruktur (Anhang A, Abb. A.2) enthält Löcher mit einem Durchmesser von 1,45 mm in einem Abstand von 2,6 mm. Die geometrischen Daten

für die beiden Elektrodensysteme sind in Tabelle A.1 (Anhang A) zusammengefasst. Auf der gegenüberliegenden Seite der Keramik wird die Induktionselektrode in Form eines Rechteckes gebildet. Zum besseren Vergleich wurden die beiden Elektrodenlayouts so entworfen, dass die Elektroden die gleiche Randlänge haben.

Das Entladungssystem wird in einer Reaktionskammer betrieben, die an ein Vakuumsystem angeschlossen wird, um die Experimente in verschiedenen Gasen durchführen zu können. Vor den Experimenten wird die Reaktionskammer auf 10 Pa abgepumpt. Anschließend wird das Prozessgas bis zum gewünschten Druck eingeführt. Dieser Druck kann aufrechterhalten werden, indem man das Arbeitsgas geringfügig abpumpt oder indem man bei Atmosphärendruck das Gas aus der Reaktionskammer ausströmen lässt.

Wie bereits erwähnt (siehe Abschnitt 2.5) sind langlebige, metastabil angeregte Atome und Moleküle von besonderer Bedeutung für die Erzeugung der APGD. Ein potentieller Nachteil einer klassischen SBD bei der Erzeugung einer APGD ist der direkte Kontakt der metallischen Elektrode mit der Entladung, der zu einer Verkürzung der Lebensdauer und einer Herabsetzung der Konzentration der Metastabilen in Folge von Auger-Prozessen an der Oberfläche führen könnte.

Dieses Problem tritt in der isolierten Oberflächenentladung oder in der koplanaren Entladung nicht auf. Diese beiden planaren DBD-Varianten werden im Folgenden kurz beschrieben.

In einem Entladungssystem zur Erzeugung einer isolierten Oberflächenentladung (engl. insulated surface discharge, ISD) wird die Entladungselektrode in beiden Konfigurationen (Streifen- oder Lochstruktur) mit einer Isolierschicht bedeckt (Abb. 3.4). In unseren Ex-

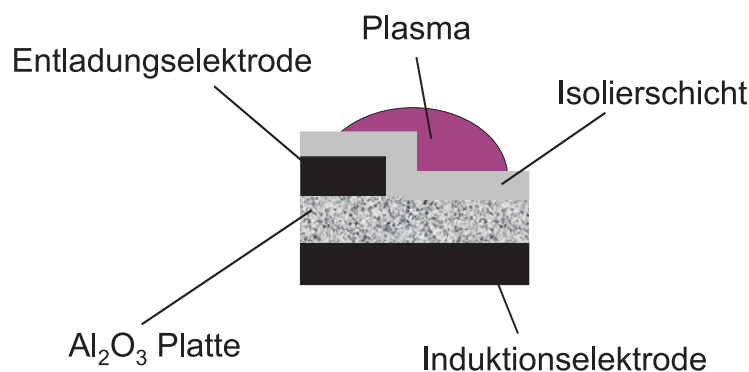


Abbildung 3.4: Die isolierte Oberflächenentladung im Querschnitt. Für die geometrischen und elektrischen Angaben der Struktur siehe Tabelle A.3 im Anhang A

perimenten werden drei verschiedene Isolierfilme benutzt: ein Silikonharz (Phenylmethylpolysiloxanharz), das durch das Spin-Coater-Verfahren über die Entladungselektrode aufgebracht wird, eine PVC-Folie, die direkt auf die Entladungselektrode aufgelegt wird und ein durch ein PECVD-Verfahren aufgetragener DLC-Film. Die geometrischen und elektrischen Eigenschaften der bei der ISD-Struktur benutzten Materialien sind in der Tabelle A.3 zusammengefasst.

In den dielektrisch behinderten Koplanarentladungen (engl. coplanar barrier discharge, CBD) sind die auf derselben Seite des Dielektrikums abgeschiedenen Elektroden unter einer nichtleitenden Schicht eingegraben und somit für das Plasma „nicht sichtbar“. Untersuchungen

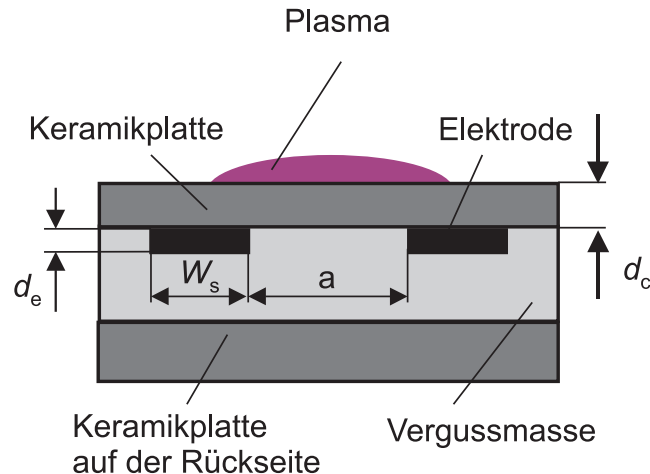


Abbildung 3.5: Die dielektrisch behinderte Koplantentladung im Querschnitt. Für die geometrischen und elektrischen Angaben der Struktur siehe Tabelle A.4 im Anhang A

solcher Konfigurationen, die in Plasma-Display-Panels (PDP) breite Anwendung finden, wurden schon vor einigen Jahren durchgeführt.

Für unsere Messungen werden die Wolfram-Elektroden auf einer 0,25 mm dicken Al_2O_3 -Keramikplatte in einem Abstand von 0,5 mm voneinander durch Magnetron-Zerstäubung abgeschieden. Der Querschnitt dieser Struktur ist in Abb. 3.5 zu sehen. Die geometrischen Abmessungen sind in Abb. A.3 gezeigt und die technischen Daten der CBD-Struktur sind in Tabelle A.4 zusammengefasst.

3.4 Experimentelle Methoden

Die Ermittlung der Entladungsparameter in nicht-voluminösen Plasmen, bei denen in planaren DBD-Geometrien die Dicke in Abhängigkeit von der Gasart und vom Druck kleiner als ein paar Millimeter ist, erfolgt meistens durch nicht-invasive Methoden, wie Emissions- oder Absorptionsspektroskopie, durch zeit- und orts aufgelöste Untersuchungen (z.B. mit einem digitalen Fotoapparat) oder durch Interpretation der Strom- und Spannungssignale. Für solche Plasmen sind Sondentechniken oder andere invasive Methoden wegen ihres großen Störungspotentials weniger geeignet.

Die Abschätzung solcher Plasmaparameter, wie der Konzentration der verschiedenen Plasmaspezies oder der Elektronen- und Gastemperatur, ist sehr wichtig für das Verständnis der Anregungs- und Ionisationsmechanismen sowie der Verlustprozesse und für die Entwicklung eines Entladungsmodells. Diese spezifischen Plasmaparameter sind auch in Bezug auf bestimmte Anwendungen sehr wichtig, wenn zum Beispiel eine vorgegebene Elektronendichte oder -energie erforderlich ist oder wenn die Gastemperatur einen bestimmten Wert nicht überschreiten darf.

3.4.1 Strom-/Spannungsmessungen

Ein Spannungssignal mit einer Frequenz von 1 kHz bis 10 kHz und einer Amplitude bis 5 kV wird zwischen den Elektroden angelegt. Je nach Anwendung werden eine auf einem Resonanzprinzip basierende Spannungsversorgung oder ein Impulsgenerator zusammen mit einem Hochspannungsverstärker benutzt. Wenn nicht anders erwähnt, werden die Spannung mit einem passiven Hochspannungs-Hochfrequenzstastkopf (P6015A) und der Entladungsstrom mit einer Rogowski-Spule oder für zeitlich hochaufgelöste Messungen mit einer Hochfrequenz Stromzange CT6 gemessen. Beide Signale werden auf einem Digitalspeicher-Oszilloskop (Tektronix TDS 7254 oder LeCroy) erfasst und ausgelesen.

3.4.2 Gesamtlichtemission (ICCD, Lichtdiode)

Die zeitaufgelöste Gesamtlichtemission der Entladung lässt sich mit Hilfe einer schnellen Photodiode relativ einfach erfassen. Bei der Untersuchung der dielektrisch behinderten Oberflächenentladung wird eine Hamamatsu Si PIN Photodiode der S6436-Serie mit einem breiten Bereich der spektralen Empfindlichkeit (320-1060 nm) benutzt. Die Zeitkonstante der Photodiode mit einer Klemmenkapazität von 15 pF und eines zur Photodiode parallel geschalteten 5 k Ω Widerstandes beträgt 75 ns.

Mit einem Oszilloskop werden die Signale von der Photodiode gleichzeitig mit dem über einen 50 Ω Widerstand gemessenen Strom und der angelegten Spannung aufgenommen.

Eine zeit- und orts aufgelöste Untersuchung der SBD erfolgt mittels eines gatebaren ICCD-Kamerasystems (Princeton 576-G/1). Die Kamera besteht aus einer thermoelektrisch gekühlten (-40°C), frontbeleuchteten Silizium CCD-Matrix (576x384 Pixel, Pixelgröße 22 μ m). Als Bildverstärker ist dem CCD-Chip eine elektronisch ausgerüstete Mikrokanalplatte (MCP-micro channel plate) vorgeschaltet. Die elektronische Blende ermöglicht extrem kurze Belichtungszeiten von bis zu 5 ns. Ein rechnergesteuerter Puls-Verzögerungsgenerator (Princeton PG200) kontrolliert die Öffnungszeit t_g der elektronischen Blende. Das Makro-Objektiv ermöglicht eine für die Beobachtung einzelner Teilentladungen ausreichende Vergrößerung.

Die schematische Darstellung der experimentellen Anordnung für die zeitaufgelöste optische und elektrische Charakterisierung der Entladungsdynamik einer SBD ist in Abb. 3.6 zu sehen.

3.4.3 Diodenlaser-Atomabsorptionsspektroskopie

Die klassische Atomabsorptions-Spektroskopie (AAS) arbeitet mit einer Primärlichtquelle, deren Strahlung durch eine Absorptionszelle geführt und deren Intensitätsabnahme nach dem Passieren eines Monochromators mit einem Photomultiplier gemessen wird. Als Primärlichtquellen werden vor allem Hohlkathodenlampen eingesetzt, die das Linienspektrum des zu untersuchenden Elementes emittieren. Der Monochromator dient dazu, eine dieser Linien zu selektieren. Die durch die dispersiven Bauteile des Monochromators gegebene spektrale Auflösung dieser Apparatur ist wesentlich größer als die natürliche Linienbreite des zu untersuchenden Elements.

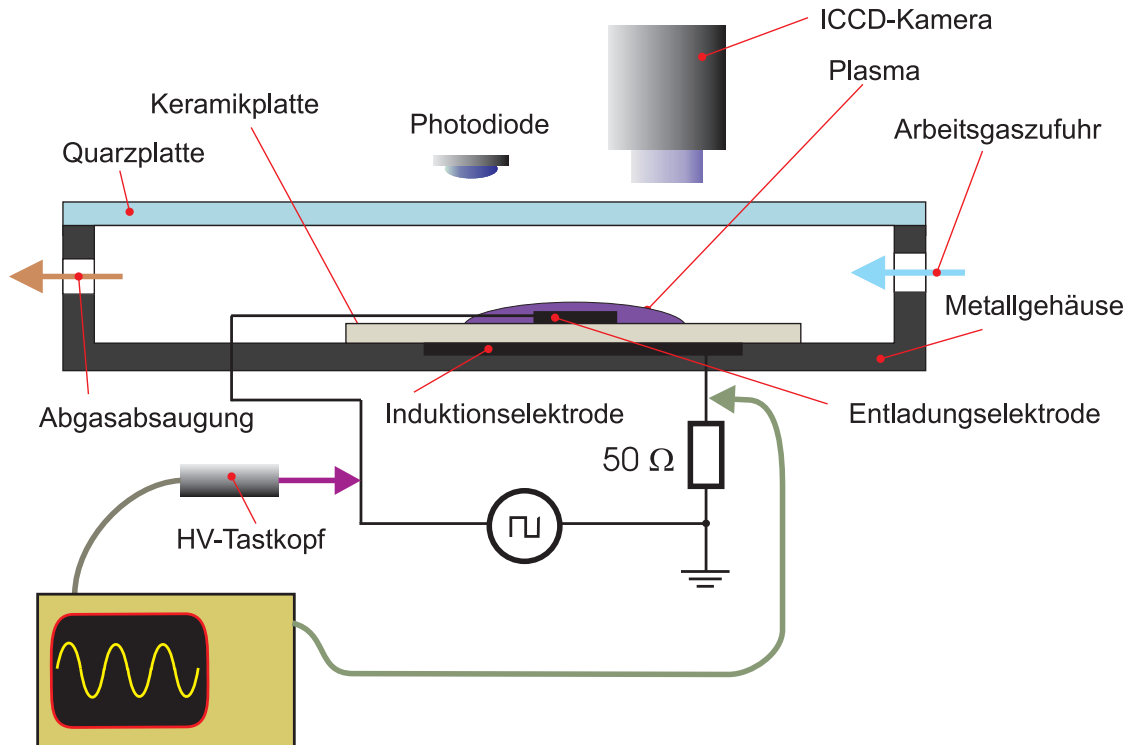


Abbildung 3.6: Versuchsanordnung zur zeitaufgelösten optischen und elektrischen Charakterisierung der Entladungsdynamik einer SBD

Die Laserspektroskopie insbesondere mit Laserdioden hat eine Reihe von Vorteilen gegenüber der klassischen AAS. Die Laserstrahlung ist monochromatisch durchstimmbar, so dass auf die Verwendung dispersiver Elemente verzichtet werden kann. Die spektrale Auflösung ist auch nicht mehr instrumentell begrenzt, sondern ergibt sich durch die Breite der Absorptionslinie (z. B. Dopplerbite). Aufgrund der geringen Strahldivergenz kann eine lange Absorptionsstrecke durch Mehrfachreflexionen realisiert werden. Zudem können einfache Modulationstechniken eingesetzt werden, die zu besseren Signal-Rausch-Verhältnissen führen.

Laserdioden verwenden den Übergang eines p und n dotierten Halbleiters als aktives Medium. Die Endflächen der Kristalle werden als Spiegel des Laserresonators verwendet. Halbleiterlaser gibt es in den Bereichen von 390 bis 425 nm und von 620 nm bis 30 μm , wobei die Emissionswellenlänge von der Zusammensetzung und Dotierung des Halbleitermaterials abhängt. Diodenlaser basierend auf III-V-Halbleitern (Elemente der III. und V. Hauptgruppe des Periodensystems) gibt es als InGaAsP-Dioden im Bereich von 625 bis 695 nm, als GaAlAs-Dioden im Bereich von 735 bis 900 nm sowie als GaN-Dioden für blaue Laser.

Die Wellenlängen der Laserdioden sind über Strom und Temperatur um bis zu 10 nm durchstimmbar. Die Durchstimmung der Wellenlänge mit der Temperatur erfolgt langsam, so dass die Absorptionslinien in der Regel über eine Stromänderung verstimmt werden und die Temperatur mit einem Peltierelement konstant gehalten wird.

Die emittierte Linie des Lasers hat eine Bandbreite von 30 bis 200 MHz und ist damit kleiner als die natürliche Linienbreite der Absorptionslinien. Übersichten über die Verwendung von Laserdioden in der Spektroskopie finden sich bei [44] und [23].

3.4.3.1 Absorptionsmessungen

Das Prinzip einer Absorptionsmessung ist in Abb. 3.7 verdeutlicht.

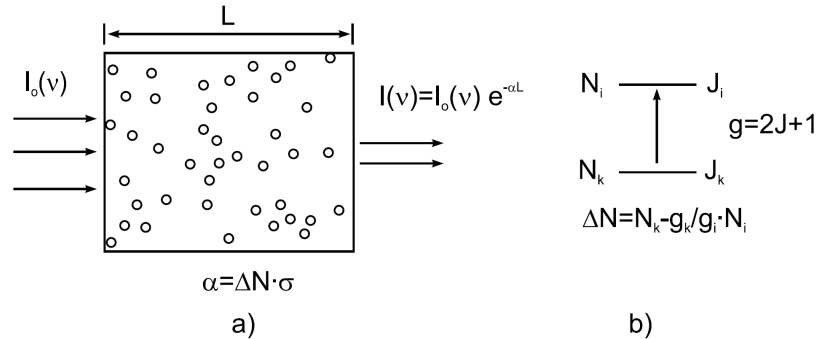


Abbildung 3.7: a) Absorption einer monochromatischen Welle durch eine Probe mit der Absorptionslänge L und dem Absorptionskoeffizienten α , b) Schematische Darstellung der unteren und oberen Niveaus, zwischen denen die Absorption stattfindet

Eine monochromatische Welle der Wellenlänge λ fällt auf eine absorbierende Probe mit dem Absorptionskoeffizient α . Die transmittierte Intensität I beträgt nach dem Lambert-Beerschen Gesetz:

$$I(\lambda) = I_o(\lambda) \cdot e^{-\alpha(\lambda) \cdot L} \tag{3.1}$$

wobei $I_o(\lambda)$ für die eingestrahlte Intensität und L für die Länge der absorbierenden Probe (im Weiteren als die Absorptionslänge genannt) stehen. Der Absorptionskoeffizient $\alpha(\lambda)$ ist durch die Differenz von Absorptionsrate und induzierter Emissionsrate des Überganges gegeben

$$\alpha(\lambda) = N_k \left(1 - \frac{g_k}{g_i} \frac{N_i}{N_k} \right) \sigma(\lambda) \tag{3.2}$$

mit N_k und N_i als die Besetzungsdichte des unteren und oberen Niveaus, dem Absorptionsquerschnitt σ und den statistischen Gewichten g_i und g_k . Der Absorptionsquerschnitt $\sigma(\lambda)$ hängt wiederum mit dem Einsteinkoeffizienten der Absorption B_{ki} zusammen

$$B_{ki} = \frac{c}{h\lambda} \int \sigma(\lambda) d\lambda \tag{3.3}$$

wobei c die Lichtgeschwindigkeit und h das Plancksche Wirkungsquantum sind. Das Integral muss im Prinzip über alle Wellenlängen von 0 bis ∞ gebildet werden, jedoch ist der Beitrag innerhalb des Linienprofils $I(\lambda)$ dominant, so dass sich die Berechnung auf wenige 10 pm beschränken lässt.

Der Einsteinkoeffizient der Absorption B_{ki} lässt sich aus dem Einsteinkoeffizienten der spontanen Emission A_{ik} berechnen:

$$B_{ki} = A_{ik} \frac{\lambda^3}{8\pi h} \cdot \frac{g_i}{g_k} \quad (3.4)$$

Der Einsteinkoeffizient A_{ik} liegt tabelliert z. B. in [81, 156] vor.

Aus Gleichung (3.3) und Gleichung (3.4) folgt:

$$\int \sigma(\lambda) d\lambda = A_{ik} \frac{\lambda^4}{8\pi c} \cdot \frac{g_i}{g_k} \quad (3.5)$$

Unter Berücksichtigung der Tatsache, dass die Besetzungsdichte des oberen Niveaus in Edelgasentladungen viel kleiner als die des unteren Niveaus ist (in Gl. 3.2 nimmt man $N_i/N_k \ll 1$), wird aus dem Integral vom Absorptionsquerschnitt $\sigma(\lambda)$ über das Linienprofil der Absorption die Teilchendichte N_k im unteren Zustand bestimmt. Auf dieser Basis werden die Konzentrationen angeregter Spezies in einem He-Plasma in Abschnitt 5.3 berechnet.

3.4.3.2 Linienprofile

Die Messung der Absorptionslinienprofile kann Aufschluss über verschiedene Plasmaparameter geben. Gastemperatur und Elektronendichte können z. B. aus der Breite der Profile ermittelt werden. Aufgrund der begrenzten Lebensdauer eines Zustandes besitzt jeder Übergang eine natürliche Linienbreite. Diese ist jedoch in der Regel im Verhältnis zu den anderen Verbreiterungsmechanismen so klein, dass sie bei der weiteren Behandlung vernachlässigt werden kann. Die drei wichtigsten Verbreiterungsmechanismen in einem Plasma sind die Doppler-, die Druck- und die Starkverbreiterung.

Man unterscheidet in diesem Zusammenhang homogene und inhomogene Verbreiterungen. Die ersten sind für jedes Atom gleich. Zu ihnen zählen die natürliche Linienbreite, sowie die Druck- und die Starkverbreiterung. Sie bilden ein Lorentzprofil:

$$y_{Lorentz}(x) = \frac{2A}{\pi} \frac{2}{4(x - x_c - \beta)^2 + w^2} \quad (3.6)$$

wobei A die Fläche unter der Funktionskurve, x_c das Linienzentrum, β eine Verschiebung des Linienmaximums zum Linienzentrum und w die volle Breite auf halber Höhe bezeichnen. Die inhomogene Verbreiterung entsteht dagegen nur durch das Zusammenwirken eines Ensembles. Ein einzelnes Atom weist keine Dopplerverbreiterung auf, sondern nur eine durch den Dopplereffekt verschobene Linie. Daher wird diese Verbreiterung auch inhomogen genannt. Sie bildet ein Gaußprofil:

$$y_{Gau}(x) = \frac{A}{w\sqrt{\pi/2}} \cdot e^{-2\frac{x-x_c}{w^2}} \quad (3.7)$$

Dopplerverbreiterung

Die Dopplerverbreiterung entsteht aufgrund der thermischen Bewegung der Atome. Bewegt sich ein Atom mit der Geschwindigkeit v relativ zum Beobachter (der z -Achse entlang), so erscheint die Frequenz des Lichtes im Verhältnis zum ruhenden Atom aufgrund des Doppereffektes verschoben. Befindet sich das System im Gleichgewicht, so ist die Geschwindigkeitsverteilung der Atome (Maxwell-Verteilung) durch

$$n_i(v_z)dv_z = \frac{N_i}{v_w\sqrt{\pi}} \exp(-v_z/v_w)^2 dv_z \quad (3.8)$$

gegeben, wobei $v_w = \sqrt{2kT/m}$ die wahrscheinlichste Geschwindigkeit, k die Boltzmannkonstante und $N_i = \int_{-\infty}^{\infty} n_i(v_z)dv_z$ die Gesamtzahl aller Atome im Zustand E_i pro Volumeneinheit sind. Dies führt auf eine gaußförmige Verbreiterung der Linie, deren volle Breite auf halber Höhe mit

$$\Delta\lambda_{Gau} = \lambda_0 \sqrt{\frac{8kT \ln 2}{mc^2}} \quad (3.9)$$

bestimmt werden kann, wobei λ_0 die Wellenlänge des ungestörten Überganges, k die Boltzmannkonstante, T die Gastemperatur, m die Masse des untersuchten Atoms und c die Lichtgeschwindigkeit sind.

Druckverbreiterung

Die Druckverbreiterung entsteht aufgrund von interatomaren Wechselwirkungen während der Stöße zwischen den absorbierenden Atomen und ihren Umgebungsteilchen. Die Breite des Lorentzprofils ist linear von der Dichte n der stoßenden Teilchen abhängig

$$\Delta\lambda_{Sto} = 2\gamma n \quad (3.10)$$

γ ist der Stoßverbreiterungskoeffizient. Entsprechend errechnet sich die Linienverschiebung ab

$$\Delta\lambda_{Sto-Shift} = \beta n \quad (3.11)$$

wobei β der Verschiebungskoeffizient ist, der in der Regel eine Größenordnung kleiner als die Verbreiterung ist. Daher wird die Verschiebung im Folgenden vernachlässigt und nur die Linienbreite betrachtet. Der Koeffizient 2γ für den hier betrachteten Übergang (667.999 nm) ist in [101] zu $2,8 \cdot 10^{-21} / \text{MHz m}^3 / \text{atom}$ gegeben. Die Umrechnung von Teilchendichte auf Druck erfolgt über die ideale Gasgleichung, $p = nkT$.

Das Linienprofil einer starkverbreiterten Linie ist ebenfalls lorentzförmig. Die Breite und die Verschiebung der Linie sind komplexe Funktionen der Elektronenkonzentration und -temperatur.

Im allgemeinen Fall setzt sich die gesamte Lorentzbreite additiv aus den beiden verschiedenen Lorentzbreiten $\Delta\lambda_{Sto}$ und $\Delta\lambda_{Stark}$ zusammen.

$$\Delta\lambda_{Lorentz} = \Delta\lambda_{Sto} + \Delta\lambda_{Stark} \quad (3.12)$$

Voigtprofil

Faltet man das Gaußprofil mit dem Lorentzprofil so erhält man ein Voigtprofil:

$$y_{Voigt}(x) = A \frac{2 \ln 2}{\pi^{3/2}} \frac{w_l}{w_g^2} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\exp(-t^2)}{\ln 2 (w_l/w_g)^2 + (2\sqrt{\ln 2} (\frac{x-x_c}{w_g} - t))^2} dt \quad (3.13)$$

Die volle Breite auf halber Höhe des Voigt-Profiles $\Delta\lambda_{Voigt}$ berechnet sich aus der Lorentzbreite $\Delta\lambda_{Lorentz}$ und der Gaußbreite $\Delta\lambda_{Gau}$:

$$\Delta\lambda_{Voigt} = \sqrt{\Delta\lambda_{Gau}^2 + \Delta\lambda_{Lorentz}^2/4} + \Delta\lambda_{Lorentz}/2 \quad (3.14)$$

3.4.3.3 Experimenteller Aufbau für DLAAS

Die für technologische Anwendungen vorgesehenen Elektrodensysteme sind für die Basisuntersuchungen (wie z.B. Absorptionsspektroskopie) der Entladungseigenschaften wegen der Überlappung mehrerer Effekte nicht geeignet. Um diese für die Interpretation der Daten störenden Effekte zu vermeiden, wird eine vereinfachte Struktur der SBD entworfen. Die Entladungselektrode besteht aus einem einzigen Metallstreifen, an dem die Hochspannung angelegt wird. Die rechteckig geformte Induktionselektrode auf der anderen Seite der Keramikplatte gewährleistet eine ausreichende Elektrodenüberlappung für die Entwicklung der Oberflächenentladung. Diese Elektrode ist elektrisch geerdet. Die geometrischen und materialbezogenen Angaben dieser SBD-Struktur sind in Anhang A, Tabelle A.2 zusammengefasst.

Die SBD-Platte befindet sich horizontal in einer vakuumdichten Reaktionskammer (mit den Maßen $6 \times 6 \times 6 \text{ cm}^3$) (siehe Abb. 3.8). Die Entladungselektrode ist nach oben orientiert. Die zwei Quartzfenster in der Reaktionskammer ermöglichen das Durchqueren des Laserstrahls sehr nah an der SBD-Platte. Zur Messung der zweidimensionalen Verteilung der Konzentration der angeregten Spezies wird die Lage der Reaktionskammer mit Hilfe eines mikrometrisch einstellbaren Tisches kontrolliert, wobei die Verschiebung horizontal und vertikal in einer zum Laserstrahl senkrecht liegenden Ebene stattfindet.

Für die Untersuchung des metastabil angeregten Zustandes 2^3S und des resonanten Zustandes 2^1P in Helium werden zwei unterschiedliche Laserdioden (Externe Kavität Toptica-System) benutzt, deren Betriebsparameter in Tabelle 3.1 zusammengefasst sind.

Für die Untersuchung des He-metastabilen Zustandes 2^3S wird der Strahl der Laserdiode auf die Mitte eines Lithiumniobat-Verdopplungskristalls (KfV) kollimiert und durch die Entladung geführt (siehe Abb. 3.9). Vor dem Kristall spaltet ein Strahlteiler (ST) den Laserstrahl auf, um die Wellenlänge mit einem Wellenlängenmessgerät (Burleigh WA-10, spektrale Auflösung 1 pm) bestimmen zu können. Durch die Steuerung des Laserdiodenstromes wird die

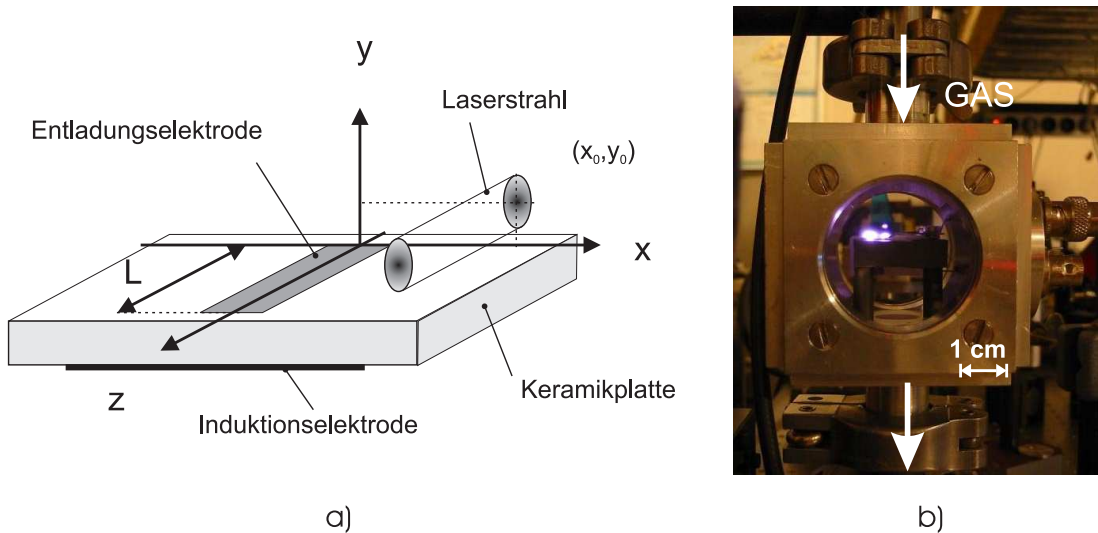


Abbildung 3.8: a) Kartesisches Koordinatensystem in der SBD für DLAAS Messungen, b) Photo der Reaktionskammer

Wellenlänge über die Absorptionslinie mit einer niedrigen Frequenz (7-8 mHz) abgetastet. In Fall des He-resonanten Zustandes 2^1P ist die Verwendung eines Verdopplungskristalls nicht mehr notwendig, da eine Laserdiode auf die Wellenlänge des untersuchten Überganges verfügbar ist.

Der Laserstrahl wird mit einer Photodiode detektiert, vor der ein Interferenzfilter (Andover Corporation Optical Fiber, P/N 390 FS10-25) positioniert ist. Eine Modulation der Absorption erfolgt automatisch durch den Wechselspannungsbetrieb des Plasmas. Detektiert wird dabei auf der doppelten Frequenz der angelegten Hochspannung, da das Plasma innerhalb einer Periode der angelegten Spannung zweimal zündet und erlischt. Mit einem Lock-in Verstärker (Stanford Research RS 830DS) wird phasensensitiv gemessen. Das verstärkte Signal wird dann entweder mit einem Speicheroszilloskop (LeCroy LT 264, 350 MHz, 1GS/s) oder einem Computer aufgenommen.

3.5 Konzepte der Spannungsversorgung

Die Barrierenentladungen können mit Spannungsverläufen unterschiedlicher Formen erzeugt werden. Dabei ist die Art und Anzahl der entstehenden Mikroentladungen u.a. von der Steil-

Zentrale Wellenlänge	Übergang	LD-Betriebsparameter
777,950 nm	$2^3S \rightarrow 3^3P$	120 mA / 5°C
667,999 nm	$2^1P \rightarrow 3^1D$	43 mA / 25°C

Tabelle 3.1: Die für die DLAAS benutzten Laserdioden und die Betriebsparameter für die entsprechenden untersuchten Übergänge

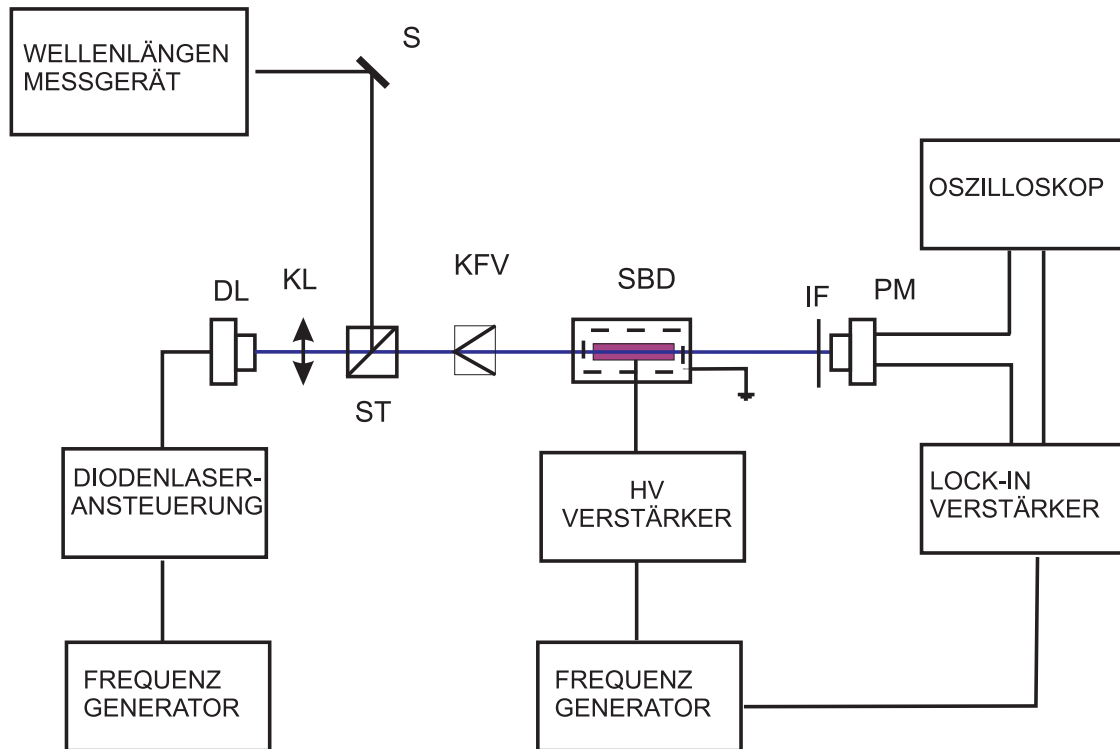


Abbildung 3.9: Experimenteller Aufbau für die DLAAS-Messungen des He metastabilen Zustandes 2^3S in der He-SBD: DL-Diodenlaser, KL-Kollimationslinse, ST-Strahlteiler, S-Spiegel, KFV-Kristall für die Frequenzverdopplung, IF-Interferenzfilter, PM-Photomultiplier

heit der an der DBD-Anordnung angelegten Spannung abhängig [34]. Je steiler der Spannungsanstieg, desto höher ist die Zündspannung und desto mehr parallele Entladungen entstehen gleichzeitig. Um die Zündung von Entladungen einzuleiten, müssen Spannungen von mehreren Kilovolt an die Barrierenanordnung angelegt werden. Ein Nachteil von steilflankigen Spannungspulsen ist der damit verbundene Aufwand, der für ihre Erzeugung betrieben werden muss. Im Folgenden werden die für den Betrieb des Plasmas möglichen Konzepte der Spannungsversorgung [146] diskutiert.

Betrieb der Quelle an einem Linearverstärker.

Um ein Entladungssystem mit einem beliebig geformten Spannungssignal (z.B. Rechteck) zu versorgen, wird ein Verstärker aus einem Funktionsgenerator benötigt, dessen Endstufe im aktiven Bereich arbeitet. Die Funktionsweise ist der eines variablen Spannungsteilers ähnlich (siehe Abb. 3.10). Dies ist allerdings mit hohen Verlusten, großem Kühlaufwand und unnötig teuren leistungsstarken Endstufen verbunden.

Resonanter Betrieb in Verbindung mit einer Drossel

Eine wesentlich effizientere Umwandlung der verbrauchten Energie in die der Entladung zugeführte Energie ist durch den Einsatz von resonanten Endstufen realisierbar. Hier sind prinzipiell zwei Varianten denkbar: die parallele oder die serielle Schaltung (siehe Abb. 3.11). Bei der Parallelresonanz fällt auf, dass beim Vorzeichenwechsel der Versorgungsspannung der Strom gegen Unendlich geht, falls er nicht durch Leitungswiderstände und Leitungseinduktivitäten begrenzt wird. Die zur Versorgungsspannung parallel geschaltete Kapazität der

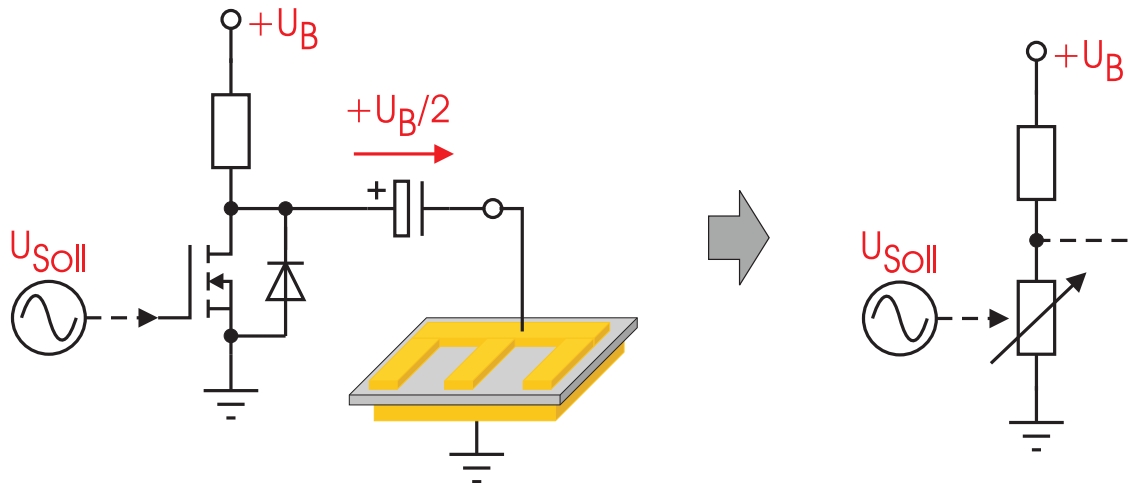


Abbildung 3.10: Elektrische Wirkung einer Verstärkerendstufe

Plasmaquelle stellt für alle Frequenzanteile der Versorgungsspannung, mit Ausnahme der Eigenfrequenz des Schwingkreises, einen Kurzschluss dar. Ein ideal resonanter Betrieb ist demzufolge nur mit einer harmonisch schwingenden Versorgung realisierbar, die mit der Eigenfrequenz des Schwingkreises oszilliert. Dies würde ähnliche Probleme wie bei einem Linearverstärker mit sich bringen, da die sinusförmig schwingende Spannung ebenfalls durch einen Linearverstärker erzeugt werden müsste. Ein reihenresonanter Betrieb (siehe Abb. 3.11b) ist hingegen prinzipiell auch mit rechteck- oder pulsformiger Anregung möglich. Der Spannungssprung beim Polaritätswechsel der Versorgung kann über die Induktivität abfallen, die den folgenden Stromanstieg begrenzt. Da das Zünden des Plasmas dem Schwingkreis unregelmäßig Energie entzieht, sind jedoch Stabilitätsprobleme zu erwarten.

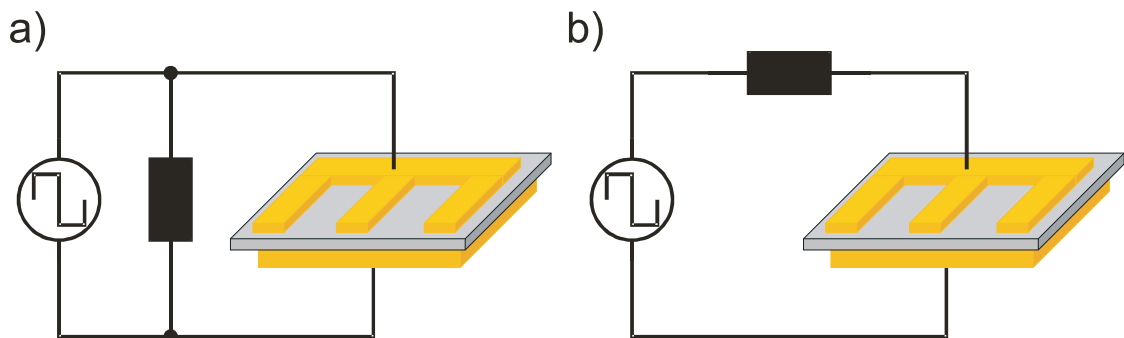


Abbildung 3.11: a) Parallel- und b) Reihenresonanter Betrieb

Betrieb der Quelle an einem Stromzwischenkreisumrichter

Mit pulsweitenmodulierten (PMW) Strompulsen besteht die Möglichkeit einen vorgegebenen Verlauf über dem Entladungssystem zu erzwingen. Dies erfordert jedoch mindestens eine gegenüber der Frequenz der Sollspannung um den Faktor 10 höhere Schaltfrequenz (siehe Abb. 3.12, Sollfrequenz = 20 kHz, Schaltfrequenz = 200 kHz). Desweiteren müssen die Halbleiterbauelemente der Endstufe für eine Sperrspannung in der Größenordnung des Spitzenwertes der Sollspannung ausgelegt sein. Bei der Realisierung einer solchen Spannungsversorgung ist mit hohen Entwicklungs- und Materialkosten zu rechnen.

Das Resonanzprinzip hingegen kann weitaus kostengünstiger realisiert werden, da die ho-

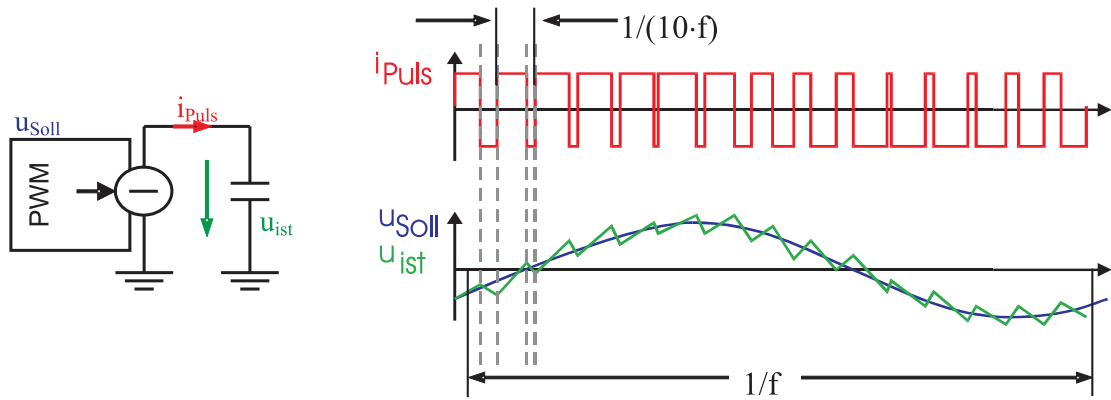


Abbildung 3.12: Strom- und Spannungsverläufe beim Stromzwischenkreisumrichter

he Blindleistung und die hohe Spannung nur innerhalb des Schwingkreises vorhanden sind. Außerhalb des (reihenresonanten) Schwingkreises existiert nur die niedrige Gesamtspannung und die aufgenommene Wirkleistung muss durch einen (im Idealfall) reinen Wirkstrom nachgeliefert werden.

Wie bereits erwähnt (siehe Abschnitt 3.4.1) werden im Rahmen dieser Arbeit verschiedene Spannungsversorgungen je nach Anwendung eingesetzt. Das sind eine auf einem Resonanzprinzip basierende Spannungsversorgung und ein Impulsgenerator zusammen mit einem Hochspannungsverstärker.

Kapitel 4

Charakterisierung des Betriebsverhaltens

4.1 Entladungstopologie der SBD in Luft

Die Topologie der dielektrisch behinderten Entladung wird in Luft mit Hilfe einer ICCD¹-Kamera untersucht. Das Ziel dieser Analyse ist ein besseres Verständnis der Entstehung solcher Entladungen, in denen die an der dielektrischen Oberfläche angesammelte Ladung eine wichtige Rolle spielt.

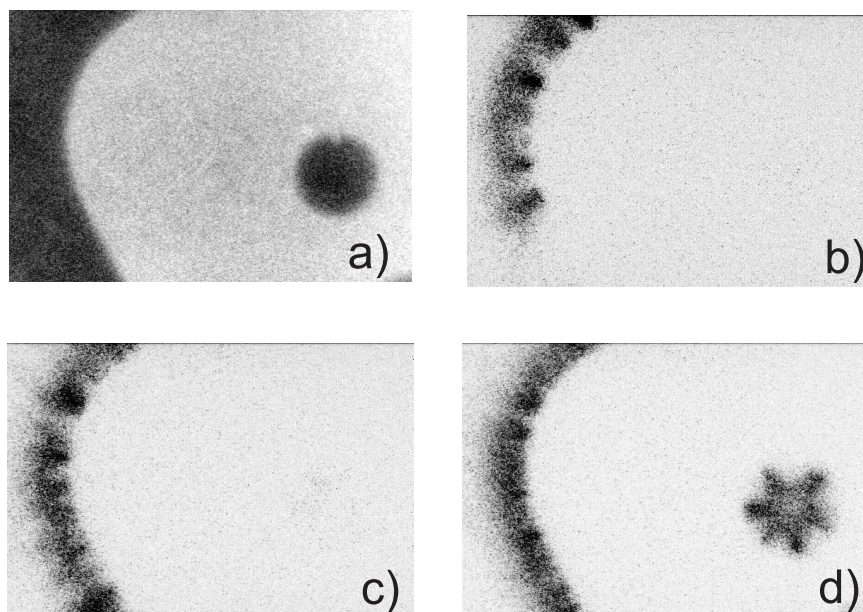


Abbildung 4.1: Einfluss der Elektrodenkanten­geometrie auf die Zündung der Teilentladung. a) Die Elektrode ohne Plasma. Die dunkleren Bereiche stellen die Keramikfläche, die helleren die Elektrodenfläche dar. Invertierte Darstellung der Aufnahmen (die Entladung ist dunkel) der Entladung für zunehmende Spannung b) $U=3,5$ kV, c) $U=4$ kV, d) $U=4,5$ kV. Die Belichtungszeit ist 10 ms.

¹ICCD-intensified charge coupled device

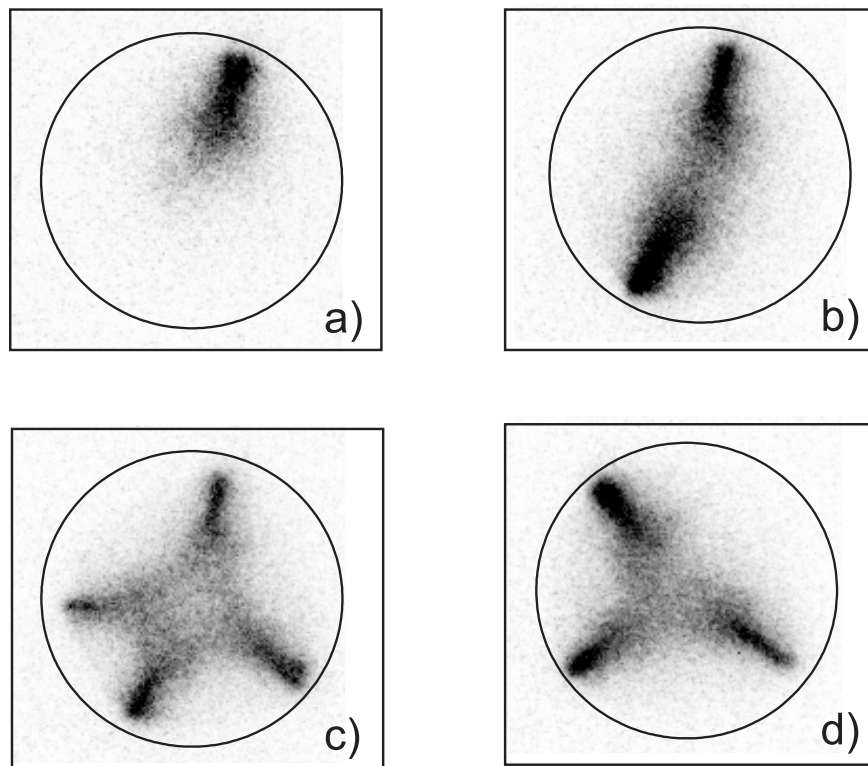


Abbildung 4.2: Invertierte Aufnahmen der Entladung im Loch mit einer Belichtungszeit von 10 ms (siehe Abb. 4.1 a). Die Elektrodenkante ist mit einem Kreis gekennzeichnet. Die Bilder stellen verschiedene zufällige Entladungsmuster bei der selben angelegten Spannung von 3,9 kV dar. Es ist zu bemerken, dass die Positionen des häufigsten Auftretens der Teilentladungen soweit wie möglich voneinander entfernt sind.

