

# Kurzfassung

Hochfrequenz- und mikrowellengetriebene Plasmajets besitzen Relevanz für eine Vielzahl plasmabasierter Anwendungen. Dabei wird üblicherweise die kapazitive Leistungseinkopplung verwendet, bei welcher das Plasma von einem Strom durchflossen wird, ähnlich einem verlustbehafteten Dielektrikum. Die kapazitive Leistungseinkopplung ist einfach zu realisieren, geht jedoch mit einer Reihe technologischer Nachteile einher, wie Erosionseffekten, niedrigen erreichbaren Elektronenenergien und einem geringen Wirkungsgrad. Um diese Nachteile zu umgehen, verwendet die induktive Leistungseinkopplung magnetische Wechselfelder, welche einen Strom innerhalb des Plasmas induzieren. Letzterem kommt dabei die Rolle der Sekundärspule eines Transformators zu. Gegenstand dieser Arbeit ist die Modellierung und Simulation eines neuartigen mikrowellengetriebenen Plasmajets, welcher die kompakten Abmessungen einer miniaturisierten Jetquelle mit den Vorteilen der induktiven Leistungseinkopplung verbindet. Es wird schrittweise eine analytische Beschreibung unter Ausnutzung problemangepasster Näherungen entwickelt, bestehend aus zwei Teilmodellen. Einerseits einem elektromagnetischen Modell, welches die Maxwellgleichungen an ein Drude-Modell der Plasmaleitfähigkeit koppelt. Und andererseits einem globalen Plasmamodell, welches die Reaktionen innerhalb des Plasmas in Form von volumengemittelten Bilanzgleichungen beschreibt. Die anschließende Simulation verschiedener Plasmaparameter und Betriebszustände bildet die Grundlage für ein vertieftes Verständnis der neuartigen Plasmaquelle. Dies umfasst das Studium der Gleichgewichtspunkte der Entladung, des frequenzabhängigen Verhaltens von Plasma und Anpassnetzwerk und der räumlichen Verteilung des elektromagnetischen Feldes. Es zeigen sich zwei unabhängige Betriebsregime, welche sich bezüglich der Plasmaparameter, Feldverteilung und Kopplungseffizienz unterscheiden: Der induktive H-Mode bei hoher Elektronendichte, hoher Kopplungseffizienz und nahezu azimutalsymmetrischer Feldverteilung, sowie der kapazitive E-Mode bei niedriger Elektronendichte, geringer Kopplungseffizienz und inhomogener Feldverteilung. Der Übergang zwischen beiden Regimen ist von Hysterese gekennzeichnet. In einem nächsten Schritt werden die zentralen Modellaussagen an verfügbaren experimentellen Daten für Stickstoff gespiegelt. Für den induktiven Mode, bzw. bei hoher Leistung, stimmen Theorie und Experiment sehr gut überein. Bei niedriger Leistung, bzw. bei kapazitiver Leistungseinkopplung zeigen sich jedoch Abweichungen zwischen den Modellvorhersagen und den experimentellen Messwerten. Als vermutliche Ursache dieser Abweichungen wird die zunehmende räumliche Inhomogenität der Entladung bei niedriger Leistung identifiziert. Um diesen Umstand zu begegnen, wird abschließend ein dreidimensionales Modell der Elektronendichte für die Plasmazone und den Effluent entwickelt. Dieses beschreibt den Transport der Elektronen aufgrund von Diffusion und Drift im Rahmen einer partiellen Differentialgleichung. Die entstehende Lösung verbessert die Übereinstimmung von Theorie und Experiment bei niedriger Leistung und erlaubt es die Elektronendichte für beliebige Positionen entlang des Gasstroms und für eine große