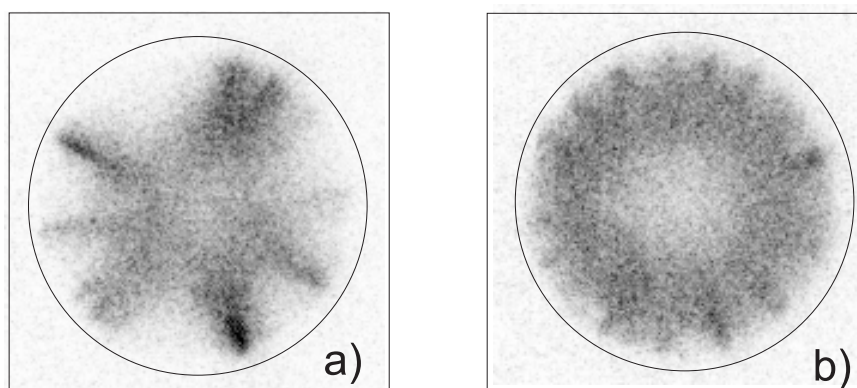


Abbildung 4.3: Invertierte Aufnahmen der Entladung im Loch. Die Elektrodenkante ist mit einem Kreis gekennzeichnet. Die angelegte Spannung ist a) 4,4 kV und b) 4,9 kV. Die Belichtungszeit beträgt 10 ms

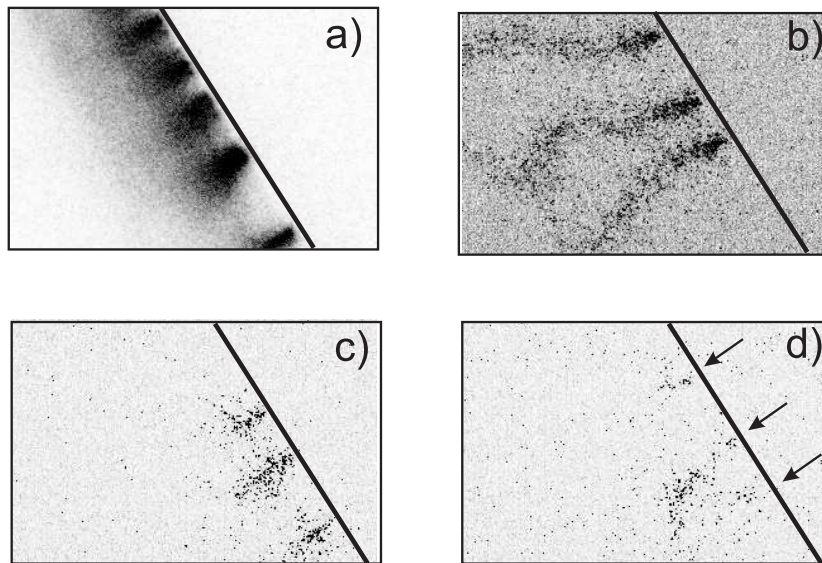


Abbildung 4.4: Invertierte Aufnahmen der Entladung entlang des linearen Bereiches der Elektrodenkante (markiert mit einer Linie), aufgenommen mit den Belichtungszeiten: a) 10 ms, b) 10 μ s, c) 1 μ s und d) 0,1 μ s jeweils am gleichen Ort. Die Pfeilen in d) zeigen die Positionen der einzelnen Teilentladungen. Die angelegte Spannung für alle Photos ist 4,9 kV

Der Gegenstand der Untersuchung ist im Detail in Abschnitt 3.3 beschrieben. Ein Ausschnitt der dort vorgestellten Elektrode ist in Abb. 4.1a) zu sehen, wobei der dunkle Bereich der Keramikfläche und der hellere Bereich der Metallelektrode entsprechen.

Ein sinusförmiges Signal mit einer Frequenz von 3,7 kHz und Spannungen im Bereich 2-5 kV wird zwischen den Elektroden angelegt.

Die Form der Elektrodenkante hat einen starken Einfluss auf die Zündspannung und Teilentladungsdichte². Der in Abb. 4.1 a) gezeigte Ausschnitt des Elektrodensystems ist so gewählt, dass drei verschiedene Kantenformen zu sehen sind: konvex, linear und konkav. Bei ansteigender Spannung zünden die Teilentladungen zuerst am konvexen Teil des Elektrodenrandes (Abb. 4.1 b), gefolgt vom linearen Teil (Abb. 4.1 c) und schließlich am konkaven Teil (am Rande des Loches) (siehe Abb. 4.1 d).

Dieser Sachverhalt kann durch die Erhöhung des maximalen elektrischen Feldes bei Zunahme des Grades der Elektrodenrandkonvexität erklärt werden, was in Übereinstimmung mit elektrischen Messungen [39] und Feldsimulationen [145] steht.

Die Untersuchung der in einer SBD-Lochgeometrie erzeugten Entladung bestätigt die Vorhersage aus der Simulation der Teilentladungen mit Hilfe des Schaltungsanalyse-Programms PSPICE. Für eine gegenüber der Periodendauer der Anregungsspannung wesentlich längere Beobachtungszeit von ungefähr 0,3 ms und für niedrige Spannungen, kann ein diskretes Entladungsmuster beobachtet werden, d.h. die Teilentladungen zünden in aufeinander folgenden Halbzyklen vorzugsweise auf der selben Stelle (siehe Abb. 4.2 a-d). Die Positionen des häufigsten Auftretens der Teilentladungen sind soweit wie möglich voneinander entfernt.

²Teilentladungsdichte: Die Anzahl der auftretenden Teilentladungen pro Zeiteinheit

Dieser Effekt ist bei höheren Spannungen weniger ausgeprägt, da sich die Teilentladungen gleichmäßiger um die Elektrodenlochkante bilden (siehe Abb. 4.3).

Während einer gegenüber der Periodendauer der Anregungsspannung kürzeren aber gegenüber der typischen Dauer der Teilentladung viel längeren Belichtungszeit lassen sich mehr als nur eine Teilentladung beobachten. Der räumliche Abstand zwischen diesen Teilentladungen ist ausreichend, um die Unterdrückung der folgenden Teilentladung durch die elektrostatische Aufladung, die während einer früheren Teilentladung gespeichert wird, zu vermeiden (Abb. 4.4 b und c).

Es ist interessant, dass für Belichtungszeiten kürzer als 100 ns, mehr als eine Teilentladung zündet. Das bedeutet, dass zwei oder mehrere Teilentladungen fast gleichzeitig an verschiedenen Orten zünden können (Abb. 4.4 d) und dass im Zeitraum einer Teilentladung, die Zündung einer nachfolgenden Teilentladung unterstützt oder mindestens nicht behindert wird.

4.2 Einfluss der Elektrodengeometrie auf den Verschleiß des Isolierfilmes

Für die Realisierung der ISD-Struktur wurden verschiedene Isolierfilme verwendet (siehe Tabelle A.3 im Anhang A). Im Fall der Bedeckung der Entladungselektrode mit einer $10\mu\text{m}$ dicken Silikonharzschiicht wird die Abnutzung dieses Isolierfilmes untersucht. Ein langer Betrieb des Elektrodensystems in Helium verursacht keine sichtbare Beeinträchtigung des Isolierfilms. Dieses ist in Stickstoff nicht immer der Fall, da die Entladung nur mit einer deutlich höheren Betriebsspannung brennt und ein molekulares Gas eine zusätzliche chemische Belastung des Filmes hervorruft. Nach dem Betrieb in reinem Stickstoff weist die mit $10\mu\text{m}$ Silikonharz beschichtete Streifenstruktur-Elektrode ein Verschleißmuster über der Entladungselektrode und der Keramikfläche auf. Die Abbildungen der Abnutzungsbereiche nach 20 Minuten und nach 8 Stunden des Betriebes in Stickstoff werden in Abb. 4.5 gezeigt.

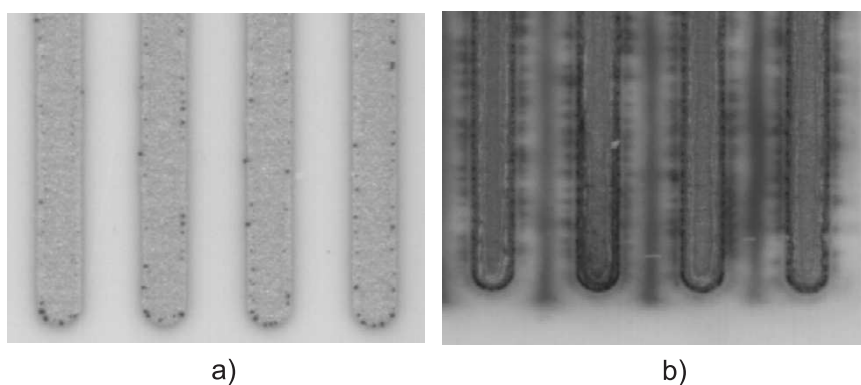


Abbildung 4.5: Die Abnutzung der Streifen a) nach 20 min und b) nach 8 h Betrieb im N_2 -Plasma

In Abb. 4.6 ist zusätzlich das Verschleißmuster entlang eines kurzen Segmentes der Elektrodenkante schematisch dargestellt. Die Entstehung des Verschleißes kann durch Betrachtung des elektrischen Feldes in der Nähe der Elektrodenkante erklärt werden. Die Ergebnisse der

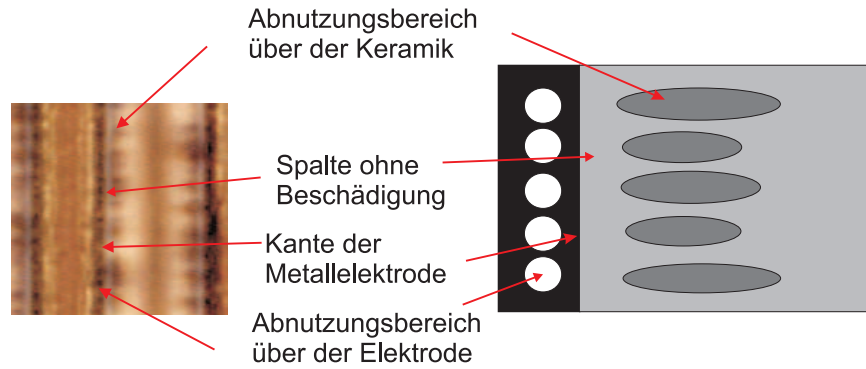


Abbildung 4.6: a) Photo und b) schematische Darstellung des Verschleißmusters für die isolierte Oberflächenentladung nach 8 h Betrieb im N_2 -Plasma

Berechnungen des elektrischen Feldes mittels Quick-Field³ für den Querschnitt des Elektrodensystems sind in Abb. 4.7 gezeigt.

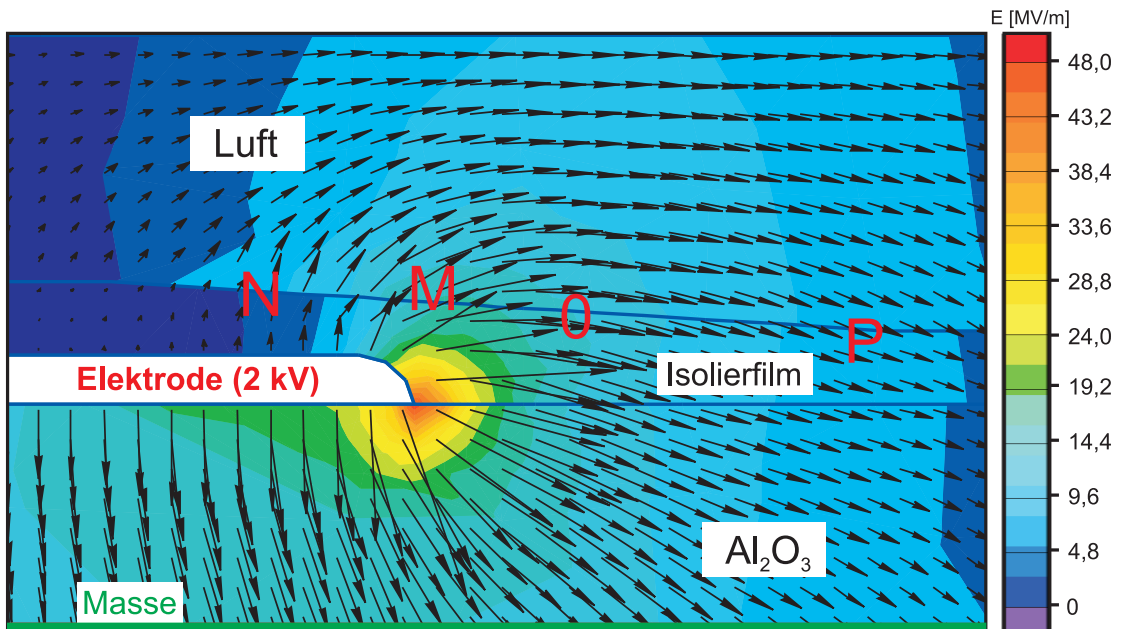


Abbildung 4.7: Ergebnis der Quick-Field Simulation für die ISD-Elektrodenstruktur: Dicke der Keramikplatte - 0,38 mm; Dielektrizitätskonstante der Keramik - 9,5; Dicke der Entladungselektrode - $10\mu\text{m}$; Dicke des Isolierfilms - $10\mu\text{m}$; Dielektrizitätskonstante des Isolierfilms - 3; angelegte Spannung - 2 kV

Für eine positive Polarisierung der Entladungselektrode wird folgendes Szenario der Entladungsentwicklung angenommen: Die Teilentladung beginnt am Ort, wo das elektrische Feld in Luft an der Grenze zwischen Luft und Isolierfilm maximal ist (die Position M in Abb. 4.7). Die positiven Ladungsträger bewegen sich entlang der isolierenden Filmoberfläche über der Keramik und verursachen ihr positives Aufladen (P). Die negativen Ladungsträger bewegen sich entlang der Filmoberfläche über der Entladungselektrode und verursachen die negative

³Quick-FieldTM ist ein FEM Feldberechnungs-Softwarepaket der Firma Terra Analysis Ltd. für elektromagnetische und thermische sowie für mechanische Belastungssimulationen

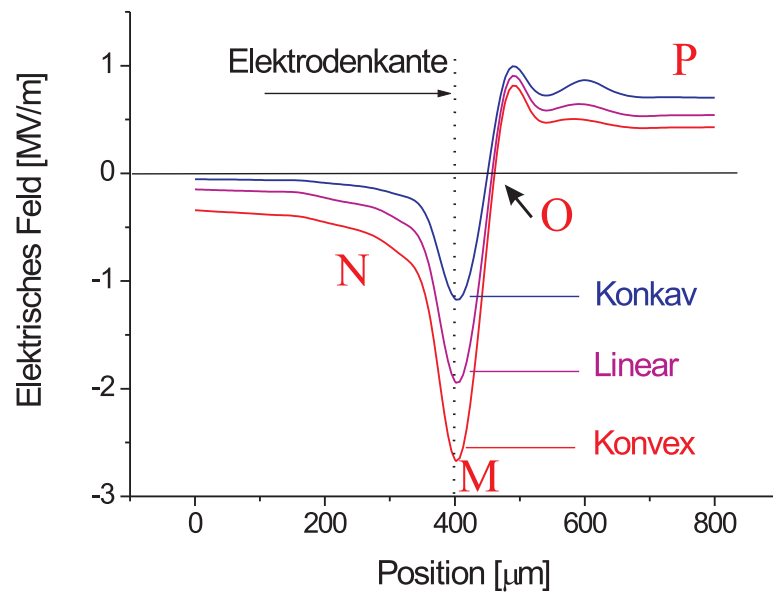


Abbildung 4.8: Normale Komponente des elektrischen Feldes (Quick-Field Simulation) für verschiedene Kanten geometrien der ISD-Struktur am Übergang Isolierfilm-Luft. Die angelegte Spannung beträgt 2 kV und der Krümmungsradius $\pm 0,5$ mm für die konvexe bzw. konkave Kanten geometrie

Aufladung des Isolierfilmes (N). Keine Aufladung tritt am Ort auf, an dem der Feldvektor parallel zur Filmoberfläche (O) ist [74].

Die positive Aufladung des Filmes verursacht die Kompensierung der normalen Feldkomponente. Die Teilentladung pflanzt sich über die Keramik fort, bis die transversale Feldkomponente des elektrischen Feldes zu schwach ist, um eine weitere Ausdehnung der Teilentladung zu bewirken. Das elektrische Feld der angelagerten Ladung fördert die Zündung während des nachfolgenden Halbzyklus der Anregungsspannung. Der Vergleich zwischen dem Feld- und dem Verschleißmuster zeigt, dass die Positionen der Verschleißpunkte (Verschleißbereich des Isolierfilmes über der Elektrode) und der Verschleißflecken (Verschleißbereich des Isolierfilmes über der Keramik) mit den Bereichen der stärksten Aufladung des Isolierfilmes über der Elektrode und über der Keramik übereinstimmen. Keine Beschädigung des Isolierfilmes tritt in dem Bereich auf, in dem das elektrische Feld zur Isolatorsoberfläche fast parallel ist und wo kein starker Aufladungsprozess zu erwarten ist. Die Beschädigung des polymerischen Isolierfilmes wird durch das Brennen des Plasmas immer auf der selben Stelle verursacht. Wegen des asymmetrischen Feldverlaufs ist die Degradation des Isolierfilmes über der Elektrode räumlich kleiner aber intensiver als im Fleck über der Keramik, weil der Verschleißpunkt und der Verschleißfleck mit der gleichen Menge an elektrischer Ladung umgeladen werden, die Ladungsdichte im Bereich des Verschleißpunktes also wesentlich höher ist und demzufolge dort eine stärkere Beschädigung des Isolierfilmes auftritt.

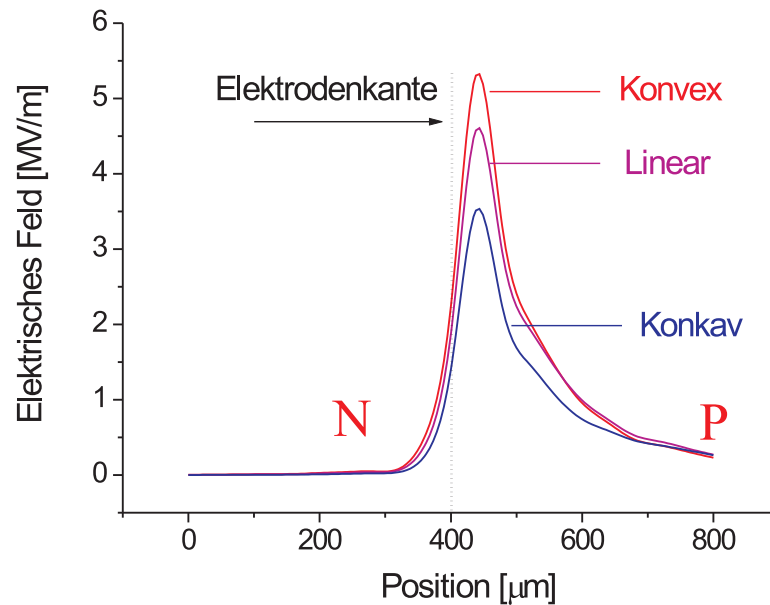


Abbildung 4.9: Transversale Komponente des elektrischen Feldes (Quick-Field Simulation) für verschiedene Kantengeometrien der ISD-Struktur am Übergang Isolierfilm-Luft. Die angelegte Spannung beträgt 2 kV und der Krümmungsradius $\pm 0,5$ mm für die konvexe bzw. konkave Kantengeometrie

4.2.1 Verbesserung der Elektrodengeometrie

In der Regel ist die Dichte der Verschleißpunkte am Ende der Elektrodenstreifen viel höher als im linearen Bereich der Elektrodenkante (siehe Abb. 4.5 a). An den konkaven Abschnitten der Elektrodenkante dagegen treten viel weniger Verschleißpunkte und entsprechende Verschleißflecken auf.

Dieser Effekt kann durch die Betrachtung des Einflusses des elektrischen Feldes auf die Aufladungsprozesse erklärt werden. Die mittels des QuickField-Softwarepakets berechneten normalen und transversalen Komponenten des elektrischen Feldes entlang der Oberfläche des Isolierfilms senkrecht zur Elektrodenkante sind im Fall der konvexen (das Ende des Streifens und des Randes der Lochstruktur-Elektrode), der geraden (ein Mittelabschnitt des Streifens) und der konkaven (der Rand eines Loches) Geometrie der Entladungselektrode in Abb. 4.8 und Abb. 4.9 gezeigt.

Wie bereits erwähnt, ist die normale Komponente des elektrischen Feldes für das Wiederaufladen der Isolieroberfläche verantwortlich. Für die konvexe Form des Elektrodenrandes sind die normalen Komponenten des elektrischen Feldes über der Metallschicht viel stärker als über der Keramik, sie sind aber fast gleich im Fall der konkaven Form. Die transversale Komponente des elektrischen Feldes ist die treibende Kraft für die Ausdehnung der Entladung über die Isolierfilmoberfläche. Diese Komponente ist kleiner für die konkave als für die konvexe Geometrie. Demzufolge ist zu erwarten, dass der Bereich der Oberflächenladung über die Keramik bei der konkaven kleiner als bei der konvexen Kante ist. Wegen der schwächeren normalen Feldkomponente und der größeren Fläche ist die Ladungsdichte auf dem

Isolierfilm über der Elektrode kleiner für die konkave als für die konvexe Form. Auf diese Art und Weise kann man im Fall von konkaven Geometrien geringere Schäden und längere Lebensdauern der Beschichtung erwarten. Im Weiteren wird eine auf dem Verständnis des Verschleißmechanismus basierende Elektrodengeometrie vorgestellt. Eine mit mehreren Löchern ausgestattete Metallelektrode wird entworfen, bei der Form und Anordnung einen besseren Ausgleich der zwischen der Elektroden- und der Keramikoberfläche auftretenden Umladungsprozesse erlauben (für die technischen Daten siehe Abb. A.2 im Anhang A). Eine hexagonale Anordnung der Löcher wird verwendet. In Abb. 4.10 ist im Vergleich mit Abb. 4.5 b) ein viel geringerer Schaden der Elektrodenversiegelung zu bemerken, obwohl in beide Fällen 8h Betrieb in Stickstoff vorliegen.



Abbildung 4.10: Die Elektrode mit Lochstruktur nach 8 h Betrieb in N_2 -Plasma (zum Vergleich mit der Streifenstruktur, siehe Abb. 4.5 b)

4.2.2 Vermeiden der parasitären Entladungen

Aus den geometrischen Überlegungen heraus ist plausibel, dass eine auf einer Keramikfläche aufgetragene Elektrode mit mehreren konkaven Bereichen zumindest außen einen konvexen Rand besitzen muss. Wegen höherer elektrischer Felder und demzufolge intensiverer Wiederaufladungseffekte ist eine stärkere Beeinträchtigung des Isolierfilms an diesen Stellen zu erwarten. Um eine Entladung an diesen Orten zu vermeiden, wird zusätzlich eine 1 mm dicke Isolierschicht am Rand der Elektrode aufgetragen. In Abb. 4.11 ist der Betrieb einer ISD-Lochstruktur in Stickstoff-Plasma zu sehen, wobei das Plasma in der unteren Reihe der Löcher wegen zusätzlichen dicken Isolierschicht nicht vollständig brennt.

Das Ergebnis der in diesem Abschnitts beschriebenen Untersuchungen ist, dass neben dem Material und der Dicke der Isolierschicht auch die Elektrodengeometrie eine wichtige Rolle bei der Abnutzung dieser Isolierschicht spielt.

Aufgrund der elektrostatischen Berechnungen für die Lochstruktur ist eine gegenüber der Streifenstruktur längere Lebenszeit der Elektroden zu erwarten. Dies wurde auch durch die präsentierten Verschleißexperimente bestätigt.

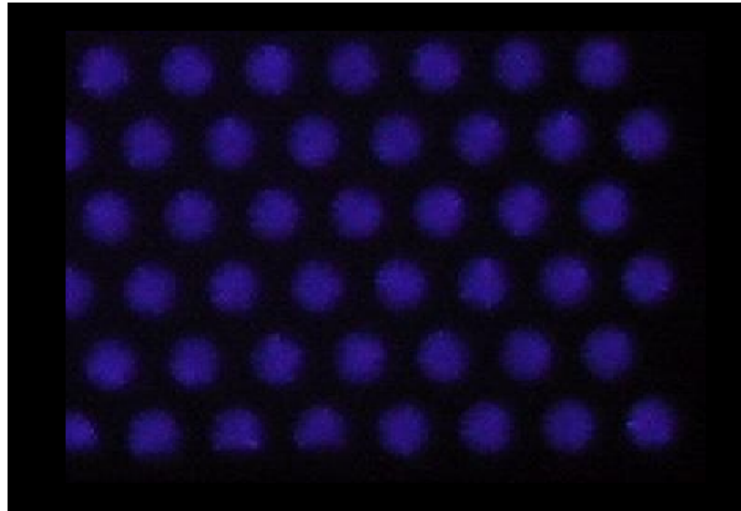


Abbildung 4.11: Die Lochstruktur beim Betrieb in einem N_2 -Plasma. In der unteren Reihe der Löcher, am Rand der Elektrode, brennt die Entladung wegen der hier zusätzlich aufgetragenen Isolierschicht nicht vollständig

4.3 Einfluss der Elektrodengeometrie auf den Elektrodenstrom

Die typischen Stromverläufe für beide ISD-Konfigurationen werden in Abb. 4.12 gezeigt. Die Stromspitzen entsprechen den Teilentladungen. Die Resonanzfrequenz bei gleicher Leistung für die Streifenstruktur (4.5 kHz) ist höher als für die Lochstruktur (4.2 kHz) und das entspricht eine niedrige Kapazität zwischen den Elektroden für die Streifenstruktur als für die Lochstruktur. Beide Entladungsstrukturen werden durch eine minimale Spannung charakterisiert, bei der die gesamte Länge des Elektrodenrandes von der Entladung bedeckt erscheint. Die notwendige Spannung, um die Lochstruktur in einem solchen Regime zu betreiben, ist höher als für die Streifenstruktur. Dies kann durch Simulationen des elektrischen Feldes erklärt werden.

Die in Abb. 4.8 und Abb. 4.9 dargestellten Ergebnisse der Quick-Field-Simulation zeigen, dass die normalen und transversalen Komponenten des elektrischen Feldes im Fall der konkaven Struktur kleiner als für die konvexe Struktur sind. Dies verursacht die höhere Zündspannung im Fall der Lochstruktur gegenüber der Streifenstruktur.

Die in Abb. 4.12 mit einer gestrichelten roten Linie dargestellten Details der Stromverläufe der beiden Elektrodengeometrien werden in Zeitlupe in Abb. 4.13 gezeigt. Es ist zu sehen, dass das Auftreten der Teilentladungen im Fall der Streifenstruktur häufiger als für die Lochstruktur ist.

4.3.1 Elektrisches Ersatzschaltbild des Elektrodensystems

Die in Abb. 4.13 markierten Details des Stromverlaufes für die jeweiligen Teilentladungen sind in Abb. 4.14 und Abb. 4.15 dargestellt. Sie beschreiben keine einzelne Stromspitze, sondern ein gedämpftes oszillierendes Signal. In der Außenschaltung des Elektrodenmoduls

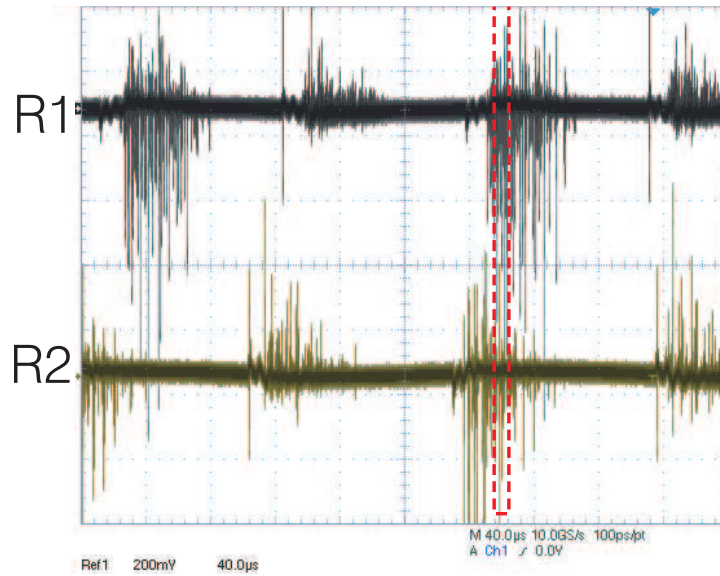


Abbildung 4.12: Typische Stromverläufe für zwei verschiedene Elektrodengeometrien der in Luft betriebenen ISD: Streifenstruktur (Referenz R1) und Lochstruktur (Referenz R2). Geometrische Angaben der beiden SBD-Strukturen sind in Tabelle A.1 erläutert. Die gestrichelte rote Linie stellt Details der Stromverläufe der beiden Elektrodengeometrien dar, die in Zeitlupe in Abb. 4.13 gezeigt werden.

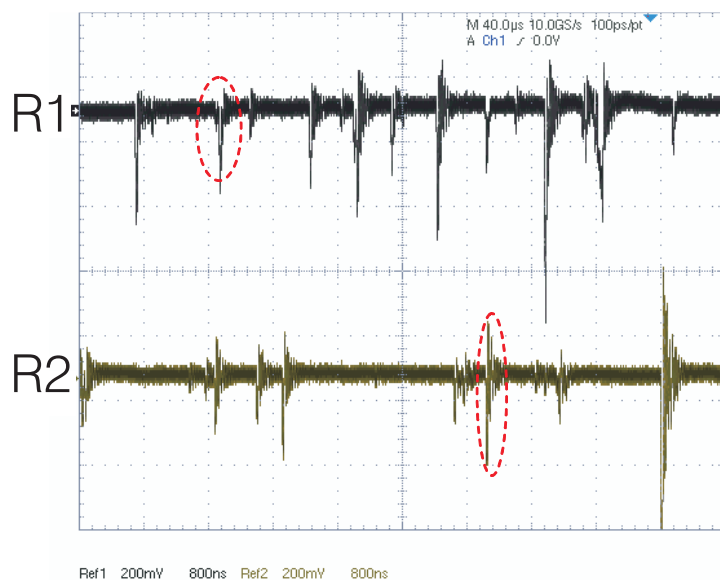


Abbildung 4.13: Typische Stromverläufe in Zeitlupe für die beiden ISD-Strukturen: Streifenstruktur (Referenz R1) und Lochstruktur (Referenz R2). Die gestrichelt rot markierten Details des Stromverlaufes für die jeweiligen Teilentladungen sind in Abb. 4.14 bzw. Abb. 4.15 dargestellt.

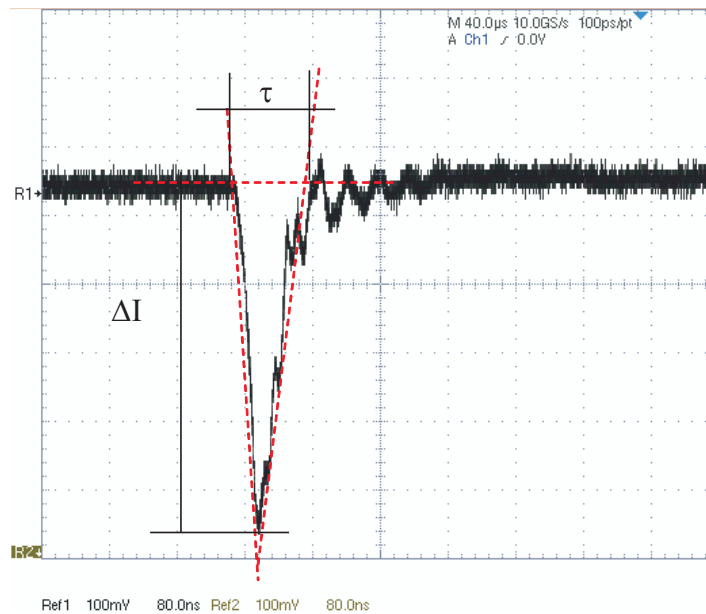


Abbildung 4.14: Stromantwort des RLC-Schaltkreises auf eine Teilentladungsanregung in Luft für die ISD-Streifenstruktur (das in Abb. 4.13 - Referenz R1 mit rot markierten Detail des Stromverlaufes); ΔI entspricht der Amplitude der ersten Stromschwingung, τ - die Dauer dieser ersten Stromschwingung. Die hier mit gestrichelter roter Linie dargestellte Fläche unter der $I(t)$ Kurve wird für die Berechnung der während der Teilentladung transferierten Ladung eingesetzt

misst man nicht den Strom der innerhalb einer Teilentladung zwischen den Elektroden fließt, sondern die Stromantwort des ganzen Anregungssystems, das man vereinfacht als einen RLC-Schwingkreis darstellen kann (siehe Abb. 4.16)

In dieser Abbildung entspricht die Kapazität C sowohl der äquivalenten Kapazität des Elektrodenmoduls (siehe Abb. 4.17), als auch der parasitären Kapazität der in der Spannungsversorgung verwendeten Transformatorspule. Die Induktivität der Sekundärwicklung des Transformators (L_{kHz}) wird für die Frequenzen im MHz-Bereich durch die zwischen den Spulenwindungen auftretenden parasitären Kapazitäten kurzgeschlossen. Die einzige effektive Induktivität im MHz-Bereich ist die Induktivität der Drähte, die die Spule mit dem Elektrodenmodul verbinden, und die Induktivität der Elektroden selber. Der Einfluss der tatsächlichen Länge der Drähte auf die Periode der Eigenschwingung ist in Abb. 4.18 verdeutlicht. Für eine Drahtlänge von $l = 1$ m ergibt sich die Frequenz der Eigenschwingung zu ca. 16,8 MHz (Abb. 4.18 a) und für $l = 0,5$ m beträgt diese Frequenz 20 MHz (Abb. 4.18 b).

Die detaillierte elektrische Analyse des Elektrodenmoduls für konkave und konvexe Elektrodenstrukturen mit Hilfe eines kapazitiven Ersatznetzwerkes ist in [145] dargestellt. Trotz der relativ schwierigen Berechnung des zeitabhängigen Stromes, der durch eine Teilentladung fließt, kann man eine Auswertung der zwischen den beiden Elektroden transferierten Ladung durchführen, wenn man die elektrische Antwort der äquivalenten RLC-Schaltung in zwei extremen Fällen berücksichtigt: (i) für eine Teilentladungsdauer, die vergleichbar

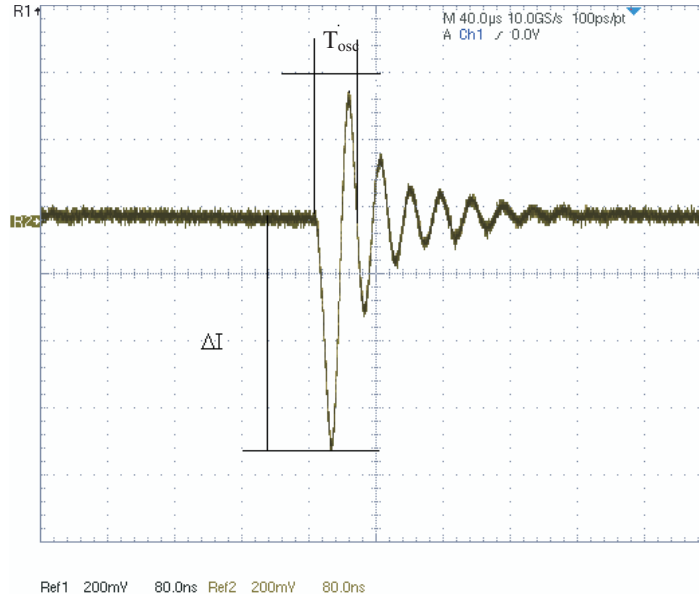


Abbildung 4.15: Stromantwort des RLC-Schaltkreises auf eine Teilentladungsanregung in Luft für die ISD-Lochstruktur (das in Abb. 4.13 - Referenz R2 mit rot markierten Detail des Stromverlaufes); ΔI entspricht der Amplitude der ersten Stromschwingung, T_{osc} ist die Periode der Eigenschwingung

oder länger als die Periode der Eigenschwingungen T_{osc} ist, wobei der gemessene Strom mit dem Entladungsstrom zusammenhängt und (ii) für eine Teilentladungsdauer, die viel kürzer als die Schwingungsperiode der RLC-Schaltung ist, wobei der Entladungsstrom als ein DIRAC-Puls betrachtet werden kann. Im ersten Fall, wenn die Teilentladungsdauer größer als T_{osc} ist, kann man die während einer Teilentladung transferierte Ladung mit der unter der $I(t)$ -Kurve liegenden Fläche annähern. Für das in Abb. 4.14 dargestellte Beispiel ist die transferierte Ladung im Fall einer Streifenstruktur:

$$Q = \int_{t_1}^{t_2} I(t) dt \approx \frac{\Delta I \cdot \tau}{2} \quad (4.1)$$

wobei ΔI und τ in Abb. 4.14 definiert sind. Aus diesen Werten ergibt sich $\Delta Q = 4 \text{ nC}$.

Im zweiten Fall ergibt sich für den Stromfluss zur Elektrode während einer Teilentladung unter Berücksichtigung der Tatsache, dass die Integrale über die ganze Zeitachse des DIRAC-Pulses dem gesamten Ladungsfluss durch die Entladung entsprechen:

$$I(t) = \frac{Q}{\sqrt{LC}} \cdot \exp\left(-\frac{R}{2L} \cdot t\right) \cdot \sin\left(\frac{t}{\sqrt{LC}}\right) \quad (4.2)$$

Diese Formel stellt ein gedämpftes sinusförmiges Signal dar mit der Periodenzeit der Eigen-

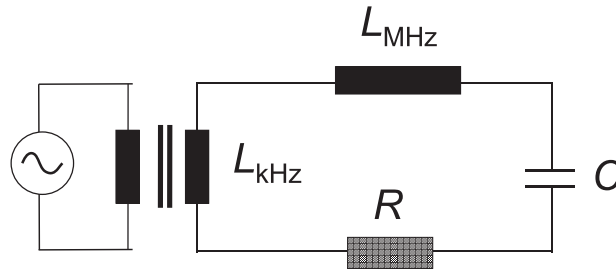


Abbildung 4.16: Der RLC-Schaltkreis; C entspricht sowohl der äquivalenten Kapazität des Elektrodenmoduls, als auch der parasitären Kapazität der in der Spannungsversorgung verwendeten Transformatorspule; L_{kHz} ist die Induktivität der Sekundärwicklung des Transformators; L_{MHz} entspricht der Induktivität der gesamten Drahtlänge und der Induktivität der Elektroden selber, R ist der gesamte Widerstand (Drähte, Spule, Elektrodenmodul, Plasma)

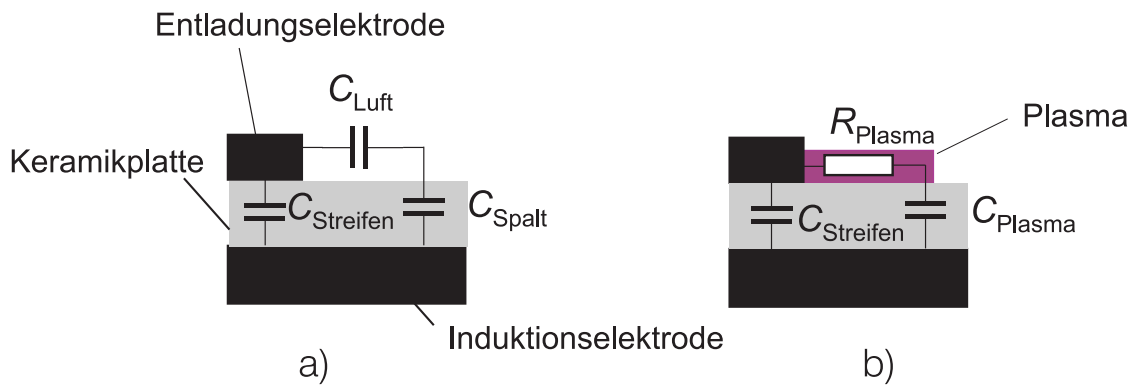


Abbildung 4.17: Elektrisches Ersatzschaltbild des Elektrodenmoduls a) vor und b) nach der Zündung

schwingung:

$$T_{osc} = 2\pi \cdot \sqrt{LC} \tag{4.3}$$

und der Zeitkonstante der Signaldämpfung:

$$T_{damp} = \frac{2L}{R} \tag{4.4}$$

Abb. 4.15 zeigt eine solche gedämpfte sinusförmige Antwort auf das Anregungssignal und weist darauf hin, dass für die Lochstruktur die Dauer der Teilentladung, die diese Schwingung verursacht hat, viel kürzer als die Periode der Eigenschwingung ist: $T_{TE} \ll T_{osc}$. Im Fall unserer Schaltung gilt $T_{osc} = 40 \text{ ns}$ und deswegen kann man folgern, dass T_{TE} die Größenordnung von ns hat.

Durch Integration von Gl.(4.2) ist es möglich, die während einer Teilentladung transferierte

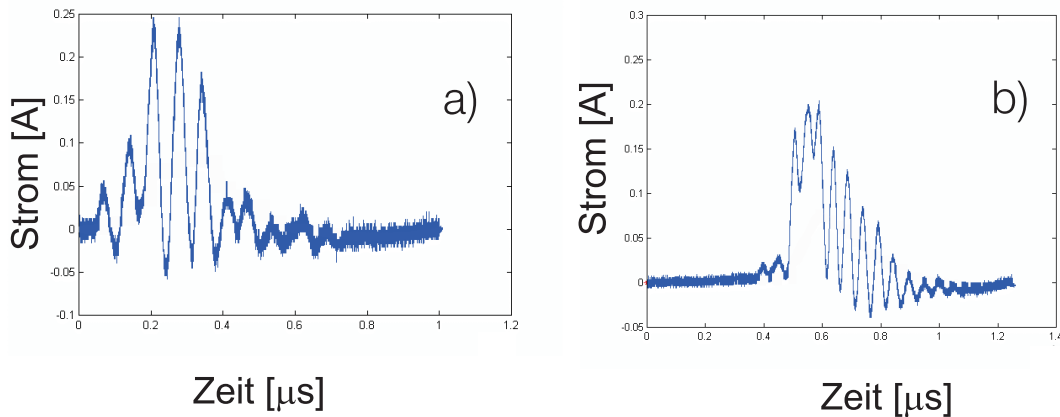


Abbildung 4.18: Die Antwort des Schaltkreises der ISD-Lochstruktur für zwei verschiedene Drahtlängen l : a) $l = 1$ m, $\nu_{osc} = 16,8$ MHz und b) $l = 0,5$ m, $\nu_{osc} = 20$ MHz. Gasgemisch: 90% N_2 + 10% O_2 . Entladungselektrode bedeckt mit einer Silikonharzschicht (siehe Anhang A, Tabelle A.3)

Ladung durch:

$$\Delta Q = \int_{t_1}^{t_2} I(t) dt \approx \frac{\Delta I \cdot T_{osc}}{2\pi} \quad (4.5)$$

abzuschätzen, wobei die Zeiten t_1 und t_2 dem Anfang und dem Ende der Oszillationen und ΔI dem maximalen Strom der ersten Oszillation entsprechen. Für dieses Beispiel ist $\Delta Q = 0.9$ nC.

Beim Vergleich des Mittelwertes der während einer Teilentladung transferierten Ladung für die beiden Elektrodengeometrien, Streifenstruktur und Lochstruktur wurde festgestellt, dass für die Streifenstruktur viel mehr Ladung pro Teilentladung als für die Lochstruktur transferiert wird. Aus der Form des Oszillationssignals kann entnommen werden, dass die Dauer der Teilentladung kürzer als 20 ns für die Lochstruktur, aber länger als 40 ns für die Streifenstruktur ist. Das bedeutet, dass die Streifenstruktur einen höheren Wirkungsgrad und demzufolge ein größeres Potential für die Oberflächenbearbeitung besitzt. Allerdings muss die Qualität des Isolierfilmes in Bezug auf die Verschleißbeständigkeit verbessert werden.

4.3.2 Prinzip der digitalen Signalverarbeitung

Bei den Entladungen, die in verschiedenen Gasen bzw. Gasmischungen in einer ISD-Lochstruktur betrieben werden, wurde festgestellt, dass die Dauer einer Teilentladung mit der Eigenschwingungsperiode vergleichbar sein kann. In diesem Fall muss man zusätzlich zu den oben beschriebenen zwei Vorgehensweisen eine Methode entwickeln, um die durch eine Teilentladung transferierte Ladung berechnen zu können.

Der für die Teilentladung gemessene Strom kann als eine Faltung des tatsächlichen Teilentladungsstromes und der Stromantwort auf einen Dirac-Puls betrachtet werden. In diesem

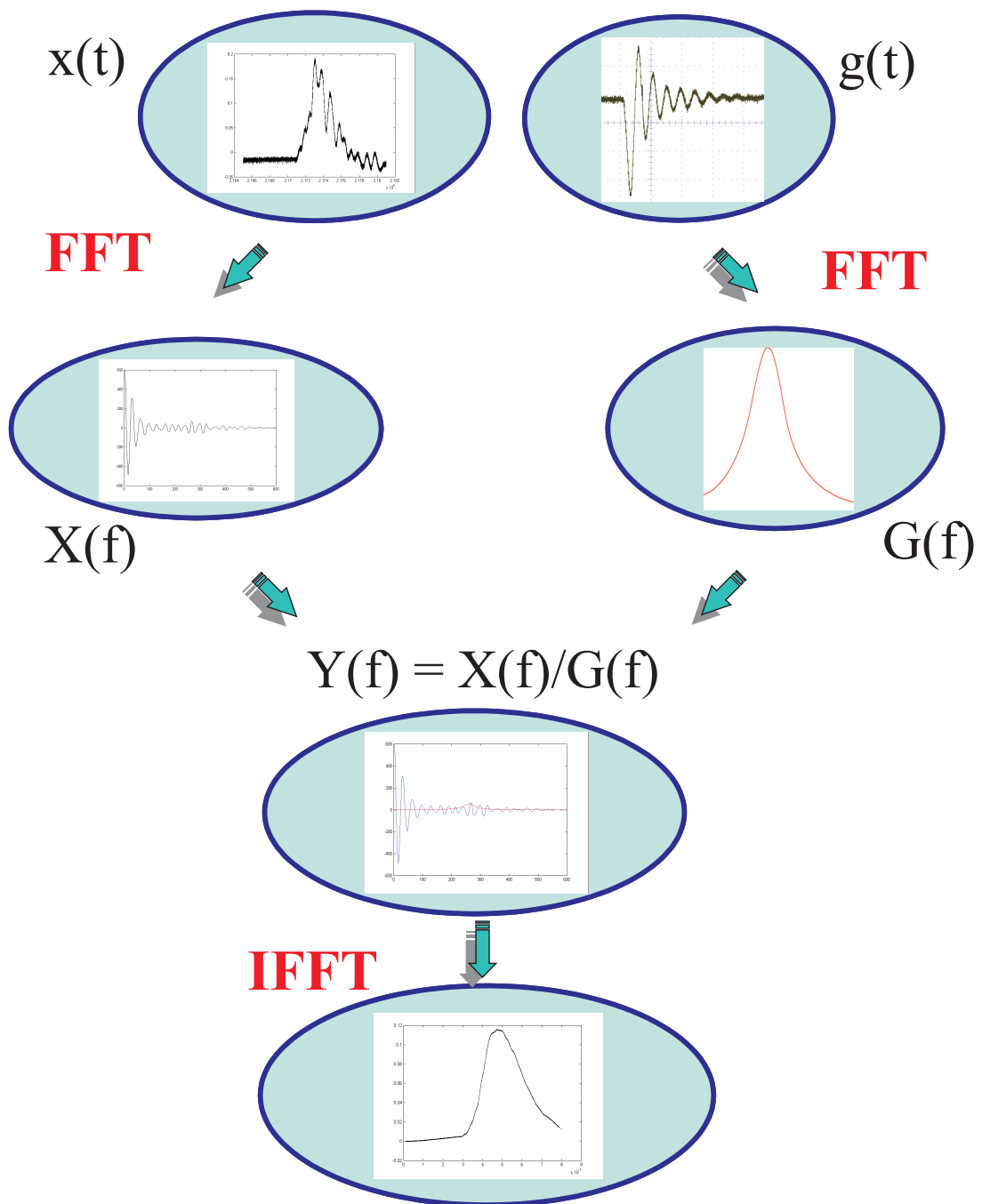


Abbildung 4.19: Prinzip der Bestimmung des Teilentladungstromes aus dem Messsignal. $x(t)$ -das gemessene Stromsignal; $g(t)$ - die gedämpfte RLC-Oszillation; $X(f)$, $G(f)$ - Fourier-Transformation des $x(t)$, bzw. $g(t)$ Signals; $Y(f)=X(f)/G(f)$ entspricht der Fourier-Transformation des $y(t)$ Signals - dem effektiven Teilentladungsstrom (Erläuterung im Text)

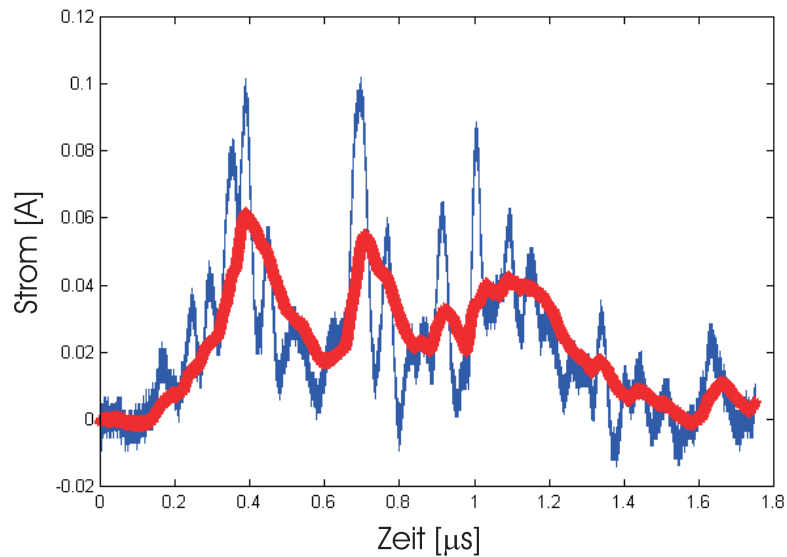


Abbildung 4.20: Die gemessenen und entfalteten Entladungsströme für drei überlappende Teilentladungen. SBD in 90%N₂+10%O₂. Für die technischen Angaben der Struktur siehe Anhang A, Tabelle A.1

Fall wird der tatsächliche Teilentladungsstrom berechnet, indem der in Abb. 4.19 dargestellte Algorithmus eingesetzt wird. Zuerst wird die Fourier-Transformation des gemessenen Signals $x(t)$ und der gedämpften RLC-Oszillation $g(t)$ berechnet. $g(t)$ ist die Stromantwort des Schaltkreises auf eine Teilentladung in Luft. Da diese Teilentladung in Luft (anders als bei der hier betrachteten Gasgemischen) im Vergleich mit der Eigenschwingungsperiode sehr kurz ist, kann man sie als eine Dirac-Anregung betrachten. Das Fourier-transformierte Signal $G(f)$ von der $g(t)$ entspricht der Lorentz-Funktion. Anschließend wird das Fourier-transformierte Signal $X(f)$ durch $G(f)$ geteilt. Danach wird auf das Ergebnis die inverse Fourier-Transformation angewendet, die den effektiven Teilentladungsstrom $y(t)$ ergibt.

Es kommt relativ häufig, besonders bei hoher Anregungsspannung vor, dass die mittlere Zeit zwischen zwei Teilentladungen kürzer als die typische Dauer des Oszillationsabklingens ist. Dies verursacht das Überlappen der Stromsignale, die mehreren Teilentladungen zugeordnet sind (siehe Abb. 4.20). Das vorgeschlagene Verfahren ermöglicht die Bestimmung eines entfalteten Teilentladungsstroms sogar für komplizierte Fälle. Dieses Beispiel entspricht zeitlich, was in Abb. 4.4 d räumlich beobachtet wurde, nämlich zwei oder mehrere (in diesem Fall drei) Teilentladungen die fast gleichzeitig an verschiedenen Orten zünden. Der Grund dafür kann das von der ersten Teilentladung abgestrahlte UV-Licht sein, das die Zündung der nächsten Teilentladung fördert.