# Kurzfassung

Hochfrequenz- und mikrowellengetriebene Plasmajets besitzen Relevanz für eine Vielzahl plasmabasierter Anwendungen. Dabei wird üblicherweise die kapazitive Leistungseinkopplung verwendet, bei welcher das Plasma von einem Strom durchflossen wird, ähnlich einem verlustbehafteten Dielektrikum. Die kapazitive Leistungseinkopplung ist einfach zu realisieren, geht jedoch mit einer Reihe technologischer Nachteile einher, wie Erosionseffekten, niedrigen erreichbaren Elektronenenergien und einem geringen Wirkungsgrad. Um diese Nachteile zu umgehen, verwendet die induktive Leistungseinkopplung magnetische Wechselfelder, welche einen Strom innerhalb des Plasmas induzieren. Letzterem kommt dabei die Rolle der Sekundärspule eines Transformators zu. Gegenstand dieser Arbeit ist die Modellierung und Simulation eines neuartigen mikrowellengetriebenen Plasmajets, welcher die kompakten Abmessungen einer miniaturisierten Jetquelle mit den Vorteilen der induktiven Leistungseinkopplung verbindet. Es wird schrittweise eine analytische Beschreibung unter Ausnutzung problemangepasster Näherungen entwickelt, bestehend aus zwei Teilmodellen. Einerseits einem elektromagnetischen Modell, welches die Maxwellgleichungen an ein Drude-Modell der Plasmaleitfähigkeit koppelt. Und andererseits einem globalen Plasmamodell, welches die Reaktionen innerhalb des Plasmas in Form von volumengemittelten Bilanzgleichungen beschreibt. Die anschließende Simulation verschiedener Plasmaparameter und Betriebszustände bildet die Grundlage für ein vertieftes Verständnis der neuartigen Plasmaquelle. Dies umfasst das Studium der Gleichgewichtspunkte der Entladung, des frequenzabhängigen Verhaltens von Plasma und Anpassnetzwerk und der räumlichen Verteilung des elektromagnetischen Feldes. Es zeigen sich zwei unabhängige Betriebsregime, welche sich bezüglich der Plasmaparameter, Feldverteilung und Kopplungseffizienz unterscheiden: Der induktive H-Mode bei hoher Elektronendichte, hoher Kopplungseffizienz und nahezu azimutalsymmetrischer Feldverteilung, sowie der kapazitive E-Mode bei niedriger Elektronendichte, geringer Kopplungseffizienz und inhomogener Feldverteilung. Der Übergang zwischen beiden Regimen ist von Hysterese gekennzeichnet. In einem nächsten Schritt werden die zentralen Modellaussagen an verfügbaren experimentellen Daten für Stickstoff gespiegelt. Für den induktiven Mode, bzw. bei hoher Leistung, stimmen Theorie und Experiment sehr gut überein. Bei niedriger Leistung, bzw. bei kapazitiver Leistungseinkopplung zeigen sich jedoch Abweichungen zwischen den Modellvorhersagen und den experimentellen Messwerten. Als vermutliche Ursache dieser Abweichungen wird die zunehmende räumliche Inhomogenität der Entladung bei niedriger Leistung identifiziert. Um diesen Umstand zu begegnen, wird abschließend ein dreidimensionales Modell der Elektronendichte für die Plasmazone und den Effluent entwickelt. Dieses beschreibt den Transport der Elektronen aufgrund von Diffusion und Drift im Rahmen einer partiellen Differentialgleichung. Die entstehende Lösung verbessert die Übereinstimmung von Theorie und Experiment bei niedriger Leistung und erlaubt es die Elektronendichte für beliebige Positionen entlang des Gasstroms und für eine große

Breite an Betriebsparameter zu berechnen. Zusammenfassend ergibt sich eine umfassende theoretische Charakterisierung, sowohl der physikalischen Grundlagen, als auch der technologierelevanten Eigenschaften der neuen Plasmaquelle. Gegenüber ressourcenintensiven numerischen Verfahren zeichnet sich der vorgestellte analytische Ansatz durch kurze Rechenzeiten und eine hohe Flexibilität aus.

Breite an Betriebsparameter zu berechnen. Zusammenfassend ergibt sich eine umfassende theoretische Charakterisierung, sowohl der physikalischen Grundlagen, als auch der technologierelevanten Eigenschaften der neuen Plasmaquelle. Gegenüber ressourcenintensiven numerischen Verfahren zeichnet sich der vorgestellte analytische Ansatz durch kurze Rechenzeiten und eine hohe Flexibilität aus.

# 1 Einleitung

## 1.1 Plasmajets

Die moderne Plasmatechnik ist eine Schlüsseltechnologie und zeichnet sich durch hohe wirtschaftliche Relevanz und ein rasches Wachstum aus [1–4]. Der Einsatz technologischer Plasmen bildet die Grundlage vieler industrieller Prozesse. Je nachdem, ob die Plasmaerzeugung und Anwendung am gleichen Ort stattfinden, werden Plasmaverfahren als direkt bzw. indirekt bezeichnet [5]. Im Falle direkter Plasmaprozesse wird die zu behandelnde Oberfläche zumeist in der Plasmakammer eingeschlossen und dort prozessiert. Anders verhält es sich bei indirekten Prozessen. Das Plasma wird zunächst in einer Quelle erzeugt und von dort, z.B. als Strahl, auf die zu prozessierende Oberfläche geleitet. Die Vorteile sind offensichtlich: Durch die räumliche Trennung ergeben sich keine Einschränkungen hinsichtlich der Bauformen der Plasmaquelle, insbesondere deren Größe. Folglich kann die Plasmaquelle unabhängig vom Anwendungsprozess optimiert werden.

Die Frage nach geeigneten Quellen führt zu einer grundsätzlichen, technischen Herausforderung: Die gewünschte Plasmaquelle soll sich bei möglichst hohen Drücken betreiben lassen und sich trotzdem fernab vom thermischen Gleichgewicht befinden. Der Betrieb bei Luftdruck ist besonders interessant, weil dieser den Einsatz von Vakuumtechnologie obsolet macht. Die eingekoppelte Leistung soll überwiegend in die Elektronenkomponente umgesetzt werden und zu einer möglichst hohen Elektronendichte führen. Die Suche nach geeigneten Plasmaquellen hat zur systematischen Erforschung und Optimierung von hochfrequenz- (RF) bzw. mikrowellengetriebenen (MW) Plasmajets geführt [6–10], die bis zu miniaturisierten Quellen reicht [11, 12]. Eine weitere interessante Technologie stellen die Dielectric Barrier Discharges (DBDs) dar [13].