Der Vorteil dieser Methode für die Signalinterpretation besteht darin, dass man keine Information über die genauen Werte der RLC braucht, um die transferierte Ladung zu berechnen.

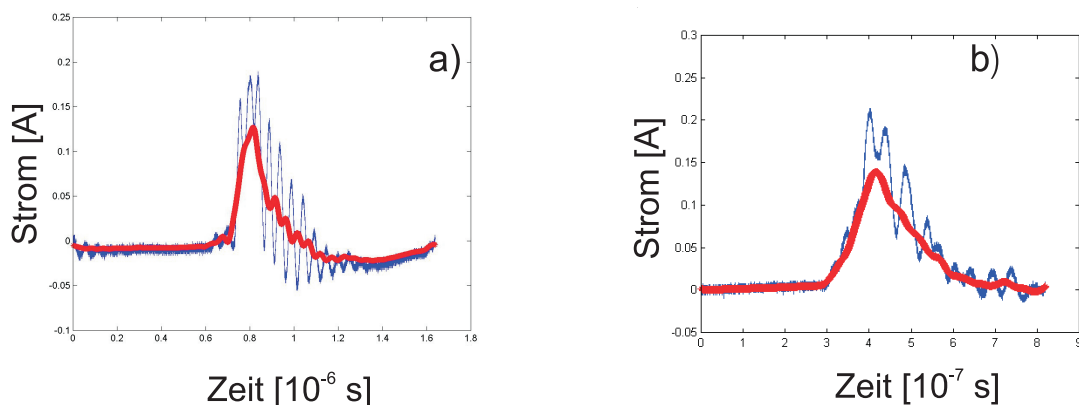


Abbildung 4.21: Die gemessenen und durch die Entfaltung errechneten Entladungsströme für zwei exemplarisch ausgewählte Teilentladungen in einer Gas Mischung von 90% N_2 +10% O_2 mit einer Entladungselektrode, die mit a) Silikonharz und b) DLC beschichtet ist. Für die elektrischen und geometrischen Eigenschaften der hier benutzten ISD-Strukturen siehe Anhang A, Tabelle A.3

4.4 Einfluss der Elektrodenversiegelung auf den Elektrodenstrom

Für die Untersuchung des Einflusses des Isolierfilms auf den elektrischen Strom wird eine Streifenstruktur des Elektrodensystems benutzt. Eine Silikonharz- bzw. DLC-Schicht wird auf die Entladungselektrode aufgetragen. Die geometrischen und elektrischen Angaben dieser Konfigurationen sind im Anhang A, Tabelle A.3 zusammengefasst. Luft oder luftähnliche Gasgemische werden für diese Messungen verwendet.

Die durch die oben beschriebene FFT-Entfaltung berechneten Teilentladungsströme sind für eine Silikonharz- und eine DLC-Beschichtung der Entladungselektrode in einer Streifenstruktur-SBD in Abb. 4.21 dargestellt.

Die dargestellte Methode erlaubt die Bestimmung der durch die Teilentladung transferierten Ladung, die für die ausgewählten Beispiele 2,6 nC für die Silikonharz- und 23 nC für die DLC-beschichtete Elektrode beträgt (siehe Abb. 4.21). Diese Ladung kann als Maßstab der Entladungseffizienz betrachtet werden. Deswegen ist nachvollziehbar, dass die Beschichtung der Entladungselektrode mit einer DLC-Schicht im Vergleich mit der Silikonharz-Schicht bevorzugt wird. Die möglichen Gründe für diesen Unterschied können die kleinere Dicke der DLC-Schicht (1 μm im Vergleich mit 10 μm Schichtdicke des Silikonharzes) und die Wechselwirkung zwischen der Schicht und den für die Aufrechterhaltung der Entladung wichtigen Spezies (wie z.B. metastabil angeregten Atome und Moleküle) sein. Dieses Thema wird im Detail in einem im *fmt* (Forschungszentrum für Mikrostrukturtechnik an der Bergischen Universität Wuppertal) laufenden DFG-Projekt (EN-183/13-1) untersucht werden.

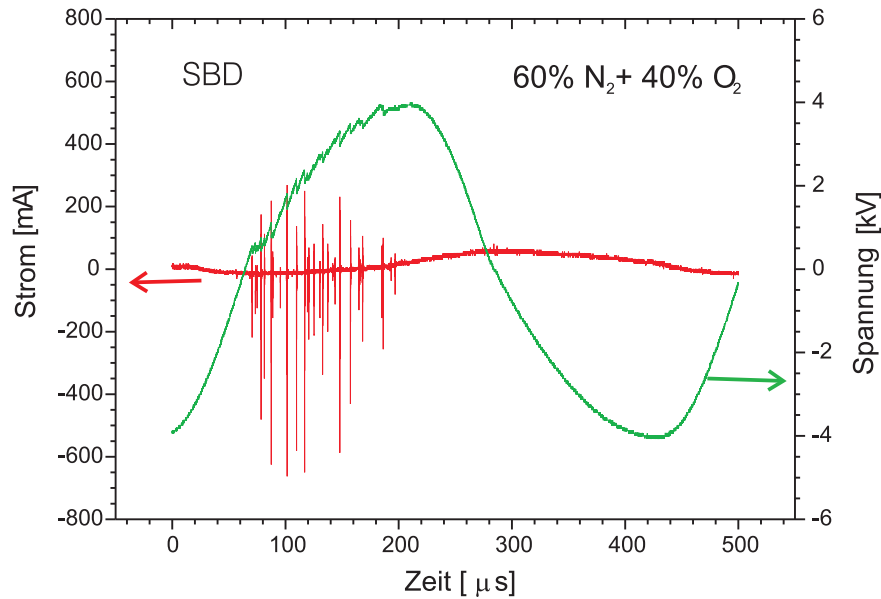


Abbildung 4.22: Der Entladungsstrom und die Spannung zwischen den Elektroden in einer 60% N_2 +40% O_2 -Gasmischung aufgenommen in einer SBD während einer Anregungsperiode. Die Spannung wird auf der Induktionselektrode gemessen. Die Entladungselektrode liegt auf Massepotential. Für die technischen Angaben der Struktur siehe Anhang A, Tabelle A.1

4.5 Vergleich SBD-CBD

Trotz des ähnlichen physikalischen Hintergrunds der SBD und CBD gibt es Unterschiede in den elektrischen Charakteristika der beiden Strukturen. Die typischen Strom- und Spannungsverläufe werden in den Abb. 4.22 und 4.23 verglichen. Die in beiden Stromkurven auftretenden Stromspitzen entsprechen den Teilentladungen.

Die 4,3 kHz Resonanzfrequenz bei der CBD ist zweimal größer als bei SBD, da die zwischen den Elektroden entstandene Kapazität beim CBD-Modul niedriger ist. Die elektrischen Messungen zeigen, dass die Betriebsspannung bei der CBD höher als bei der SBD ist. Da lässt sich mit Hilfe der Simulation des elektrischen Feldes (Quick-Field) erklären. Die Teilentladung startet an der Stelle, an der das elektrische Feld maximal ist. Bei der SBD befindet sich dieser Bereich in der unmittelbaren Nähe des so genannten Drei-Materialien-Punkts, die Stelle, wo die drei Materialien (Elektrode, Dielektrikum und Luft) in Kontakt kommen (siehe Abb. 4.24). Aus der ausgeführten Simulation kann man ersehen, dass die Stärke des elektrischen Feldes mit zunehmenden Abstand von der Elektrodenkante sehr schnell sinkt. Beispielsweise beträgt die tangentielle Komponente der Feldstärke in einem 1 μm Abstand von diesem Drei-Materialien-Punkt 17,2 MV/m, für eine zwischen den Elektroden angelegte Spannung von 2 kV.

Bei der CBD-Anordnung (siehe Abb. 4.25) ist das elektrische Feld an der Zündstelle bei gleicher angelegter Spannung um eine Größenordnung kleiner. Die Erklärung besteht darin, dass das Feldmaximum sich unter der Keramikplatte befindet, während das Plasma im Gas über der Keramikplatte zündet, wo die Feldstärke wesentlich kleiner ist. Durch eine Verringerung des Abstands zwischen den Elektroden kann man ein stärkeres elektrisches Feld

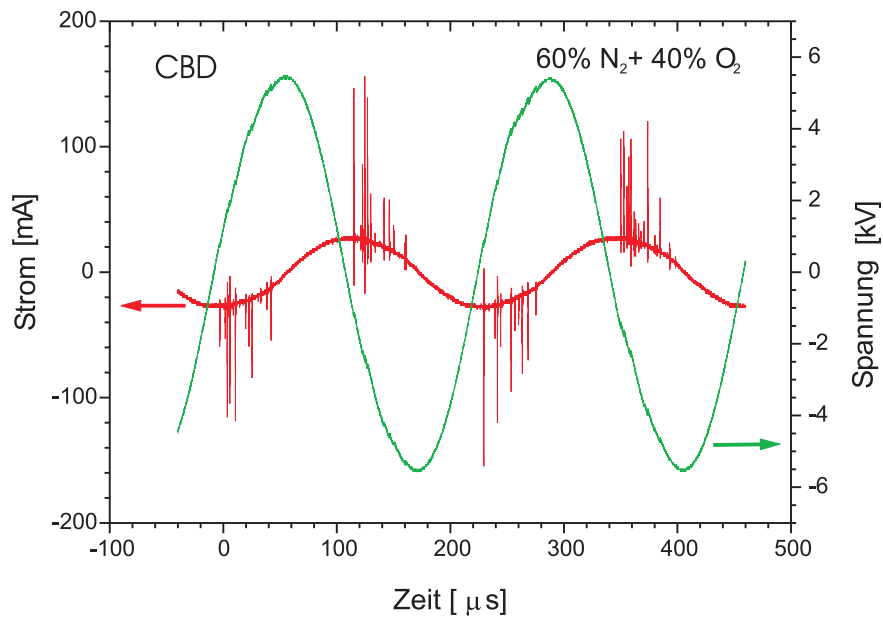


Abbildung 4.23: Der Entladungsstrom und die Spannung zwischen den Elektroden in einer 60% N₂+40% O₂-Gasmischung aufgenommen in einer CBD während zweier Anregungsperioden. Für die technischen Angaben der Struktur siehe Anhang A, Tabelle A.4

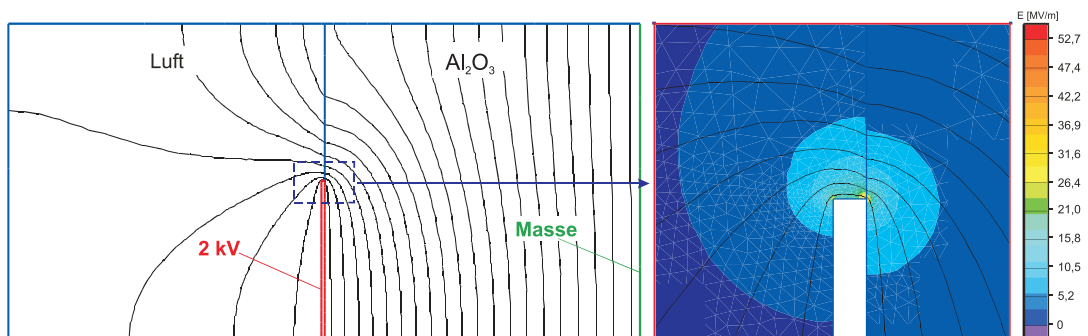


Abbildung 4.24: Das mit Quick-Field berechnete elektrische Feld in einer SBD-Geometrie. Dicke der Keramikplatte - 1 mm; Dicke der Elektrode - 10 μm; Angelegte Spannung - 2 kV (für weitere technische Daten der Struktur siehe Anhang A.1)

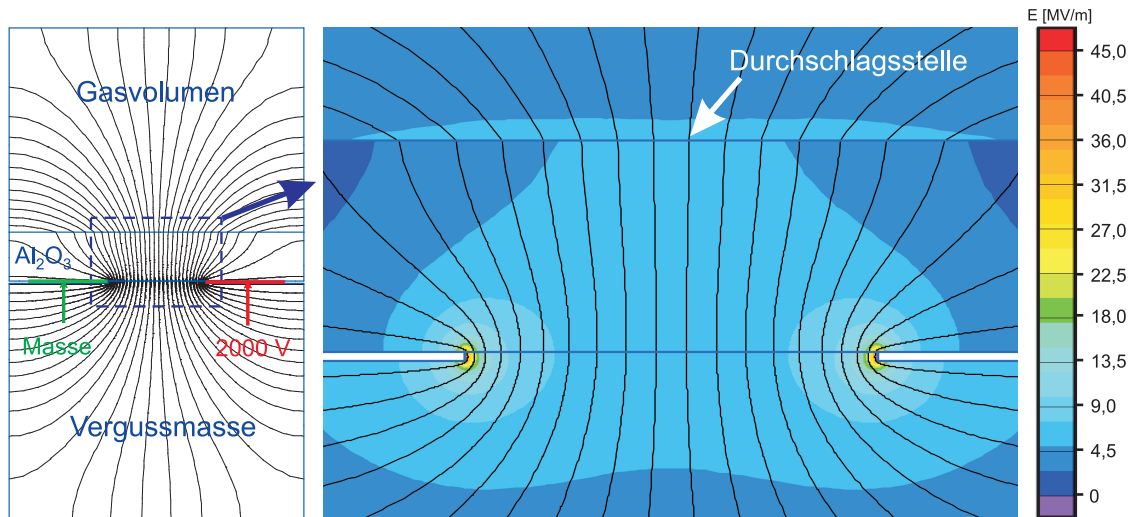


Abbildung 4.25: Das mit Quick-Field berechnete elektrische Feld in einer CBD-Geometrie; Dicke der Keramikplatte - 0,25 mm; Dicke der Elektrode - 10 μ m; Abstand zwischen den Elektroden - 0,45 mm; Angelegte Spannung - 2 kV (für weitere technische Daten der Struktur, siehe Anhang A.3)

am Zündort erzeugen (siehe Abb. 4.26), aber dieser Abstand ist durch die Durchschlagsfestigkeit des Isolators sehr stark begrenzt. Wenn die Elektroden nah aneinander gebracht werden, erhöht sich die Wahrscheinlichkeit des Auftretens eines Durchschlags im Isolator (in der Vergussmasse), wodurch die Lebensdauer des Plasmamoduls verringert wird.

Die Stromverläufe sehen für die SBD und die CBD nur im Allgemeinen ähnlich aus. Die im Detail beobachteten Kurven unterscheiden sich bedeutend in Bezug auf die Symmetrie der Teilentladungen. Bei der SBD treten die Teilentladungen im Wesentlichen in der Halbperiode auf, in der die Entladungselektrode die Rolle der Katode spielt (siehe Abb. 4.22), sie treten aber in der CBD fast genau so häufig während den beiden Halbperioden auf (siehe Abb. 4.23). Der Grund dieser Verschiedenheit besteht in einem unterschiedlichen Mechanismus der Entwicklung der Teilentladungen. Im Fall der SBD zündet das Plasma im Drei-Materialien-Punkt sowohl für die katodische als auch für die anodische Halbperiode der kHz-Anregung. Innerhalb der katodischen Halbperiode wird der Stromfluss durch die Entladung von den an der metallischen Elektrode angelagerten Ionen begrenzt. Die Ionenstromdichte kann hohe Werte erreichen. Für die katodische Halbperiode wird die gesamte durch die Entladung fließende Ladung sowohl von der maximalen Dichte der auf der Fläche angelagerten Ladung als auch von der geladenen Keramikfläche beschränkt. Diese Ladung kann aber nicht während der anodischen Halbperiode zu der Plasmazündung beitragen, da die Keramikoberfläche innerhalb der katodischen Halbperiode von flüchtigen und beweglichen Elektronen - und deswegen für kürzere Zeit - negativ aufgeladen wird. Demzufolge wird eine höhere Spannung für die Zündung der Teilentladung innerhalb der anodischen Halbperiode benötigt.

In der CBD entwickelt sich die Teilentladung symmetrisch in der anodischen und katodischen Halbperiode, denn die Teilentladung startet an der Keramikoberfläche in der Mitte zwischen den darunter eingebetteten Elektroden (siehe die Pfeile in Abb. 4.25). In diesem Fall entwickeln sich die negativen und positiven Streamer während der beiden Halbperioden gegenläufig.

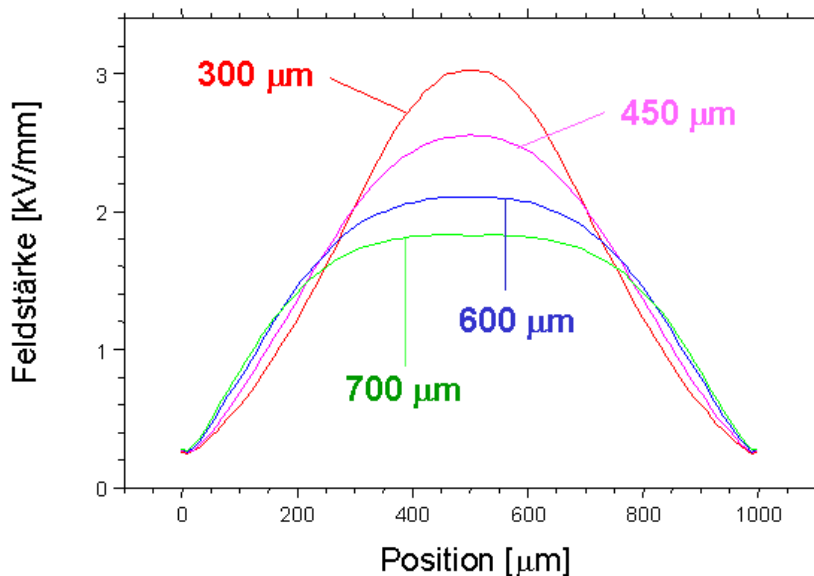


Abbildung 4.26: Detail der Simulation für die CBD mit dem Abstand zwischen den Elektroden als Parameter. Für die technischen Angaben der Struktur siehe Anhang A.3

Die aufgenommenen Signale in reinem Stickstoff sind für die SBD in Abb. 4.27 und für die CBD in Abb. 4.28 dargestellt. Eine ähnliche Oszillationsweise des Entladungsstroms wird für die beiden Plasmaquellen in verschiedenen Stickstoff-Sauerstoff-Mischungen beobachtet.

Die durch eine Teilentladung transferierte Ladung wird mit der Gleichung 4.5 für verschiedene Gasmischungen berechnet. Wenn die Entladung in reinem Sauerstoff brennt, dann wird im Schnitt die innerhalb einer Teilentladung transferierte Ladung kleiner als in anderen Gasmischungen. Dieses Phänomen kann durch die starke Elektronegativität des Sauerstoffs erklärt werden. Die Ladungen, die während einer Teilentladung bei der SBD transferiert werden, überschreiten um eine Größenordnung diejenigen der CBD (siehe Abb. 4.30).

Die in reinem Stickstoff erhaltenen Ergebnisse sind eine Ausnahme, da die Teilentladungen infolge der hohen Dichte der langlebigen angeregten metastabilen Spezies viel länger als in Gasmischungen andauern.

Trotz der Ähnlichkeiten zwischen der SBD und der CBD in Bezug auf die Form und die Dauer der Teilentladungspakete ist die Oszillationsweise in der CBD sogar für hohe Stickstoffflüsse stärker und die Amplitude des Teilentladungsstroms um ein mehrfaches größer als in der SBD infolge dieser Oszillationen. Eine Erklärung dafür kann der Unterschied zwischen den Reinheiten der Keramik in beiden Fällen (99% für die SBD und 96% für die CBD) sein (siehe Abschnitt 3.2).

Die mittleren Zeitabstände zwischen den Teilentladungen ΔT sind stark von den Gasmischungen für beide Entladungsmodule abhängig (siehe Abb. 4.29). Der maximale Zeitabstand für die SBD ist länger als für die CBD. Das ist eine Folge der niedrigeren Frequenz und Spannung und der höheren während einer Teilentladung transferierten Ladung.

Die in Abb. 4.30 dargestellten Kurven zeigen die während einer Teilentladung transferierte Ladung als Funktion des Sauerstoffsanteils in der Gasmischung. Für alle Gasmischungen, die mehr als 15% Sauerstoff enthalten, ist diese Ladung in der SBD größer als die in der CBD.

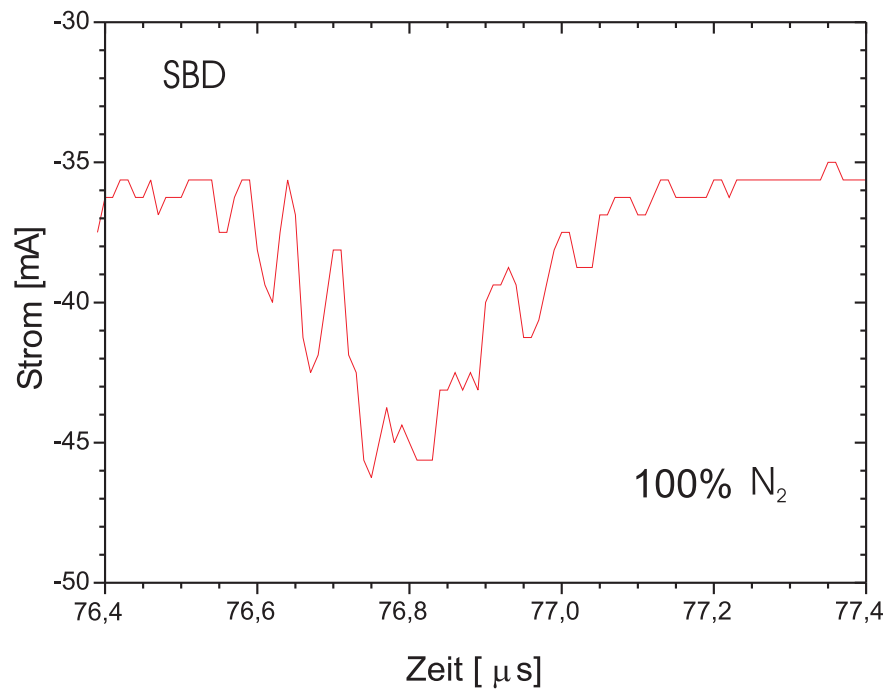


Abbildung 4.27: Der typische Stromverlauf einer Teilentladung in reinem Stickstoff in der SBD. Für die technischen Angaben der Struktur siehe Anhang A, Tabelle A.1

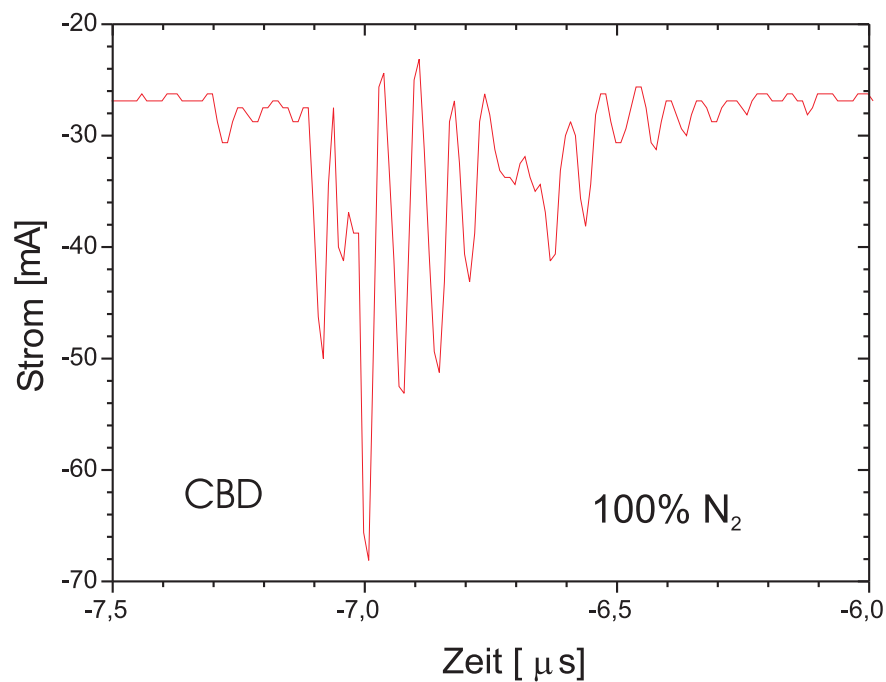


Abbildung 4.28: Der typische Stromverlauf einer Teilentladung in reinem Stickstoff in der CBD. Der Abstand zwischen den Elektroden beträgt 0,5 mm, Dicke der Keramikplatte ist 0,25 mm

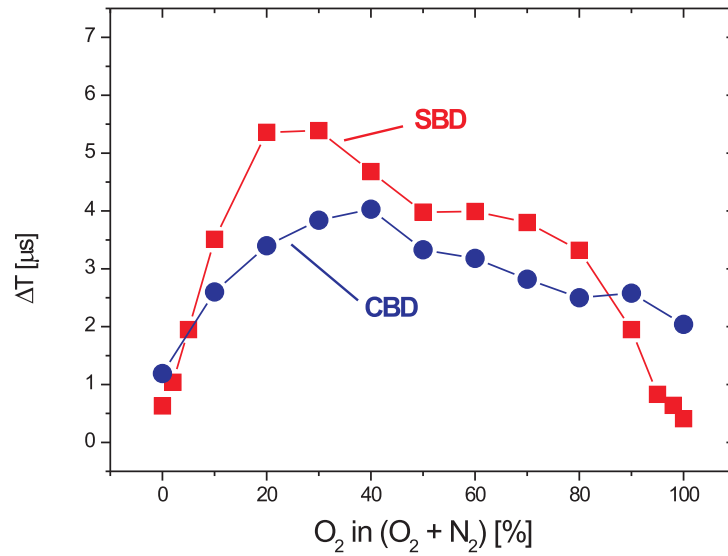


Abbildung 4.29: Die Abhängigkeit des mittleren Zeitabstandes zwischen zwei aufeinanderfolgenden Teilentladungen in SBD und CBD als Funktion der O₂-Prozent in O₂+N₂ Gasmischung. Für die technischen Daten beider Strukturen siehe Anhang A

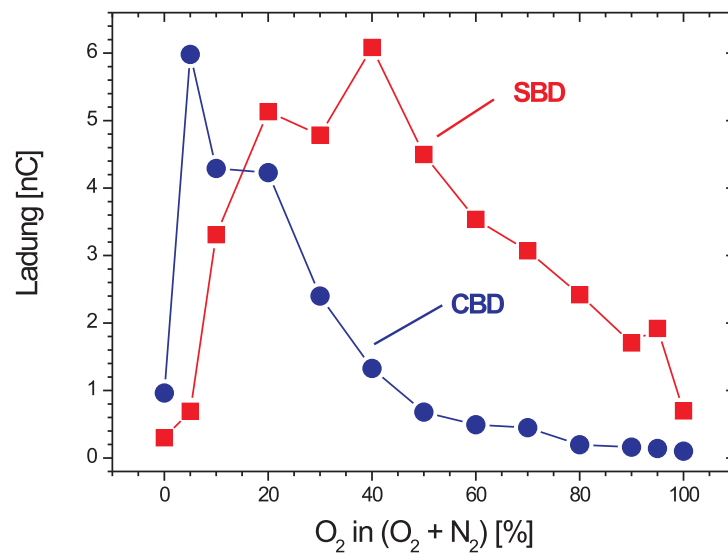


Abbildung 4.30: Die Abhängigkeit der mittleren durch eine Teilentladung transferierten Ladung in SBD und CBD als Funktion der O₂-Prozent in O₂+N₂ Gasmischung (siehe Anhang A für die technischen Daten beider Strukturen)

Bei der CBD setzt sich die während einer Teilentladung transferierte Ladung allmählich mit zunehmendem Sauerstoffanteil, mit Ausnahme von reinem Stickstoff, herab. Die Kurve für die SBD hat ein deutliches Maximum bei 40% Sauerstoff.

4.5.1 Schlussfolgerungen

Der Vergleich zwischen den elektrischen Merkmalen der SBD und CBD zeigt Unterschiede für verschiedene Sauerstoff-Anteile in den Sauerstoff-Stickstoff-Gasgemischen. Einige davon kann man anhand der niedrigen Modulkapazität und demzufolge der hohen optimalen Betriebsfrequenz für die CBD erklären. Ein Nachteil der CBD besteht in der hohen Zündspannung, deren Wert von der relativ niedrigen Intensität des elektrischen Feldes über der Keramikoberfläche erklärt werden kann. In der SBD ist die transferierte Ladung innerhalb einer Teilentladung viel größer, wenn der Sauerstoffanteil mehr als 15% beträgt. Unter diesem Prozentsatz übernimmt die CBD die Rolle als Hauptträger der Ladungen. Qualitativ ähnlich ist die Abhängigkeit des Zeitabstandes zwischen den Teilentladungen von dem Anteil des Sauerstoffs in den Sauerstoff-Stickstoff-Gasgemischen. Die CBD hat dennoch den Vorteil der Generierung stärkerer Teilentladungen sowohl während der anodischen als auch während der katodischen Halbperiode der Anregung.

Eine neuartige auf einer Zylinder-CBD basierende Plasmaquelle wird in Abschnitt 6.4 vorgestellt. Dort werden auch ihre Vorteile diskutiert.

Kapitel 5

Charakterisierung der He-Entladung

5.1 Mechanismen der Helium-Entladung

Schon seit langem steht Helium im Mittelpunkt der Forschung an Gasentladungen. Auch wenn nicht alle in Helium-Entladungen ablaufenden Prozesse vollständig verstanden sind, stehen dennoch viele experimentelle Ergebnisse zur Verfügung, mit deren Hilfe die wichtigsten physikalischen Phänomene im Glimmodus einer DBD in Helium erklärt werden können. Die wesentlichen auf Ionen und metastabil angeregten Atomen $\text{He}(2^3S)$ basierten Prozesse sind in Tabelle 5.1 zusammengefasst. Die zusätzlichen Ratenkoeffizienten für Singulett $\text{He}(1^1S)$ sind in [120] zu finden.

5.1.1 Ionenprozesse

Der zeitlich und räumlich aufgelöste Verlauf der Elektronenkonzentration n_e kann als Lösung der vereinfachten Bilanzgleichung

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} = -D_a \nabla^2 n_e + S_e - P_e \quad (5.1)$$

bestimmt werden, wobei S_e und P_e der Volumenproduktionsrate bzw. der Vernichtungsrate der Elektronen-Ionen-Paare entsprechen und D_a , gegeben als [50]

$$D_a = 8,5 \cdot \frac{1}{p} \cdot \frac{T}{T_0} \frac{\text{m}^2\text{Pa}}{\text{s}} \quad (5.2)$$

den Koeffizienten der ambipolaren Diffusion im Heliumgas darstellt, wobei T die Gastemperatur und $T_0=273,15$ K sind.

Nr.	Prozess	Gleichung	Rate	Koeffizient	Ref.
Direkte Prozesse					
1	e-Stoß-Ionisation	$\text{He} + e \rightarrow \text{He}^+ + 2e$	$n_N n_e C_N^+$	$9,8 \times 10^{-19} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$	[124]
2	Metastabilen Anregung	$\text{He} + e \rightarrow \text{He}(2^3S) + e$	$n_N n_e C_N^M$	$1,1 \times 10^{-14} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$	[18]
3	Stufenweise Ionisation	$\text{He}(2^3S) + e \rightarrow \text{He}^+ + 2e$	$n_M n_e C_M^+$	$4,5 \times 10^{-14} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$	[25]
Drei-Körper-Stöße					
4	Ionen-Assoziation	$\text{He}^+ + 2\text{He} \rightarrow \text{He}_2^+ + \text{He}$	$n_N^2 n_+ K_+^{m+}$	$6,2 \times 10^{-44} \text{ m}^6 \text{ s}^{-1}$	[123]
5	Ionen-Rekombination	$\text{He}^+ + e + \text{He} \rightarrow \text{He}^* + \text{He}$	$n_+ n_e n_N C_+^M$	$1,0 \times 10^{-39} \text{ m}^6 \text{ s}^{-1}$	[123]
6	Molek-Rekombination	$\text{He}_2^+ + e + \text{He} \rightarrow \text{He}_2^* + \text{He}$	$n_{m+} n_e n_N C_{m+}^{mM}$	$5,0 \times 10^{-39} \text{ m}^6 \text{ s}^{-1}$	[123]
7	Anregungsübertragung	$\text{He}(2^3S) + 2\text{He} \rightarrow \text{He}_2(a^3\Sigma_u^+) + \text{He}$	$n_M n_N^2 K_M^{mM}$	$2,5 \times 10^{-46} \text{ m}^6 \text{ s}^{-1}$	[116]
Rekombination					
8	Radiative R.	$\text{He}^+ + e \rightarrow \text{He} + h\nu$	$n_+ n_e C_+^N$	$2,0 \times 10^{-18} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$	[123]
9	zwei Elektr.-R.	$\text{He}^+ + 2e \rightarrow \text{He} + e$	$n_+ n_e^2 C_+^N$	$7,1 \times 10^{-32} \text{ m}^6 \text{ s}^{-1}$	[123]
10	Molek-Ionen R.	$\text{He}_2^+ + e \rightarrow \text{He}_2^* + h\nu$	$n_{m+} n_e C_{m+}^{mMf}$	$5,0 \times 10^{-16} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$	[139]
11	Dissoziative R.	$\text{He}_2^+ + e \rightarrow \text{He}(2^3S) + \text{He}$	$n_{m+} n_e C_{m+}^M$	$5,0 \times 10^{-15} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$	[123]
12	Dissoziative R.	$\text{He}_2^+ + 2e \rightarrow 2\text{He} + e$	$n_{m+} n_e^2 C_{m+}^N$	$2,0 \times 10^{-32} \text{ m}^6 \text{ s}^{-1}$	[123]
Zwei-Körper-Stöße					
13	Anregungsübertr.-Ionis.	$\text{He}(2^3S) + \text{He}(2^3S) \rightarrow e + \text{He}^+ + \text{He}$	$n_M^2 K_M^+$	$8,7 \times 10^{-16} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$	[123]
14	Assoziative Ionisation	$\text{He}(2^3S) + \text{He}(2^3S) \rightarrow e + \text{He}_2^+$	$n_M^2 K_M^{m+}$	$1,9 \times 10^{-15} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$	[16]

Tabelle 5.1: Die wichtigsten atomaren und molekularen Prozesse in He. Die angenommene Elektronentemperatur beträgt 1,5 eV. Die zusätzlichen Ratenkoeffizienten für das Singulett $\text{He}(1^1S)$ sind in [120] zu finden.

Bilanzgleichung für geladene Teilchen

Im hier betrachteten Druckbereich und bei der für SBD typischen mittleren Elektronenkonzentration ($< 2,0 \times 10^{16} \text{ m}^{-3}$) stellt die Drei-Körper-Ionenassoziation (Prozess 4 in Tabelle 5.1) den schnellsten Verlustmechanismus für atomare He^+ -Ionen dar, der weiterhin die Bildung der molekularen He_2^+ -Ionen hervorruft. Da die Verlustrate dieser Ionen viel kleiner als deren Produktionsrate ist, überwiegen sie als positive Ladungsträger in der Entladung. Die Geschwindigkeit der ambipolaren Diffusion ist größer als die Prozessgeschwindigkeiten aller anderen Verlustprozesse (siehe Abb. 5.1). Demzufolge kann man die vereinfachte eindimensionale statische Bilanzgleichung für Elektronen wie folgt schreiben:

$$-D_a \nabla^2 n_e(y) + n_e(y) n_N C_N^+ = 0 \quad (5.3)$$

wobei n_N die Konzentration der Neutralteilchen gegeben ist durch:

$$n_N = \frac{p}{kT} \quad (5.4)$$

Der Ratenkoeffizient der Elektronenstoßionisation C_N^+ wird als Funktion der Temperatur (gegeben in eV^{-1}) nach folgender Gleichung berechnet [70]:

$$C_N^+(T_e) = C_{0e} \sqrt{\left(\frac{8e}{\pi m_e}\right)} W_e \sqrt{T_e} \left(1 + \frac{2T_e}{W_e}\right) \exp\left(-\frac{W_e}{T_e}\right) \quad (5.5)$$

¹1 eV entspricht der Temperatur von 11600 K

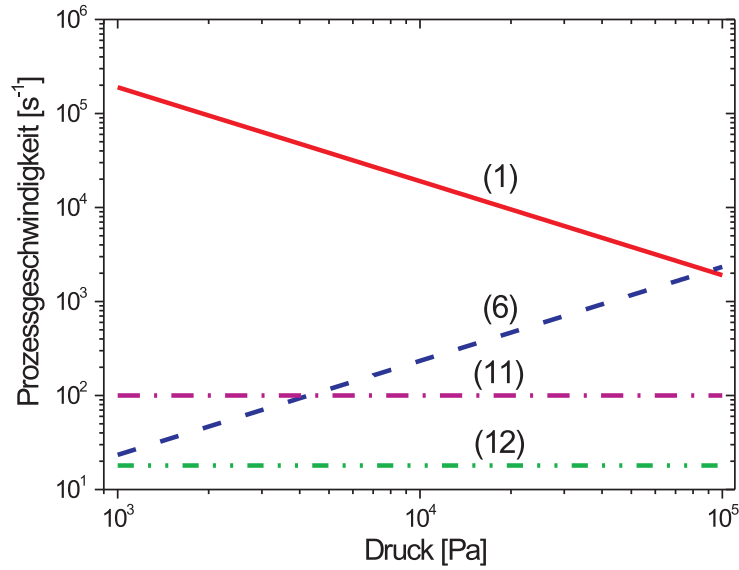


Abbildung 5.1: Die Produktionsgeschwindigkeit der He^+ -Ionen, der Geschwindigkeit der ambipolaren Diffusion entsprechend (1) und die Verlustgeschwindigkeiten der He_2^+ -Ionen durch die Mechanismen (6), (11) und (12) aus Tabelle 5.1. Die Kennlinien sind als Funktion des Druckes für eine Elektronenkonzentration von $2 \times 10^{16} \text{ m}^{-3}$, für eine durch die Gleichung (5.17) gegebene Elektronentemperatur und für eine Gastemperatur von 310 K berechnet.

wobei der Koeffizient $C_{0e} = 1,0 \times 10^{-22}$ und die He-Ionisationsenergie $W_e = 24,59 \text{ eV}$ sind. Die physikalisch sinnvolle Lösung der Gleichung (5.3) ist:

$$n_e(y) = n_{e0} \exp\left(-\frac{y - y_0}{\Lambda_e}\right) \quad (5.6)$$

wobei

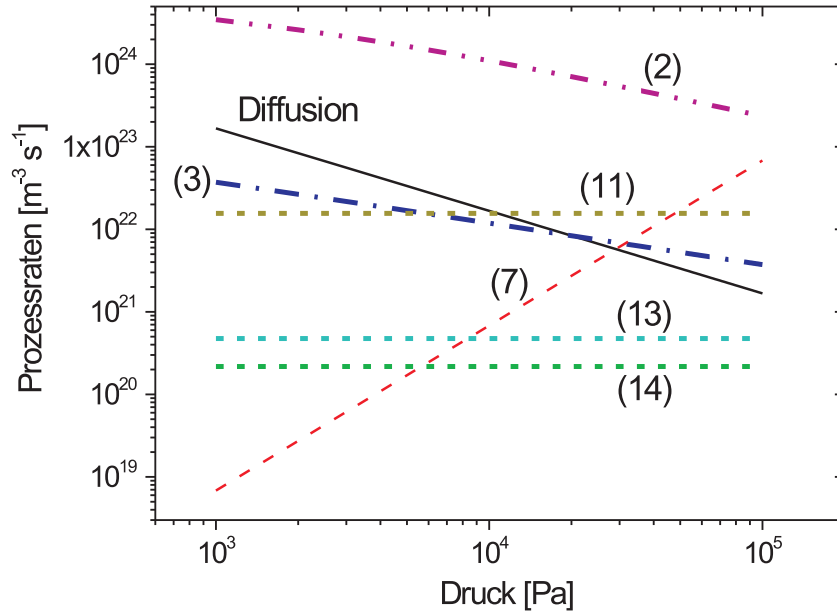
$$\Lambda_e = \sqrt{\frac{D_a}{n_N C_N^+}} \quad (5.7)$$

die sogenannte Gradientenlänge der Elektronenkonzentration beschreibt.

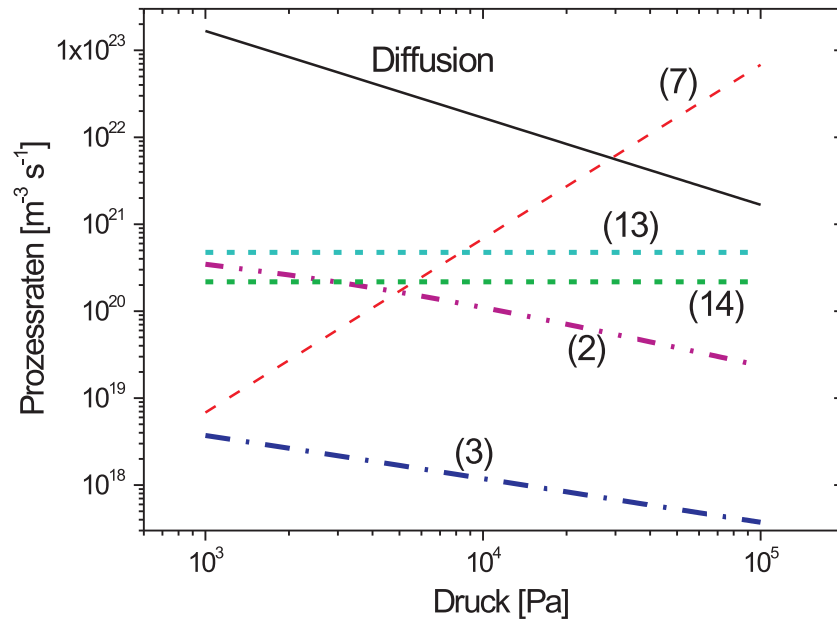
5.1.2 Prozesse der Metastabilen

Die zeitlich und räumlich aufgelöste Konzentration n_M der metastabil angeregten Atome $\text{He}(2^3\text{S})$ kann durch die Lösung der vereinfachten Bilanzgleichung erhalten werden:

$$\frac{\partial n_M}{\partial t} = -D_M \nabla^2 n_M + S_M - P_M \quad (5.8)$$



a)



b)

Abbildung 5.2: Reaktions- und Diffusionsraten von He(2^3S)-Atomen als Funktion des Druckes berechnet für eine durch die Gleichung (5.17) interpolierte Elektronentemperatur, eine Gastemperatur von 310 K und eine mittlere Elektronenkonzentration von a) $2 \times 10^{18} \text{ m}^{-3}$ (Heizphase) bzw. b) $2 \times 10^{14} \text{ m}^{-3}$ (Nachglimmen)[76]. Die Zahlen entsprechen der Nummerierung der Prozesse in Tabelle 5.1.

wobei D_M die Diffusionskonstante der He(2^3S)-Metastabilen im Helium ist. S_M und P_M bezeichnen die Produktion und die Vernichtung der Metastabilen im Volumen.

Der wichtigste Produktionsprozess von He(2^3S) ist die Anregung durch Elektronenstöße (Prozess (2) in Tabelle 5.1). Wie in Abschnitt 5.5 beschrieben wird, besteht der Verlauf der SBD aus zwei Phasen:

- (i) Die Phase der Entladungsheizung, mit hoher Elektronenkonzentration, in der die Produktion der Metastabilen die Verluste überschreitet. Die Druckabhängigkeiten der Reaktionsraten sind in Abb. 5.2 a) zusammengefasst.
- (ii) Das Abklingen der Entladung (Nachglimmen) mit niedriger Elektronenkonzentration. In diesem Fall sind die Verluste höher als die Produktion, wodurch die Metastabilen allmählich verschwinden. Die entsprechenden Reaktionsraten sind in Abb. 5.2 b) dargestellt.

5.1.2.1 Diffusion der Metastabilen

Die Diffusionskonstante der metastabil angeregten Helium-Atome (Triplet) durch das Heliumgas ist eine Funktion des Druckes und der Temperatur [43] und kann mittels der Näherungsformel [70]:

$$D_M = D_0 \left(\frac{p_0}{p} \right) \left(\frac{T}{T_0} \right)^\eta \quad (5.9)$$

beschrieben werden, wobei p_0 der Druck von 101325 Pa und T_0 die Temperatur von 273,15 K sind, sowie $D_0 = 5,59 \times 10^{-5} \text{ m}^2\text{s}^{-1}$. Die Diffusionskonstante der Metastabilen wird nach [58] umgerechnet für p_0 und T_0 . Die Konstante η wird wie in [69] ermittelt und hat einen Wert von 1,52. Für die typischen experimentellen Bedingungen (Druck von 700 mbar und Temperatur von 310 K) beträgt die aus Gleichung (5.9) berechnete Diffusionskonstante $D_M = 9,81 \times 10^{-5} \text{ m}^2\text{s}^{-1}$.

5.1.2.2 Hohe Elektronenkonzentration

Während des Übergangs von der produktionsdominierten Phase zur verlustdominierten Phase tritt eine kurze Periode des Ausgleiches zwischen der Produktion und den Verlusten auf. Unter dieser Bedingung ($\partial n_M / \partial t = 0$) kann die zeitunabhängige Bilanzgleichung verwendet werden, welche weiterhin für die Feststellung der räumlich aufgelösten Metastabilenkonzentration eingesetzt wird. Laut Abb. 5.2 dominieren je nach Druck unterschiedliche Verlustmechanismen. Unter 300 mbar stellt die Diffusion den Hauptmechanismus für das Abklingen der Metastabilen dar. Bei Drücken über 300 mbar übernimmt die Drei-Körper-Anregungsübertragung (Prozess (7) in Tabelle 5.1) die Hauptrolle in den Verlustprozessen

von He(2^3S). Infolgedessen kann die eindimensionale Bilanzgleichung wie folgt geschrieben werden:

$$n_e(y)n_N C_N^M = \begin{cases} D_M \frac{d^2 n_M(y)}{dy^2} & \text{für } p < 300 \text{ mbar} \\ n_M(y)n_N^2 K_M^{mM} & \text{für } p \geq 300 \text{ mbar} \end{cases} \quad (5.10)$$

wobei C_N^M eine Funktion der Elektronentemperatur (in eV):

$$C_N^M(T_e) = C_{0M} \sqrt{\left(\frac{8e}{\pi m_e}\right)} W_M \sqrt{T_e} \left(1 + \frac{2T_e}{W_M}\right) \exp\left(-\frac{W_M}{T_e}\right) \quad (5.11)$$

mit dem Koeffizienten $C_{0M} = 2,8 \times 10^{-22}$ und der Anregungsenergie des metastabilen Zustandes $W_M = 19,82$ eV ist [70].

Die entsprechende Lösung der Gleichung (5.10) ist:

$$n_M(y) = \begin{cases} \frac{n_N \Lambda_M^2 C_N^M}{D_M} n_e(y) & \text{für } p < 300 \text{ mbar} \\ \frac{C_N^M}{n_N K_M^{mM}} n_e(y) & \text{für } p \geq 300 \text{ mbar} \end{cases} \quad (5.12)$$

Die Lösung für den oberen Druckbereich wurde unter der Voraussetzung erhalten, dass die Verteilung der Elektronenkonzentration eine von der Gleichung (5.6) beschriebene exponentielle Form zeigt. Beide Gleichungen in 5.12 drücken eine lineare Abhängigkeit der Metastabilenkonzentration von der Elektronenkonzentration aus. Das bedeutet, dass die Verteilung der Metastabilenkonzentration der Verteilung der Elektronenkonzentration folgt. Der einzige Unterschied zwischen dem oberen und unteren Druckbereich besteht in den für den dominierenden Verlustmechanismus spezifischen Proportionalitätskonstanten.

5.1.2.3 Niedrige Elektronenkonzentration

Bei Elektronenkonzentrationen unter $1,0 \times 10^{16} \text{ m}^{-3}$ gibt es keine Produktionsprozesse der Metastabilen und das Abklingen der Metastabilen wird, je nach Druck, von den selben Verlustprozessen wie bei der hohen Elektronenkonzentration bestimmt: Diffusion unter 300 mbar und Drei-Körper-Anregungsübertragung über 300 mbar. Die Zeitabhängigkeit der Metastabilenkonzentration kann unter solchen Bedingungen mittels der Bilanzgleichung wie folgt beschrieben werden:

$$\frac{\partial n_M}{\partial t} = \begin{cases} -\frac{D_M n_M(t)}{\Lambda_M^2} & \text{für } p < 300 \text{ mbar} \\ -n_N^2 K_M^{mM} n_M(t) & \text{für } p \geq 300 \text{ mbar} \end{cases} \quad (5.13)$$

Die entsprechende Lösung der Gleichung (5.13) ist:

$$n_M(t) = n_M(t_0) \exp\left(-\frac{t - t_0}{\tau_M}\right) \quad (5.14)$$

mit der Zeitkonstante gegeben durch:

$$\tau_M = \begin{cases} \frac{\Lambda_M^2}{D_M} & \text{fuer } p < 300 \text{ mbar} \\ \frac{1}{n_N^2 K_M^{mM}} & \text{fuer } p \geq 300 \text{ mbar} \end{cases} \quad (5.15)$$

5.1.2.4 Metastabilenkonzentration

Aus der Gleichung (5.10) kann die Abhängigkeit zwischen der Elektronenkonzentration und der Metastabilenkonzentration abgeleitet werden:

$$n_M = \frac{n_e n_N C_N^M}{\frac{D_M}{\Lambda_M^2} + K_M^{mM} n_N^2} \quad (5.16)$$

Die Produktion der metastabil angeregten Atome durch Elektronenstöße und die Verluste durch Diffusion und Drei-Körper-Anregungsübertragung sind in der Gleichung (5.16) berücksichtigt.

Die in der Gleichung (5.12) beschriebene lineare Abhängigkeit zwischen der Elektronenkonzentration und der Metastabilenkonzentration erlaubt die Annahme $\Lambda_M = \Lambda_e$ für die Gleichungen (5.13) bis (5.16).

5.2 Entladungsstruktur der SBD

Die Struktur und die zeitliche Entwicklung der SBD sind Gegenstand zahlreicher Publikationen. Sehr interessante Informationen über die Struktur der SBD wurden von den Staubbildern der in Luft betriebenen SBD entnommen [47]. Es werden unterschiedliche Strukturen, abhängig von der Elektrodenpolarisierung, beobachtet: lange Kanäle, wenn die Entladungselektrode positiv und unregelmäßige Muster am Elektrodenrand, wenn sie negativ ist [114]. Es gibt aber nur wenige Veröffentlichungen, die sich mit der Bildung der SBD-Entladung in Helium auseinandersetzen.

Im Folgenden werden die Ergebnisse der SBD-Untersuchungen mit Hilfe von ICCD-Aufnahmen dargestellt.

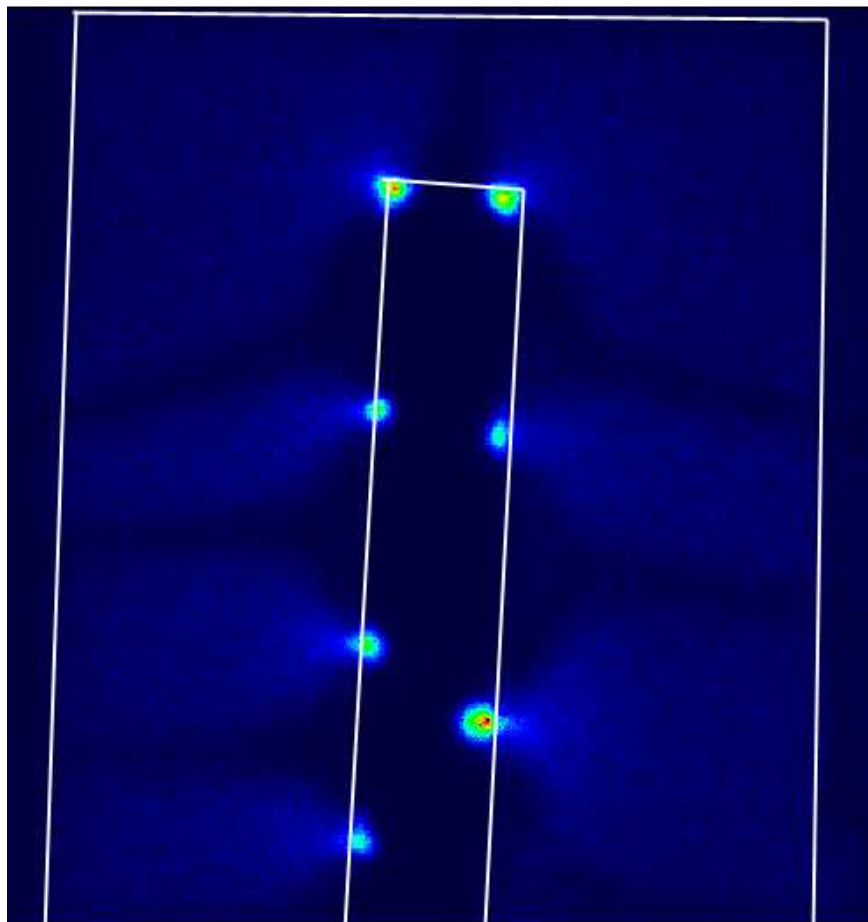


Abbildung 5.3: ICCD-Aufnahme der SBD in Helium bei Atmosphärendruck angeregt von rechteckigen Spannungspulsen mit einer Amplitude von 700 V und einer Frequenz von 8 kHz. Die Abbildung wurde mit 10 ms Belichtungszeit aufgenommen. Die äußeren und inneren Linien bezeichnen die Ränder der Induktions- bzw. Entladungselektrode.

5.2.1 Entladungsmorphologie

Trotz des homogenen Erscheinungsbildes einer in Helium betriebenen SBD weisen die ICCD-Aufnahmen auf eine deutliche Struktur der Entladung hin (siehe Abb. 5.3), die sich stark vom Druck und der angelegten Spannung beeinflussen lässt.

Unter Atmosphärendruck entstehen am Rand der Entladungselektrode hellere Punkte mit höheren Plasmadichten. Jedem dieser Punkte ist ein viel größerer Bereich über der Keramikfläche zugeordnet (siehe die helleren Flecken in Abb. 5.3). Die Ausbildung dieser Flecken ist auf die sich über die Induktionselektrode erstreckende Keramikfläche begrenzt.

Man bemerkt, dass die größeren und helleren Leuchtzonen den größeren Fleckenbereichen über der Keramik zugeordnet sind. Die Zahl der Leuchtzonen sinkt mit abnehmendem Druck, aber ihre Fläche wird größer und sie verschieben sich zur Mitte der Entladungselektrode.

Abhängig vom Druck sind zwei Typen von Entladungsstrukturen zu beobachten. Der Unterschied zwischen diesen Entladungstypen wird in den ICCD-Aufnahmen in der Vorderansicht bei 50 und 200 mbar verdeutlicht (siehe Abb. 5.4).

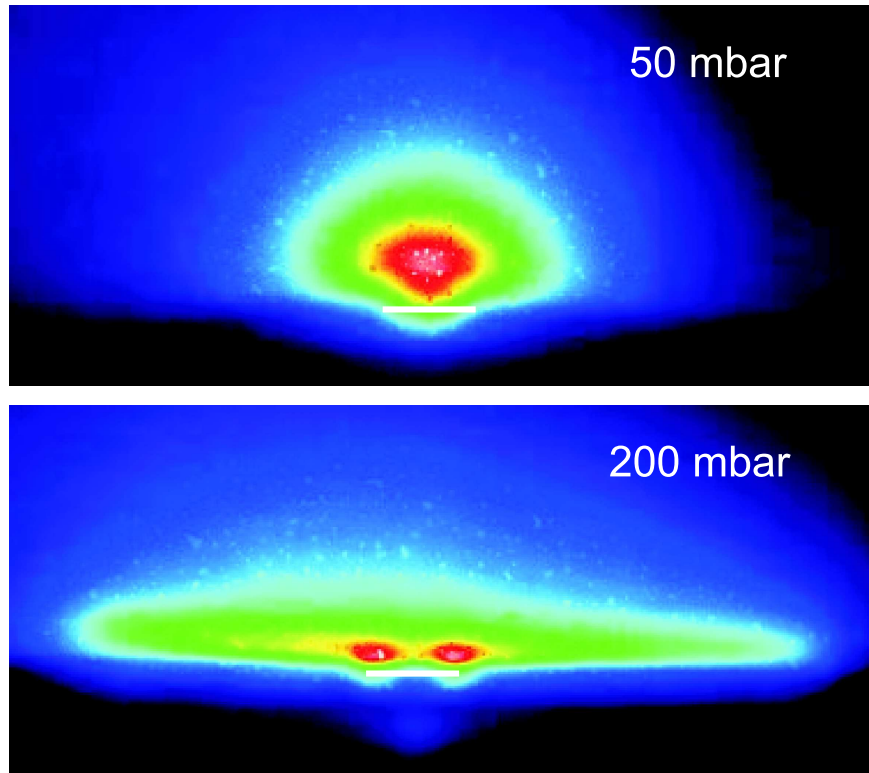


Abbildung 5.4: Die ICCD-Aufnahmen in Vorderansicht einer mit 700 V, 8 kHz angeregten SBD, für 50 und 200 mbar und bei 10 ms Belichtungszeit. Die weißen Linien kennzeichnen die Position der Entladungselektrode.

Bei Drücken unter 200 mbar ist nur ein Maximum der Emissionsintensität zu beobachten und zwar über der Mittellinie der Entladungselektrode. Bei Drücken ab 200 mbar entsteht über jeder Elektrodenkante ein Maximum. Die Entladungsdicke (Ausbreitung entlang der y Achse) nimmt mit abnehmendem Druck zu.

5.2.2 Bestimmung der Elektronentemperatur

Im stationären Zustand kann die Gleichgewichtsbedingung zwischen den Diffusionsverlusten und der Produktion durch Elektronenstoß-Ionisation (siehe Abschnitt 5.1) verwendet werden, um die Elektronentemperatur zu bestimmen [63].

Unter der Annahme, dass die Gradientenlänge Λ_e aus der experimentell bestimmten Verteilung der Elektronenkonzentration erhalten werden kann, ergibt sich die Elektronentemperatur aus der iterativen Lösung der Gleichung (5.7).

Wegen der relativ kleinen Abmessungen der Entladung und der zeitlichen Änderung ihrer Mikrostruktur ist es schwierig, die räumlich aufgelöste Verteilung der Elektronenkonzentration in der SBD direkt zu messen.

Dennoch können zur Abschätzung der zeitgemittelten Verteilung der Elektronenkonzentration die aus den Datensätzen einer ICCD-Aufnahme extrahierten Profile der Lichtemissionsintensität verwendet werden. Ein Beispiel solcher entlang der y -Achse für die Drücke

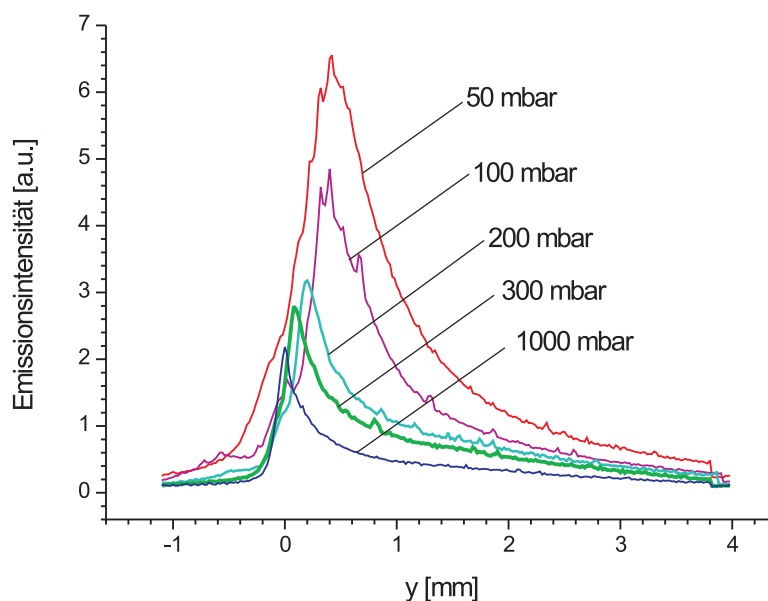


Abbildung 5.5: Vertikale Profile der Emissionsintensität gemessen im Maximum des horizontalen Emissionsverlaufs für den Druckbereich von 50 bis 1000 mbar.

von 50 bis 1000 mbar aufgenommenen Profile ist in Abb. 5.5 dargestellt. Durch die Anpassung einer Exponentialfunktion an die abfallenden Flanken dieser Profile errechnet man die Gradientenlängen und dann mit Hilfe des in Abschnitt 5.1.1 dargestellten Verfahrens die Elektronentemperaturen (siehe Abb. 5.6). Für den Bereich 50 bis 1000 mbar variiert die Gradientenlänge zwischen 0,2 und 0,56 mm. Die entsprechende Elektronentemperatur liegt zwischen 1,4 und 2,2 eV.

Die Druckabhängigkeit der auf diese Weise erhaltenen Werte der Elektronentemperatur lässt sich für die Modellrechnungen mittels einer Näherungsfunktion

$$T_e(p) = 0.73 + 10.9 \times p^{-0.238} [\text{eV}] \quad (5.17)$$

darstellen, wobei der Druck in Pa zu spezifizieren ist. Es besteht eine gute Übereinstimmung dieses Ergebnisses mit den in [63] berechneten T_e Werten.

5.3 Bestimmung der Konzentration der angeregten He-Atome mit Hilfe der DLAAS

In diesem Abschnitt werden die räumliche Struktur und die zeitliche Entwicklung der Konzentration zweier angeregter Zustände der He-Atome untersucht: Der metastabil angeregte Zustand 2^3S-He und der resonante Zustand 2^1P-He (siehe Tabelle 5.2).

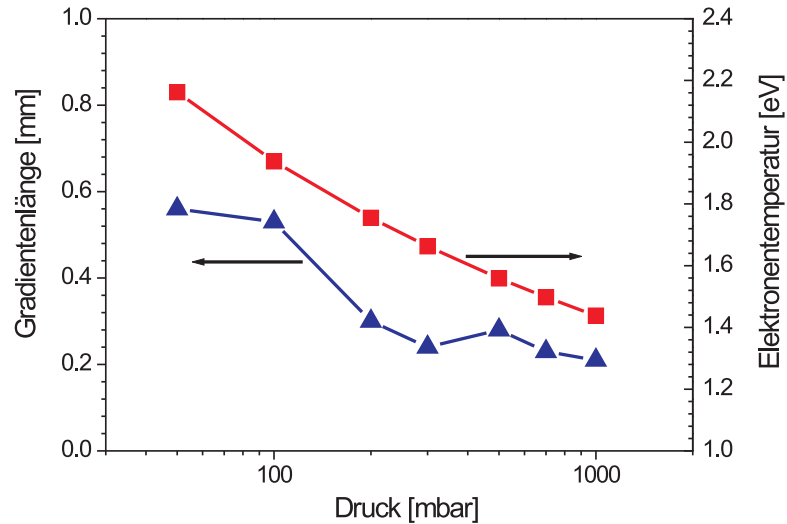


Abbildung 5.6: Gradientenlängen (blaue Kurve ▲) und Elektronentemperaturen (rote Kurve ■) als Funktion des Druckes im Bereich von 50 bis 1000 mbar. Die Gradientenlängen wurden durch die Anpassung einer Exponentialfunktion an die abfallenden Flanken der Kennlinien in Abb. 5.5 laut Gleichung (5.6) ermittelt. Die Elektronentemperatur ergibt sich als eine iterative Lösung der Gleichung (5.7) aus den gegebenen Gradientenlängen.

λ_0	Term k	Term i	E_k	E_i	g_k	g_i	A_{ik}
388,975 nm	2^3S	3^3P	19,82 eV	23,01 eV	3	5	$9,361 \times 10^6 s^{-1}$
667,999 nm	2^1P	3^1D	21,21 eV	23,07 eV	3	5	$6,38 \times 10^7 s^{-1}$

Tabelle 5.2: Die Eigenschaften der untersuchten He-angeregten Zustände [81]

5.3.1 DLAAS

Wie bereits in Abschnitt 5.2.2 erwähnt wurde, bestehen die Schwierigkeiten der Diagnostik in SBD-Plasmen bei hohem Druck in der, im Vergleich zu den Laserstrahldimensionen geringen Plasmadicke, den schwachen direkten Absorptionssignalen und der zeitlichen und räumlichen komplexen inneren Struktur der Entladung.

Der für DLAAS angewendete experimentelle Aufbau ist in Abschnitt 3.4.3.3 beschrieben. Die Intensitätsprofile des Laserstrahls werden aus den ICCD-Aufnahmen des Strahlquerschnitts extrahiert und in der (x,y)-Ebene mit Hilfe eines Gauss-Profiles:

$$I(x, y) = I_0 \exp\left[-\left(\frac{x - x_0}{\sigma_x}\right)^2 - \left(\frac{y - y_0}{\sigma_y}\right)^2\right] \quad (5.18)$$

angenähert, das ein Intensitätsmaximum I_0 an der Position (x_0, y_0) hat. Es wurden für den

388 nm Laserstrahl $\sigma_x = 330 \mu\text{m}$ und $\sigma_y = 780 \mu\text{m}$ und für den 667 nm Laserstrahl $\sigma_x = 149 \mu\text{m}$ und $\sigma_y = 142 \mu\text{m}$ ermittelt.

Die Absorptionssignale werden entweder direkt räumlich und zeitlich oder, im Fall eines Absorptionssignals von unter 1%, nur räumlich durch Plasmamodulationstechnik mit einem Lock-in-Verstärker aufgelöst. Ein typisches Absorptionssignal von der Triplet-Linie bei 20 mbar wird in Abb. 5.7 gezeigt. Aufgrund von Verbreiterungseffekten bei höherem Druck (siehe Abschnitt 3.4.3.2) ist dieses Triplet spektroskopisch nicht mehr auflösbar.

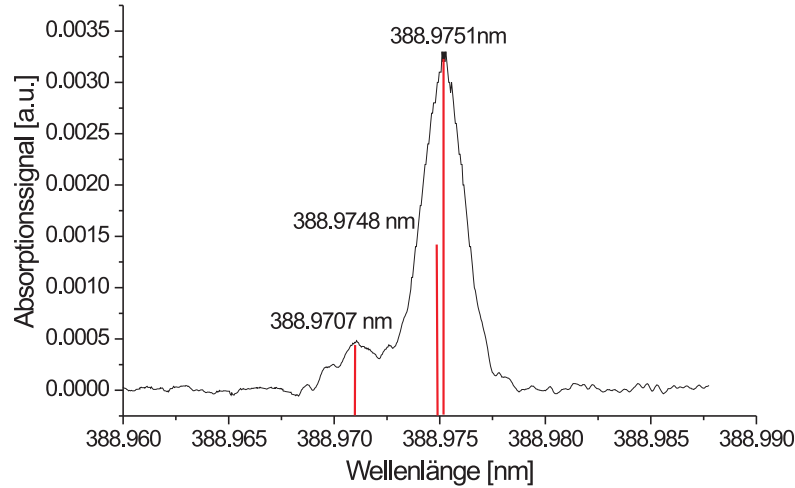


Abbildung 5.7: Typisches Absorptionsprofil der Triplet (2^3S)-He-Linie bei 20 mbar

5.3.2 Räumliche Struktur der Absorption

Mit dem in Abb. 3.8 definierten Koordinatensystem kann die Intensität des übertragenen Lichtes für normale optische Absorption wie in [30] ausgedrückt werden:

$$I_\nu(x, y) = I_{\nu 0} \exp[-\sigma_{abs}(\nu) \int_0^{l_{x,y}} N(x, y, z) dz] \quad (5.19)$$

wobei $N(x, y, z)$ die dreidimensionale räumliche Verteilung der He-angeregten Spezies, $l_{x,y}$ die Weglänge durch die absorbierende Umgebung an der gegebenen (x, y) Stelle und $I_{\nu 0}$ die Maximalintensität des Auflichtes sind. Der Absorptionsquerschnitt $\sigma_{abs}(\nu)$ ist gegeben durch [98]:

$$\sigma_{abs}(\nu) = A_{21} \frac{\lambda^2}{8\pi} \frac{g_2}{g_1} g(\nu) \quad (5.20)$$

Die Werte der zentralen Wellenlänge λ und der statistischen Gewichte g_k und g_i vom unteren (2^3S) und vom oberen (3^3P) Niveau sind in der Tabelle 5.2 erläutert. Die Funktion $g(\nu)$ bei der Frequenz ν wurde normiert, damit das Integral über das Linienprofil zu 1 wird: $\int g(\nu) d\nu = 1$

Der gemessene Wert der Konzentration der He-Metastabilen hängt stark von der Lock-in-Detektion, dem Bild der Entladung und dem Strahlprofil des Diodenlasers ab. Um die tatsächlichen Werte der Konzentration zu errechnen, ist es nötig, die von diesen Einflussgrößen bestimmten Korrekturfaktoren zu berücksichtigen. Alle diese Faktoren werden im Folgenden diskutiert.

5.3.3 Lock-in-Detektion

Wenn das Absorptionssignal kleiner als 1% ist, muss ein Lock-in-Verstärker verwendet werden, um die Empfindlichkeit der Messungen zu verbessern. Das Plasma - und somit auch die Absorption - ist durch den Betrieb im kHz Bereich selbst moduliert.

Der Lock-in-Verstärker ist ein frequenz-sensitiver Verstärker, der nur die Grundfrequenz des Triggersignals (in diesem Fall des Absorptionssignals) verstärkt. Aus dem Verhältnis zwischen der Amplitude des Absorptionssignals im Zeitbereich und der Amplitude der Grundfrequenz im Frequenzbereich ergibt sich der „Lock-in“-Korrekturfaktor K_{LI} .

Der zeitliche Verlauf des Absorptionssignals hängt vom Druck ab. Deswegen muss die Bestimmung des Korrekturfaktors für jeden Druck neu erfolgen. Dieser Korrekturfaktor kann nur für Drücke unter 300 mbar genau ermittelt werden, für welche die direkte Absorption möglich ist. Für dieses Experiment variiert K_{LI} zwischen 4 und 8 in einem Druckbereich von 50 bis 300 mbar. Für $p > 300$ mbar wird dieser Faktor gleich 8 angenommen.

5.3.4 Effektive Absorptionslänge

Die SBD ist entlang der gesamten Länge der Entladungselektrode nicht homogen verteilt, sondern weist, abhängig vom Druck, unterschiedliche mehr oder weniger intensive Plasma-bereiche auf [76]. Folglich muss die Gesamtlänge der Entladungszonen bei der Berechnung der tatsächlichen Absorptionslänge l_{eff} berücksichtigt werden.

Das Integral kann aus Gl. (5.19) wie folgt geschrieben werden:

$$\int_0^{l_{x,y}} N(x, y, z) dz = N_{max} n(x, y) l_{eff} \quad (5.21)$$

wobei $n(x, y)$ die auf dem Maximalwert N_{max} normierte Metastabilenkonzentration ist.

Demzufolge kann die Absorptionslänge in einigen Fällen kleiner als die geometrische Länge sein. Es ist bei dem vorhandenen Messaufbau nicht möglich, die Absorption in der x -Richtung zu bestimmen, weil der optische Weg senkrecht zur Elektrode zu kurz ist, um ein ausreichend starkes Absorptionssignal zu messen. Dennoch folgt die Verteilung der Metastabilenkonzentration gemäß Gleichung (5.10) für eine relativ hohe Elektronenkonzentration der Verteilung der Elektronenkonzentration. Wegen der Proportionalität zwischen den zeitgemittelten, räumlich aufgelösten Emissionsintensitäten und der Elektronenkonzentration wird angenommen, dass die Profile der Emissionsintensität für die Ermittlung der effektiven

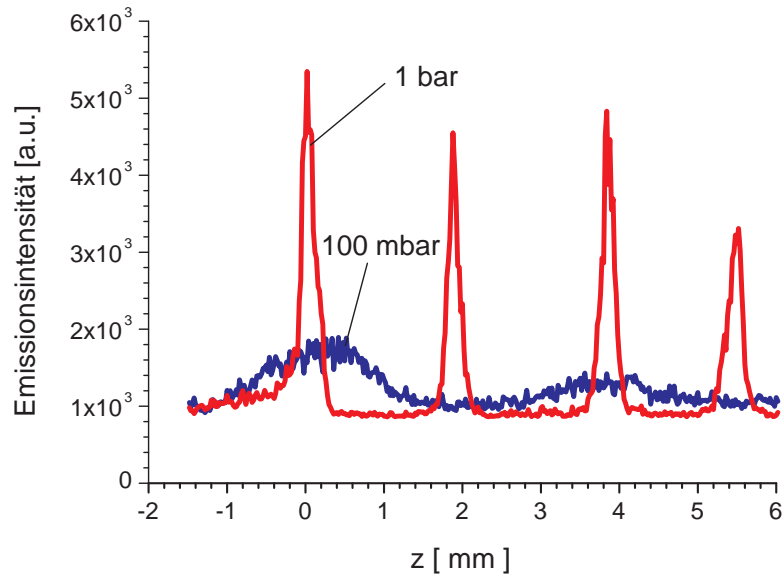


Abbildung 5.8: Profile der Lichtemission entlang der linken Seite der SBD-Elektrode (siehe Abb. 5.3) für 100 und 1000 mbar

Absorptionslänge verwendet werden können. Aus diesem Grund werden die aus den ICCD-Aufnahmen extrahierten und auf ihren Maximalwert $I_{em,max}$ normierten Intensitätsprofile der Lichtemission $I_{em}(z)$ (siehe Abb. 5.8) für die Abschätzung der effektiven Absorptionslänge eingesetzt:

$$l_{eff} = \int_0^l \frac{I_{em}(z)}{I_{em,max}} dz \quad (5.22)$$

Die an der linken Seite der Entladungselektrode gemessene effektive Absorptionslänge ist als Funktion des Druckes in Abb. 5.9 gezeigt. Die effektive Absorptionslänge unterscheidet sich bei einem niedrigeren Druck nur wenig von der geometrischen Länge der Entladungselektrode. Sie verringert sich aber drastisch mit steigendem Druck und erreicht bei Atmosphärendruck einen Wert von nur 30% der geometrischen Länge. Unter Berücksichtigung dieses Korrekturfaktors $K_{AL} = l_{eff}/l$ wird der gemessene Wert der Metastabilenkonzentration zusätzlich mit einem Faktor von maximal 3 multipliziert.

Dieser Korrekturfaktor beeinflusst stark die Metastabilenkonzentration an den Rändern der Entladungselektroden, aber sein Einfluss lässt in der x -Richtung nach.

5.3.5 Überlagerung des Laserstrahls und der Entladung

Die Verteilung der Metastabilenkonzentration hängt stark vom Druck ab [42]. Bei Atmosphärendruck ist die Dicke der Entladung entlang der y -Achse mit σ_y vergleichbar. Nur ein kleiner Teil des Laserstrahls trifft (bzw. durchdringt) die Plasmazone. Damit die für die Entladungsmodellierung notwendigen realistischen Werte der maximalen Konzentration der

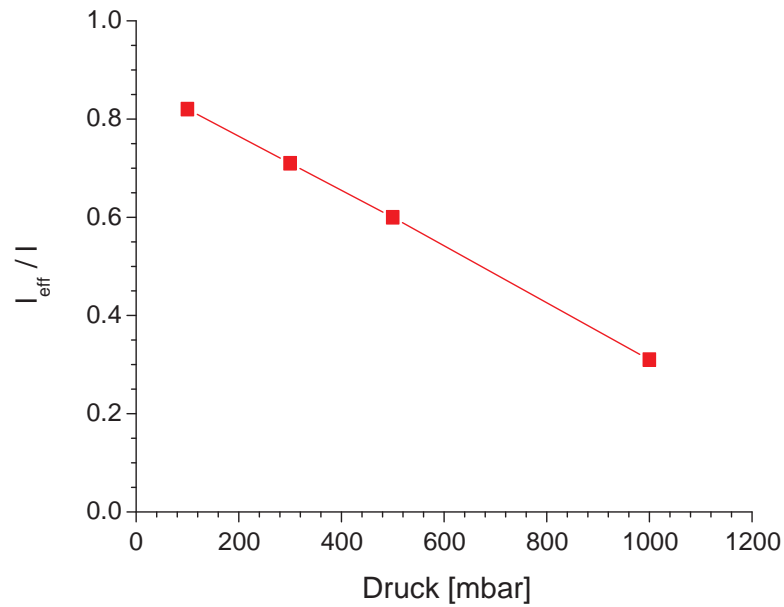


Abbildung 5.9: Die effektive Absorptionslänge normiert auf die geometrische Absorptionslänge als Funktion des Druckes (berechnet entlang der linken Seite der SBD-Elektrode, siehe Abb. 5.3)

angeregten Spezies erhalten werden, wird der Korrekturfaktor K_{LP} (Laser-Plasma) eingeführt. Dieser Faktor berücksichtigt die Faltung der Verteilung der Laserstrahlintensität und der Konzentrationsverteilung in der (x, y) Ebene.

Der gesamte Korrekturfaktor K_{tot} lässt sich nun mit

$$K_{tot}(x, y, p) = \frac{K_{LI}}{K_{AL} \times K_{LP}} \quad (5.23)$$

für jede Position und für jeden Druck berechnen.

Der mit diesem Faktor K_{tot} korrigierte Wert der Konzentration der angeregten Spezies wird mit

$$n_{\text{korrigiert}} = K_{tot} \times n_{\text{gemessen}} \quad (5.24)$$

angegeben.

In Abb. 5.10 werden die Konzentrationen der He-Metastabilen mit und ohne Berücksichtigung des Korrekturfaktors K_{tot} für die SBD bei 300 mbar verglichen.

Es ist bemerkenswert, dass der Maximalwert der Konzentration in diesem Beispiel um einen Faktor 25 größer als der mit dem Lock-In-Verstärker erhaltene Wert ist.

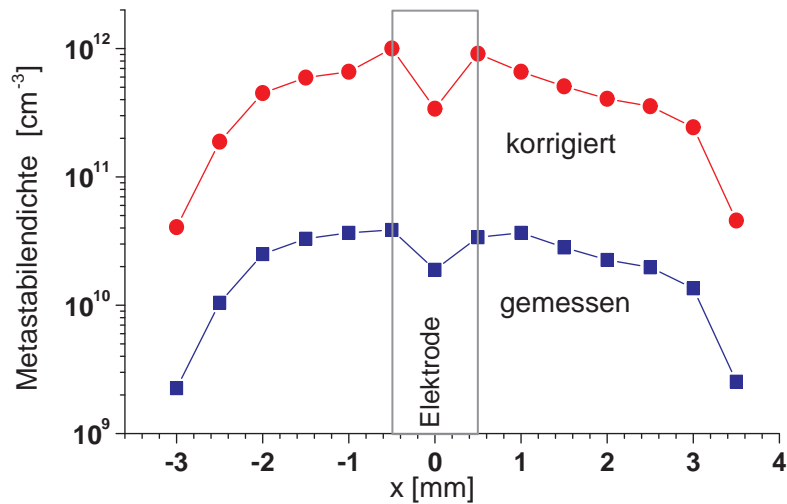


Abbildung 5.10: Horizontale Verteilung der Konzentration der He(2^3S)-Metastabilen bei 300 mbar: gemessene Werte (blaue Kurve ■) und mit einem gesamten Korrekturfaktor von 25 korrigierte Werte (rote Kurve ●)

5.4 Zeitgemittelte Ergebnisse

5.4.1 Druckabhängigkeit der Metastabilenkonzentration

In Abb. 5.11 wird die Druckabhängigkeit der Metastabilenkonzentration gezeigt. Diese Messungen erfolgen an der horizontalen Position, an der die Lichtintensität am stärksten ist. Der maximale Wert der Metastabilenkonzentration liegt bei 200 mbar. Unter 200 mbar sinkt die Metastabilenkonzentration wegen der zunehmenden Diffusionsverluste. Für Drücke über 200 mbar ruft die Drei-Körper-Anregungsübertragung, die quadratisch mit dem Druck zunimmt, das Abklingen der Metastabilenkonzentration hervor.

Zum Vergleich sind ebenfalls die aus der Bilanzgleichung berechneten Werte der Metastabilenkonzentration für eine konstante Elektronenkonzentration von $2.0 \times 10^{16} \text{ m}^{-3}$ und für eine durch Formel (5.17) gegebene Elektronentemperatur aufgetragen. Die aus Gleichung (5.16) berechneten Metastabilenkonzentrationen werden gemäß der effektiven optischen Länge korrigiert (siehe Abb. 5.9). Trotz dieser Korrektur kann man jedoch eine Unstimmigkeit zwischen den gemessenen und berechneten Werten beobachten. Der Hauptgrund dafür besteht wahrscheinlich in der Annahme einer konstanten Elektronenkonzentration für den gesamten Druckbereich. Unter der Voraussetzung einer druckabhängigen Elektronenkonzentration werden die Konzentrationswerte der Metastabilen aus Gleichung (5.16) berechnet, indem die gemessenen Metastabilenkonzentrationen in die Formel eingesetzt werden. Die daraus erzielten Elektronenkonzentrationen sind ebenfalls in Abb. 5.11 dargestellt. Weil sie zeitgemittelt sind, ist zu erwarten, dass die maximalen Werte um etwa eine Größenordnung höher sind.

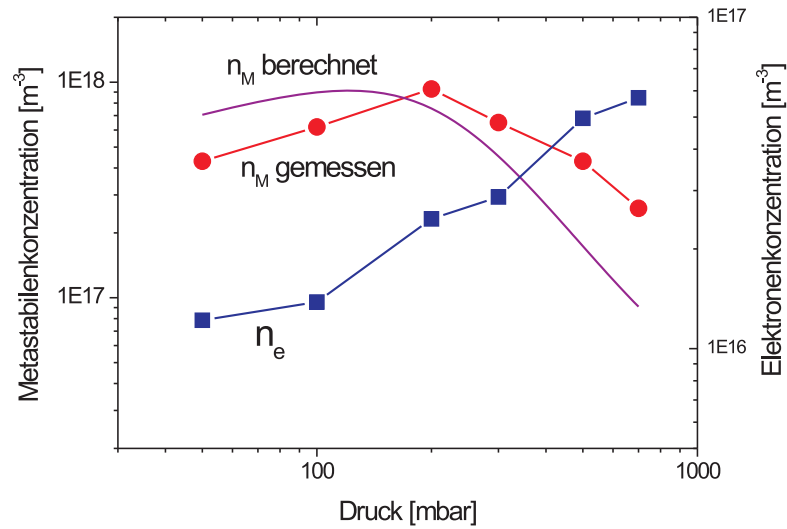


Abbildung 5.11: Die maximalen Werte der Metastabilenkonzentration $n_{Mgemessen}$ als Funktion des Druckes (rote Kurve \bullet). Zum Vergleich dazu die aus Gl.(5.16) mit einer konstanten Elektronenkonzentration $2.0 \times 10^{17} \text{ m}^{-3}$ berechneten Werte der Metastabilenkonzentration $n_{Mberechnet}$. Schließlich die Anpassung der berechneten an die gemessenen Werte der Metastabilenkonzentration, wobei die Elektronenkonzentration n_e (blaue Kurve \blacksquare) diesmal als Fitparameter verwendet wurde

5.4.2 Horizontale Profile

Der Bereich über der ganzen Oberfläche der SBD-Platte wird mit dem Laserstrahl abgetastet, damit die horizontalen Metastabilenverteilungen bestimmt werden können (siehe Abb.5.12). Die Formen dieser Verteilungen sind den entsprechenden, aus den ICCD-Aufnahmen extrahierten Emissionsintensitätsprofilen ähnlich (siehe Abb. 5.13).

Wie auch in den ICCD-Aufnahmen in Abb. 5.4 zu sehen ist, kann man zwei unterschiedliche Typen der Konzentrationsprofile der Metastabilen beobachten. Unter 150 mbar stellen die Kennlinien ein einziges Maximum über der Entladungselektrode dar. Die Kennlinien für mehr als 150 mbar dagegen weisen ein Minimum über der Elektrode und zwei Maxima an jeder Elektrodenkante auf. Die Erklärung dieses Überganges wird im Zusammenhang mit der zeitlichen Entladungsentwicklung diskutiert [76].

Der Unterschied zwischen den Profiltypen der Emissionsintensität und der Metastabilenkonzentration besteht darin, dass die Formen der Emissionskurven schärfer sind. Der integrierende Einfluss des Laserstrahles mit der in Gleichung (5.18) beschriebenen Intensitätsverteilung verursacht ein glatteres Profil der Metastabilenkonzentration [80].

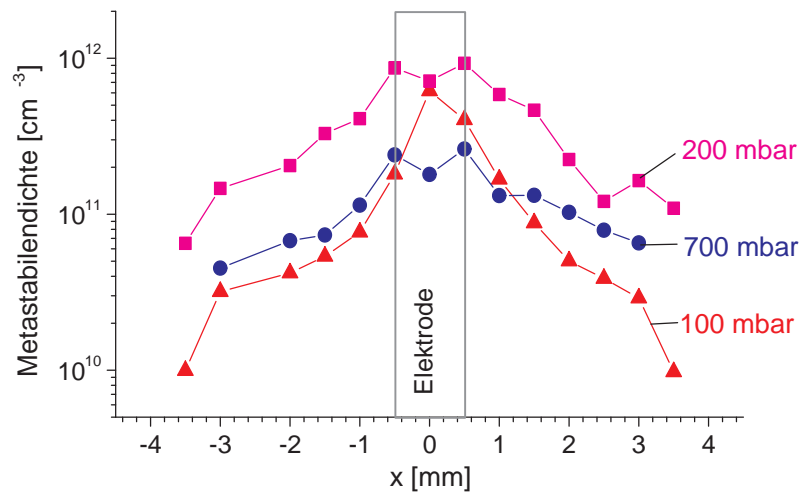


Abbildung 5.12: Die horizontale Verteilung der Metastabilenkonzentration für drei unterschiedliche Drücke: 100 mbar, 200 mbar und 700 mbar

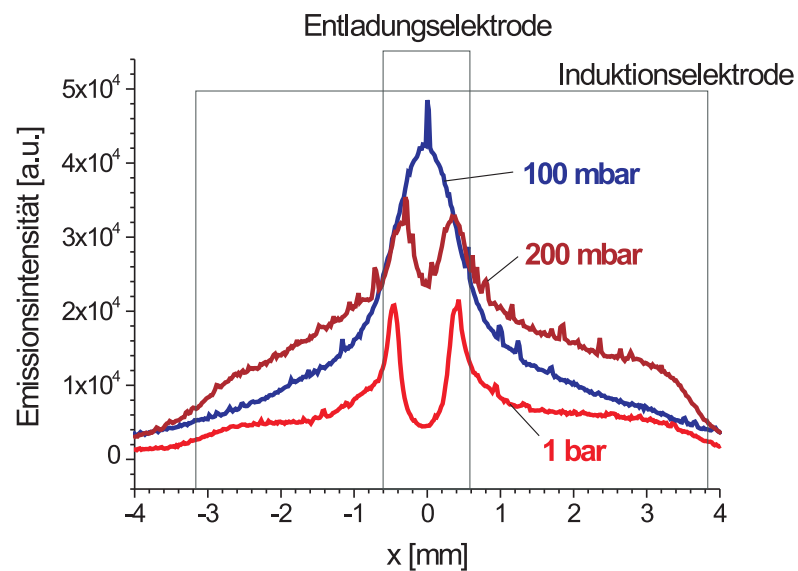


Abbildung 5.13: Die aus den ICCD-Aufnahmen extrahierten horizontalen Profile der Emissionsintensität

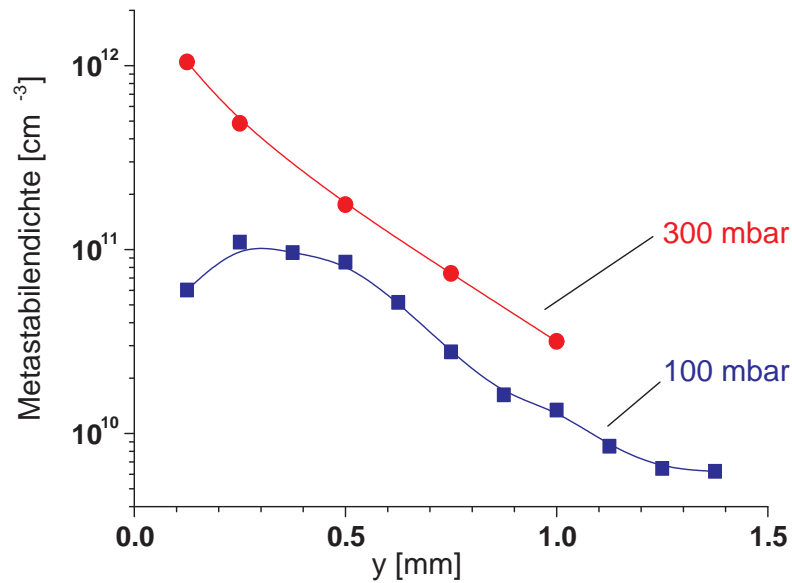


Abbildung 5.14: Die vertikalen Verteilungen der Metastabilenkonzentration für 100 mbar und 300 mbar, gemessen an der horizontalen Position des maximalen Absorptionssignals

5.4.3 Vertikale Profile

In Abb. 5.14 werden die vertikalen, mittels des Lock-in-Verstärkers bei 100 und 300 mbar gemessenen Verteilungen der Metastabilenkonzentration dargestellt. Man kann einen deutlich stärkeren Einfluss der Metastabilenverluste an der Elektrodenkante bei 100 mbar als bei 300 mbar feststellen. Sie entsprechen den Lichtemissionsprofilen (siehe Abb. 5.5), wobei sich das Maximum für 300 mbar viel näher an der Fläche der Entladungselektrode als für 100 mbar ausbildet. Die Gradientenlänge wird aus der exponentiellen Anpassung der Verteilung der Metastabilenkonzentration berechnet und beträgt 0,30 mm für 100 mbar und 0,25 mm für 300 mbar. Bei 300 mbar stimmt dieser Wert mit der Gradientenlänge überein, die das Emissionsprofil der Lichtintensität ergibt. Für 100 mbar entspricht der Wert nur der Hälfte des Wertes für das Emissionsintensitätsprofil.

5.4.4 Bestimmung der Gastemperatur

Wie schon im Abschnitt 3.4.3.2 gezeigt wurde, hängt die Doppler-Verbreiterung der untersuchten Linien direkt mit der translatorischen Bewegung der Atome zusammen, weshalb diese Methode verwendet wird, um die Gastemperatur in der Entladung zu ermitteln.

Die Gleichung (3.9) lässt sich umrechnen:

$$\Delta\lambda_{Gau} = 7,16 \cdot \lambda_0 \cdot \sqrt{\frac{T}{M}} \quad (5.25)$$

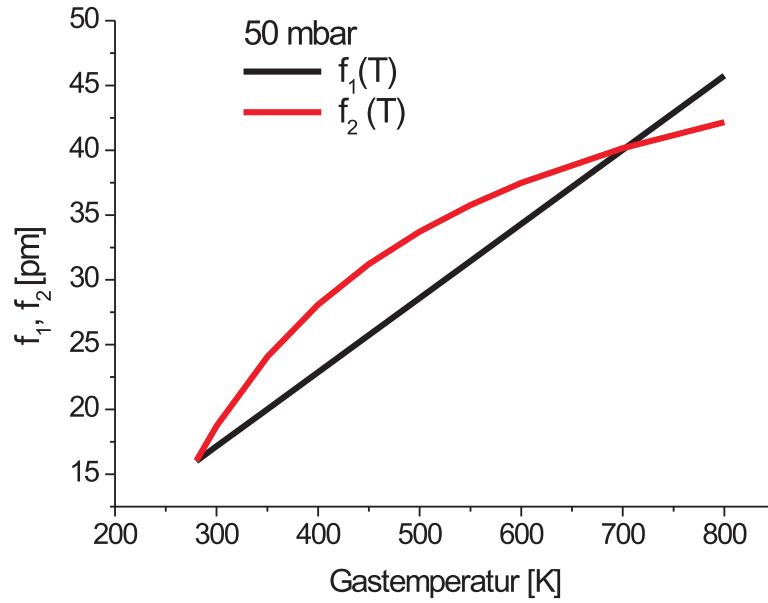


Abbildung 5.15: Die Bestimmung der Gastemperatur für 50 mbar als Schnittpunkt zweier Kurven (siehe Erläuterung im Text)

wobei λ_0 die zentrale Wellenlänge des Überganges, M die Massenzahl der untersuchten Atome und T die Gastemperatur sind.

Bei kleinerer Elektronenkonzentration ($< 10^{13} \text{ cm}^{-3}$), wie dies im Rahmen dieses Experiments der Fall ist, liegt die Starkverbreiterung unter der Nachweisgrenze des verwendeten Meßverfahrens. Demzufolge wird die Druckverbreiterung nur durch die Stoßprozesse gegeben:

$$\Delta\lambda_{\text{Lorentz}} = 2\gamma \cdot \frac{p}{kT} \quad (5.26)$$

Formt man Gleichung (3.14) um, bekommt man:

$$\Delta\lambda_{\text{Gau}}^2 = \Delta\lambda_{\text{Voigt}}^2 - \Delta\lambda_{\text{Voigt}} \cdot \Delta\lambda_{\text{Lorentz}} \quad (5.27)$$

Zur Bestimmung der Gastemperatur wird die volle Breite auf halber Höhe des Absorptionslinienprofils ($\Delta\lambda_{\text{Voigt}}$) experimentell gemessen und zwei temperaturabhängige Funktionen werden graphisch dargestellt:

$$\Delta\lambda_{\text{Gau}}^2 = f_1(T) \quad (5.28)$$

$$\Delta\lambda_{\text{Voigt}}^2 - \Delta\lambda_{\text{Voigt}} \cdot \Delta\lambda_{\text{Lorentz}} = f_2(T) \quad (5.29)$$

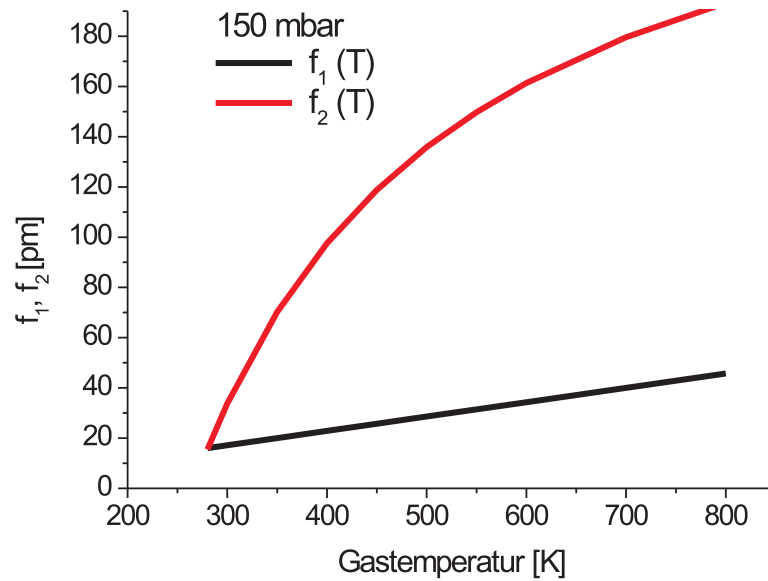


Abbildung 5.16: Die Bestimmung der Gastemperatur für 150 mbar als Schnittpunkt zweier Kurven (siehe Erläuterung im Text)

Die Gastemperatur T_G ergibt sich laut Gleichung (5.27) als Schnittpunkt dieser Kurven:

$$f_1(T_G) = f_2(T_G) \quad (5.30)$$

Diese Methode wird in Abb. 5.15 und Abb. 5.16 im Fall des Linienprofils des 667,999 nm Überganges für zwei Drücke (50 mbar und 150 mbar) verdeutlicht.

Die daraus bestimmten Gastemperaturen betragen in beiden Fällen 280 K mit einer Ungenauigkeit von ± 50 K, die hauptsächlich von der Ungenauigkeit des Stoßverbreiterungskoeffizienten 2γ herrührt, welche in der Literatur angegeben wird.

Die Bestimmung der Gastemperatur mit Hilfe dieser Methode war für höhere Drücke nicht möglich, weil das Abtasten der Laserdiode auf einen gegebenen Wellenlängenbereich begrenzt ist. Für einen Druck von 1 bar ist z.B. $\Delta\lambda_{Sto}$ ca. 60 pm, weswegen es schwierig ist, die Diode über das ganze Linienprofil abzutasten.

5.5 Zeitentwicklung der Entladung

5.5.1 Antwort auf eine Pulsanregung

In Abb. 5.17 werden die auf den Maximalwert normierten Werte der Spannung und des Stromes an der Entladungselektrode, sowie des Absorptionssignals und der Intensität der gesamten Lichtemission gezeigt (Spannungspuls $U = 350$ V, $p = 100$ mbar). Die Signalbreite, gemessen bei einer Höhe von $1/e$ der Signalamplitude, ist $1,1 \mu\text{s}$ für den Strom, $8,4 \mu\text{s}$ für die Lichtintensität und $25,7 \mu\text{s}$ für das Absorptionssignal.

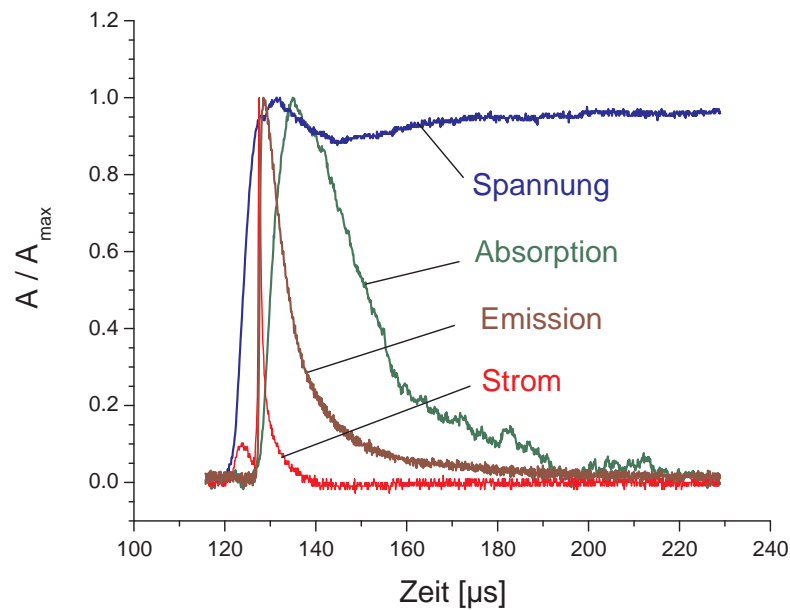


Abbildung 5.17: Die zeitabhängige Reaktion (relative Werte) der Spannung, des Stromes, des Absorptionssignals und der Intensität der gesamten Lichtemission bei 100 mbar für einen Umschaltvorgang.

5.5.1.1 Strom

Der durch die Entladung fließende Strom zeigt zwei unterschiedliche Entwicklungsphasen, jede mit einem lokalen Maximum des Stromes. Die Lichtemissionskurve weist dennoch nur ein Maximum innerhalb einer Halbperiode der Anregungsspannung auf.

Eine solche Form des Stromverlaufes kann durch die Betrachtung der Umladungsprozesse der in den SBD-Schaltkreisen vorhandenen Kapazitäten erklärt werden. Bevor die Zündspannung erreicht wird, wird die Kapazität zwischen der Entladungs- und Induktionselektrode aufgeladen. Diese Zeitspanne erstreckt sich vom Beginn des Spannungsanstiegs, bezeichnet als $t=0$, bis zum Zeitpunkt $t=5 \mu\text{s}$, an dem das erste Strommaximum auftritt. Sobald die Zündspannung erreicht wird, breitet sich die Entladung über die gegenüber der Induktionselektrode liegende Keramikoberfläche aus. Auf diese Weise entsteht eine zusätzliche Kapazität zwischen der Induktionselektrode und dem Plasma. Die Aufladung dieser Kapazität verläuft während der zweiten Periode von 6,5 bis 20 μs , begleitet von einem hohen Strom. Da die Fläche dieser virtuellen Kapazität einige Male größer als die der Entladungselektrode ist, fließt ebenso eine größere Ladung als innerhalb der ersten entladungsfreien Periode. Das Verhältnis zwischen der während der zweiten und der ersten Periode transportierten und durch das Integral der Stromkurve über die Zeit berechneten Ladung hängt nur relativ wenig vom Druck ab und beträgt ca. 3,3. Die gesamte transportierte Ladung beträgt etwa 10 nC.

Die Kapazität zwischen der Entladungs- und Induktionselektrode kann aus der Formel:

$$C = \frac{\varepsilon\varepsilon_0 S}{d} \quad (5.31)$$

bestimmt werden. Unter Berücksichtigung der Material- und Geometriewerte aus Tabelle A.3 liefert die Formel (5.31) eine Kapazität von 4.0 pF. Die angelegte Spannung (Spitze-Spitze) beträgt etwa 800 V und trennt in einem solchen Kondensator eine Ladung von 3,2 nC, ein Wert der relativ gut mit den aus dem typischen Stromverlauf bestimmten 3,3 nC übereinstimmt.

Eine ähnliche Abschätzung zeigt, dass die anhand der Ströme bestimmte Kapazität zwischen der Entladungs- und der Induktionselektrode etwa 4 mal kleiner ist als die über die Fläche der Induktionselektrode und mit der Dicke der Keramikplatte berechneten Kapazität. Die Erklärung dieser Diskrepanz ist wie folgt:

- Der Abstand zwischen der Stelle, an der die Plasmadichte maximal ist, und der Keramikoberfläche von 0,2 bis zu 0,6 mm trägt zur Erhöhung des effektiven Abstandes zwischen den Elektroden des Kondensators (d in der Gleichung (5.31)) bei.
- Die Keramikfläche über der Induktionselektrode ist nicht vollständig durch das Plasma bedeckt, wodurch die effektive Fläche (S in der Gleichung (5.31)) kleiner wird.

Diese beiden Gründe führen zur Verringerung der im Schaltkreis wirkenden Kapazität.

Die Abklingkonstante des Entladungsstromes hängt von der Ladung der Kapazität und der Plasmaleitfähigkeit ab. Die Abhängigkeit der aus der exponentiellen Anpassung des Stromverlaufs bestimmten Abklingkonstante für Drücke zwischen 50 bis 1000 mbar ist in Abb. 5.18 zu sehen.

5.5.1.2 Lichtemission

Die Lichtemission hängt mit den in der Entladung vorhandenen Elektronen zusammen, so lange die für die Freisetzung der Elektronen verantwortliche Zwei-Körper-Ionisation der dominierende He(2^3S)-Verlustmechanismus ist. Die entsprechenden Werte sind in Abb. 5.18 als Funktion des Druckes dargestellt.

5.5.1.3 Die Metastabilen

In der durch eine hohe Elektronenkonzentration und eine starke Lichtemission gekennzeichneten Entladungsphase wird eine große Menge an metastabil angeregten Spezies erzeugt. Anschließend klingt ihre Konzentration innerhalb der nachfolgenden Nachglimmenphase der Teilentladung ab.

Die gemessene Antwort der Entladung auf den Spannungspuls zeigt eine qualitativ gute Übereinstimmung mit dem kinetischen Modell für die DBD [49]. Das Modell sagt ebenso voraus, dass die Metastabilen viel länger in der Entladung vorhanden sind als der Stromfluss

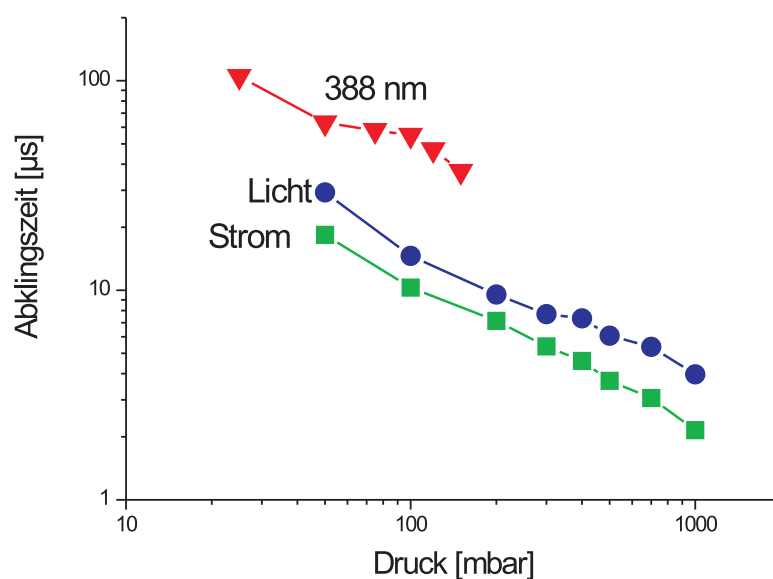


Abbildung 5.18: Die aus der exponentiellen Anpassung an das zeitabhängige Absorptionssignal bestimmte Lebenszeit der $\text{He}(2^3\text{S})$ -Atome als Funktion des Druckes. Zum Vergleich werden ebenfalls die mittels exponentieller Anpassung bestimmten Abklingkonstanten des Stromes und der Emissionsintensität gezeigt

und die Lichtemission. Mit der verfügbaren Messtechnik kann man keine Schlüsse in Bezug auf das Hopfield-Emissionskontinuum ziehen. Dieser Übergang entspricht $\text{He}_2^*(2^1\Sigma_u^+) \rightarrow \text{He}(a^1S)$ im VUV-Bereich von 72 nm bis 92 nm (13,5-17,2 eV) und spielt eine wichtige Rolle im erwähnten kinetischen Modell.

5.5.2 Muster der Lichtemission

Als Folge des Plasmabetriebs im kHz-Bereich ist zu erwarten, dass die Entladungsstruktur sich während einer Anregungsperiode ändert und dass das bei langer Belichtungszeit aufgenommene Bild nur das Ergebnis von Überlagerungen unterschiedlicher Muster ist. Zum Verständnis des Entwicklungsprozesses der Entladung werden die zeitaufgelösten ICCD-Aufnahmen mit Belichtungszeiten von bis zu 100 ns aufgenommen. Für die Beobachtung des Zeitverlaufs der Entladung wird eine gepulste Spannung verwendet und das Auslösen der Bildaufnahme wird mit dem Beginn des Spannungsanstiegs synchronisiert. Die mit dem positiven und negativen Spannungsanstieg synchronisierten Aufnahmen für 1000, 300 und 100 mbar werden in den folgenden sechs Abbildungen dargestellt und analysiert. Der Auslösezeitpunkt der Bildaufnahmen (siehe Abb. 5.19 a-d) wird auf der Kurve der von der Photodiode aufgenommenen gesamten Emissionsintensität gezeigt (siehe Abb. 5.19 e). Der Beginn des Spannungsanstiegs wird als Nullpunkt festgelegt.

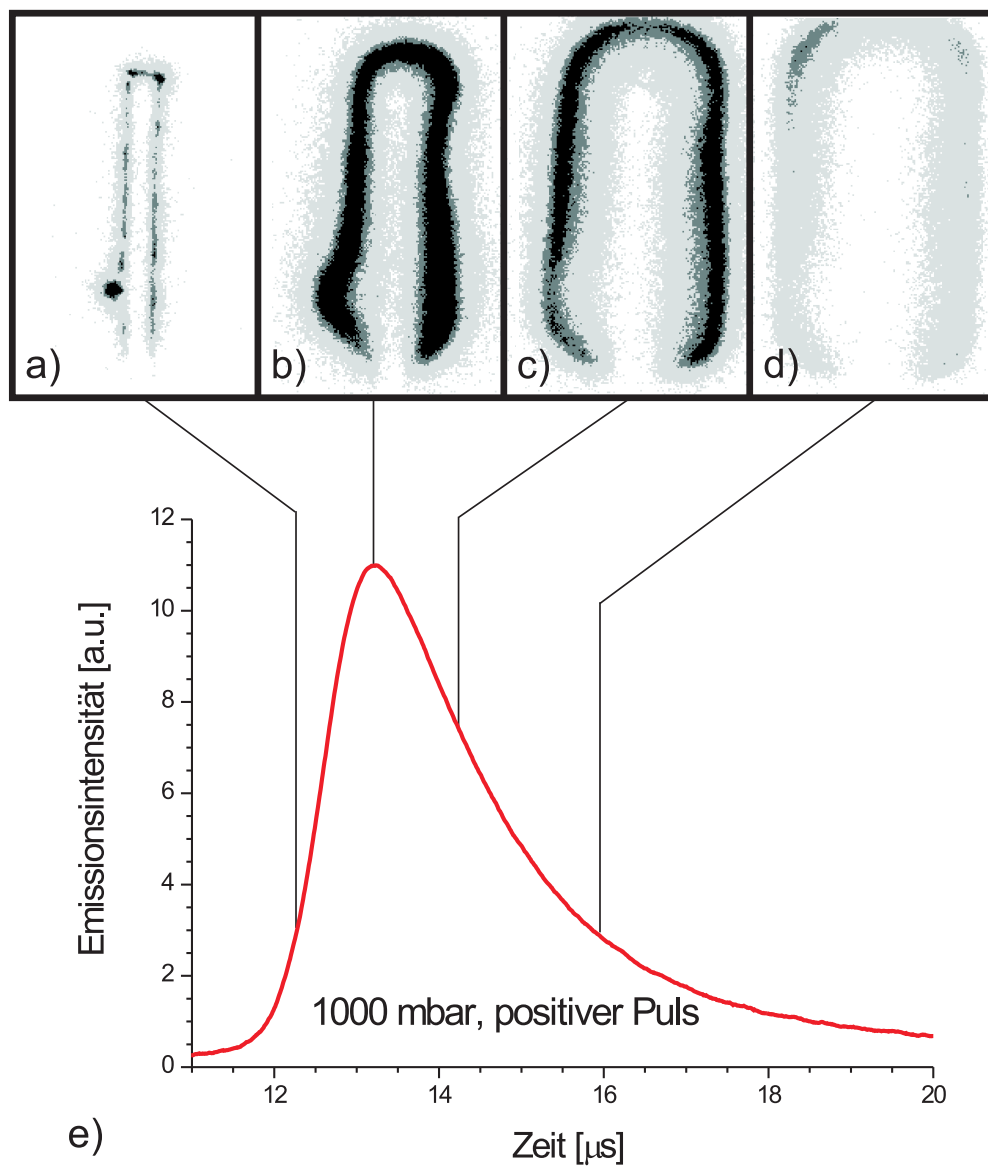


Abbildung 5.19: Die Zeitentwicklung der SBD in Helium bei positivem Spannungsanstieg für 1 bar. Die Belichtungszeit beträgt 100 ns. Die Anregungsfrequenz liegt bei 8 kHz und die Amplitude bei 514 V

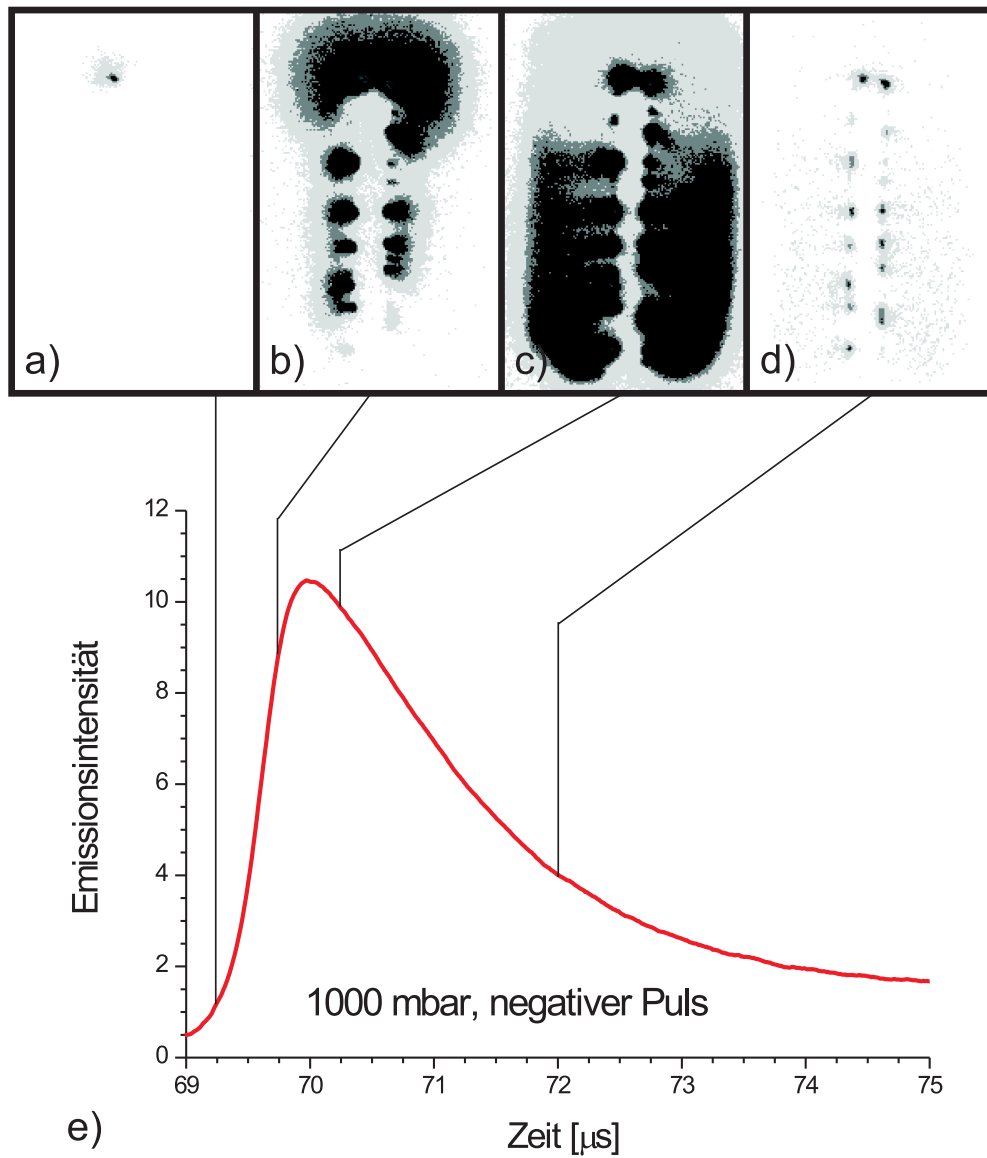


Abbildung 5.20: Die Zeitentwicklung der SBD in Helium bei negativem Spannungsanstieg für 1 bar. Die Belichtungszeit ist 100 ns. Die Anregungsfrequenz beträgt 8 kHz und die Amplitude 514 V

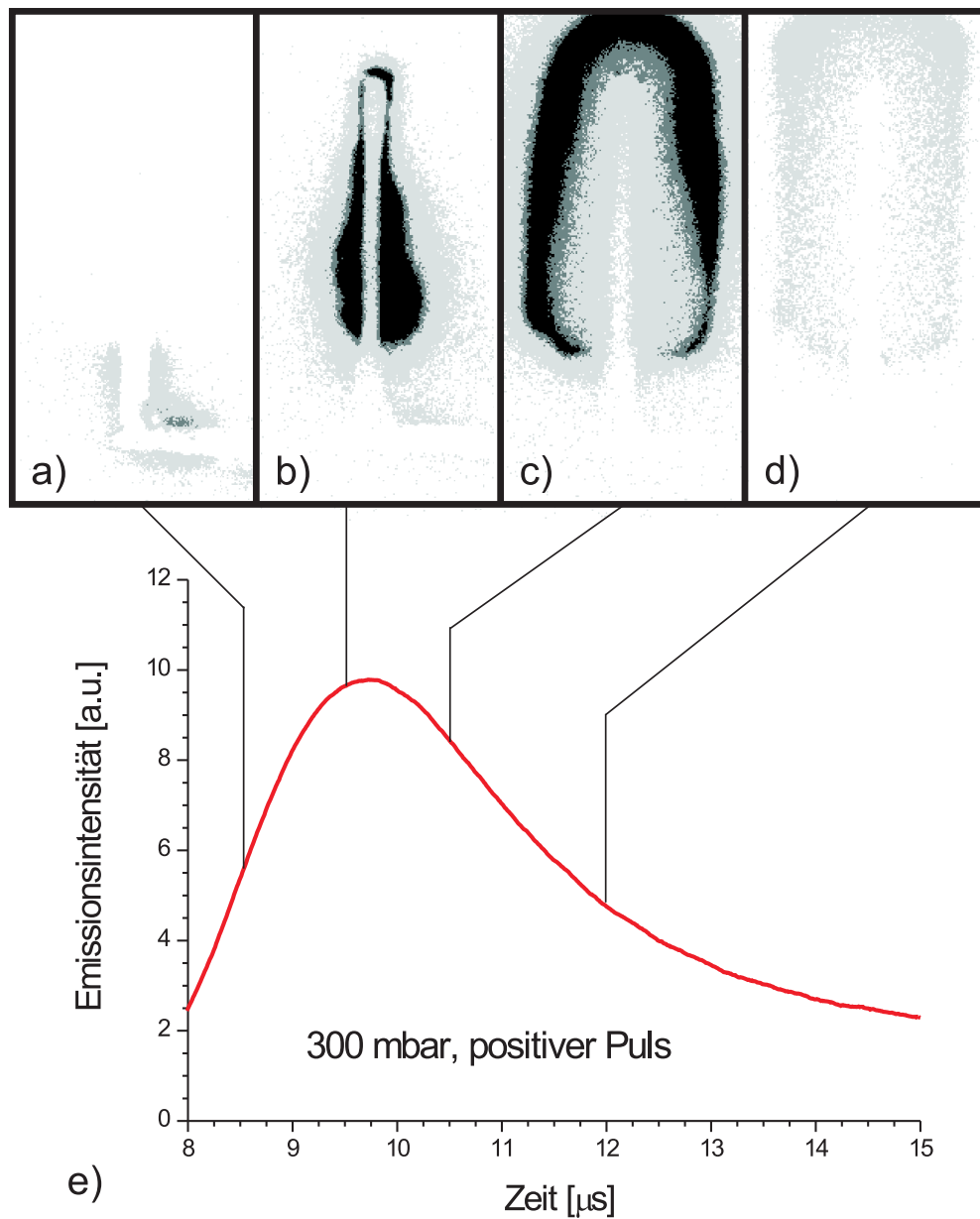


Abbildung 5.21: Die Zeitentwicklung der SBD in Helium bei positivem Spannungsanstieg für 300 mbar. Die Belichtungszeit ist 100 ns. Die Anregungsfrequenz beträgt 8 kHz und die Amplitude 340 V

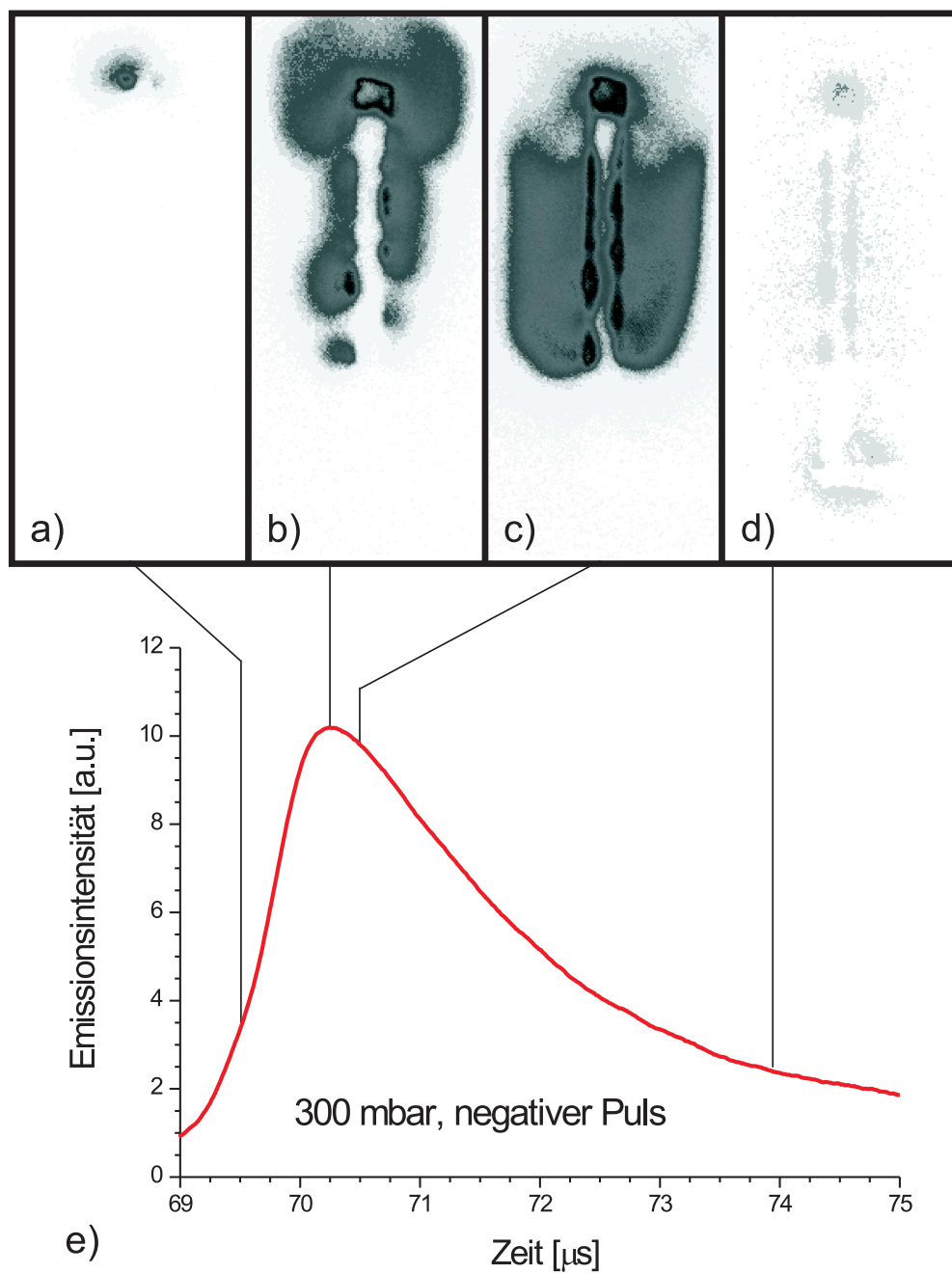


Abbildung 5.22: Die Zeitentwicklung der SBD in Helium bei negativem Spannungsanstieg für 300 mbar. Die Belichtungszeit ist 100 ns. Die Anregungsfrequenz beträgt 8 kHz und die Amplitude 340 V

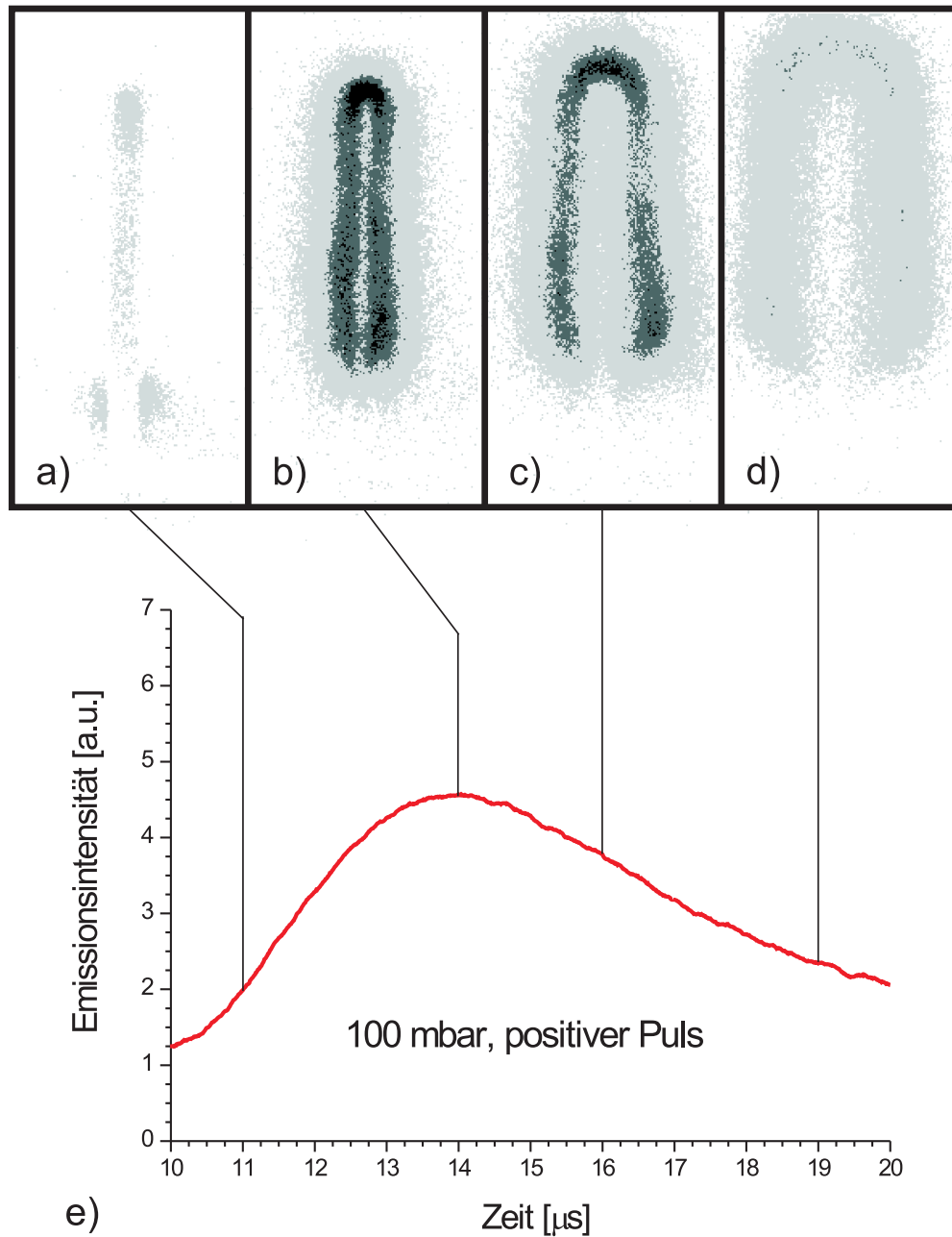


Abbildung 5.23: Die Zeitentwicklung der SBD in Helium bei positivem Spannungsanstieg für 100 mbar. Die Belichtungszeit ist 100 ns. Die Anregungsfrequenz beträgt 8 kHz und die Amplitude 270 V

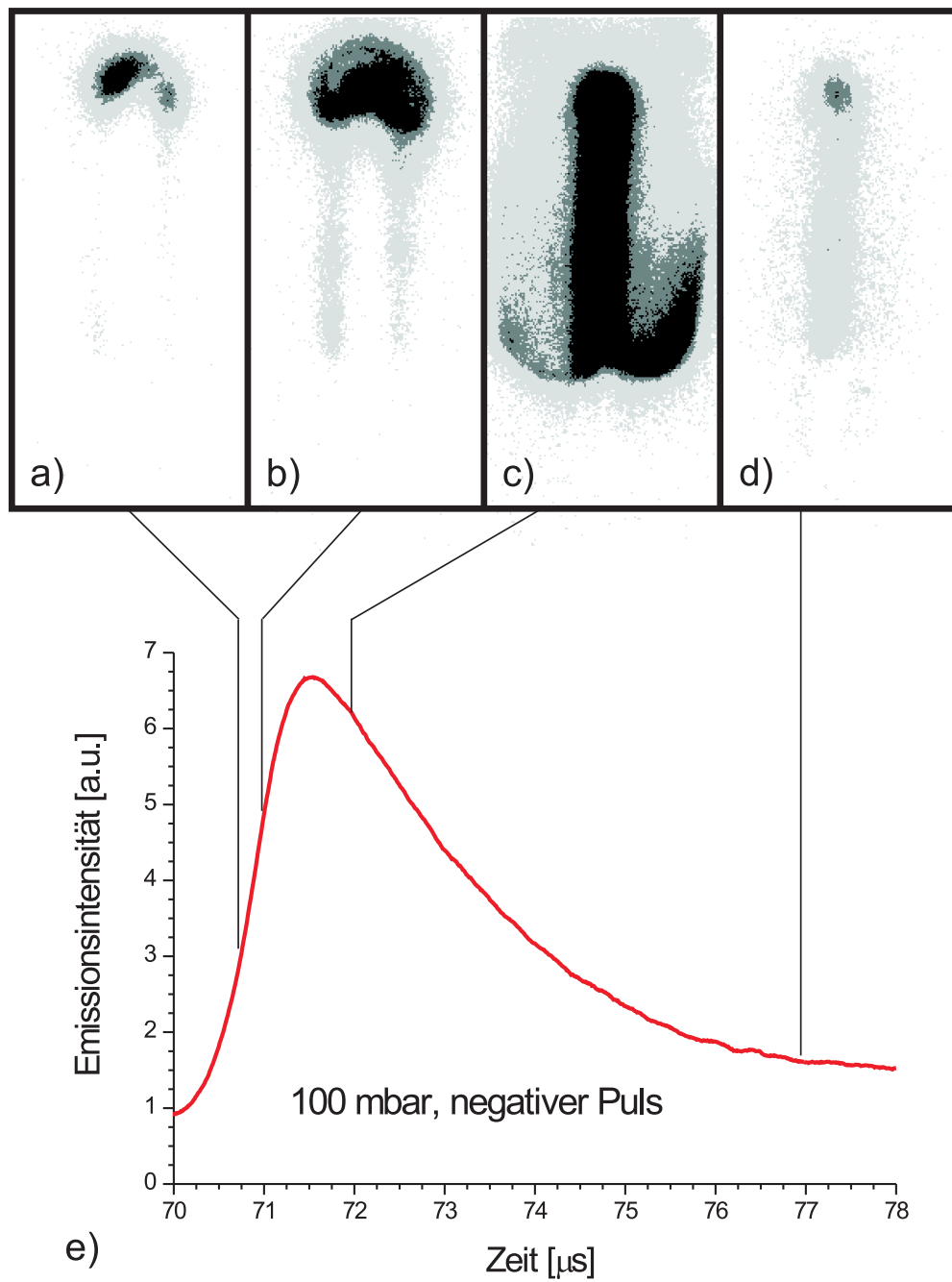


Abbildung 5.24: Die Zeitentwicklung der SBD in Helium bei negativem Spannungsanstieg für 100 mbar. Die Belichtungszeit ist 100 ns. Die Anregungsfrequenz beträgt 8 kHz und die Amplitude 270 V

5.5.2.1 Positiver Puls

In Abb. 5.19 und Abb. 5.20 werden die Zeitentwicklungen der Oberflächenentladung während der positiven und negativen Flanke des Spannungspulses unter Atmosphärendruck gezeigt. Die Entladung entwickelt sich während des positiven Pulses relativ gleichförmig entlang des gesamten Randes der Entladungselektrode (siehe Abb. 5.19 a).

An denjenigen Stellen der Elektrodenkante, an denen eine Erhöhung des elektrischen Feldes auftritt (z.B. an den Ecken oder an den Spitzen) entstehen Punkte mit höherer Entladungsintensität. Die Entladung breitet sich vom Elektrodenrand über die Oberfläche des Dielektrikums aus (siehe Abb. 5.19 b und c). Kurz bevor die Lichtemission das Maximum erreicht (Abb. 5.19 e), trennt sich die Entladung vom Elektrodenrand und setzt ihre Bewegung fort, wobei sie die Form der Umrisslinie der Elektrode behält. Diese bewegliche 1 mm breite Entladungszone löst sich auf, wenn sie den Rand der Induktionselektrode erreicht (Abb. 5.19 d).

Ähnlich wie in luftbetriebenen SBD [114] startet die Zündung der in Helium betriebenen SBD an der Drei-Materialien-Stelle, wo das elektrische Feld am stärksten ist. Wenn die Entladungselektrode positiv polarisiert ist, werden die Elektronen vom elektrischen Feld zur Entladungselektrode beschleunigt, wobei sie mit den Helium-Atomen wechselwirken und UV-Strahlung sowie Ionisation hervorrufen. Die UV-Strahlung fördert die Ausbreitung der Entladung entgegen der Richtung der Elektronenbewegung. Die durch die Elektronenstoßionisation erzeugten Ionen erreichen die dielektrische Oberfläche und verursachen Sekundärelektronenemission. Die zur dielektrischen Oberfläche fließenden Ionen und die zur Entladungselektrode fließenden Elektronen stellen einen Stromfluss her, der als Blindstrom durch die dielektrische Platte zur Induktionselektrode weiterfließt. Dieser Strom ist in dem geschlossenen Stromkreis der Hochspannungsversorgung messbar.

Die Lichtemission tritt nur in der Zone des stärksten elektrischen Feldes auf. Wegen seiner hohen elektrischen Leitfähigkeit hat das Plasma ein Potential, welches nahe am Potential der Entladungselektrode liegt. Die gesamte Entladungsspannung fällt zwischen diesem Plasma und der unter dem Plasma liegenden dielektrischen Oberfläche ab, die die Rolle der Kathode spielt. Demzufolge findet hier eine kräftige Beschleunigung der Elektronen statt und es treten die häufigsten Anregungsprozesse sowie die stärkste Lichtemission auf. Wegen des Ionenstromflusses aus dem Plasma lädt sich die dielektrische Oberfläche auf bis ihr Potential fast das Plasmapotential erreicht. Nur eine relativ geringe elektrische Ladung kann pro Flächeneinheit angelagert werden [62].

Dieser Umstand zwingt das Plasma, sich über die noch ungeladene keramische Fläche auszubreiten. Über den dielektrischen Zonen, deren Potential nahe am Plasmapotential liegt, klingt die Entladung ab. Dieser Vorgang ermöglicht die Ausbreitung der „Aufladungswelle“, die erst über dem Rand der Induktionselektrode endet, wenn die gesamte vorhandene dielektrische Oberfläche aufgeladen ist.

5.5.2.2 Negativer Puls

Einem ganz anderen Weg folgt der Entladungsverlauf während des negativen Spannungspulses (siehe Abb. 5.20). Die Entladung zündet zuerst nur an den beiden Ecken der Elektrode, wie es in Abb. 5.20 a) zu sehen ist, und erreicht hier eine sehr hohe Intensität.

Anschließend wachsen diese Entladungszonen über die dielektrische Oberfläche hinaus. Entlang des Elektrodenrandes entstehen in dieser Zeit kleine Entladungspunkte. Dieser Prozess kann in Abb. 5.20 b) beobachtet werden. Die Entladungszone breitet sich über die dielektrische Fläche aus, die dem Umriss der Induktionselektrode entspricht. Diese Ausbreitung findet von der Spitze bis zum Fuss der Entladungselektrode statt. Diesen Übergang spiegeln Abb. 5.20 b) und Abb. 5.20 c) wider. Schließlich erlischt die Entladung allmählich, ebenfalls anfangend von der Spitze und endend am Fuss der Entladungselektrode (siehe Abb. 5.20 d).

Die Hauptursache des unterschiedlichen Verlaufes der SBD innerhalb des negativen Pulses im Vergleich mit dem positiven Puls besteht darin, dass die metallische Elektrode als Katode und die dielektrische Oberfläche als Anode wirken. Demzufolge findet der größte Spannungsabfall gerade am Elektrodenrand statt. Die Ionenstromdichte ist sehr hoch an den Elektrodenstellen, an denen die elektrischen Felder maximal sind. Wegen der Sekundärelektronenemission steigt die Plasmadichte an der metallischen Oberfläche sehr stark an.

Die Dichte des zur Entladungselektrode fließenden Ionenstromes erreicht viel größere Werte als während des Stromflusses zur dielektrischen Oberfläche bei Gegenpolarisierung. Die Ursache dafür liegt in der sehr schwachen Leitfähigkeit der Keramikoberfläche und in der begrenzten Menge der Ladungen, die auf dieser Fläche abgelagert werden können. Ähnlich wie beim positiven Puls wird die dielektrische Oberfläche von Ladungen „beflutet“, bis die gesamte elektrische Kapazität zwischen der Keramikoberfläche und der Induktionselektrode aufgeladen ist. Die Verbreitung der von den Elektronen „überfluteten“ Fläche führt zum Potentialanstieg an der Elektrodenkante. Die zunehmende Fläche des Plasmas erhöht den effektiven Plasmawiderstand.

Infolgedessen wird die Spannung zwischen der Elektrode und der nicht vom Plasma bedeckten Oberfläche ausreichend groß, um die Entladung auch an den Teilen der Elektrodenkante mit schwächeren elektrischen Feldern zu zünden. Aus diesem Grund treten mehrere Entladungspunkte entlang der gesamten Länge der Entladungselektrodenkante auf. In diesen Punkten werden weitere Elektronen erzeugt, die die benachbarte Keramikfläche „befluten“. Da die Ausbreitung des Plasmas etwas früher an den Ecken startet, hört sie dort auch früher auf, genau in dem Moment, an dem die „Entladungswelle“ die Kante der Induktionselektrode erreicht.

Bemerkenswert sind die zur vollständigen „Beflutung“ der Keramikfläche notwendigen Zeiten. Sie betragen $6 \mu\text{s}$ für den positiven und $1,5 \mu\text{s}$ für den negativen Spannungspuls. Nach dieser kurzen Zeit stabilisieren sich sehr intensive Entladungspunkte am Elektrodenrand (siehe Abb. 5.20 d).

Die negativ vorgespannte Entladungselektrode zieht die Ionen an, die dann Sekundärelektronenemission hervorrufen. Die Elektronen fließen vorzugsweise zu den Elektrodenstellen, an denen das elektrische Feld maximal ist. Im Gegensatz zur Elektronenstromemission von der dielektrischen Oberfläche, die eine begrenzte Ladungsaufnahmefähigkeit hat, gibt es bei der metallischen Elektrode keine solche Limitierung.

5.5.2.3 Einfluss des Druckes

Eine ähnliche Entladungsentwicklung kann man auch bei niedrigem Druck beobachten. Die Entladungsmuster, die sich innerhalb des positiven und negativen Pulses bei 300 mbar entwi-

ckeln, sind in Abb. 5.21 bzw. Abb. 5.22 gezeigt. Der Hauptunterschied im Vergleich mit den Mustern für 1000 mbar besteht in der Intensität der Entladungspunkte, die etwas geringer ist. Sie verwischen, verfließen ineinander und breiten sich über die Entladungselektrode aus. Als Folge werden auch die Lichtzonen über der Keramikfläche unscharf.

Ein anderes Merkmal sind die parasitären Entladungszonen, die an beiden Seiten des nicht mit der Induktionselektrode überlappenden Bereiches der Entladungselektrode auftreten (siehe Abb. 5.21 a und Abb. 5.22 d).

Bei 100 mbar werden die Unterschiede zu den bei 1000 mbar gebildeten Entladungsstrukturen noch stärker erkennbar als bei 300 mbar. Die Muster werden noch unschärfer. Die Entladungsentwicklung während des positiven und des negativen Pulses wird in Abb. 5.23 und Abb. 5.24 gezeigt. Im Gegensatz zu den Profilen der Lichtemission für 1000 mbar und 300 mbar, die symmetrischen Werte während des negativen und des positiven Spannungspulses aufweisen, wird für 100 mbar eine viel stärkere Lichtemissionsintensität innerhalb des negativen Spannungspulses gemessen (siehe Abb. 5.24 e bzw. Abb. 5.23 e). Der Bereich mit der höchsten Plasmadichte ist über der Entladungselektrode zu sehen (siehe Abb. 5.24 c). Diese Erscheinung wird erklärt durch die Tatsache, dass das Maximum der Plasmadichte nur über der Entladungselektrode entsteht, wie schon aus der Betrachtung der ICCD-Aufnahmen bekannt ist.

5.5.3 Zeitaufgelöste Absorptionsmessungen

5.5.3.1 Asymmetrie der katodischen und anodischen Halbperiode

Bei Niederdruck ist es möglich zeitaufgelöste Messungen der Absorption durchzuführen. Die horizontale Verteilung des maximalen Absorptionssignales wird für den Übergang $2^3S \rightarrow 3^3P$ mit $\lambda = 388$ nm für die anodische und katodische Halbperiode in Abb. 5.25 dargestellt.

Man kann beobachten, dass innerhalb der katodischen Halbperiode der Spannungsanregung die Absorption über der Entladungselektrode deutlich höher ist. Umgekehrt ist die Situation am Rand der Entladung, wo die Absorption während der anodischen Halbperiode höhere Werte annimmt. Dieses Verhalten lässt sich mit einem Rollentausch der Entladungselektrode und der dielektrischen Oberfläche für die Entladung bei Änderung des Spannungsvorzeichens erklären. Bei 50 mbar ist die Entladung über der Katode stärker als über der Anode (siehe die entsprechenden Lichtemissionsmuster). Demzufolge tritt die höchste Absorption bzw. die höchste Metastabilenkonzentration über der Oberfläche der momentanen Katode auf.

Ein qualitativ ähnliches Verhalten zeigen die Absorptionsprofile bei 100 mbar. Als Unterschied gilt jedoch die größere Differenz zwischen den Absorptionsmaxima in beiden Halbperioden (eine Variation von 62% statt 20%).

5.5.3.2 Vergleich zwischen verschiedenen Absorptionslinien

Die Lichtabsorption des Helium-Plasmas für die Wellenlängen 388 nm und 667 nm wird als Funktion der Zeit in Abb. 5.26 dargestellt. Die Entladung wurde in diesem Fall von einem symmetrischen rechteckigen Spannungspuls von ± 280 V und bei einem Druck von 50 mbar

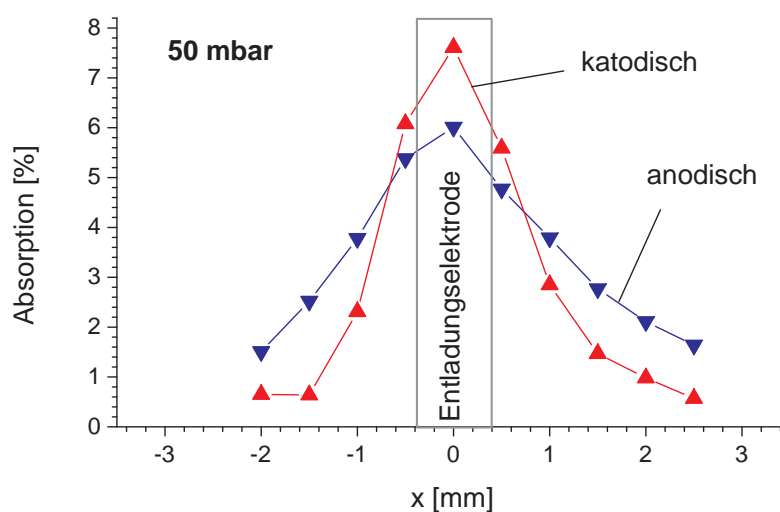


Abbildung 5.25: Horizontale Verteilung des Absorptionssignals bei 50 mbar und bei einer Amplitude des Spannungspulses von 280 V

betrieben. Die Absorption wird in beiden Fällen über der Entladungselektrode an der Stelle des maximalen elektrischen Feldes gemessen. Die beiden Kurven unterscheiden sich in zwei wesentlichen Punkten voneinander. Erstens ist die Abklingzeit des bei 667 nm gemessenen Signals um etwa 30% kleiner als bei 388 nm. Zweitens besteht ein Unterschied zwischen der Absorption innerhalb der anodischen und der katodischen Halbperiode. Dieser Unterschied ist für das Absorptionssignal bei 667 nm größer als bei 388 nm.

Die Gründe für das schnellere Abklingen des 667 nm Absorptionssignals sind die grundsätzlich unterschiedlichen Anregungs- und Abregungsmechanismen der unteren Niveaus, von denen aus die Absorptionsprozesse starten (siehe Abb. 5.27). Der wichtigste Grund bleibt aber die durch die quantsche Auswahlregel erlaubte optische Abregung des (2^1P)-Niveaus zum Grundzustand, im Gegensatz zum metastabil angeregten 2^3S -Zustand, dessen Abregung zum Grundzustand verboten ist.

Die Differenz zwischen den Durchmessern der 667 nm und 388 nm Laserstrahlen kann die Ursache für den größeren Unterschied zwischen den Absorptionssignalen in beiden Halbperioden sein (siehe Abschnitt 5.3). Da der 667 nm Laserstrahl dünner als der für 388 nm ist, reagiert das Absorptionssignal empfindlicher auf die Variationen der Konzentration des 2^1P Zustandes.

Der für die Untersuchung des 388 nm Übergangs benutzte Laserstrahl hat einen größeren Durchmesser und demzufolge wird ein gemittelter Wert der Metastabilenkonzentration über der Entladungselektrode und über der Keramikfläche gemessen.

Der Unterschied zwischen den Absorptionssignalen des katodischen und anodischen Halbzyklus für den Übergang bei 667 nm wird über der Entladungselektrode für einen breiten Druckbereich gemessen. In Abb. 5.28 wird die aus dem maximalen Absorptionssignal des 667 nm Laserstrahls bestimmte Konzentration der Atome, die sich im angeregten Zustand 2^1P° befinden, gezeigt. Für die Berechnung der Konzentrationswerte werden die geometrischen Korrekturfaktoren in diesem Fall nicht berücksichtigt.

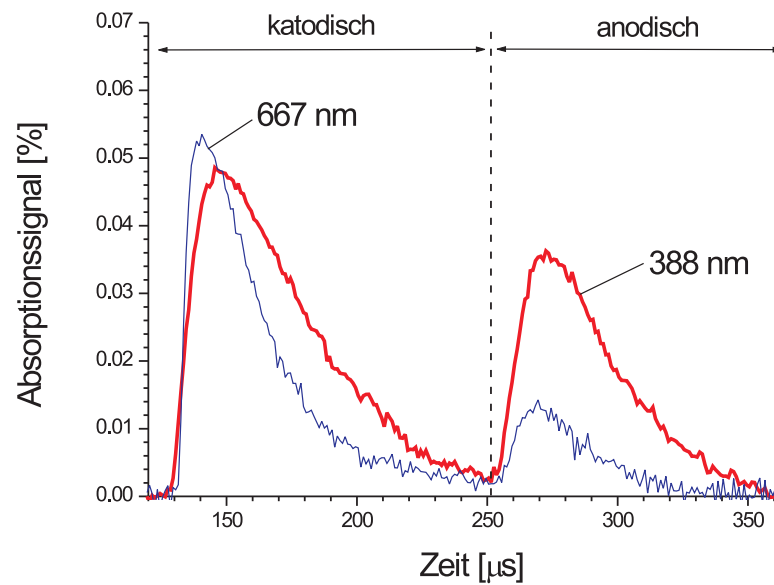


Abbildung 5.26: Der Vergleich des Absorptionssignals für die Linien bei 388 nm und 667 nm. Die über der Entladungselektrode gemessenen Werte werden bei 50 mbar für eine Amplitude des Spannungspulses von 280 V und eine Frequenz von 4 kHz aufgenommen

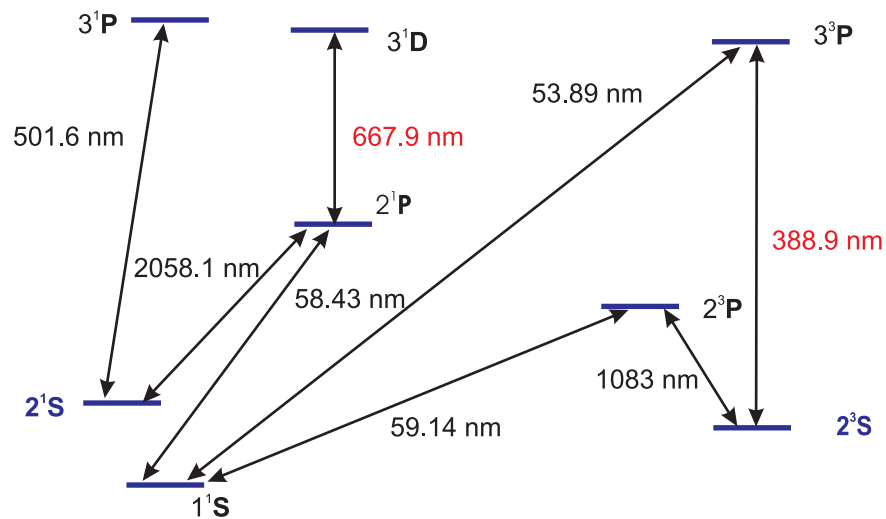


Abbildung 5.27: Ausschnitt aus dem Grotrian-Diagramm (siehe Anhang B) für atomares Helium

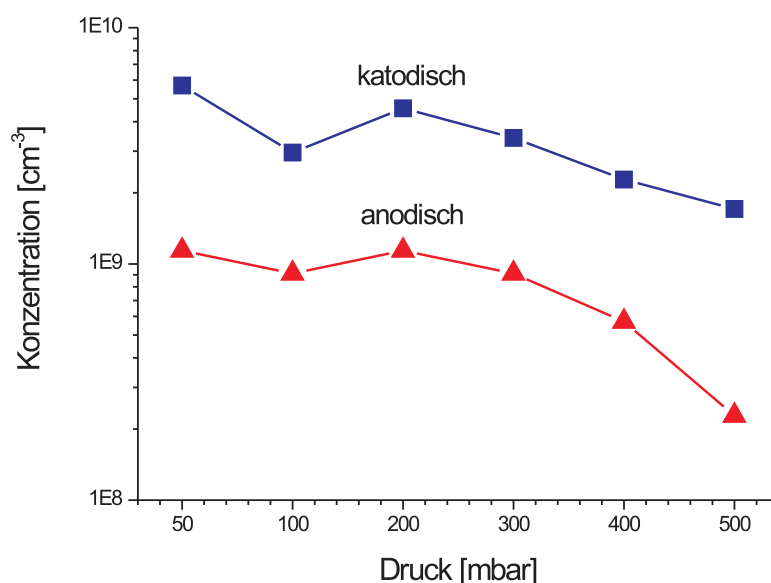


Abbildung 5.28: Druckabhängigkeit der Konzentration der He-Atome im angeregten Zustand 2^1P während der katodischen und anodischen Halbperiode bei einer Amplitude des Spannungspulses von 280 V

5.5.4 Sinusanregung

Die sinusförmige Resonanzanregung wird häufig aufgrund ihrer einfachen, effektiven und preiswerten Erzeugung für die industriellen DBD-Quellen verwendet [147]. In Abb. 5.29 wird die gesamte Lichtemission der mit einem solchen Signal angeregten SBD gezeigt. Für 100 und 300 mbar treten die Emissionsmaxima in den katodischen und anodischen Halbperioden auf. Die Emission wird stärker während der katodischen Halbperiode bei 100 mbar und während der anodischen Halbperiode bei 300 mbar.

Wenn der Druck 300 mbar übersteigt, ist ein starkes Licht nur innerhalb der anodischen Halbperiode vorhanden. Die maximale Emissionsintensität lässt in diesem Bereich ($p > 300$ mbar) mit dem Druck nach. Die für das Erreichen der maximalen Emission erforderliche Zeit wächst wegen der abnehmenden Beweglichkeit der Spezies mit zunehmendem Druck an. Die relative Variation der Emissionsintensität verringert sich mit abnehmendem Druck, da die zunehmende Abklingzeit der Metastabilen (siehe Abb. 5.18) das vollständige Erlöschen der Entladung verhindert.

5.6 Entladungsstruktur der CBD

Die Zufälligkeit bei der Ausbildung der Entladungsmuster wird bei der in Abschnitt 3 beschriebenen CBD-Struktur in He+N₂-Gasmischungen untersucht. Die Teilentladungen verursachen die Stromspitzen und die entsprechenden Erscheinungen in der Entladung.

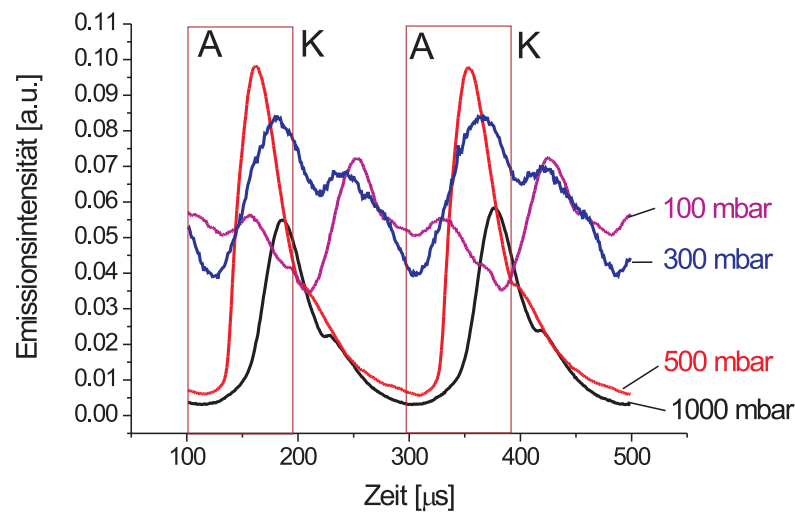


Abbildung 5.29: Intensität der Lichtemission der mit einer sinusförmigen Spannung betriebenen He-SBD ($U = 500 \text{ V}$, $\nu = 5 \text{ kHz}$) als Funktion der Zeit für Drücke zwischen 100 mbar und 1000 mbar. A und K bezeichnen die anodische und katodische Halbperiode des Anregungssignals

Wenn die Spannung zwischen den CBD Elektroden langsam verringert wird, kann eine zeitlich und räumlich stabile Zone mit Teilentladungen erzeugt werden. Die Aufnahmen solcher Zonen und die entsprechenden Strom- und Spannungsverläufe sind in Abb. 5.30 für die 50% He+50% N₂ und in Abb. 5.31 für die 80% He+20% N₂ Gasmischungen gezeigt.

Die durch eine Teilentladung transportierte Ladung kann mittels Integration des Elektrodenstromes bestimmt werden, nachdem der Blindstrom subtrahiert wird. Diese Ladungsmengen haben für die anodischen und katodischen Halbzyklen ähnliche Werte: 5,5 nC, bzw. 6,9 nC. Die abgelagerte Oberflächenladung begünstigt die Zündung der Entladung für den nachfolgenden Spannungs-Halbzyklus auf der gleichen Stelle. Die Formen dieser Leuchtzonen und die entsprechenden Stromsignale hängen stark von der Gasmischung ab. Beim Betrieb in Gasmischungen mit weniger als 5% Stickstoff kann eine elementare H-förmige Zone beobachtet werden, die schematisch in Abb. 5.32 a dargestellt ist. Der mit einem Pfeil gezeigte Strom fließt vom positiv zum negativ aufgeladenen Bereich (siehe Abb. 5.32 b und c).

Die aufgeladenen Zonen breiten sich entlang der Elektrodenstreifen aus. Für 5% bis 20% Stickstoffgehalt können sich ausgedehnte Cluster von H-Strukturen bilden, die senkrecht zu den Elektrodenstreifen verlaufen. Die Entstehung von zwei bzw. vier solcher Cluster bei 20% bzw. 10% Stickstoffgehalt und die entsprechenden Strom- und Spannungsverläufe werden in Abb. 5.33 und Abb. 5.34 gezeigt. Die Zahl der Stromspitzen in jedem Halbzyklus hängt nicht von der Zahl der H-förmigen Zonen, sondern von der Zahl der Cluster ab. Der Erzeugungsmechanismus des Clusters für diesen Fall wird in Abb. 5.32 illustriert. Die positiven und negativen Oberflächenladungen der an den benachbarten Streifen entstehenden H-Strukturen ziehen sich an und gehen schließlich ineinander über. Dies ruft einen synchronisierten Stromfluss hervor. Die durch eine Teilentladung transportierte Ladung ist zur Zahl der elementaren H-Strukturen im entsprechenden Cluster proportional. Der Vergleich der Cluster mit den Teilentladungsströmen (siehe Beispiel in Abb. 5.34) zeigt, dass die Reihen-

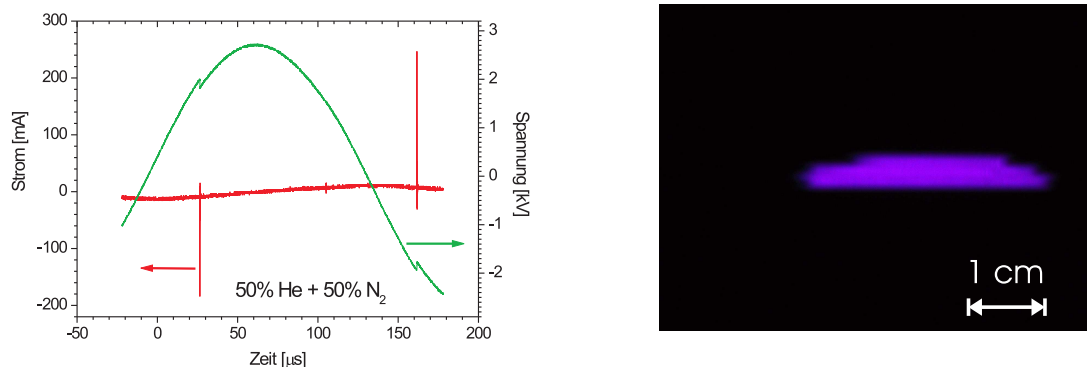


Abbildung 5.30: CBD-Photo beim Auftreten eines einzelnen Clusters in einer 50% He+50% N₂ Gasmischung und die entsprechenden Strom- und Spannungsverläufe

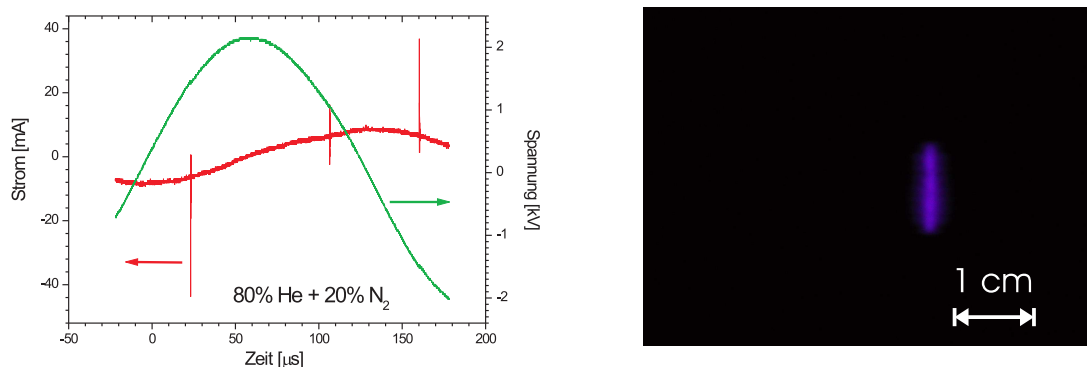


Abbildung 5.31: CBD-Photo beim Auftreten eines einzelnen Clusters in einer 80% He+20% N₂ Gasmischung und die entsprechenden Strom- und Spannungsverläufe

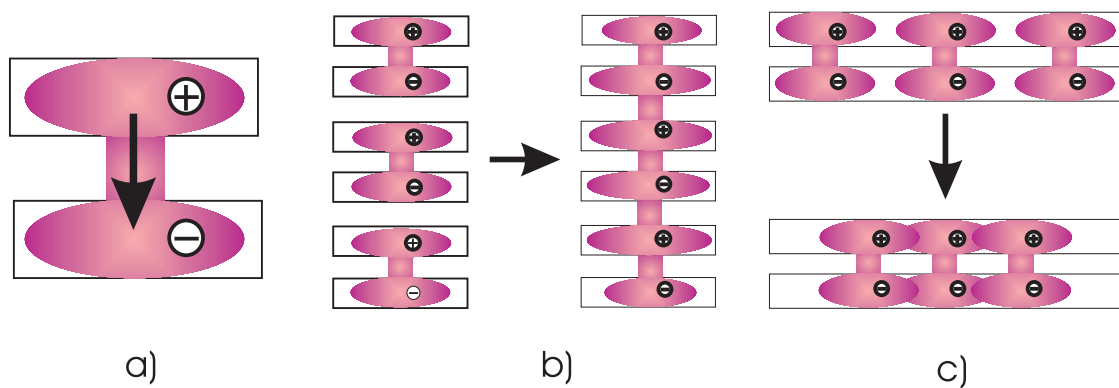


Abbildung 5.32: Cluster-Bildung für a) weniger als 5% N₂; b) von 5% N₂ bis 20% N₂; c) für mehr als 20% N₂ in einer He+N₂-Gasmischung

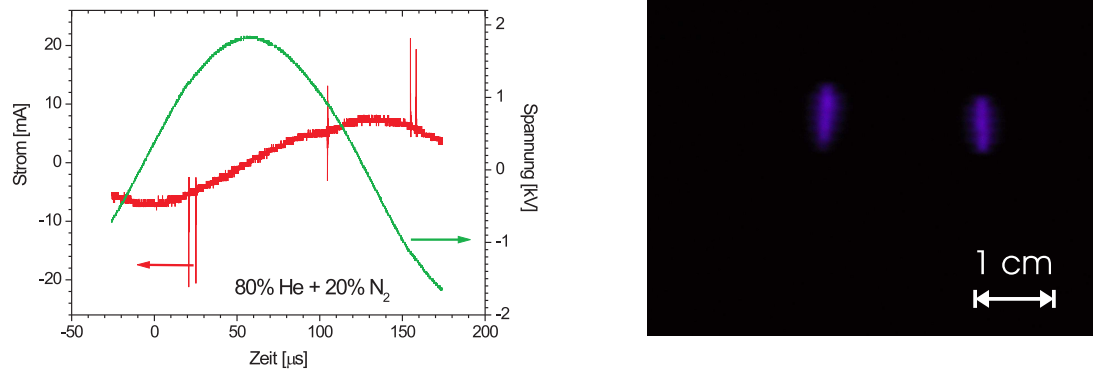


Abbildung 5.33: CBD-Photo beim Auftreten zweier Clusters in einer 80%He+20%N₂ Gasmischung und die entsprechenden Strom- und Spannungsverläufe

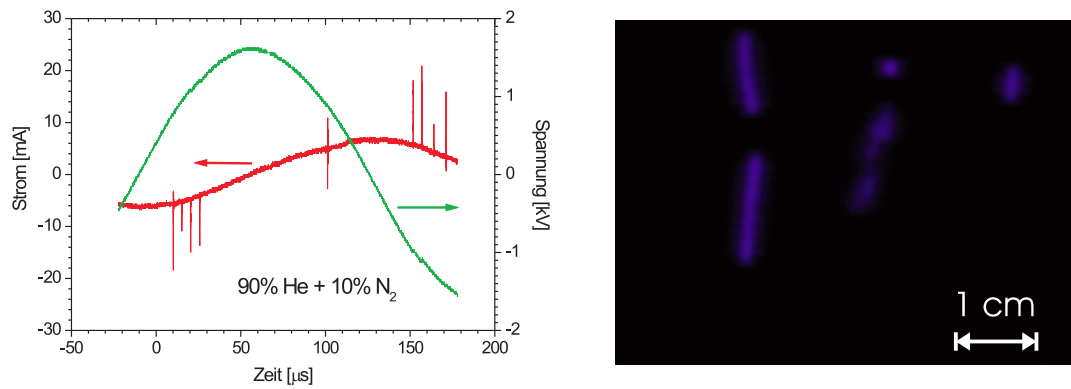


Abbildung 5.34: CBD-Photo beim Auftreten von vier Clustern in einer 90%He+10%N₂ Gasmischung und die entsprechenden Strom- und Spannungsverläufe

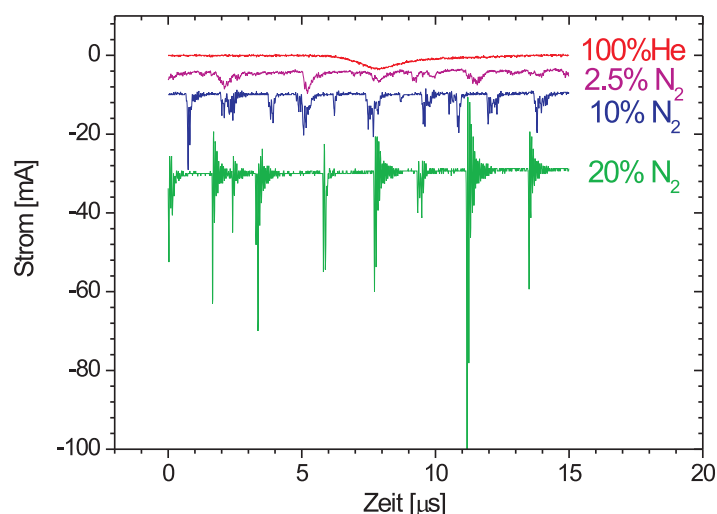


Abbildung 5.35: Vergleich der Teilentladungsströme für vier verschiedene Gas-mischungen

folge der Stromspitzen der Teilentladungen während des kathodischen Halbzyklus umgekehrt im Vergleich mit dem anodischen Halbzyklus ist. Dieser Effekt kann durch den Einfluss der Migration der Oberflächenladung erklärt werden. Die Dichte der Oberflächenladung, die innerhalb der vorherigen Teilentladung des anodischen Halbzyklus abgelagert wurde, erreicht ihren maximalen Wert und verursacht dann die frühere Zündung der Teilentladung während des katodischen Halbzyklus. Eine Erhöhung der Stickstoffkonzentration führt zur Verkürzung der Dauer einer Teilentladung und folglich zu einer kleineren Menge der innerhalb der Teilentladung transportierten Ladung (siehe Abb. 5.35). Bei mehr als 20% Stickstoff treten Änderungen des Mechanismus der Cluster-Bildung auf. In diesem Fall wachsen die Cluster entlang der benachbarten Elektrodenstreifen (siehe Photo in Abb. 5.30). Dies ist möglich, weil die während eines Halbzyklus in einer H-Struktur abgelagerte Oberflächenladung diejenige Oberflächenladung anzieht, die während des vorherigen Halbzyklus in der angrenzenden H-Struktur gespeichert wurde. Demzufolge werden die Umladungsprozesse im gesamten Cluster synchronisiert, was zu einer einzelnen Stromspitze pro Cluster führt. Auch bei derartigen Synchronisierungen der Umladungsprozesse ist die transportierte Ladung zur Größe der Cluster-Zone proportional.

Diese Ergebnisse veranschaulichen, dass die beiden untersuchten planaren Entladungsarten (SBD und CBD) stabile zeit-integrierte Erscheinungen aufweisen. Wie mit Hilfe von zeitaufgelösten ICCD-Aufnahmen für die SBD gezeigt wurde, weisen jedoch die planaren Entladungen zeitlich veränderliche Strukturen auf.

5.7 Schlussfolgerungen

Die räumlichen Entladungsstrukturen der in Helium betriebenen SBD und CBD wurden vorgestellt. Die Entwicklung dieser Strukturen ist in beiden Fällen von den Umladungsprozessen der dielektrischen Oberfläche dominiert. Eine detaillierte Analyse der Zeitentwicklung der SBD wurde durchgeführt und die vertikalen Profile der Emissionsintensität und der Metastabilenkonzentration wurden mit Hilfe der Diffusionsverluste berechnet. Eine Methode für die Bestimmung des maximalen Wertes der Metastabilenkonzentration wird vorgeschlagen. Sie bezieht die Korrekturfaktoren für die zeitliche und räumliche Verteilung der metastabil angeregten Spezies mit ein. Bei 300 mbar wurde z.B. ein Korrekturfaktor von 25 ermittelt und verwendet, um die Berechnung des lokalen Maximums der Metastabilenkonzentration in Bezug auf die Zeit und auf den gemittelten Wert des Laserstrahls zu ermöglichen. Die Abklingzeiten der Metastabilen sind viel länger als das Abklingen der Lichtemission und des Entladungsstromes. Alle Abklingzeiten sind umgekehrt proportional zum Druck.

Kapitel 6

Anwendungen

Ein besonderes großes Anwendungspotential haben die dielektrisch behinderten Entladungen. Während einer kurzen Behandlungszeit lassen sich Ergebnisse erzielen, die vergleichbar mit den Ergebnissen einer aufwändigen Niederdruck-Plasmabehandlung sind. Im Weiteren sind Anwendungen dargestellt, die in ihrer physikalischen und chemischen Beschaffenheit (Metalloberfläche, Kunststoff, Naturgewebe) und in ihren Anregungstypen (Volumen-DBD und planaren-DBD) sehr verschieden sind. In allen drei Fällen lassen sich gute Ergebnisse für die Behandlung planarer Oberflächen vorweisen.

6.1 Oberflächenbehandlung von Metallen

Die Benetzbarkeit von Oberflächen ist in zahlreichen industriellen Fügeverfahren, wie Löten und Kleben, in der Beschichtungs- und Drucktechnologie und in vielen anderen Bereichen sehr wichtig. Es wird im Allgemeinen akzeptiert, dass gute Benetzbarkeit eine grundlegende Anforderung ist, um sicherzugehen, dass wasserbasierte Farben, Schichten und Kleber richtig an Metalloberflächen haften [141]. Seit vielen Jahren werden solche Eigenschaften vom galvanisierten Chrom, wie hohe Härte und Korrosionsbeständigkeit, niedriger Reibungskoeffizient und niedrige Adhäsion in den verschiedenen industriellen Anwendungen benutzt. Dennoch gibt es noch Beschränkungen hauptsächlich wegen der während des Galvanisierens entstehenden Mikrorisse, die die Abnutzung und die Korrosionsbeständigkeit [97] verringern. Um diese Nachteile zu beseitigen, sind Farben oder Schichten im Einsatz, welche korrosionsbeständige Filme auf der Chromoberfläche bilden. Jedoch bleiben derartige Beschichtungsprozesse wegen der niedrigen Oberflächenenergie von Chromoxid technisch schwierig. Die gängigen Methoden zur Verbesserung der Benetzbarkeits- und Adhäsionseigenschaften der Materialien sind die mechanischen Behandlungen, Flammenbehandlungen, das chemische Ätzen und die Plasmabehandlungen [94, 108, 26, 6]. Die Plasmabehandlung mit Hilfe einer dielektrisch behinderten Entladung (auch „industrielle Koronaentladung“ genannt) in der umgebenden Luft oder in anderen Gasen und in Gasmischungen bei Atmosphärendruck [105, 117, 142] bietet eine einfache und häufig verwendete Methode zur Erhöhung der Oberflächenenergie von Polymeroberflächen. Viel seltener sind die Literaturangaben bezüglich der Anwendung dieser Methode für Metalloberflächen. In diesem Abschnitt wird der Prozess der Hydrophilierung von chromierten Platten mit einem Atmosphärendruckplasma in Luft beschrieben.

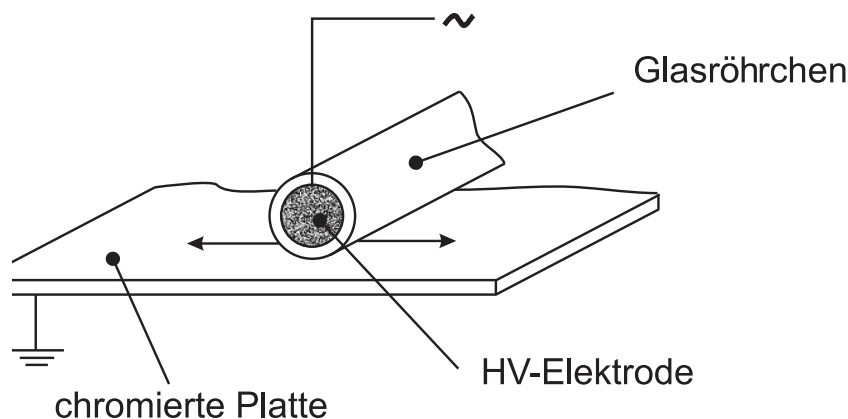


Abbildung 6.1: Experimentelle Anordnung für die Behandlung der Cr-beschichteten Platte

Das Ziel dieser Behandlung ist eine Verbesserung der Adhäsion einer wasserbasierten Schicht auf der Plattenoberfläche.

6.1.1 Die experimentelle Anordnung

Die Plasmabehandlung der chromierten Platte wird in Luft mit einer dielektrisch behinderten Volumenentladung bei Atmosphärendruck durchgeführt. Die Abb. 6.1 zeigt die experimentelle Anordnung. Die Hochspannungsversorgung wird an eine Elektrode angelegt, die aus einem mit Graphitpulver gefüllten Glasrohr (Durchmesser 12 mm, Wanddicke 1,5 mm) besteht. Die chromierte Platte (Fläche 140 cm^2) stellt die Grundelektrode dar und wird elektrisch geerdet. Das aus Filamenten zwischen dem Glasrohr und der Chromoberfläche bestehende Atmosphärendruckplasma wird für die Oberflächenbehandlung der Platte benutzt. Die obere Elektrode wird entlang der Chromplatte bewegt, um vollständig die Oberfläche zu behandeln. Ein Abstand von 1 Millimeter zwischen den Elektroden, wird während des Experimentes konstant gehalten. Typische Entladungsspannungen und Frequenzen liegen im Bereich von 2 bis 4 kV (Spitze) und von 4 bis 6 kHz. Entladungsströme von bis zu 100 mA werden gemessen. Vor der Plasmabehandlung werden die chromierten Platten mit Ultraschall in Wasser gereinigt und mit Aceton oder Hexan ausgespült. Die Behandlungszeit variiert zwischen 10 und 20 s.

Messungen des Kontaktwinkels

Zur Messung der Kontaktwinkel wurde ein Goniometersystem der Firma Krüss (G2/G40) mit rechnergestützter Konturanalyse eingesetzt. Destilliertes Wasser und Methyljodid dienen als Testflüssigkeiten für die Bestimmung des Kontaktwinkels der plasmabehandelten Oberflächen in Luft bei 25°C und 50% Feuchtigkeit. Der zu vermessende Tropfen wird mit einer Spritze auf die Probe aufgesetzt. Um kleine Tropfen wohldefinierter Größe erzeugen zu können, wird die Lage des Kolbens der Spritze durch eine Mikrometerschraube festgesetzt. Der Kontaktwinkel muss innerhalb von 5 s gemessen werden, da sich der Tropfen bereits 20 s nach dem Aufbringen in Folge der Verdunstung der Testflüssigkeit messbar verformt. Jeder in dieser Arbeit angegebene Kontaktwinkel ist der durchschnittliche Wert von mindestens 10 unterschiedlichen Punkten auf der Plattenoberfläche. Die Oberflächenenergie der

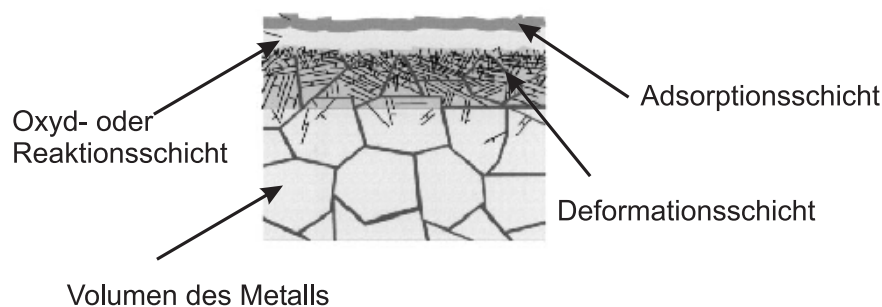


Abbildung 6.2: Struktur des oberen Bereichs einer Chromschicht

Chromplatte wird mit der Joung-Gleichung und der Gleichung des geometrischen Mittels errechnet, die durch Owens und Wendt [110] gegeben ist.

XPS Messungen

Die XPS Analysen werden mit einem Instrument der Fa. Fisons mit einer Al-Ka-Röntgenstrahlquelle (1486,6 eV) und einem Clam II Analysator durchgeführt. Die Röntgenstrahlkanone wird bei 14 kV und 200 W betrieben. Der Druck im Messraum wird im Bereich von 1×10^{-6} Pa bis 5×10^{-6} Pa gehalten. Die Gesamtspektren und die Teilspektren haben eine Elektronenenergiebandbreite (englisch „pass energy“) von 100 eV bzw. 20 eV und eine Schrittbreite (englisch „step energy“) von 1 eV bzw. 0,1 eV. Die Spektren werden auf die C 1s und Cr 2p Linien bezogen.

6.1.2 Ergebnisse

Die Struktur der Oberfläche eines Metalls [86] wird in Abb. 6.2 gezeigt. Im Allgemeinen werden nur die obersten Schichten der Metalloberfläche durch die Plasmabehandlung beeinflusst. Diese Schichten bestehen aus Adsorptions- und Oxidschichten mit einer Dicke von 0,3 bis 0,5 nm bzw. 1 bis 10 nm. Die Adsorptionsschicht kann durch Kontaktwinkelmessungen sehr gut erforscht werden, während Informationen über die Oxid- bzw. Reaktionsschicht durch Röntgen-Photoelektronen-Spektroskopie (XPS) erhalten werden können.

6.1.2.1 Kontaktwinkelmessungen

Ohne Plasmabehandlung hat die chrombeschichtete Platte einen Kontaktwinkel für Wasser von 76° und zeichnet sich durch ein verhältnismäßig hydrophobes Verhalten der Oberfläche aus. Nach 10 s Plasmabehandlung verringert sich der Wasserkontaktwinkel drastisch auf weniger als 5° . Mit destilliertem Wasser und Methyljodid als Testflüssigkeiten ist es möglich, die Oberflächenenergie der Chromplatte und ihre polaren und unpolaren (dispersiven) Anteile zu bestimmen.

Vor der Behandlung hat die Oberflächenenergie den Wert von 41 mN/m. Nach der Plasmabehandlung erhöht sich dieser Wert auf 76 mN/m.

Die Auswertung der Oberflächenenergie hat gezeigt, dass die Plasmabehandlung hauptsächlich den polaren Anteil der Chromoberflächenenergie erhöht. Während der disperse

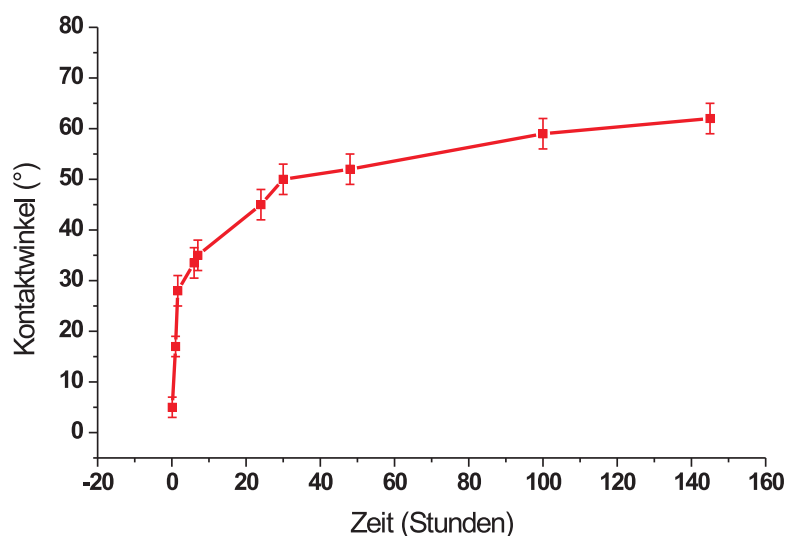


Abbildung 6.3: Der Einfluss der Lagerung auf den Kontaktwinkel für Wasser unter Umgebungsbedingungen nach der Plasmabehandlung

Anteil der Oberflächenenergie nur eine kleine Änderung nach der Plasmabehandlung zeigt, springt der polare Anteil drastisch von 7 mN/m vor der Behandlung auf 44 mN/m nach der Behandlung. Dieser Effekt zeigt, dass die Veränderung des polaren Anteils hauptsächlich zum hydrophob-hydrophilen Übergang beiträgt. Eine Zunahme der polaren Oberflächenenergie kann der Ausbildung der sauerstoffhaltigen Gruppen auf der Oberfläche zugeschrieben werden. Die Plasmabehandlung könnte mittels der aktiven Spezies, die während der Entladung und des Oxidationsprozesses gebildet werden, diese polaren Gruppen erzeugen. Wassermoleküle, die immer in der Luft anwesend sind, werden teilweise auf der Oberfläche adsorbiert. Ein Teil dieser Moleküle reagiert mit den Oberflächenoxiden und erzeugt die Hydroxylgruppen. Die weiteren Wassermoleküle haften dann über Wasserstoffbrückenbindungen viel einfacher an der Oberfläche.

Die durch die Plasmabehandlung erreichte hydrophile Eigenschaft hat keinen dauerhaften Charakter. Durch Lagerung in der Umgebungsluft tritt ein Alterungseffekt auf. Der Übergang von einer hydrophilen zu einer hydrophoben Oberflächeneigenschaft [57] dauert typischerweise mehr als 100 Stunden. Die Degradation der Benetzbarkeit als Funktion der Lagerungszeit ist in Abb. 6.3 dargestellt. Innerhalb der ersten Stunden nach der Plasmabehandlung wird eine steile Zunahme des Kontaktwinkels von einem Wert von 5° sofort nach der Behandlung bis auf 34° nach 6 Stunden beobachtet. Nach 3 bis 4 Tagen Lagerung ändert sich der Kontaktwinkel nur noch geringfügig. Nach einer Woche Lagerung der Platte in der Luft ist der Wasserkontaktwinkel immer noch kleiner als der Anfangswert.

Abb. 6.4 zeigt die zeitliche Veränderung der Oberflächenenergie nach der Plasmabehandlung. Während der disperse Anteil der Oberflächenenergie innerhalb der ersten Stunden um weniger als 5 mN/m sinkt, verringert sich der polare Anteil während der ersten 30 Stunden der Lagerung um mehr als 25 mN/m . Das weist wiederholt darauf hin, dass die Hydrophilie der Chromoxid-Oberfläche hauptsächlich mit der polaren Komponente der Oberflächenenergie zusammenhängt.

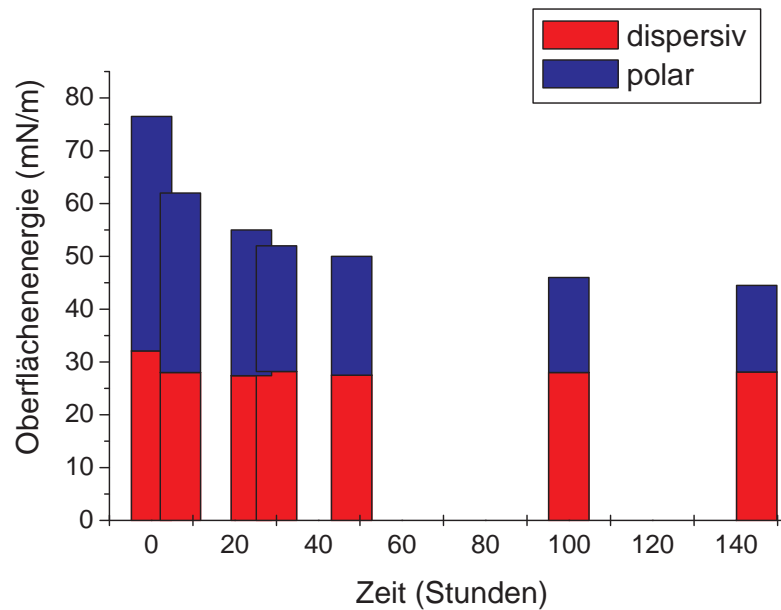


Abbildung 6.4: Die zeitliche Änderung der polaren und dispersiven Komponente der Oberflächenenergie nach der Plasmabehandlung

6.1.2.2 XPS-Analyse

Die XPS-Analyse dient der Untersuchung des Einflusses der Plasmabehandlung auf die chemische Struktur der Chromoberfläche. Abb. 6.5 zeigt die Spektren einer behandelten und einer unbehandelten Chromplatte. Eine Hauptlinie (C 1s) kann in allen Spektren beobachtet werden, deswegen werden die Intensitäten anderer in der Plasmabehandlung entstandener Linien auf die C 1s Intensität bei 284 eV bezogen. Das Spektrum a) in Abb. 6.5 wurde von der unbehandelten Chromplatte aufgenommen. Es beinhaltet die C 1s, O 1s und Cr 2p_{3/2} Linien bei 284 eV, 532 eV bzw. 577 eV. Die Präsenz einer N 1s Linie für die 10 s im Plasma behandelte Probe b) zeigt, dass während der Plasmabehandlung Stickstoff in die Chromoberfläche eingebaut wird. Zusätzlich zu der Stickstofflinie kann bei den behandelten Proben b) und c) auch beobachtet werden, dass das Verhältnis zwischen der Intensität mancher sauerstoffhaltiger Spezies und der Intensität der C 1s Linie dreimal (Probe b) bzw. viermal größer (Probe c) als in der unbehandelten Probe wird. Die Kohlenstoffverunreinigung der Oberfläche kann während des Beschichtungsprozesses der Platte stattfinden oder kann eine Folge des Kontaktes mit der umgebenden Atmosphäre sein.

Ein detailliertes, hochaufgelöstes Spektrum der Chromlinie (Cr 2p, 574 eV) ist in Abb. 6.6 zu sehen. Die Chromoxidintensitäten werden auf die Intensität der Cr 2p Linie von Cr³⁺ bei 577,4 eV [99, 88, 83, 28] normiert. Die Bindungsenergiewerte von Chrom verschieben sich zu höheren Werten, wenn Chrom mit sauerstoffhaltigen Spezies reagiert (abhängig von der Valenzelektronenverteilung). Das Verhältnis von I (Cr bei 577 eV)/I (Cr bei 574 eV) stützt auch die Annahme, dass sich die Anzahl der sauerstoffhaltigen Spezies mit der Luftplasmabehandlung erhöht. Diese Spezies tragen zur Oxidschicht bei, aber sie enthalten auch die Hydroxylgruppen, die während der Plasmabehandlung gebildet werden.

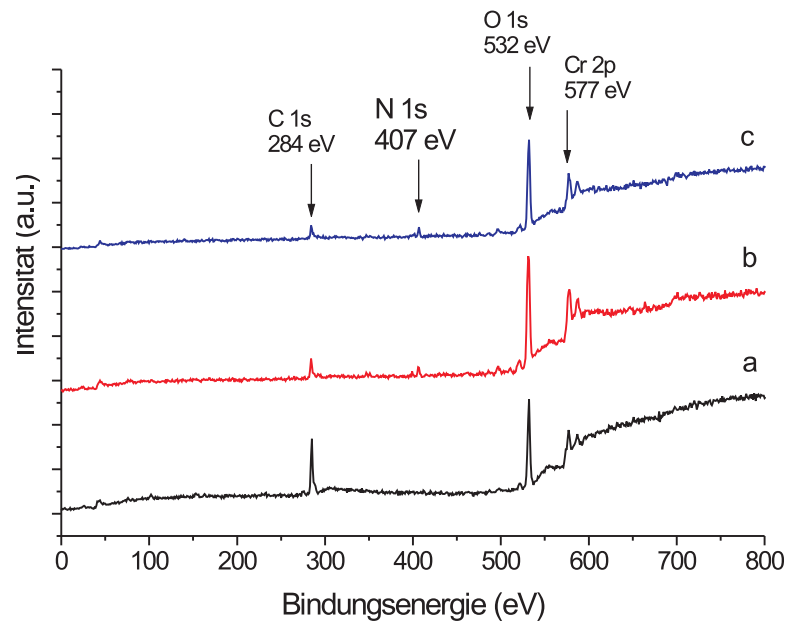


Abbildung 6.5: XPS-Gesamtspektren der a) unbehandelten, b) der 10 s in Luft behandelten und c) der 20 s in Luft behandelten Probe

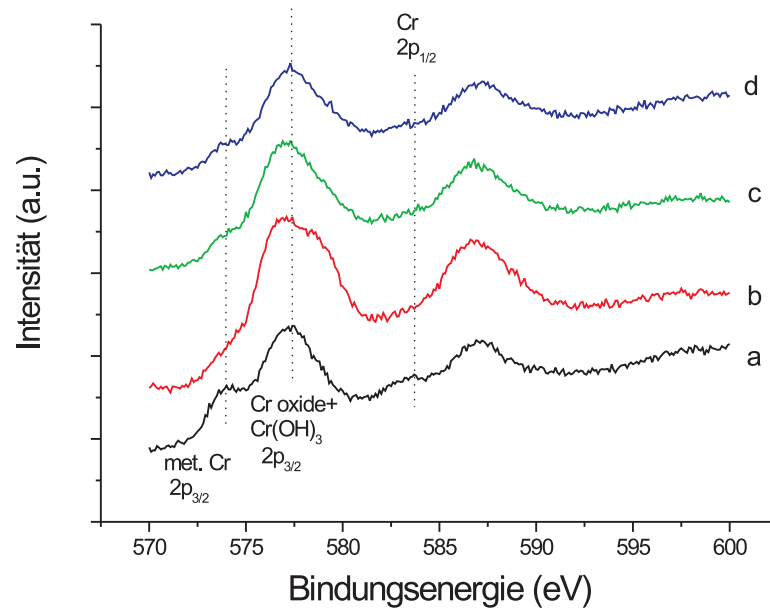


Abbildung 6.6: Cr 2p-Spektren einer a) unbehandelten, b) 10 s in Luft behandelten c) 20 s in Luft behandelten, d) behandelten und nass geriebenen Probe

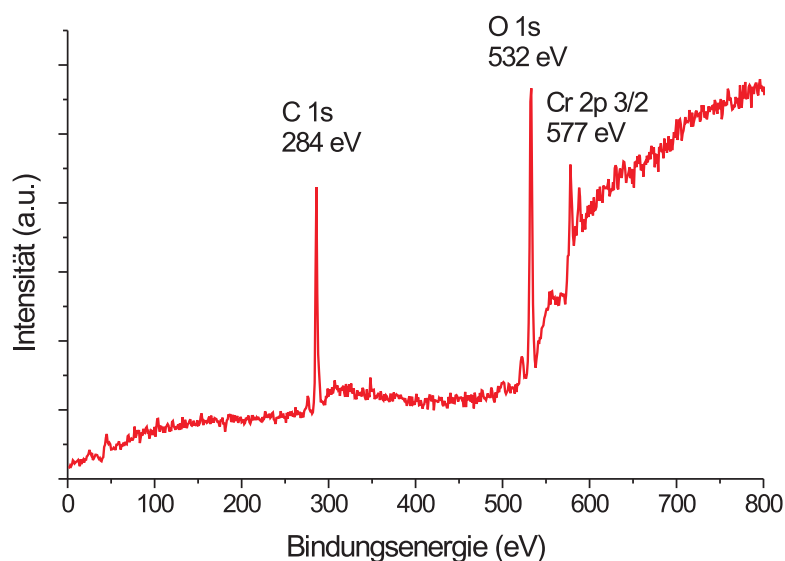


Abbildung 6.7: XPS-Gesamtspektrum einer behandelten und anschließend nass geriebenen Probe (vergleiche mit Abb. 6.5)

Diese Ergebnisse stimmen sehr gut mit den Kontaktwinkelmessungen und Oberflächenenergieberechnungen überein und zeigen, dass der für die Änderung der Oberflächenbenetzbarkeit verantwortliche Hauptfaktor der polare Anteil der Oberflächenenergie ist. Aus diesem Grund kann die Erhöhung der Oberflächenenergie mit der Zunahme der Sauerstoffkonzentration auf der Oberfläche korreliert werden.

6.1.2.3 Das nasse Reiben

Die behandelte Platte wird mit einem nassen, fusselfreien, sauberen Papier abgewischt. Dieser Prozess, der nur 10 s dauert, verwandelt die geriebene Region in eine hydrophobe Oberfläche zurück, während der Rest der Oberfläche hydrophil bleibt.

Im Vergleich zur Wiederherstellung der hydrophoben Eigenschaft, die im Fall der Lagerung in der umgebenden Luft mehr als 100 Stunden dauert, ermöglicht die Methode „des nassen Reibens“ praktisch eine sofortige Rückumwandlung in eine hydrophobe Oberfläche. In der Arbeit von Kamei et al. [64] wurde eines ähnlichen Verhalten im Fall von einem mit UV-Strahlung modifizierten monokristallinen Titanoxids berichtet. Der Verlust der Hydrophilie wurde beobachtet, wenn eine hydrophile Oberfläche einige Male mit sehr sauberen Glas- oder metallischen Stäben gerieben oder nur gepresst wurde. Dieses Resultat schließt die Möglichkeit aus, dass der Übergang von einer hydrophilen zu einer hydrophoben Oberfläche durch die hydrophoben Verunreinigungen des fusselfreien Papiers verursacht wird.

Die Abb. 6.7 zeigt das Spektrum einer nass geriebenen Chromplatte. Das Verhältnis des Oxides und des Chroms wird durch nasses Reiben verringert. Es ist möglich, dass die instabilen sauerstoffhaltigen Bindungen, die während der Plasmabehandlung gebildet werden, durch genügend hohe Abrasionsenergie leicht getrennt werden. Aus den XPS-Spektren kann

gefolgert werden, dass die Wiederherstellung der hydrophoben Eigenschaft auf einer Verminderung der sauerstoffhaltigen Spezies beruht. Zusätzlich gibt es einen „self cancelling“ Effekt, der den Einfluss dieser Spezies verringert, wenn Dipolinteraktionen mit Wasser auf der Chromoberfläche betrachtet werden.

6.1.3 Schlussbemerkung

Der Effekt des in Luft bei Atmosphärendruck erzeugten Plasmas auf chrombeschichtete Platten wurde näher untersucht. Die Plasmabehandlung verbesserte drastisch die Benetzbarkeit der Chromplatten. Dieser Prozess ist durch die Kontaktwinkelmessungen und XPS-Messungen charakterisiert. Die XPS-Ergebnisse zeigen, dass die Plasmabehandlung zwei Haupteffekte auf der Chromoberfläche hervorruft: Erstens wird die Restkohlenstoffverschmutzung effizient von der Metalloberfläche entfernt und zweitens wird der Anteil der sauerstoffhaltigen Spezies erhöht. Diese Spezies tragen zur Oxydschicht bei, aber sie enthalten auch die Hydroxylgruppen, die während der Plasmabehandlung gebildet werden. Die Resultate stimmen sehr gut mit Kontaktwinkelmessungen und Oberflächenenergieberechnungen überein, die gezeigt haben, dass der Hauptfaktor, der für Änderungen in der Oberflächenbenetzbarkeit verantwortlich ist, der polare Anteil der Oberflächenenergie ist.

Die hydrophile Eigenschaft, die durch die Plasmabehandlung erreicht wird, hat keinen dauerhaften Charakter. Die Herabsetzung der Benetzbarkeit nach der Plasmabehandlung dauert im Fall der Lagerung mehr als 100 Stunden in der umgebenden Luft und im Fall des „nassen Reibens“ nur 10 s. Aus den XPS-Resultaten kann geschlossen werden, dass die Wiederherstellung der hydrophoben Eigenschaft durch eine Verminderung der sauerstoffhaltigen Spezies auf der Oberfläche verursacht wird.

6.2 Oberflächenbehandlung von Polypropylen

Das Polypropylen (PP) spielt heutzutage wegen seiner sehr guten mechanischen und chemischen Eigenschaften eine wichtige Rolle in der Textilindustrie. Es ist preiswert im Vergleich mit anderen Polymeren und lässt seine Oberflächeneigenschaften durch eine relativ einfache Verarbeitung steuern, wodurch es andere Polymere (z.B. halogenhaltige Polymere, wie Polyvinylchlorid) ersetzen kann.

Als zu behandelndes Material wird in diesem Experiment 0,5 mm dicke Polypropylenband (PP) verwendet (Firma Goodfellow Advanced Materials, Cambridge, UK). Die in kleine Stücke von $10 \times 40 \text{ mm}^2$ zugeschnittenen Polymerstreifen werden vor der Plasmabehandlung im Azeton-Ultraschallbad gereinigt und anschließend in der Luft getrocknet.

6.2.1 Die experimentelle Anordnung

Die CBD-Entladung wird in einer Gasmischung von Sauerstoff und Stickstoff bei Atmosphärendruck betrieben. Die Entladung verbreitet sich über eine Fläche von etwa 30 cm^2 . Die genaue Struktur des Elektrodenmoduls wurde in Abschnitt 3.3 beschrieben.

Das Entladungssystem wird in einer Reaktionskammer betrieben, die die Einstellung der Gasmischungen während des Plasmabetriebs ermöglicht. Die Experimente finden in einer Gasmischung von Sauerstoff und Stickstoff bei Atmosphärendruck statt. Vor dem Experiment wird die Reaktionskammer bis zu einem Druck von 10 Pa abgepumpt. Danach wird das Gas mit dem kleineren prozentualen Anteil in der Arbeitsgasmischung (in diesem Fall Sauerstoff) in die Reaktionskammer eingelassen, bis der erforderliche Partialdruck erreicht wird. Anschließend wird die Kammer weiter mit dem zweiten Bestandteil der Arbeitsgasmischung (in diesem Fall Stickstoff) bis zum Atmosphärendruck nachgefüllt.

Ein sinusförmiges Signal mit einer Frequenz von 4 kHz und einer Spitze-Spitze Spannung von 10 kV wird zwischen den Elektroden angelegt. Die auf diese Weise entstehende Entladung breitet sich gleichmäßig über die Keramikoberfläche aus. Nach der Stabilisierung des Entladungsstromes (nach etwa 5 s) wird das Substrat anhand eines drehbaren Substrathalters in Kontakt mit dem Plasma gebracht. Die Dauer der Plasmabehandlung wird mit einer elektronischen Stoppuhr gemessen. Ein Hochspannungstastkopf (Tektronix P6015A) mit einer Bandbreite von 75 MHz wird für die Messung der zwischen den Elektroden angelegten Spannung benutzt. Der Strom einer Rogowski-Spule (Pearson 4100) liefert die Information über den zwischen den Elektroden fließenden Strom. Die Strom- und Spannungssignale werden mit einem LeCroy 9310AM Speicher-Oszilloskop aufgenommen, dessen analoge Bandbreite 400 MHz bei einer Abtastrate von 100 MS/s beträgt. Die von der Entladung aufgenommene Leistung lässt sich aus den gemessenen Werten der Spannung und des Stroms berechnen und anschließend für 1 cm² der Substratfläche abschätzen.

6.2.2 Kontaktwinkelmessungen

Die Effizienz der Behandlung wird durch statische Kontaktwinkelmessungen mit deionisiertem Wasser auf dem PP-Substrat bewertet. Das zum diesen Zweck verwendete Gerät ist ein Kontaktwinkelmesser (CA-S350, Kyowa Interface Science Co. Ltd., Japan), der in einem klimatisierten Raum betrieben wird. Die Messungen werden innerhalb einer Minute nach der Behandlung durchgeführt. Jeder Kontaktwinkel in dieser Studie stellt den durchschnittlichen Wert von mindestens sechs verschiedenen Stellen der Substratoberfläche dar.

Die Abhängigkeit des Kontaktwinkels von der Behandlungszeit, der Gasmischung und dem Abstand zwischen dem Substrat und dem Elektrodenmodul wird gemessen. Dieser Abstand kann mit Hilfe von Distanzstücken unterschiedlicher Dicke zwischen dem Substrat und dem Elektrodenmodul variiert werden.

6.2.3 Einfluss der Behandlungszeit

Im Weiteren wird die Abhängigkeit des Wasserkontaktwinkels von der Behandlungszeit ausgewertet. Die Abb. 6.8 stellt die Ergebnisse der PP-Behandlung in einer Stickstoffentladung mit einer Leistungsdichte von 0,33 W/cm² dar. Es ist zu sehen, dass die Behandlung des PP-Bands umso effektiver ist, je kleiner der Abstand zwischen dem Substrat und dem Elektrodenmodul wird. Ein Minimalwert von 53° wird nach 4 s Behandlungszeit erreicht. In diesem Fall ist das Substrat im direkten Kontakt mit dem Elektrodenmodul. Der Kontaktwinkel behält sein Minimum so lange das Substrat nicht weiter als 0,18 mm vom Elektrodenmodul

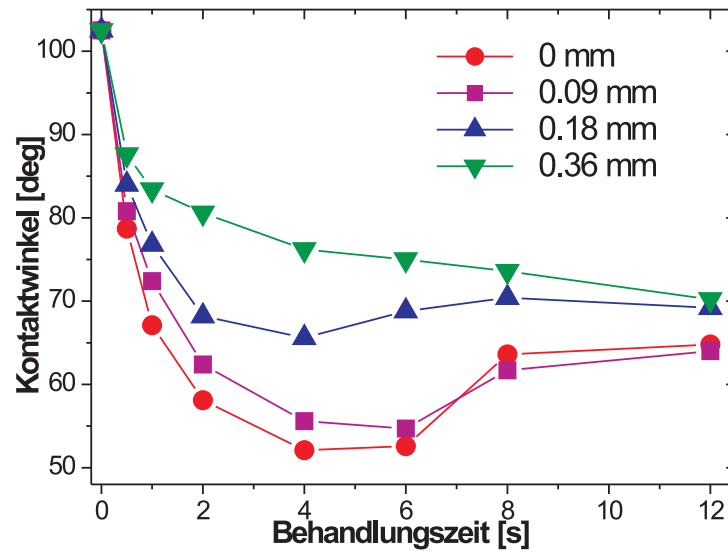


Abbildung 6.8: Wasserkontaktwinkel als Funktion der Behandlungszeit mit dem Abstand zwischen der Platte und dem Substrat als Parameter (Arbeitsgas: Stickstoff; Leistung: 15 W)

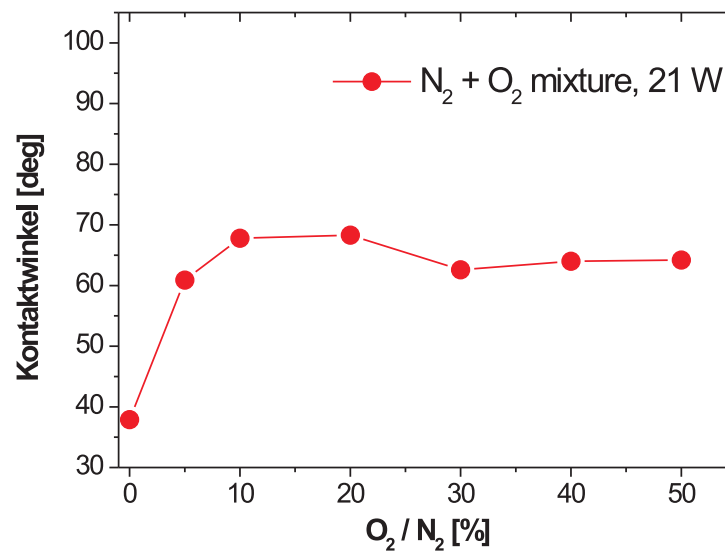


Abbildung 6.9: Wasserkontaktwinkel als Funktion der Sauerstoffmenge in der Gasmischung

positioniert ist und die Behandlungszeit von 4 bis 6 s variiert. Eine längere Behandlungszeit verringert nicht mehr den Kontaktwinkel. Ein ähnliches Verhalten weisen auch die von anderen Autoren [92] in Stickstoff behandelten PP-Substrate auf. Dieses Verhalten des in der CBD behandelten PP könnte durch verschiedene Phänomene verursacht werden:

Erstens, je länger die Wechselwirkung mit dem Plasma dauert, desto größer ist der Anteil der chemisch-reaktiven Komponenten (chemical functions) auf der Oberfläche. Bei zu langer Behandlungsdauer wird das Polymer schließlich degradiert.

Zweitens, es gibt nur eine im Bereich zwischen dem Substrat und dem Elektrodenmodul eingeschlossene Menge des Prozessgases, die von den während des Betriebs aus dem Substrat entweichenden Reaktionsprodukten, besonders von den sauerstoffhaltigen Verbindungen, verunreinigt wird. Ein relativ kleines Gasvolumen zwischen dem Substrat und dem Elektrodenmodul unterliegt einer schnelleren Verunreinigung als im Fall eines größeren Abstands. Die Abb. 6.9 zeigt eine starke Abhängigkeit des Kontaktwinkels von der Gasmischung. Die unerwünschten Änderungen, die von der Substraterwärmung verursacht werden (das Elektrodenmodul ist ungekühlt), sind direkt proportional zur Behandlungszeit und umgekehrt proportional zur Entfernung vom Elektrodenmodul.

6.2.4 Einfluss der Gasmischung

Die Abb. 6.9 zeigt den Verlauf des Wasserkontaktwinkels als Funktion des Sauerstoffanteils im Gasgemisch. Die Substrate werden 4 s bei einer Leistungsdichte von $0,7 \text{ W/cm}^2$ behandelt. Es ist zu bemerken, dass die Gasmischung einen starken Einfluss auf den Kontaktwinkel hat. Das beste Ergebnis, eine Änderung des Kontaktwinkels von 109° auf 38° , wird für die Behandlung des Substrates in Stickstoff erreicht. Eine kleine Sauerstoffbeimischung wirkt sich sehr stark auf den Wasserkontaktwinkel aus. Ein Zusatz von 5% O_2 im Stickstoff verursacht eine Erhöhung des minimalen Kontaktwinkels auf 61° und ein Zusatz von 10% O_2 verschlechtert das Ergebnis auf 68° . Eine weitere Erhöhung des Sauerstoffprozentsatzes bewirkt keine weitere Änderung des Kontaktwinkels. Aus Sicherheitsgründen wird auf Experimente mit Gasmischungen von mehr als 50% Sauerstoff verzichtet.

6.2.5 Einfluss des Abstandes von der Elektrode

Für die Prozessführung und die Auslegung von Prozessanlagen ist die Behandlungstiefe eines Elektrodensystems von primärer Bedeutung. Deshalb wird der Verlauf des Wasserkontaktwinkels als Funktion des Abstands zwischen dem CBD-Modul und dem PP-Substrat für verschiedene Leistungen und Gasmischungen in Abb. 6.10 dargestellt. Die in Stickstoff durchgeführten Experimente weisen eine Verbesserung der Benetzbarkeit und eine Vergrößerung der Behandlungstiefe mit zunehmender Leistung auf. Der Kontaktwinkel vermindert sich von $52,5^\circ$ bei einer Leistungsdichte von $0,33 \text{ W/cm}^2$ auf 38° bei einer Leistungsdichte von $0,7 \text{ W/cm}^2$. Der letzte Wert ist mit dem von Massines et al. [92] in Glimmentladung erhaltenen Wert vergleichbar. Die Behandlungszeit und die maximal aufgenommene Leistung für die CBD sind durch den Aufbau des Elektrodenmoduls ohne Kühlung begrenzt. Die Behandlungstiefe ist in der Stickstoffentladung fast zweimal größer als für eine Sauerstoffmischung. Diese Ergebnisse stimmen mit den Beobachtungen der CBD in verschiedenen

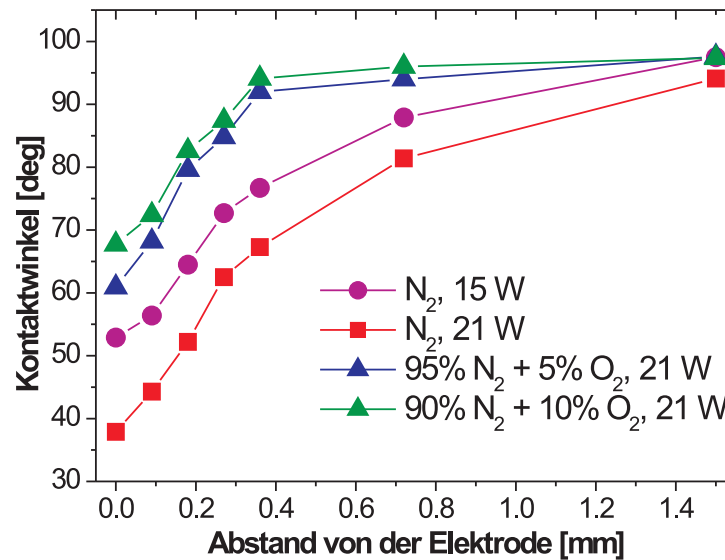


Abbildung 6.10: Wasserkontaktwinkel als Funktion des Abstandes zwischen der Platte und dem Substrat

Sauerstoff-Stickstoff-Mischungen überein. Infolge der geringen mittleren freien Weglänge der Ladungsträger bei Atmosphärendruck findet die CBD in Stickstoff-Sauerstoff-Mischungen nur dicht an der Oberfläche des Elektrodenmoduls statt. Wenn aber die Entladung durch langlebige metastabil angeregte Spezies unterstützt wird, die die Energie auf längere Distanzen transportieren können, dann ist das Volumen des Plasmas größer (wie im Fall von Helium- oder Stickstoff-Plasmen).

6.2.6 Schlussbemerkung

Die Effizienz der Plasmabehandlung der PP-Folie in der CBD in Stickstoff-Sauerstoff-Gasmischungen wurde als Funktion des Abstandes zwischen der Probe und dem Substrat untersucht. Die Behandlungstiefe beträgt 1,5 mm und die Dicke der Zone der effektivsten Behandlung 0,3 mm. Diese Dicke nimmt mit steigender Leistung und steigendem Partialdruck von Stickstoff zu. Die beste Behandlung der PP-Folie kann für die reine Stickstoff-Entladung und für den kleinsten Abstand zum CBD-Modul beobachtet werden und entspricht einem Minimum des Wasserkontaktwinkels von 38°. Die typische Zeit für die optimale Behandlung beträgt 4 bis 6 s. In einer 95 %N₂+5 %O₂ Gasmischung wird ein minimaler Wert von 61° erreicht.

6.3 Oberflächenbehandlung von Textilien

Gewebe aus Polyester oder Wolle haben bei der Herstellung von Kleidung einen hohen Anteil in der Textilindustrie. Durch Plasmabehandlungen können die Oberflächeneigenschaften

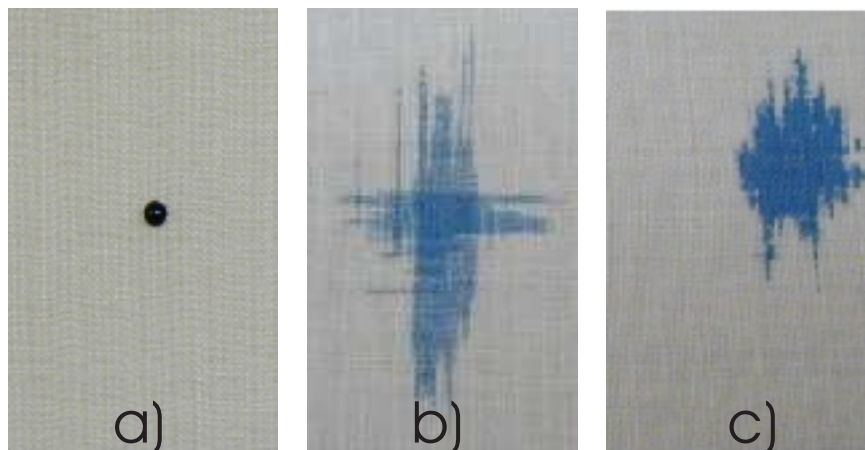


Abbildung 6.11: Die Wirkung der Plasmabehandlung auf Textilien a) unbenutzte Probe; b) 10s Luft-Plasma Behandlung (Einsinkzeit der Testtinte 40s); c) 10s N₂-Plasma Behandlung (Einsinkzeit der Testtinte 3s)

der Textilien modifiziert werden. Beispielsweise in eine Verbesserung der Benetzbarkeit, der Einfärbbarkeit und der Haftung möglich.

Für dieses Experiment wurden die zu behandelnden Textilien (Polyester und Wollgewebe) von der Firma Kitech (Korea) geliefert. Der experimentelle Aufbau ist ähnlich dem für die PP-Behandlung (siehe Abschnitt 6.2) benutzten Aufbau. Die Amplitude der sinusförmigen Spannung beträgt 4 kV und die Frequenz 7 kHz.

Die Plasmabehandlung beider Materialien wird bei Atmosphärendruck in Luft, Stickstoff und Argon durchgeführt. Die Charakterisierung des Plasmaeffekts erfolgt mittels einer Testtinte mit der Oberflächenenergie von 52 mN/m. Gemessen wird die Zeit, in der ein auf das behandelnde Material gebrachter Tropfen dieser Tinte komplett im Material einsinkt (die Einsinkzeit).

6.3.1 Behandlung von Wollgewebe

Die Abb. 6.11 zeigt das Ergebnis der Plasmabehandlung eines 0,25 mm dicken Wollgewebes mit Luft und Stickstoff als Arbeitsgase. Der Einfluss der Behandlungszeit dieses Materials wird in Abb. 6.13 für Argon und Stickstoff und in Abb. 6.12 für Luft verdeutlicht. Die Einsinkzeit der Testtinte für die unbenutzte Probe beträgt 30 min. Es ist bemerkenswert, dass das beste Ergebnis der Behandlung, nämlich eine Einsinkzeit von 1 Sekunde, im Ar-Plasma nach nur 10 s Behandlungszeit erreicht wird. Im Vergleich dazu liegt die benötigte Zeit in Stickstoff bei 20 s und in Luft bei 30 s.

6.3.2 Behandlung von Polyestergewebe

Die Wirkung der Plasmabehandlung eines 0,1 mm dicken Polyestergewebes in verschiedenen Gasen ist in Abb. 6.14 zu sehen. Die in Argon und Stickstoff behandelte Probe erreicht nach 5 s bzw. 10 s Behandlungszeit das beste Ergebnis, eine Einsinkzeit kleiner als 10 s. Dasselbe

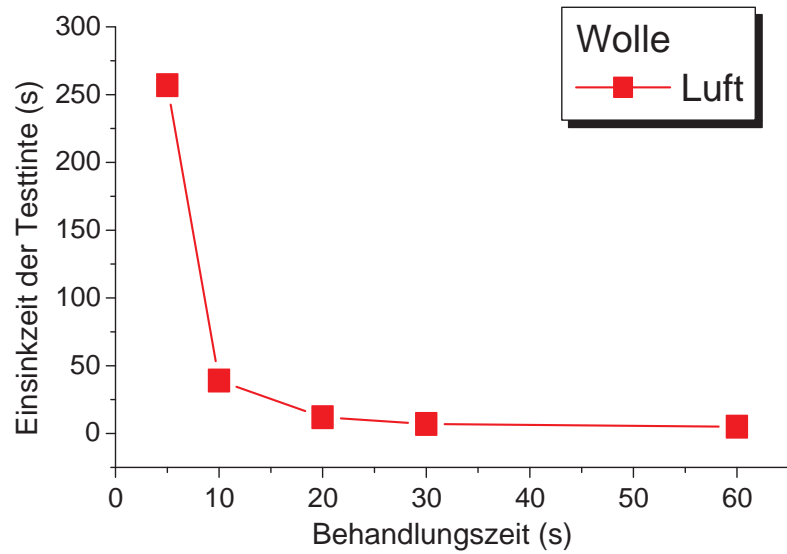


Abbildung 6.12: Einsinkzeit der Testtinte bei der Plasmabehandlung von 0,25 mm dickem Wollgewebe in Luft als Funktion der Behandlungszeit

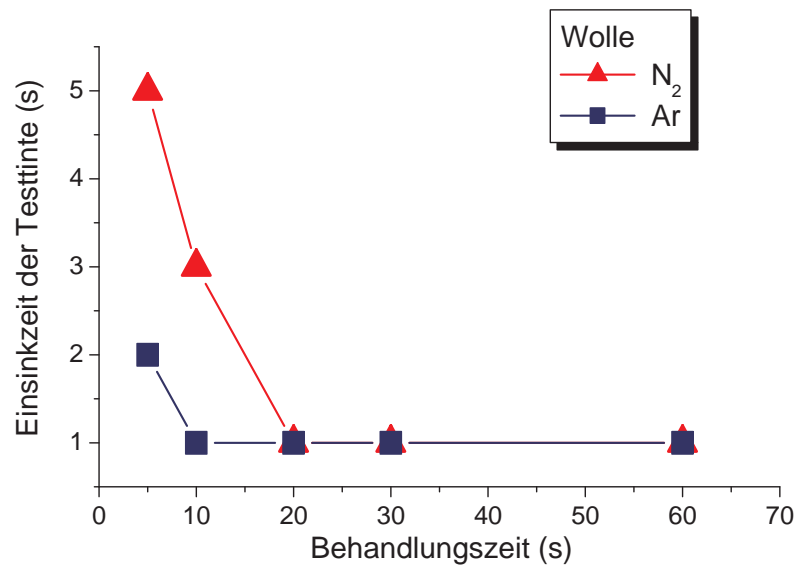


Abbildung 6.13: Einsinkzeit der Testtinte bei der Plasmabehandlung von 0,25 mm dickem Wollgewebe in N₂ und Ar als Funktion der Behandlungszeit

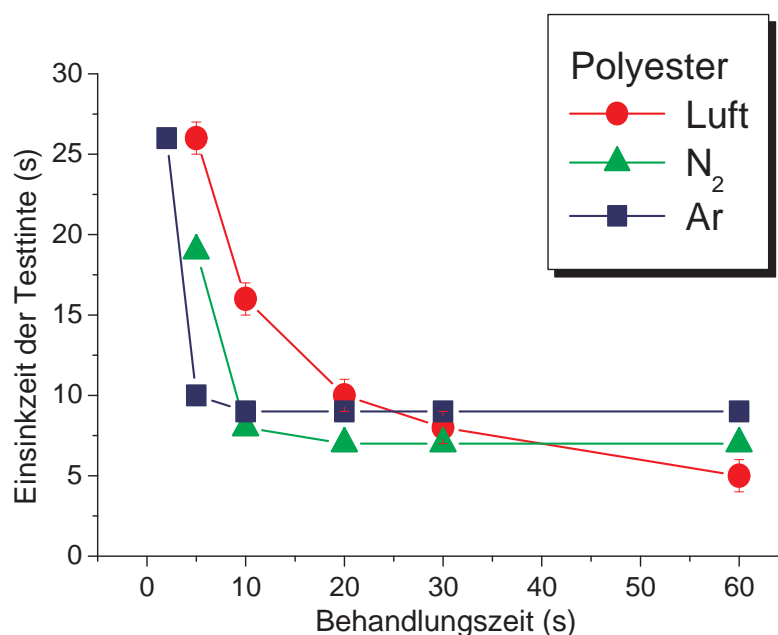


Abbildung 6.14: Einsinkzeit der Testtinte als Funktion der Behandlungszeit.
Material: 0,1 mm dickes Polyester

Ergebnis wird durch die Behandlung in Luft nach 30 s erreicht. Für längere Behandlungszeiten sind die Plasmaeffekte in allen drei untersuchten Gasen vergleichbar.

6.3.3 Schlussbemerkung

Die Plasmabehandlung von dünnem Wollgewebe ist sehr effektiv in Ar und N₂, aber auch in Luft, indem die besten Ergebnisse nach 5, 10, bzw. 30 s Behandlungszeit erreicht werden.

Im Fall von Polyestergewebe gewährleistet die Behandlung in einem Ar-Plasma bessere Ergebnisse bei kürzeren Behandlungszeiten (2 bis 5 s), dennoch ist die 10 bis 20 s Behandlung in N₂ effektiver. Für längere Behandlungszeiten (60 s) sind die Ergebnisse innerhalb der Messgenauigkeit für Luft, N₂ und Ar vergleichbar.

Aufgrund der geringeren Kosten ist eine Plasmabehandlung in Luft im industriellen Einsatz anzustreben. Die Ergebnisse zeigen, dass dies in beiden Fällen (Polyester- und Wollgewebe) prinzipiell möglich ist.

6.4 Neuartiges Quellenkonzept für Beschichtungsprozesse

Die bereits vorgestellten Beispiele beziehen sich auf die Oberflächenmodifikation. Mit den auf DBD basierenden Vorrichtungen lassen sich aber auch Beschichtungsprozesse realisieren. Dabei spielt die Integration des Elektrodensystems mit einer geeigneten Gasführung eine wesentliche Rolle.

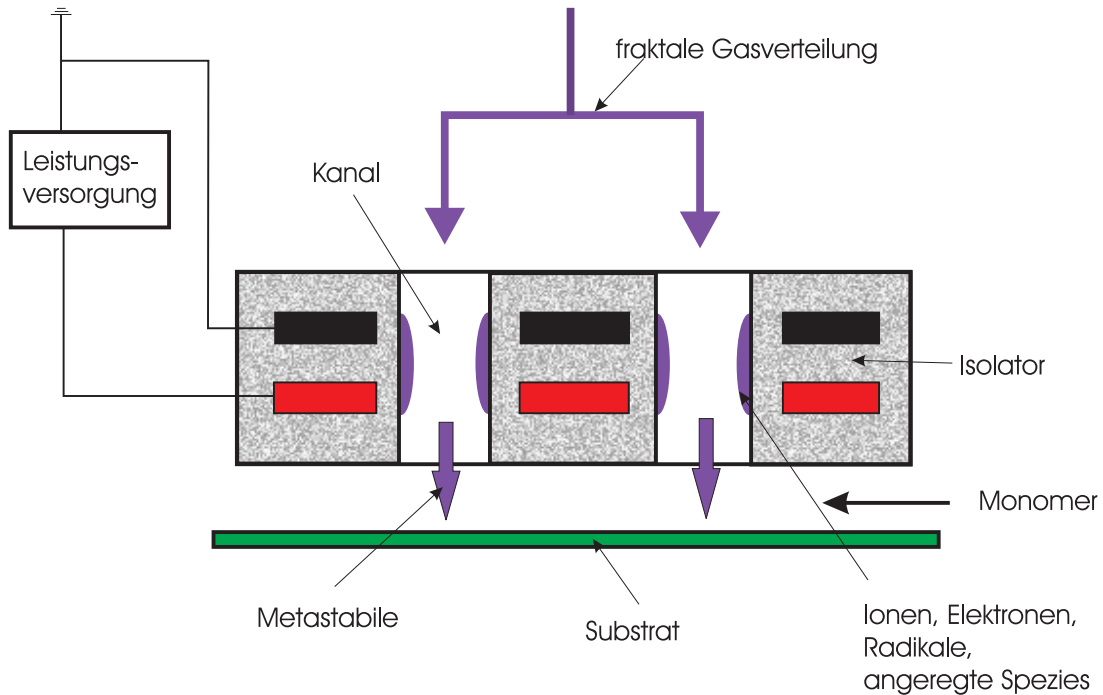


Abbildung 6.15: Prinzipskizze des Plasmamoduls, Gaszufuhr und Anschlüsse zur Leistungsversorgung

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein neuartiges diese Problematik berücksichtigendes modulares Atmosphärendruckplasmaquellen-Konzept vorgeschlagen. Die auch für die Schichtabscheidung geeignete Vorrichtung zur Plasmaerzeugung auf der Basis von koplanaren Barrierenentladungen wurde als Patent angemeldet. Das Patent ist bereits offengelegt wurde [37] und wird im Weiteren vorgestellt.

6.4.1 Vorrichtung der Plasmaquelle

Die Abb. 6.15 zeigt die Prinzipskizze des Plasmamoduls. Basis der Überlegungen sind Schichtkeramiken, die den Aufbau von koplanaren und Oberflächen-Barrierenentladungen ermöglichen. Derartige Anregungsstrukturen „laufen“ bei Atmosphärendruck und ihre Funktionalität wurde zweifelsfrei nachgewiesen. In allen Fällen sind die Wechselwirkungen (z.B. bei Reinigung, Oberflächenmodifikationen) dann am intensivsten, wenn der Abstand zwischen der plasmaerzeugenden Quellenoberfläche und dem Substrat am geringsten ist, d.h. beim direkten Kontakt. Diese Randbedingung erschwert aber z.B. die für eine Schichtabscheidung erforderliche Separation von Quelle und Substrat. In diesem Fall sollten verschiedene Aspekte, wie die Gasführung des Monomers, die Homogenität der Schichtabscheidung oder die Kontamination der Quelle durch parasitäre Schichtabscheidungen auf und in der Quelle, sorgfältig berücksichtigt werden. Abhilfe schafft eine geführte Gasströmung über die gesamte Plasmamodul-Oberfläche von der Rückseite der Quelle aus. In zwei Ebenen kann dabei sowohl das jeweilige Monomer als auch das Trägergas zugeführt werden.

Die geforderte kontrollierte und gleichmäßige Gasführung über dem gesamten Plasmamodul (und auf übergeordneter Ebene über dem gesamten Plasmasystem) lässt sich durch eine

fraktale Gasführung realisieren. Im Anhang C wird die Konstruktionsskizze der im *fmt* entwickelten und schon für die Auslegung von großflächigen Hohlkathoden-Plasmajetquellen eingesetzten fraktalen Gasverteilung dargestellt.

In diesem Falle sind jedoch die fraktalen Gasverteilungen in die Keramiken selbst zu integrieren. Aus diesem Grunde werden Schichtkeramiken wie LTCC („Low Temperature Cofired Ceramics“) bevorzugt. Besonders interessant dabei ist, dass die Keramik-Module bzw. deren Einzelebenen computergesteuert aus sogenannten „Green-Tape“-Schichtkeramiken (oft Al_2O_3) geschnitten oder gestanzt werden können.

Das zentrale Funktionsprinzip dieses Quellenkonzeptes ist die Führung der Gasströmungen (Trägergas und Monomer) durch den eigentlichen keramischen Quellenkörper hindurch. Dies kann durch symmetrische, regelmässig angeordnete Öffnungen erfolgen, wobei die Plasmaerzeugung in den Kanälen selbst, lokal begrenzt erfolgt. Ein Vorteil dieser Vorrichtung ist, dass das Plasma die metallischen Erzeugungselektroden, die in den Quellenkörper integriert sind, nicht berührt. Dies reduziert ganz erheblich die unerwünschte Abregung der Metastabilen, die nach außen, in Richtung des Substrates, über längere Distanzen transportiert werden können.

Eine alternative Einströmung des Monomers kann auch tangential erfolgen (siehe Abb. 6.15). Entscheidungskriterien für die gas- und prozessabhängige Wahl der Monomer-Einströmung sind Gesichtspunkte der Rückkontamination in die Quelle selbst.

Ein wichtiges Merkmal der von uns vorgeschlagenen Plasmavorrichtung ist die einfache Duplizierbarkeit. Die Modulbauweise ermöglicht neben beliebigen Behandlungsbreiten auch ohne größeren Aufwand eine Anpassung der Vorrichtung an die unterschiedlichen Breiten der Substrate. In Abb. 6.16 ist eine lineare Anordnung von vier Quellenmodulen zu sehen. Die Abbildung deutet darüber hinaus an, dass bei einer Matrixanordnung von Kanälen vorteilhafterweise ein Winkel α ungleich 0 zwischen der Bewegungsrichtung des Substrats und einer Gerade, die durch die Spalten der Kanäle definiert wird, besteht. Dieser Winkel ermöglicht auch an der Schnittstelle der Quellenmodulen eine homogene Behandlung eines z.B. bahnförmigen Materials.

Da das Betriebsprinzip dieser Plasmaquelle nicht auf dem Hohlkathodeneffekt beruht, besteht folglich keine Begrenzung des Durchmessers der Löcher auf den Mikrometer-Bereich, auf den der Hohlkathodeneffekt wegen der Relevanz der freien Weglänge der Elektronen beschränkt ist. Hierdurch ergibt sich als ein wesentlicher Vorteil dieser Quelle, dass die Entladungen unter hohem Gasfluss betrieben werden können. Diese Tatsache ermöglicht die Verlängerung der Lebenszeit der metastabil angeregten Spezies. Mit deren steigenden Lebenszeiten steigt auch die Dicke des Plasmas. Diese Eigenschaft von Atmosphärendruck-Glimmentladungen nimmt radial, proportional mit dem Gasfluss, bis zu einer Dicke von mehreren zehntel Millimetern zu. Somit ist es möglich, durch die direkte Zuführung der metastabil angeregten Spezies auf die Substratoberfläche die bereits bekannten Prozesse, wie Oberflächenmodifikation, Reinigung und Entfettung, mit höheren Prozessraten und besserer Homogenität durchzuführen. Darüber hinaus kann die Wirkung der metastabil angeregten Spezies auf die Substratoberfläche oder Substratstruktur dahin führen, dass durch eine zusätzliche Zufuhr von Monomeren als Gas, Dampf oder Flüssigkeit Abscheidungsprozesse, ähnlich den Niederdruck PECVD-Prozessen, durchgeführt werden können. Eine neue Palette von interessanten Anwendungen, die bisher weitgehend unerforscht geblieben sind, ist

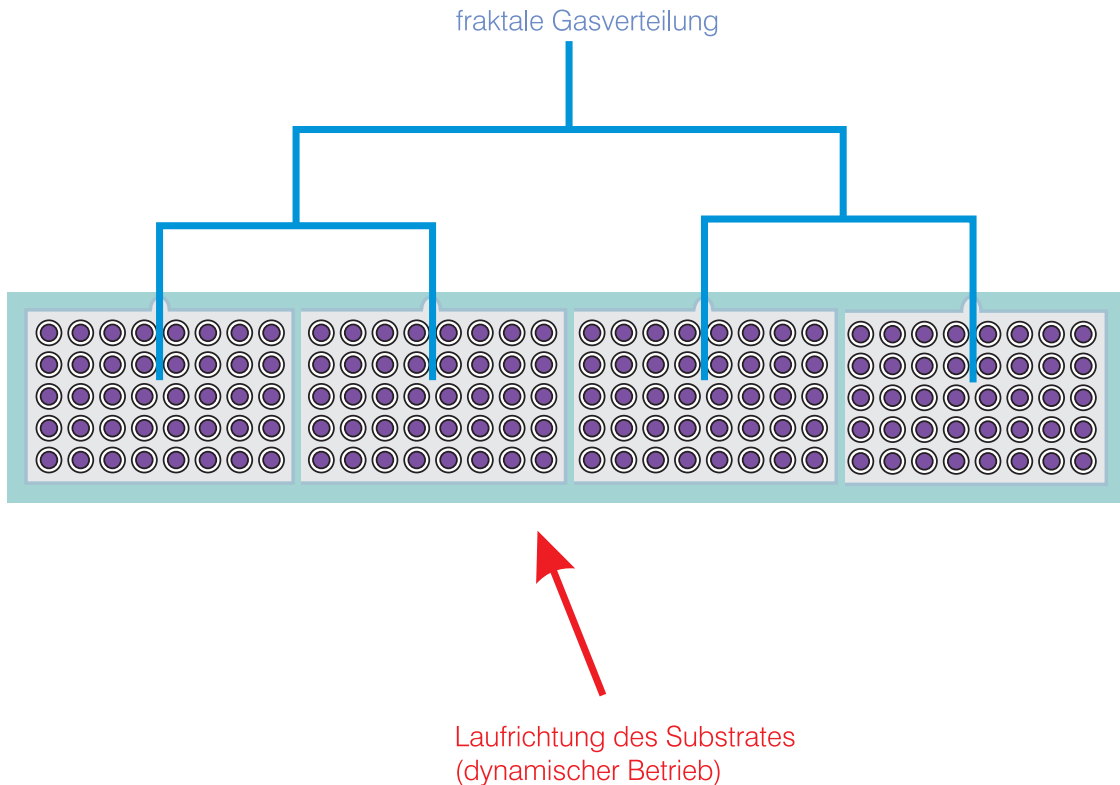


Abbildung 6.16: Lineare Anordnung von vier Quellenmodulen mit dem Gasverteilungssystem und dargestellter Laufrichtung des Substrates

die Beeinflussung von biologischem Material bzw. von organischem Gewebe durch die Einwirkung von metastabil angeregten Spezies. Die Beeinflussung der Substrateigenschaften im Nanometerbereich ist ebenfalls denkbar.

6.4.2 Simulation des elektrischen Feldes am Modulrand

Die mit dem Quick-Field Software-Programm durchgeführten Simulationen des elektrischen Feldes zeigen, dass für eine angegebene Dicke der Keramikschichten ein optimaler Abstand d zwischen den Elektroden und dem Lochrand existiert.

In Abb. 6.17 sind die Potentiallinien des elektrischen Feldes für eine Struktur mit einer $100 \mu\text{m}$ dicken Keramikschicht, die die Elektroden bedeckt, dargestellt. Die Abb. 6.17 a) zeigt die angegebene Struktur mit der Angabe des Parameters d , der angelegten Spannung und der Symmetrieachse des Kanals.

Die Abb. 6.17 b),c),d) verdeutlichen für 3 unterschiedliche Werte des Parameters d die elektrischen Feldstärken und die Potentiallinien in dem Bereich, der in Abb. 6.17 a) mit einem roten gestrichelten Rechteck gekennzeichnet ist. Für jede Geometrie wird auch die Zündstelle des Plasmas mit einem Pfeil angezeigt. Es ist bemerkenswert, dass sich für kleinere d Werte ($d = 15 \mu\text{m}$) der Ort mit der maximalen Feldstärke, an dem das Plasma zündet, im Kanal sehr nah an der Elektrode befindet. Mit zunehmenden d Werten verschiebt sich diese Zündstelle in Richtung Mitte des Kanals. Für noch größere d Werte ($d = 80 \mu\text{m}$) zündet das

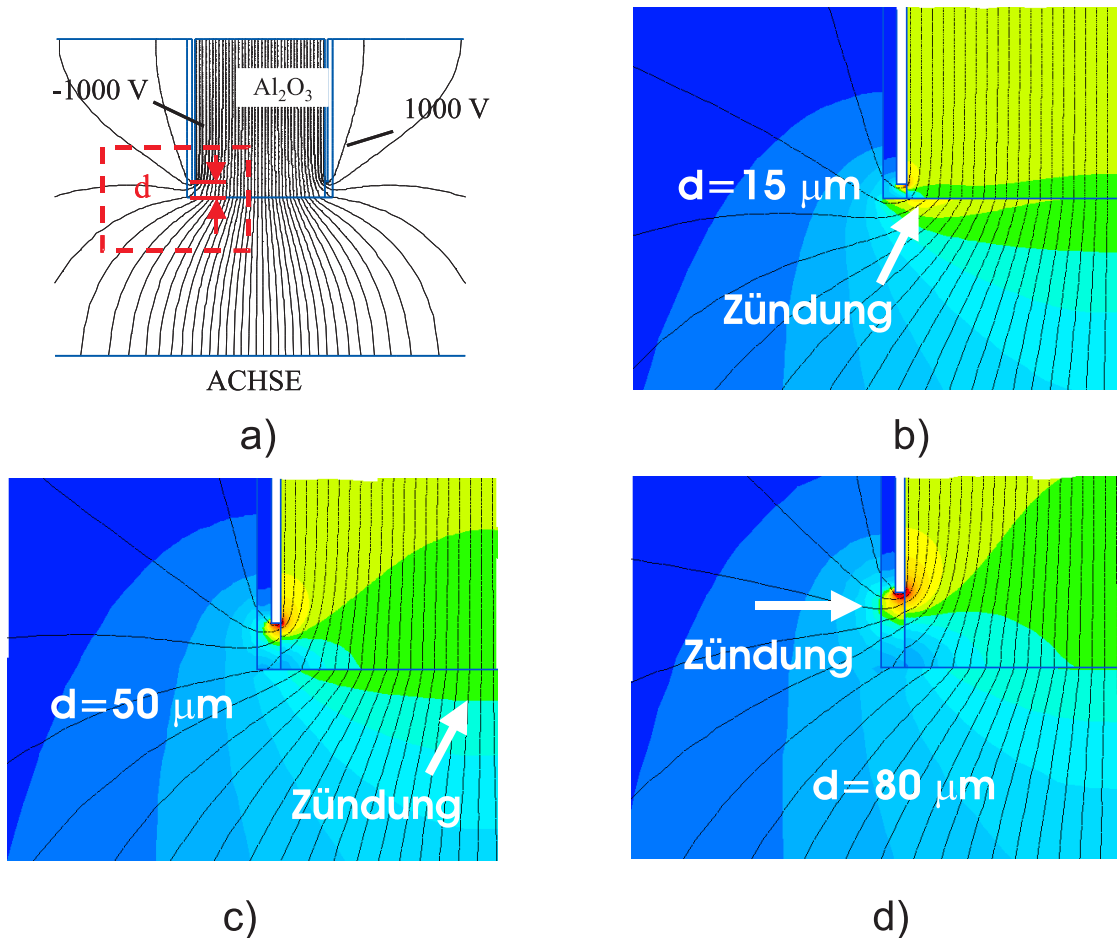


Abbildung 6.17: Detail der Simulation der elektrischen Feldlinien am Modulrand

Plasma nicht mehr im Kanal, sondern außerhalb, über der Elektrode. Für dieses Beispiel beträgt der optimaler Abstand d zwischen den Elektroden und dem Lochrand, bei dem das Plasma in der Mitte des Kanals zündet, $50\ \mu\text{m}$.

6.4.3 Schlussfolgerungen

Das hier vorgestellte Plasmaquellenkonzept hat ein großes industrielles Potential. Im Weiteren ist die Erforschung und die Optimierung dieser Atmosphärendruck-Plasmaquelle geplant, um die heute noch bestehenden Hindernisse zu überwinden, die bei der Anwendung der im Labormaßstab bereits demonstrierten plasmaunterstützten Behandlungs- und Beschichtungsprozesse auf vorwiegend großflächige Substrate auftreten.

Die technische Umsetzung dieser Erfindung und Anwendungsbeispiele sind im Rahmen eines BMBF-Projektes vorgesehen [12]. Die Leistungsfähigkeit dieser neuartigen Plasmaquellen soll anhand von verschiedenen Beispielen neuer, heute aus technischen Gründen noch nicht realisierbarer Anwendungsfälle wie z.B. der Vorbehandlung von Kunststoffplatten für die Metallisierung oder der Oberflächenmodifikation, der Reinigung und der Beschichtung von Aluminiumbauteilen für die Luftfahrttechnik demonstriert werden.

Kapitel 7

Schlussbemerkungen/Ausblick

7.1 Schlussbemerkungen

Im Rahmen dieser Arbeit wurden verschiedene auf Barrierenentladungen basierende planare Plasmaquellen charakterisiert und weiterentwickelt. Die durchgeführten Studien umfassen die dielektrisch behinderten Oberflächenentladungen (SBD), die isolierten Oberflächenentladungen (ISD) sowie die koplanaren Oberflächenentladungen (CBD). Dabei wurde der Einfluss der Elektrodenmaterialien und der Elektrodengeometrie auf die Eigenschaften der Entladung mittels elektrischer und spektroskopischer Messungen untersucht. Der Einfluss der Geometrie der Elektroden auf die elektrischen Charakteristika ist Gegenstand von elektrischen Messungen, Beobachtung mit Hilfe einer ICCD-Kamera und Simulationen.

Es wurde gezeigt, dass je nach Form des Elektrodenrandes (konkav, konvex oder linear) die Häufigkeit, Dichte und Stärke der Teilentladungen stark variiert. Für die konkaven Geometrien wurden längere Lebensdauern, geringere Beschädigungen und eine niedrigere elektrostatische Ermüdung der Beschichtung einer ISD-Vorrichtung durch Simulationen vorhergesehen und danach durch Experimente bestätigt. Es wurde eine neuartige auf dem Verständnis des Verschleißmechanismus basierende Elektrodengeometrie vorgestellt: Eine mit mehreren Löchern (in einer hexagonalen Anordnung der Löcher) ausgestattete Metallelektrode wurde entworfen, deren Form und Anordnung einen besseren Ausgleich der zwischen der Elektroden- und der Keramikoberfläche auftretenden Umladungsprozesse erlauben.

Bei technisch relevanten Elektrodensystemen ist die Interpretation der gemessenen Stromverläufe nicht trivial, da sich die Wirkung der physikalischen Vorgänge in den Teilentladungen mit den parasitären Oszillationen im Schaltkreis der Spannungsversorgung überlagern. Es wurde ein auf Fourier-Transformation basierendes Verfahren zur Ermittlung der tatsächlichen Stromverläufe in den Teilentladungen entwickelt. Die hier vorgestellte Methode erlaubt eine vereinfachte Auswertung der Antwort eines RLC-Schaltkreises auf eine Teilentladung, insbesondere die Bestimmung der während einer Teilentladung transferierten elektrischen Ladung und der Teilentladungsdauer. Der Vorteil dieser Methode für die Signalinterpretation besteht darin, dass man keine Information über die genauen RLC-Kennwerte braucht, um die gesuchte Systemanregung zu berechnen. Zudem ermöglicht dieses Verfahren die Bestimmung von Teilentladungsströmen sogar für kompliziertere Fälle, beispielweise für mehrere überlappende Teilentladungen.

Bei dem Vergleich der Mittelwerte der während einer Teilentladung transferierten Ladung der beiden Elektrodengeometrien, Streifenstruktur und Lochstruktur wurde festgestellt, dass viel mehr Ladung bei der Streifen- als bei der Lochstruktur transferiert wird. Aus der Form des Oszillationssignals kann entnommen werden, dass die Dauer der Teilentladung kürzer als 20 ns für die Lochstruktur und länger als 40 ns für die Streifenstruktur ist. Dies bedeutet, dass die Streifenstruktur einen höheren Wirkungsgrad und demzufolge ein größeres Potential für die Oberflächenbearbeitung besitzt, unter der Annahme, dass die Qualität des Isolierfilmes in Bezug auf die Verschleißbeständigkeit verbessert werden kann.

Luft und Luft-ähnliche Gasmischungen sind für viele industrielle Anwendungen von Interesse, bei denen die Plasmabehandlung einen zufriedenstellenden Effekt hervorrufen kann. Es wurden Experimente in verschiedenen Sauerstoff-Stickstoff-Gasgemischen durchgeführt, um die elektrischen Merkmale der SBD und CBD zu vergleichen. Trotz des ähnlichen physikalischen Hintergrundes dieser beiden planaren Geometrien gibt es Unterschiede in deren elektrischen Charakteristika. Einige Unterschiede kann man anhand der niedrigeren Modulkapazität und der demzufolge höheren optimalen Betriebsfrequenz für die CBD erklären. Ein Nachteil der CBD besteht in der höheren Zündspannung, deren Wert durch die relativ niedrige Intensität des elektrischen Feldes über der Keramikoberfläche erklärt werden kann. In der SBD ist die transferierte Ladung innerhalb einer Teilentladung wesentlich größer, wenn der Sauerstoffanteil mehr als 15% beträgt. Unter diesem Prozentsatz übernimmt die CBD die Rolle als Hauptträger der Ladungen. Qualitativ ähnlich ist die Abhängigkeit des Zeitabstandes zwischen den Teilentladungen vom Anteil des Sauerstoffs in den Sauerstoff-Stickstoff-Gasgemischen. Die CBD hat dennoch den Vorteil der Generierung stärkerer Teilentladungen sowohl während der anodischen als auch während der katodischen Halbperiode der Anregung.

Es gibt Anwendungen, bei denen die Homogenität der Behandlung besonders wichtig und somit der Betrieb in einer homogenen Form der Entladung von Vorteil ist. Da Helium sich für den Betrieb des Plasmas in einem solchen Modus eignet, wurde es für weitere Untersuchungen gewählt.

Wie im Detail diskutiert wurde, spielen die langlebigen metastabil angeregten Spezies eine große Rolle für die Aufrechterhaltung des Plasmas im homogenen Modus. Demzufolge sind Messungen von absoluten Werten der Metastabilenkonzentration von wesentlichem Interesse. Eine leistungsfähige Methode für die Bestimmung der Konzentration der metastabil angeregten Helium-Atome ist die Diodenlaser-Absorptionsspektroskopie, die hier das erste Mal an einer dielektrisch behinderten Oberflächenentladung eingesetzt wurde. Der Übergang $2^3S \rightarrow 3^3P^0$ mit einer Wellenlänge $\lambda = 388,975$ nm wurde für die zeitaufgelösten, räumlich integrierten Messungen der He (2^3S) Metastabilen verwendet. Die Absorption vom He ($2P^0$) resonanten Zustand bei der Wellenlänge $\lambda = 667,999$ nm wurde zum Vergleich ebenfalls durchgeführt.

Es wurde eine Methode für die Bestimmung des maximalen Wertes der Metastabilenkonzentration vorgestellt. Sie bezieht die Korrekturfaktoren für die zeitliche und räumliche Verteilung der metastabil angeregten Spezies mit ein. Diese Korrekturfaktoren wurden für jeden Druck und jede Position ermittelt. Bei 300 mbar hat die mit Bezug auf den ganzen untersuchten Druckbereich maximale Metastabilenkonzentration einen Wert von 10^{12} cm⁻³ erreicht. Bei 700 mbar hat die Metastabilenkonzentration einen Wert von 2×10^{11} cm⁻³.

Für eine bessere Quellencharakterisierung wurden Experimente im Druckbereich von 50 bis 1000 mbar durchgeführt. Bei den untersuchten planaren Geometrien ist die Entwicklung der räumlichen Entladungsstrukturen durch die Umladungsprozesse auf der dielektrischen Oberfläche dominiert. Eine detaillierte Analyse der Zeitentwicklung der SBD erfolgte mit Hilfe einer ICCD-Kamera in Verbindung mit elektrischen Messungen. Die vertikalen Profile der Emissionsintensität und der Metastabilenkonzentration wurden aus den Diffusionsverlusten mit Hilfe eines im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Modells berechnet und für den letzten Fall mit den gemessenen Werten in Einklang gebracht. Damit wurde eine Elektronenkonzentration von 1×10^{10} bis $6 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ und eine Elektronentemperatur von 1,4 bis 2,2 eV für den Druckbereich von 50 bis 1000 mbar ermittelt.

Aus der Analyse der Absorptionsprofile für die Linie $\lambda = 667,999 \text{ nm}$ bei 50 mbar und 150 mbar wurde eine Gastemperatur unter 350 K ermittelt. Die Bestimmung der Gastemperatur mit Hilfe dieser Methode war für höhere Drücke nicht möglich, weil das Abtasten der Laserdiode auf einen gegebenen Wellenlängenbereich begrenzt ist. Die Behandlungen von verschiedenen thermisch empfindlichen Textilmaterialien bei Atmosphärendruck haben aber bewiesen, dass die Entladung in SBD- und CBD-Plasmaquellen ein kaltes Plasma auch bei hohem Druck erzeugt und somit auch für die Behandlung solcher Materialien geeignet ist.

Weitere Untersuchungen der Wirkung der Plasmabehandlung in planaren DBD-Konfigurationen zeigten, dass die Wechselwirkungen (z.B. bei Reinigung, Oberflächenmodifikationen) dann am intensivsten sind, wenn der Abstand zwischen der plasmaerzeugenden Quelloberfläche und dem Substrat am geringsten ist, d.h. beim direkten Kontakt. Diese Randbedingung erschwert aber z.B. die für eine Schichtabscheidung erforderliche Separation von Quelle und Substrat.

Um die Effizienz solcher sogenannten „Remote“-Prozesse bei Atmosphärendruck, die ein erhebliches technologisches Potential besitzen, zu erhöhen, wurde im Rahmen dieser Arbeit ein neuartiges Konzept einer auf koplanaren Barrierentladungen beruhenden Plasmaquelle vorgeschlagen. Die Vorrichtung zur Plasmaerzeugung auf der Basis von Oberflächen- und koplanaren Barrierentladungen wurde zum Patent angemeldet, welches bereits offengelegt wurde [37].

Das zentrale Funktionsprinzip dieses Quellenkonzeptes ist die Führung der Gasströmungen (Trägergas und Monomer) durch den eigentlichen keramischen Querkörper hindurch. Dies kann durch symmetrische, regelmässig angeordnete Öffnungen erfolgen, wobei die Plasmaerzeugung in den Kanälen selbst lokal begrenzt erfolgt. Ein Vorteil dieser Vorrichtung ist, dass das Plasma die metallischen Erzeugungselektroden, die in den Querkörper integriert sind, nicht berührt. Dies reduziert ganz erheblich die unerwünschte Abregung der Metastabilen, die nach außen, in Richtung des Substrates, über längere Distanzen transportiert werden können. Ein wichtiges Merkmal der hier vorgeschlagenen Plasmavorrichtung ist die Möglichkeit einer einfachen Vervielfältigung. Die Modulbauweise ermöglicht neben beliebigen Behandlungsbreiten auch ohne größeren Aufwand eine Anpassung der Vorrichtung an die unterschiedlichen Breiten der Substrate.

Die im Rahmen dieser Studie erworbenen Kenntnisse wurden zur Firma JE Plasma Consult GmbH transferiert, die sich mit der Entwicklung und dem Vertrieb von Plasmaquellen beschäftigt. Eine von dieser Firma vermarktete Plasmaanlage, die auch ins Ausland verkauft wurde, beruht auf einem modularen Prinzip der SBD und wurde an die Erfordernisse

der kontinuierlichen Behandlung eines Polymerbandes mit einer Geschwindigkeit von bis zu 6 m/s angepasst.

Es wurden auch andere Machbarkeitsstudien mit verschiedenen Firmen (Bayern, Thyssen etc.) durchgeführt.

7.2 Ausblick

Die in dieser Arbeit in Bezug auf die SBD dargestellten Forschungsergebnisse schufen die Grundlage für einen erfolgreichen DFG-Antrag (EN-183/13-1). Im Rahmen des Projektes sollen die Mechanismen der Generierung, des Transportes und der Verluste von energieübertragenden Spezies – insbesondere von metastabilen Neutralen – bei unterschiedlichen Konzepten dielektrisch behinderter Atmosphärendruck-Oberflächenentladungen weiter systematisch untersucht werden. Zunächst steht die Klärung des Einflusses der verwendeten Materialien im Vordergrund. In einem weiteren Schritt sind die prozessbestimmenden Quellenparameter zu untersuchen. Dazu zählen neben der Bereitstellung und Kontrolle der eingekoppelten elektrischen Leistung insbesondere die Gasmischung und die Gasströmung. Diese wiederum beeinflussen die Lebensdauer der Teilentladungen und damit letztlich die räumliche und zeitliche Ausbildung des angestrebten Atmosphärendruck-„Remote“-Plasmas.

Die Absorptionsmessungen an der SBD wurden am Institute for Analytical Science (ISAS)-Dortmund durchgeführt. Da diese Zusammenarbeit für beide Seiten (*fmt*-Wuppertal und ISAS-Dortmund) sowohl interessante Erkenntnisse geliefert, als auch zu vielfältigen neuen Fragestellungen geführt hat, wurde ein zukünftiges, gemeinsames DFG-Vorhaben für die Erforschung verschiedener Atmosphärendruck-Plasmaquellen angedacht.

Das in dieser Arbeit vorgestellte und zum Patent angemeldete neuartige Plasmaquellenkonzept auf Basis einer koplanaren DBD hat ein großes industrielles Potential. Geplant sind auch die Erforschung und die Optimierung dieser Atmosphärendruck-Plasmaquelle, um die heute noch bestehenden Hindernisse für eine industrielle Anwendung zu überwinden. Diese Schwierigkeiten treten vorwiegend bei der Umsetzung der Anwendungen der im Labormaßstab bereits demonstrierten plasmaunterstützten Behandlungs- und Beschichtungsprozesse auf großflächige Substrate auf.

Die technische Umsetzung dieser Erfindung und Anwendungsbeispiele sind im Rahmen eines BMBF-Projektes vorgesehen [12]. Die Leistungsfähigkeit dieser neuartigen Plasmaquellen soll anhand von verschiedenen Beispielen neuer, heute aus technischen Gründen noch nicht realisierbarer Anwendungsfälle wie z.B. Vorbehandlung von Kunststoffplatten für die Metallisierung oder Oberflächenmodifikation, Reinigung und Beschichtungen von Aluminiumbauteilen für die Luftfahrttechnik demonstriert werden.

Anhang A

Geometrische und elektrische Angaben der untersuchten planaren Strukturen

A.1 SBD-Strukturen

Die geometrischen Angaben der beiden in Abschnitt 3.3 beschriebenen Elektrodensysteme (Streifenstruktur und Lochstruktur) sind in Tabelle A.1 zusammengefasst. Die hier benutzten Symbole sind in Abb. A.1 und Abb. A.2 grafisch verdeutlicht.

Für die Untersuchungen mittels der Absorptionsspektroskopie wird eine vereinfachte Struktur der SBD entworfen. Die Entladungselektrode besteht aus einem einzigen Metallstreifen, an dem die Hochspannung angelegt wird. Die technischen Daten dieser Struktur sind in Tabelle A.2 zu sehen.

A.2 ISD-Strukturen

Die geometrischen und elektrischen Eigenschaften der zur Herstellung der ISD-Struktur (siehe Abschnitt 3.3) benutzten Materialien sind in Tabelle A.3 aufgelistet. Die Silikonharzschicht (Phenylmethylpolysiloxanharz) wird durch das Spin-Coater-Verfahren und der DLC-Film durch ein PECVD-Verfahren über die Entladungselektrode aufgetragen.

A.3 CBD-Strukturen

In Tabelle A.4 sind die in Abb. A.3 gezeigten geometrischen Abmessungen und technischen Daten der CBD-Struktur dargestellt.

Größe	Symbol	Wert
Breite der Keramikplatte	W_c	85 mm
Länge der Keramikplatte	L_c	62,5 mm
Dicke der Keramikplatte	d_c	0,38 mm
Breite der Entladungselektrode	W_d	66,5 mm
Länge der Entladungselektrode	L_d	46 mm
Dicke der Entladungselektrode	d_d	10 μm
Breite der Induktionselektrode	W_i	67,5 mm
Länge der Induktionselektrode	L_i	46,5 mm
Dicke der Induktionselektrode	d_i	10 μm
Breite des Elektrodenstreifens	W_s	1 mm
Länge des Elektrodenstreifens	L_s	43 mm
Abstand zwischen den Streifen	a	1,5 mm
Streifenanzahl	N	27
Durchmesser des Loches	d_h	1,45 mm
Lochabstand	a	2,6 mm
Abstand zwischen zwei Lochreihen	h	2,25 mm
Anzahl der Lochreihen	M	19
Löcheranzahl in einer Reihe	N	23 oder 24

Tabelle A.1: Geometrische Angaben der beiden SBD-Strukturen: Streifen- und Lochstruktur

Parameter	Größe
Material der Keramikplatte	Al_2O_3
Dielektrizitätskonstante der Keramikplatte	9,5
Dicke der Keramikplatte	0,38 mm
Elektrodenmaterial	W
Breite der Entladungselektrode	1,2 mm
Länge der Entladungselektrode	15 mm
Dicke der Entladungselektrode	10 μm
Induktionselektrode-links	2,7 mm
Induktionselektrode-rechts	3,2 mm
Länge der Induktionselektrode	17 mm

Tabelle A.2: Angaben der mit der Absorptionsspektroskopie untersuchten SBD-Struktur

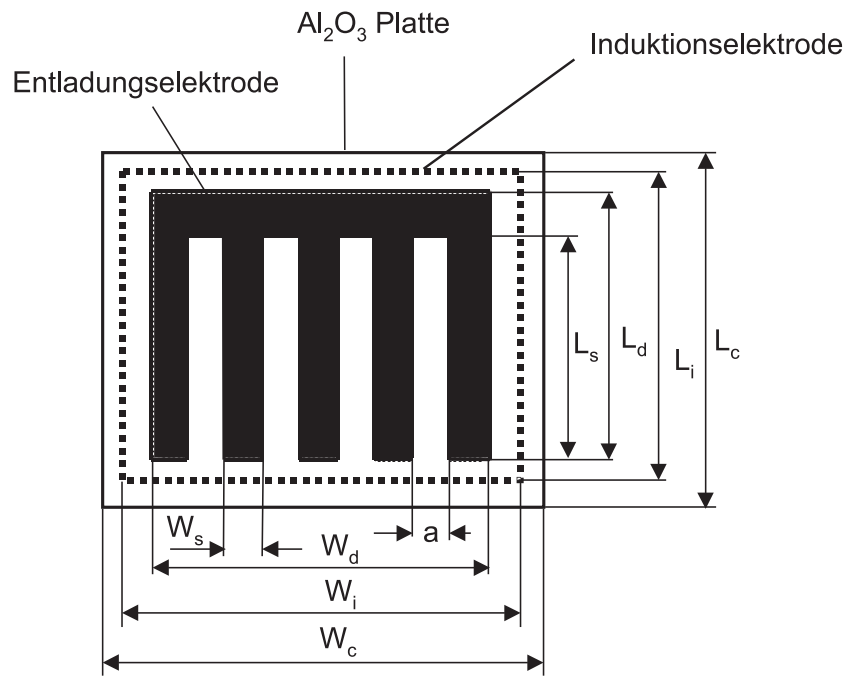


Abbildung A.1: Die Streifen-Struktur in Draufsicht

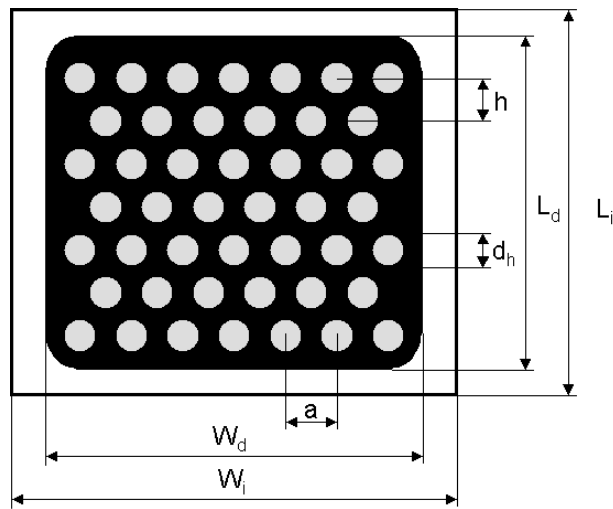


Abbildung A.2: Die Loch-Struktur in Draufsicht

Material	Dielektrizitätskonstante	Dielektrischer Verlustfaktor	Dicke
Al_2O_3 Keramikplatte	9,5	6×10^{-4}	0,38 mm
Silikonharz-Schicht	3	10^{-3}	10 μm
DLC-Film	4	8×10^{-4}	1 μm

Tabelle A.3: Elektrische und geometrische Eigenschaften der bei der ISD-Struktur benutzten Materialien

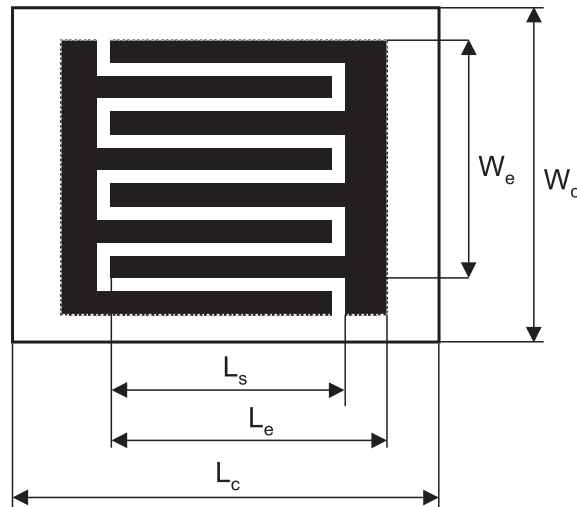


Abbildung A.3: Die CBD-Struktur in Draufsicht

Größe	Symbol	Wert
Breite der Keramikplatte	W_c	60 mm
Länge der Keramikplatte	L_c	84 mm
Dicke der Keramikplatte	d_c	0,25 mm
Breite der Elektrodenstreifen	W_s	1 mm
Länge der Elektrodenstreifen	L_s	67 mm
Dicke der Elektrode	d_e	10 μm
Breite der Elektrode	W_e	44 mm
Länge der Elektrode	L_e	69 mm
Abstand zwischen den Streifen	a	0,5 mm
Streifenanzahl per Elektrode	N	15
Dielektrizitätskonstante der Keramikplatte	ϵ_r	9,5
Dielektrizitätskonstante der Vergussmasse	ϵ_r	3,5
Durchschlagfestigkeit der Vergussmasse	U_d	27 kV/mm
Dielektrischer Verlustfaktor der Vergussmasse	$\tan\delta$	10^{-2}

Tabelle A.4: Geometrische und elektrische Angaben der CBD-Struktur

Anhang B

Grotrian-Diagramm für atomares Helium

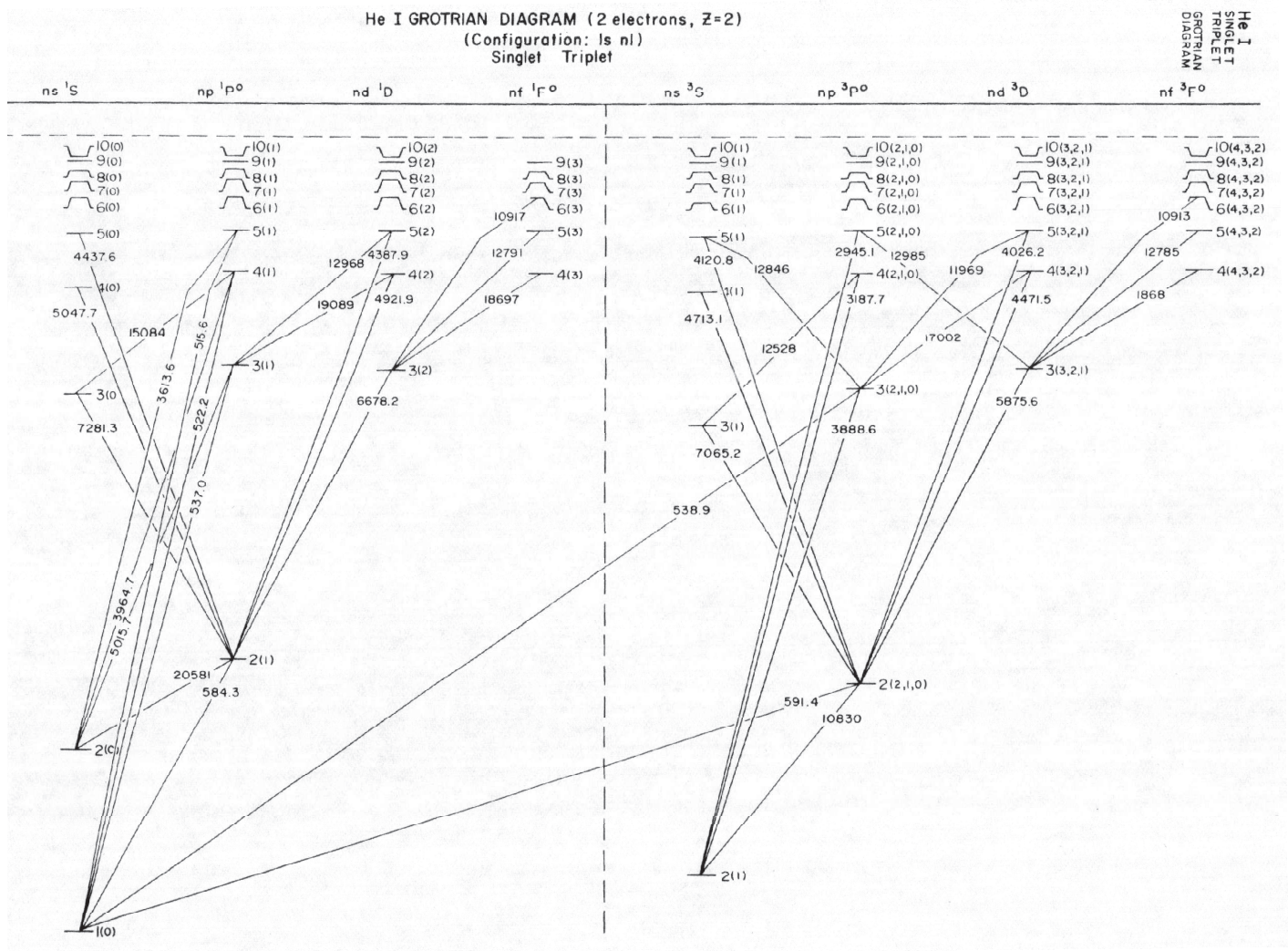


Abbildung B.1: Grotrian-Diagramm für atomares Helium

Anhang C

Fraktale Gasverteilung

Die für das in dieser Arbeit vorgestellte neuartige Plasmaquellenkonzept (siehe Abschnitt 6.4) geforderte kontrollierte und gleichmäßige Gasführung über das gesamten Plasmamodul (und auf übergeordneter Ebene über dem gesamten Plasmasystem) lässt sich durch eine fraktale Gasführung realisieren. Hier wird die technische Zeichnung der im *fmt* entwickelten und schon für die Auslegung von großflächigen Hohlkathoden-Plasmajetquellen eingesetzten fraktalen Gasverteilung zur homogenen Verteilung des Gasstromes auf 48 Plasmajets verdeutlicht.

Die dargestellte runde Quellengeometrie ist 120° periodisch und wird mittels CNC-Fräsung gefertigt. Mit dieser Verteilungsgeometrie wird garantiert, daß jeder Plasmajet die gleiche Weglänge vom Gaseinlass der Quelle bis zum Jetauslass aufweist. Diese fraktale Gasverteilung ist für die Plasmagaszuführung und zusätzlich für die Monomergaszuführung innerhalb der Quelle platziert (zwei unabhängige Systeme). Somit wird auch das Monomergas homogen dem Plasmaprozess zugeführt [132].

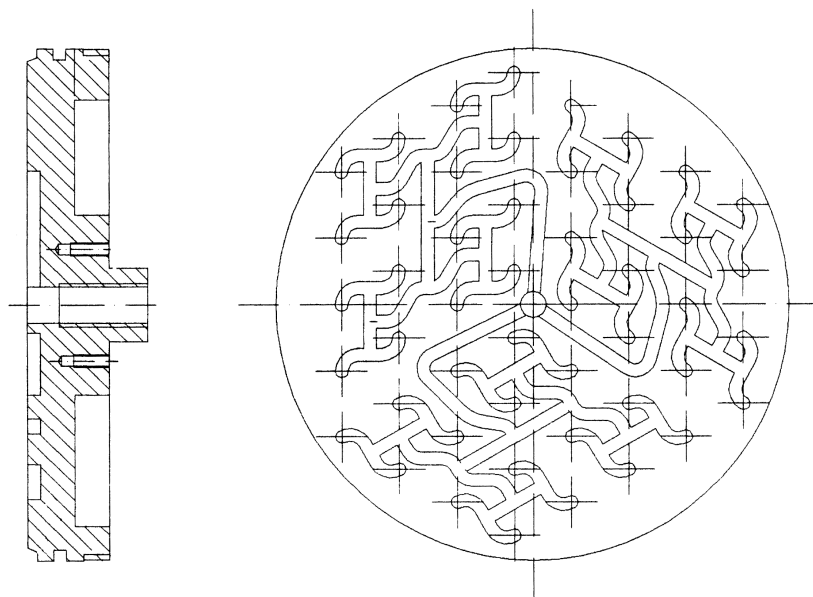


Abbildung C.1: Konstruktionsskizze der fraktalen Gasverteilung

Literaturverzeichnis

- [1] H. Akiyama, T. Takamtsu, C. Yamabe and C. Horii, *J. Phys. E. Sci. Instr.* **17**, (1984) S. 2014
- [2] E. Aldea, C. P. G. Schrauwen and M. C. M. van de Sanden, Generation of a Stable Atmospheric Glow in a DBD Configuration Abstract, *Proc. 16th ISPC, Taormina, Italy* (2003)
- [3] E. Aldea, P. Peeters, H. De Vries and M.C.M. Van De Sanden, Atmospheric Glow Stabilization. Do we need preionization? *Proc. 9th PSE, Garmisch-Partenkirchen, Germany* (2004)
- [4] D. Andruczyk, P. X. Feng, B. W. James and J. Howard, Comparison of hollow cathode and Penning discharges for metastable He production, *Plasma Sources Sci. Technol.* **11**(2002) S. 426 – 430.
- [5] T. Arikawa, K. Kanazawa and S. Tsurubuchi, Penning and dissociative ionizations of methane molecules in collisions with metastable helium atoms, *Mass Spectroscopy* **31** (1983) S. 97–104.
- [6] T. Aumann, D. Theirich and J. Engemann, Rapid surface modification of polyethylene in microwave and r.f.- plasmas: comparative study, *Surf.Coat. Technol.*, **142** (2001) S. 169-174.
- [7] S. Baba and T. Endo: US Patent 6 040 055 (1997).
- [8] N. Y. Babaeva, G. V. Naidis, G. Pietsch, Simulation of positive barrier discharges on a dielectric surface, in *Proc. XXV ICPIG*, Nagoya, Japan, 17-22 July (2001), Vol 4, S. 31–32
- [9] J. P. Boeuf, L.C. Pitchford and Th. Callegari, Understanding Atmospheric Pressure Dielectric Barrier Discharges and Glow Discharges in Small Geometry, *Proc. 17th ESCAMPIG*, Constanta, Romania (2004)
- [10] R. E. Beverly III, Electrical, gasdynamic and radiative properties of planar surface discharges, *J. Appl. Phys.* **60** (1986) S. 104 – 124.
- [11] R. E. Beverly III, Electrical, gasdynamic and radiative properties of planar surface discharges, *J. Appl. Phys.* **60** (1986) S. 104 – 124.

- [12] BMBF-Verbundprojekt: MModulare Atmosphärendruck-Plasma-Metastabilen-Quellen mit kontrollierter Gasführung, Teilvorhaben: Atmosphärendruckplasmen mit koplanaerer Barrierenentladung, FKZ 13N8749 (2004)
- [13] N. K. Bibinov, A. A. Feteev, and K. Wisemann, On the influence of metastable reactions on rotational temperatures in dielectric barrier discharges in He-N₂ gas mixtures, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **34** (2001) S. 1819–1826.
- [14] N. K. Bibinov, A. A. Feteev and K. Wisemann, Variation of the gas temperature in He/N₂ barrier discharges, *Plasma Sources Sci. Technol.* **34** (2001) S. 579–588.
- [15] H. S. Bille, Verfahren zur Verbesserung der Oberflächenaktivität von elektrisch leitenden Trägerbahnen, insbesondere Aluminiumfolien. Patentanmeldung DE 20 14 646,
- [16] M. A. Biondi, Ionisation by the collision of pairs of metastable atoms, *Phys. Rev.* **82** (1951) S. 453–454.
- [17] M. A. Biondi, Diffusion, de-excitation, and ionization cross sections for metastable atoms. I., *Phys. Rev.* **88** (1952) S. 660–665.
- [18] W. L. Borst, Excitation of metastable argon and helium atoms by electron impact, *Phys. Rev. A* **9** (1974) S. 1195–1200.
- [19] Dj. A. Bošan, M. K. Radović and T. V. Janović, The self-quenching process and half de-excitation time of metastables in a nitrogen afterglow, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **27** (1994) S. 286–295.
- [20] J. V. Božin, V. V. Urošević and Z. Lj. Petrović, The use of N₂ molecules for detection of rare gas metastables in swarm experiments, *Proc. of the 3rd International Swarm Seminar*, Innsbruck, Austria, University of Innsbruck, (1983) S. 103–108.
- [21] R. Brandenburg, K. V. Kozlov, F. Massines, P. Michel, H.-E. Wagner, Dielectric barrier discharges in Nitrogen: transition from the filamentary to the glow mode, *Proceedings of Hakone VII Conference*, Greifswald (2000) S. 93–97,
- [22] Th. Callegari, R. Ganter, J. P. Boeuf, Diagnostics and modeling of plasma display cell, *J. Appl. Phys.* **88** (2000) S. 3905–3913.
- [23] J. Camparo, The diode laser in atomic physics, *Contem. phys.*, **26** (5), (1985) S. 443-477
- [24] M. B. R. Chang, Removal of SO₂ from gas streams using a dielectric barrier discharge and combined plasma photolysis, *J. Appl. Phys.* **69** (1991), S. 4409–4417.
- [25] J. S. Chang, R. M. Hobson, Y. Ichikawa and T. Kaneda, *Atomic and molecular processes in ionized gases*, Tokyo Denki Daigaku, Tokyo, ISBN 4-501-00570-X, (1995)
- [26] S. Chen, S. Ono, S. Teii and T. Yoshino, *Surf. Coat. Technol.*, **97** (1997), S. 378-384.
- [27] C. B. Collins, Z. Chen, V. T. Gylys, H. R. Jahani, J. M. Pouvesle and J. Stevefelt, The importance of three-body processes to reaction kinetics at atmospheric pressures – I: Archetype reactions of He species with N₂, *IEEE J. of Quantum Electronics* **QE-22** (1986) S. 38–46.

- [28] L. Dambies, C. Guimon, S. Yiacoumi, E. Guibal, *Colloids and Surfaces A: Physico-chemical and Engineering Aspects* **177** (2001), S. 203-214
- [29] J. L. Delcroix, C. M. Ferreira and A. Ricard, Metastables atoms and molecules in ionized gases, in *Principles of Laser Plasma* ed. by G. Bekefi, John Wiley & So. (1976)
- [30] W. Demtröder, *Laser spectroscopy* (New York: Springer) ch 6, (1996)
- [31] S. K. Dhali and I. Sardja, Dielectric barrier discharge for processing of SO₂/NO_x, *J. Appl. Phys.* **69** (1991) S. 6319–6324.
- [32] J. Drimal and J. Janca, Biological purification of water by an ozoniser with a discharge tube electrode, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **23** (1990) S. 7–11.
- [33] H. Drost: *Plasmachemie*; (Akademie-Verlag) Berlin (1978)
- [34] B. Eliasson, U. Kogelschatz and M. Hirth The Townsend/streamer transition in silent discharge in oxygen, *Proceedings XVII Intern. Conf. on Phenomena in Ionized Gases, ICPIG, Budapest* (1985) S. 202–208.
- [35] B. Eliasson, M. Hirth and U. Kogelschatz, Ozone synthesis from oxygen in dielectric barrier discharges, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **20** (1987) S. 1421–1437.
- [36] B. Eliasson and U. Kogelschatz, Modelling and applications of silent discharge plasmas, *IEEE Trans. Plas. Sci.* **19** (1991) S. 309–323.
- [37] J. Engemann, D. Korzec und E. G. Finanțu-Dinu, Vorrichtung zur Erzeugung eines APG-Plasmas, DE 103 03 543 A1 (2003)
- [38] D. W. Fahey, W. F. Parks and L. D. Schearer, High flux beam source of thermal rare-gas metastable atoms, *J. Phys. E: Sci. Instrum.* **13**, (1980) S. 381–383.
- [39] E. G. Finanțu-Dinu, D. Korzec, M. Teschke and J. Engemann, Influence of electrode layout on the performance of insulated surface discharge: electrical characterization, *Surface and Coatings Technology* **174–175**, (2003) S. 524–529.
- [40] E. G. Finanțu-Dinu, D. Korzec and J. Engemann, Investigation of the surface barrier discharge topology by use of intensified CCD camera, *Proc. of XXVI International Conference on Phenomena in Ionized Gases ICPIG 2003* Vol. 4, July 15–20, Greifswald, Germany, (2003) S. 61–62.
- [41] E. G. Finanțu-Dinu, D. Korzec and J. Engemann, Time resolved measurements in high pressure insulated and non-insulated surface discharges, *2nd Inter-Academia*, Warschau, Polen, Sept. 8–12, 2003
- [42] E. G. Finanțu-Dinu, D. Korzec, M. Teschke, J. Engemann, M. Miclea, K. Kunze and K. Niemax, Determination of He(2^3S) concentration in a surface barrier discharge: 2D distributions, *17th Europhysics Conference on Atomic and Molecular Physics of Ionized Gases ESCAMPIG*, Sept. 1–5, Constanta, Romania (2004)
- [43] W. A. Fitzsimmons, N. F. Lane and G. K. Walters, Diffusion of He(2^3S_1) in helium gas; (2^3S_1 - 1^1S_0) interaction potentials at long range, *Phys. Rev.* **174**, (1968) S. 193–200.

- [44] J. Franzke, A. Schnell and K. Niemax, Spectroscopic properties of commercial laser diodes, *Spectrochimica Acta Rev*, **15** (5), (1993) S.379–395
- [45] N. Gherardi, G. Gouda, E. Gat, A. Ricard and F. Massines, Transition from glow silent discharge to micro-discharges in nitrogen gas, *Plasma Sources Sci. Technol.* **9** (2000) S. 340–346.
- [46] N. Gherardi, S. Martin and F. Massines, A new approach to SiO₂ deposit using a N₂-SiH₄-N₂O glow dielectric barrier-controlled discharge at atmospheric pressure, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **33** (2000) S. L104–L108.
- [47] V. I. Gibalov and G. J. Pietsch, The development of dielectric barrier discharges in gas gaps and on surfaces, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **33** (2000) S. 2618–2636.
- [48] Yu. B. Golubovskii, V. A. Maiorov and J. F. Behnke, Influence of interaction between charged particles and dielectric surface over a homogeneous barrier discharge in nitrogen, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **35**, (2002) S. 751
- [49] Yu. B. Golubovsky, V. A. Maiorov, J. Behnke and J. F. Behnke, Modelling of the homogeneous barrier discharge in helium at atmospheric pressure, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **36**, (2003) S. 39–49.
- [50] R. Hackam and J. J. Lennon, *Proc. Phys. Soc.* **34**, (1964) S. 133.
- [51] H. D. Hagstrum, Auger ejection of electrons from tungsten by noble gas ions, *Phys. Rev.* **104**, (1956) S. 317 - 318.
- [52] H. D. Hagstrum, The development of ion-neutralization spectroscopy, *J. Vac. Sci. Technol.* **12**, (1975) S. 7–16.
- [53] K. Hakiyai, S. Iharu, S. Satoh, *El. Eng. In Japan*, **127**, 8 (1999)
- [54] T. Halfmann, J. Koensgen and K. Bergmann, A source for high intensity pulsed beam of metastable helium atoms, *Meas. Sci. Technol.* **11**, (2000) S. 1510–1514.
- [55] G. Hartmann and I. Gallimberti, The influence of metastable molecules on the streamer progression, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **8** (1975) S. 670–680.
- [56] E. A. Den Hartog, T. R. O'Brian, J. E. Lawler, Electron temperature and density diagnostics in a He glow discharge, *Phys. Rev. Lett.* **62** (1988) S. 1500–1503.
- [57] H. Hillborg und U. W. Gedde, *Polymer*, **39**, no.10 (1998), S. 1991–1998.
- [58] R. W. Huggins and J. H. Cahn, Metastable measurements in flowing helium afterglow, *J. Appl. Phys.* **38** (1967) S. 180–188.
- [59] Y. Itikawa et al., Cross sections for collisions of electrons and photons with nitrogen molecules, *J.Phys.Chem. Ref. Data* **15** (1986) S. 985.
- [60] J. Janca, P. Stahel, J. Buchta, D. Subedi, F. Krcma and J. Pryckova, A plasma surface treatment of polyester textile fabrics used for reinforcement of car tires, *Plasma and Polymers* **6** (2001) S. 15–26.

- [61] G. Janzen, *Plasmatechnik: Grundlagen, Anwendungen, Diagnostik*, Heidelberg: Hüthig (1992)
- [62] Q. Jiting and F. Chang-gen, Influence of surface charge on gas discharge characteristics, *J. Appl. Phys.* **84** (1998) S. 6943–6945.
- [63] J. Jonkers, M. van de Sande, A. Sola, A. Gamero and J. van der Mullen. On the differences between ionizing helium and argon plasmas at atmospheric pressure, *Plasma Sources Sci. Technol.* **12** (2003) S. 30–38.
- [64] M. Kamei and T. Mitsuhashi, *Surface Science* **463** (2000) L609-L612.
- [65] S. Kanazawa, M. Kogoma, T. Moriwaki, S. Okazaki, Stable glow plasma at atmospheric pressure, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **21** (1988) S. 838–840.
- [66] D. M. Kane and M. H. Dunn, Laser absorption measurements of atomic metastable densities, *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **16** (1983) S. 2709–2719.
- [67] J. Kataoka, A. Kanoh, N. Makino, K. Suzuki, S. Saitoh, H. Miyajima and Y. Mori, Dry etching characteristics of Si-based materials using CF_4/O_2 atmospheric pressure glow discharge, *Jpn. J. Appl. Phys.* **39** (2000) S. 294–298.
- [68] U. Kogelschatz, Fundamentals and applications of dielectric-barrier discharges, *Proceedings of Hakone VII Conference*, Greifswald (2000)
- [69] H. J. Kolker and H. H. Michels, Elastic scattering, diffusion, and excitation transfer of metastable helium in helium, *J. Chem. Phys.* **50** (1969) S. 1762–1771.
- [70] D. Korzec, M. Štefečka, Y. Imahori, M. Kando, Asymmetry in temporal evolution of surface discharges in oxygen, nitrogen and helium, *25th International Conference on Phenomena in Ionized Gases (ICPIG)*, Nagoya, Japan, Conf. Proc. ed. by Toshio Goto, Vol. 4 (ISBN 4-9900915-3-4) (2001) S. 47–48 .
- [71] D. Korzec, M. R. Talukder and M. Kando, Determination of metastable atom concentration by use of electrostatic probe technique, *Science and Technology of Advanced Materials* **2/3-4** (2001) S. 595–605.
- [72] D. Korzec, M. Štefečka, E. G. Finanțu-Dinu, J. Engemann and M. Kando, Non-stochastic discharge patterns and current-voltage signals of helium-nitrogen coplanar barrier discharges, *16th Europhysics Conference on Atomic and Molecular Physics of Ionized Gases (ESCAMPIG) and 5th International Conference on Reactive Plasmas (ICRP) Joint Meeting*, Grenoble, France, Conference Proceedings Vol. 1 (2002) S. 261–262.
- [73] D. Korzec, E. G. Finanțu-Dinu, G. L. Dinu, J. Engemann, M. Štefečka and M. Kando, Comparison of coplanar and surface barrier discharges operated in oxygen-nitrogen gas mixtures, *8th International Conference on Plasma Surface Engineering PSE 2002*, Garmisch-Partenkirchen, September 9–13 (2002).

- [74] D. Kozec, E. G. Finanțu-Dinu, M. Teschke, A. Schwabedissen, J. Engemann, J. Ráhel', M. Štefečka, Y. Imahori and M. Kando, Insulated surface discharge for metastables driven processing at atmospheric pressure, *Surface and Coatings Technol.* **169–170C** (2003) S. 230–234.
- [75] D. Kozec, E. G. Finanțu-Dinu and J. Engemann, Interpretation of the current signal collected from surface barrier discharge electrodes, *XXVI International Conference on Phenomena in Ionized Gases ICPIG*, July 15–20, Greifswald, Germany (2003)
- [76] D. Kozec, E. G. Finanțu-Dinu, M. Teschke, J. Engemann, M. Miclea, K. Kunze and K. Niemax, Determination of He(2^3S) concentration in a surface barrier discharge: time resolved analysis *17th Europhysics Conference on Atomic and Molecular Physics of Ionized Gases ESCAMPIG* September 1–5, Constanta, Romania, (2004)
- [77] I. A. Kossyi, A. Yu. Kostinsky, A. A. Matveyev, and V. P. Silakov, Kinetic schema of the non-equilibrium discharge in nitrogen-oxygen mixtures, *Plasma Sources Sci. Technol.* **1** (1992) S. 207–220.
- [78] K. V. Kozlov, P. Michel and H.-E. Wagner, Synthesis of organic compounds from mixtures of methane with carbon dioxide in dielectric-barrier discharges at atmospheric pressure, *Plasmas and Polymers* **5** (2000) S. 129–150.
- [79] E. Kunhardt and K. Becker, Method of generation and maintaining a glow plasma discharge, US Patents 6 005 349 (1999)
- [80] K. Kunze, M. Miclea, K. Niemax, E. G. Finanțu-Dinu, D. Kozec, M. Teschke and J. Engemann, Determination of He(2^3S) concentration in a surface barrier discharge: diode laser atomic absorption spectroscopy, *17th Europhysics Conference on Atomic and Molecular Physics of Ionized Gases (ESCAMPIG)*, September 1–5, Constanta, Romania, (2004)
- [81] R. Kurucz, P. Smith, C. Heise and J. Esmond, Atomic Spectral Line Database from CD-Rom 23 of R.L Kurucz (1996)
<http://cfa-www.harvard.edu/amdata/ampdata/kurucz23/sekur.html>
- [82] R. M. Langdon, K. G. Nichols and G. C. Thomas (1969), The density of He(2^3S) atoms in a high-pressure pulsed helium-neon laser discharge, *J. Phys. A* **2**, S. 611–619.
- [83] Y. Li, Y. Baba and T. Sekiguchi, *Journal of Materials Science*, **35** (2000), S. 612–6130
- [84] K. Li, M. Tanielien, Surface modification using an atmospheric pressure glow discharge plasma source, *US Patents*, 6 221 268 (2001)
- [85] D. Liu, S. Yu, T. Ma, Z. Song and X. Yang, Diamond-like carbon film deposited in the plasma of dielectric barrier discharge at atmospheric pressure, *Jpn. J. Appl. Phys.* **39** (2000) S. 3359–3360.
- [86] E. Lugscheider, K. Bobzin and M. Möller, The effect of PVD layer constitution on free surface energy, *Thin Solid Films*, **355–356** (1999), S. 367–373.
- [87] Product catalogue of Luminophor Joint Stock Company.

- [88] H. Ma, Y. Berthier and P. Marcus, *Appl. Surf. Science*, **153** (1999), S. 40–46.
- [89] F. Massines, A. Rabehi, P. Decomps, R. B. Gadri, P. Ségur and C. Mayoux, Experimental and theoretical study of a glow discharge at atmospheric pressure controlled by dielectric barrier, *J. Appl. Phys.* **83** (1998) S. 2950–2956.
- [90] F. Massines and G. Gouda, A comparison of polypropylene-surface treatment by filamentary, homogeneous and glow discharges in helium at atmospheric pressure, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **31** (1998) S. 3411–3420.
- [91] F. Massines and P. Ségur, Easy to implement diagnostics of a glow dielectric barrier discharge, *APP Spring Meeting 2001: Diagnostics of non-equilibrium high pressure plasmas*, Bad-Honnef, February 18–21 (2001) S. 138–147.
- [92] F. Massines, G. Gouda, N. Gherardi, N. Duran and E. Croquesel, The role of dielectric barrier discharge atmosphere and physics on polypropylene surface treatment, *Plasma and Polymers*, **6**, Nos 1/2 (2001), S. 2618–2636.
- [93] F. Massines and F. Segur, Fundamentals of dielectric barrier glow discharges, Vito, Mol, Belgium, 22 february (2002)
- [94] F. Masuda, K. Nakata and K. Tohmoto, *Trans JWRI* **12**, 2 (1983) S. 111
- [95] S. Masuda, K. Akutsu, M. Kuroda, Y. Awatsu and Y. Shibuya, Ceramic based ozonizer using high-frequency discharge, *IEEE Tr. Industry Appl.* **24** (1988) S. 223–231.
- [96] J. McClelland, Exposure of lithographic resists by metastable rare gas atoms, *US Patent* 5,851,725 (1998)
- [97] E. Menthe and K. T. Rie, Plasma nitriding and plasma nitrocarburizing of electroplated hard chromium to increase the wear and the corrosion properties, *Surf. Coat. Technol.* **112** (1999), S. 217–220
- [98] M. W. Millard, P. P. Yaney, B. N. Ganguly and C. A. DeJosaph Jr, Diode laser absorption measurements of metastable helium in glow discharges, *Plasma Sources Sci. Technol.* **7** (1998) S. 389–394.
- [99] I. Milosev, H. H. Strehblow and B. Navinsek, *Surf. Coat. Technol.* **74-75** (1995), S. 897–902.
- [100] O. Motret, J. M. Pouvesle and J. Stevefelt, Spectroscopic study of the afterglow excited by intense electrical discharges in high-pressure helium hydrogen mixtures, *J. Chem. Phys.* **83** (1985) S. 1095–1100.
- [101] D.F.T. Mullanphy, G. Peach, I.B. Whittingham, Self-broadening of singlet lines of Helium, *J.Phys.B: At. Mol. Opt. Phys*, **24** (1991), S. 3709–3726.
- [102] G. Musa, A. Popescu, A. Baltog, C. P. Lungu, M-Effect-monochromatization of the radiation of discharges in multiple gas mixtures, *Romanian Reports in Physics*, **45** (1993), S. 287–341.
- [103] E. E. Muschlitz, Metastable atoms and molecules, *Science* **159** (1968) S. 599–604.

- [104] Myers, G. and A. J. Cunningham, Rate measurements of reactions of helium metastable species at atmospheric pressures. I. He (2^3S) in pure afterglows, *J. Chem. Phys.* **67** (1977) S. 247–253
- [105] I. Novak and I. Chodak, *Die Angewandte Makromolekulare Chemie*, **260** (1998) S. 47–51.
- [106] G. R. Nowling, S. E. Babayan, V. Jankovic and R. F. Hicks, Remote-plasma enhanced chemical vapor deposition of silicon nitride at atmospheric pressure, *Plasma Sources Sci. Technol.* **11** (2002) S. 97–103.
- [107] K. Ohno, T. Takami and K. Mitsuke, State-resolved collision energy dependence on Penning ionization cross sections for N_2 and CO_2 by He^*2^3S , *J. Chem. Phys.* **94** (1991) S. 2675–2687.
- [108] T. Ohwaki and Y. Taga, *J. Vac. Sci. Technology A*, **8**, no.3 (1990) S. 2173–76.
- [109] M. L. E. Oliphant, *Proc. Roy. Soc. (London)* **A124** (1929) S. 228.
- [110] D. K. Owens and R. C. Wendt, *J. Appl. Polymer Sci* **13** (1969) S. 1741.
- [111] H. D. Park, *Appl. Phys. Let.* **77** (2000) S. 14
- [112] C. Penache, M. Miclea, A. Bräuning-Demian, O. Hohn, S. Schössler, T. Jahnke, K. Niemax and H. Schmidt-Böcking, Characterization of a high-pressure microdischarge using diode laser atomic absorption spectroscopy, *Plasma Sources Sci. Technol.* **11**, (2002) S. 476–483.
- [113] F. Pereira Dos Santos, F. Perales, J. Léonard, A. Sinatra, J. Wang, F. Saverio Pavone, E. Rasel, C. S. Unnikrishnan and M. Leduc, Penning collisions of laser-cooled metastable helium atoms, *Eur. Phys. J. D* **14**, (2001) S. 15–22.
- [114] G. J. Pietsch, Peculiarities of dielectric barrier discharges, *Contrib. Plasma Phys.* **41**, (2001) S. 620–628.
- [115] A. V. Phelps and J. P. Molnar, Lifetimes of metastable states of noble gases, *Phys. Rev.* **89** (1953) S. 1202–1208.
- [116] A. V. Phelps, Absorption studies of helium metastable atoms and molecules, *Phys. Rev.* **99** (1955) S. 1307–1313.
- [117] K. Pochner and W. Neff, Atmospheric pressure gas discharges for surface treatment, *Surf. Coat. Technol.* **74-75** (1995) 394-398.
- [118] K. Pochner, Plasmachemische Prozesse mittels nichtthermischer Gasentladungen bei Atmosphärendruck, D 82 (Diss. RWTH Aachen) Shaker Verlag, Aachen (1999)
- [119] J. M. Pouvesle, A. Khacef and J. Stevefelt, Study of two-body and three-body channels for the reaction of metastable helium atoms with selected atomic and molecular species, *J. Chem. Phys.* **88** (1988) S. 3061–3071.

- [120] J. M. Pouvesle, A. Bouchoule and J. Stevefelt, Modelling of the charge transfer after-glow excited by intense electrical discharges in high pressure helium nitrogen mixture, *J. Chem. Phys.* **77**, (1982) S. 817–825.
- [121] C. Punset, Modelisation bidimensionnelle fluide d'un ecran a plasma, *PhD Thesis*, Universite Paul Sabatier, Toulouse (1998)
- [122] R. Prat, Y. J. Koh, Y. Babukutty, M. Kogoma, S. Okazaki and M. Kodama, Polymer deposition using atmospheric pressure plasma glow (APG) discharge, *Polymer*, **41** (2000) S. 7355–7360.
- [123] A. Rabehi, P. Ségur, F. Massines, R. Ben Gardi and M. C. Bordage, Investigation of the role of nitrogen impurities on the behaviour of an atmospheric-pressure glow discharge in helium *XXIII ICPIG (Toulouse, France, 17-22 July) IV* (1997) S. 44–5
- [124] Rapp, D. and P. Englander-Golden, Total cross sections for ionization and attachment in gases by electron impact. I. Positive ionisation, *J. Chem. Phys.* **43**, (1965) S. 1464–1479.
- [125] U. Reitz, J. G. H. Salge and R. Schwarz, Pulsed barrier discharges for thin film production at atmospheric pressure, *Surface and Coatings Technology*, **59** (1993) S. 144–147.
- [126] R. Richter and G. J. Pietsch, Discharge phenomena on a dielectric surface with extended electrodes, in *Proc. 11th Int. Conf. on Gas Discharges and Their Applications*, Tokyo, Japan (1995), Vol 2, S.280-283
- [127] J. R. Roth, *Industrial Plasma Engineering: Volume 1, Principles*, Institute of Physics Publishing - Bristol and Philadelphia, PA, USA (1995)
- [128] J. R. Roth, *Industrial Plasma Engineering: Volume 2, Applications to Nonthermal Plasma Processing* (Bristol: Institute of Physics Publishing)(2001)
- [129] J.R. Roth, P. Tsai, Method and apparatus for glow discharge plasma treatment of polymer materials at atmospheric pressure, *US Patents*, 5 456 972 (1995)
- [130] J.R. Roth, P. Tsai, C. Liu, C. Wadsworth, P. D. Spence, US Patent 5403 453 (1995)
- [131] Y. Sawada, S. Ogawa, M. Kogoma, Synthesis of plasma-polymerized tetraethoxysilane and hexamethyldisiloxane films prepared by atmospheric pressure glow discharge, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **28** (1995) S. 1661–1669.
- [132] V. Schaffer, Numerische Strömungssimulation in 13,56-MHz-Hohlkathoden-Plasmajet-Plasmaquellen für Oberflächenprozesse, Disertation, Uni-Wuppertal (2004)
- [133] K. Schmidt-Szalkowki, Z. Rzanek-Boroch, J. Sentek, Z. Rymuza, Z. Kusznerewicz, and M. Misiak, Thin film deposition from hexamethyldisiloxane and hexamethyldisilazane under dielectric barrier discharge (DBD) conditions, *Plasma and Polymers* **5** (2000) S. 173–190.
- [134] K. H. Schoenbach, A. El-Habachi, W. Shi and M. Ciocca, High-pressure hollow cathode discharges, *Plasma Sources Sci. Technol.* **6**, (1997) S. 468–477.

- [135] G. S. Selwyn, H. W. Herrmann, J. Park and I. Henins, *Materials processing using an atmospheric pressure, RF-generated plasma source*, *Contrib. Plasma Phys.* vol **6** (2001), S. 610-619
- [136] W. Siemens, Über die elektrostatische Induction und die Verzögerung des Stroms in Flaschedrähnen, *Poggendorfs Ann. Phys. Chem* **102** (1857) S. 66
- [137] M. Štefečka, D. Korzec, Y. Imahori, M. Širý and M. Kando, Experimental study of atmospheric pressure surface discharge in helium, *Science and Technology of Advanced Materials* **2/3-4** (2001) S. 587 – 593.
- [138] M. Štefečka, M. Kando, M. Černák, D. Korzec, E. G. Finanțu-Dinu, G. L. Dinu, J. Engemann, Spatial distribution of surface treatment efficiency in coplanar barrier discharge operated with oxygen-nitrogen gas mixtures, *8th International Conference on Plasma Surface Engineering PSE 2002*, Garmisch-Partenkirchen, September 9 – 13, (2002)
- [139] J. Stevefelt, J. M. Pouvesle and A. Bouhoule, Reaction kinetics of a high pressure helium fast discharge afterglow, *J. Chem. Phys.* **76** (1982) S. 4006 – 4015.
- [140] H.-H. Stiehl, J. Schweckendiek und M. Panahpurian, Vorrichtung zur Erzeugung von kalten Plasma für Wechsellspannungsanregung im kHz-Bereich, vorzugsweise zur Erzeugung von Ozon und Verfahren zur Herstellung der Vorrichtung. Patentanmeldung DE 37 31 168, (1987)
- [141] B. R. Strohmeier, *Contact Angle, Wettability and Adhesion*, Ed.K.L. Mittal, Utrecht, The Netherlands (1993), S. 453-468.
- [142] C. Sun, D. Zhang, L. Waldsworth, *Advances in Polymer Technology*, **18**, no.2 (1999) S. 171-180.
- [143] R. J. Van Brunt, P. von Glahn and T. Las, Anomalous stochastic behavior of partial discharge on aluminum oxide surfaces, *J. Appl. Phys.* **81** (1997) S. 840 – 854.
- [144] M. Tanaka and Y. Murooka, Nanosecond surface discharge development using the computer simulation methode, *J. Appl. Phys.* **61** (1987) S. 4471 – 4478.
- [145] M. Teschke, D. Korzec, E. G. Finanțu-Dinu and J. Engemann, Influence of electrode layout on the performance of insulated surface discharge: modelling by use of PSPICE, *Surface and Coatings Technology* **174 – 175**, (2003) S. 541 – 546.
- [146] M. Teschke, Gepulste Energieversorgung für den selbstgeführten, resonanten Betrieb von Atmosphärendruckplasmaquellen, (2003) *Diplom-Arbeit*, Uni-Wuppertal, FB E
- [147] M. Teschke, D. Korzec, E.G. Finanțu-Dinu, J. Engemann and R. Kennel, Resonant, high voltage, high power supply for atmospheric pressure plasma sources *IEEE Power Electronics Specialists Conference (Aachen, Germany, 20-25 June)* (2004)
- [148] R. Thyen, K. Höpfner, N. Kläke and C.-P. Klages, Cleaning of silicon and steel surfaces using dielectric barrier discharges, *Plasma and Polymers* **5** (2000) S. 91 – 102.

- [149] M. Tichý, M. Šicha, P. David and T. David, A collisional model of the positive ion collection by a cylindrical probe, *Contrib. Plasma Phys.* **34**, (1994) S. 59–68.
- [150] A. Treshchalov, H. Korge, A. Chizhik and A. Vill, The role of He₂ molecules in plasma kinetics of high pressure helium fast discharges, XXIII ICPIG, (1997)
- [151] H. W. Webb, The metastable state in mercure vapor, *Phys. Rev.* **24**, (1924) S. 113–128.
- [152] C. E. Wieman and L. Hollberg, Using diode lasers for atomic physics, *Rev. Sci. Instrum.* **62** (1991) S. 1–19.
- [153] Xueji Xu, Dielectric barrier discharge properties and applications *Thin Solid Films* **390** (2001)
- [154] H. Yamamoto, S. Shioji and S. Masuda, Synthesis of ultrafine particles by surface discharge-induced plasma chemical process (SPCP) and its application, *IEEE Tr. on Industry Applications* **28** (1992) S. 1189–1192.
- [155] V. M. Zakharova, Yu. M. Kagan, K. S. Mustafin and V. I. Perel, Probe measurements at medium pressures, *Soviet Physics Teck Phys* **5**, (1960) S. 411–418.
- [156] <http://www.nist.gov>

Danksagung

In erster Linie danke ich meinem Doktorvater Herrn Prof. Dr. Dr. h.c. Jürgen Engemann, für seine tatkräftige Unterstützung durch die Bereitstellung von Sach- und Finanzmitteln sowie für sein stetes Interesse am Fortgang der Arbeit.

Für die spontane Bereitschaft, sich als Zweitgutachter der Arbeit zur Verfügung zu stellen, bedanke ich mich recht herzlich bei Frau Prof. Dr.-Ing. Hella-Christin Scheer aus dem Fachbereich Elektrotechnik, Informationstechnik, Medientechnik der Bergischen Universität Wuppertal.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr.-Ing. Darek Korzec, der in der Zeit der Durchführung dieser Arbeit Leiter der Abteilung Metastables Engineering des *fmt* war, für die vielen fruchtbaren Diskussionen, die zahlreichen konstruktiven Vorschläge sowie für sein Vertrauen, seine stete freundliche Unterstützung in allen Fällen und seine unermüdliche Motivationskraft.

Bei Herrn Prof. Dr. Geavit Musa, meinem ersten Mentor, bei dem ich meine wissenschaftliche Karriere am National Institute for Laser, Plasma and Radiation Physics, Bukarest, Rumänien angefangen habe, möchte ich mich für seine andauernde fachliche und freundschaftliche Unterstützung ganz herzlich bedanken.

Desweiteren richtet sich mein Dank an meine Kollegen Dr. Axel Schwabedissen, Dr. Albrecht Brockhaus, Dipl.-Ing. Markus Teschke und Dipl.-Ing. Felix Leu für die sehr gute Zusammenarbeit, viele hilfreiche Diskussionen und ihre ständige Hilfsbereitschaft.

Ebenso bin ich Frau Dr. Manuela Miclea und Frau Dr. Kerstin Kunze vom Institute for Analytical Science (ISAS)-Dortmund für die Durchführung der DLAAS-Messungen zu großem Dank verpflichtet.

Weiter möchte ich mich bei meinen Arbeitskolleginnen Frau Dr. Anne Francis und Frau Margit Modest für die gründliche Korrektur der ersten Version und bei Herrn Dr. habil. Bert Fischer (Fachbereich C der Bergischen Universität Wuppertal) für seine sorgfältige Korrektur der zweiten Version dieser Arbeit bedanken.

Für die Hilfe bei einigen rechnerbasierten Problemen und für die freundschaftliche Arbeitsatmosphäre richte ich meinen Dank an Herr Dipl.-Ing. Sebastian Kytzia.

Nicht zuletzt danke ich meinem Mann Dipl.-Ing. Gino Dinu für die sehr gute Zusammenarbeit während seiner Zeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter im *fmt*, für seine große Geduld während der Erstellung dieser Arbeit und für die stete moralische und technische Unterstützung in guten und besonders in schwierigen Zeiten meines gesamten Studiums.

Mein bester Dank geht an meine Eltern, die mir das Studium ermöglichten, insbesondere an meine während dieser Arbeit leider verstorbene Mutter.

Anschließend danke ich dem durch die Deutsche Forschungsgemeinschaft DFG geförderten Graduiertenkolleg Hochtemperaturplasmaphysik für die finanzielle Unterstützung dieser Arbeit.