Plasmajets bieten eine Reihe interessanter Vorteile, wie günstige Herstellung und Betrieb, sowie kompakte Bauformen und flexible Einsatzmöglichkeiten. Je nach Druckbereich umfassen die möglichen Einsatzfelder einen weiten Bereich von Oberflächenbehandlungen ( $10 - 10^3$  Pa) [14], wie z.B. Plasmaschichtenabscheidung bis hin zu verschiedenen biomedizinischen [15, 16] und umwelttechnischen Anwendungen [17] (z.B. Plasmakatalyse) bei Atmosphärendruck ( $10^5$  Pa). Die bei Plasmajets überwiegende kapazitive Leistungseinkopplung geht allerdings mit wesentlichen Nachteilen einher, wie einer begrenzten Effizienz und hohen Ionenenergien [6]. Es ist ersichtlich, dass ein kompakter, induktiv gekoppelter Plasmajet eine interessante Erweiterung des Spektrums der verfügbarer Plasmaquellen darstellen würde. Insbesondere ein weiter Druckbereich würde eine solche Quelle für eine Vielzahl technischer Anwendungen nutzbar machen [9, 10]. Der in dieser Arbeit untersuchte Doppelpjet qualifiziert sich in vielfacher Hinsicht für diese Eigenschaften.

# 1 Einleitung

## 1.1 Plasmajets

Die moderne Plasmatechnik ist eine Schlüsseltechnologie und zeichnet sich durch hohe wirtschaftliche Relevanz und ein rasches Wachstum aus [1–4]. Der Einsatz technologischer Plasmen bildet die Grundlage vieler industrieller Prozesse. Je nachdem, ob die Plasmaerzeugung und Anwendung am gleichen Ort stattfinden, werden Plasmaverfahren als direkt bzw. indirekt bezeichnet [5]. Im Falle direkter Plasmaprozesse wird die zu behandelnde Oberfläche zumeist in der Plasmakammer eingeschlossen und dort prozessiert. Anders verhält es sich bei indirekten Prozessen. Das Plasma wird zunächst in einer Quelle erzeugt und von dort, z.B. als Strahl, auf die zu prozessierende Oberfläche geleitet. Die Vorteile sind offensichtlich: Durch die räumliche Trennung ergeben sich keine Einschränkungen hinsichtlich der Bauformen der Plasmaquelle, insbesondere deren Größe. Folglich kann die Plasmaquelle unabhängig vom Anwendungsprozess optimiert werden.

Die Frage nach geeigneten Quellen führt zu einer grundsätzlichen, technischen Herausforderung: Die gewünschte Plasmaquelle soll sich bei möglichst hohen Drücken betreiben lassen und sich trotzdem fernab vom thermischen Gleichgewicht befinden. Der Betrieb bei Luftdruck ist besonders interessant, weil dieser den Einsatz von Vakuumtechnologie obsolet macht. Die eingekoppelte Leistung soll überwiegend in die Elektronenkomponente umgesetzt werden und zu einer möglichst hohen Elektronendichte führen. Die Suche nach geeigneten Plasmaquellen hat zur systematischen Erforschung und Optimierung von hochfrequenz- (RF) bzw. mikrowellengetriebenen (MW) Plasmajets geführt [6–10], die bis zu miniaturisierten Quellen reicht [11, 12]. Eine weitere interessante Technologie stellen die Dielectric Barrier Discharges (DBDs) dar [13].

Plasmajets bieten eine Reihe interessanter Vorteile, wie günstige Herstellung und Betrieb, sowie kompakte Bauformen und flexible Einsatzmöglichkeiten. Je nach Druckbereich umfassen die möglichen Einsatzfelder einen weiten Bereich von Oberflächenbehandlungen ( $10 - 10^3$  Pa) [14], wie z.B. Plasmaschichtenabscheidung bis hin zu verschiedenen biomedizinischen [15, 16] und umwelttechnischen Anwendungen [17] (z.B. Plasmakatalyse) bei Atmosphärendruck ( $10^5$  Pa). Die bei Plasmajets überwiegende kapazitive Leistungseinkopplung geht allerdings mit wesentlichen Nachteilen einher, wie einer begrenzten Effizienz und hohen Ionenenergien [6]. Es ist ersichtlich, dass ein kompakter, induktiv gekoppelter Plasmajet eine interessante Erweiterung des Spektrums der verfügbarer Plasmaquellen darstellen würde. Insbesondere ein weiter Druckbereich würde eine solche Quelle für eine Vielzahl technischer Anwendungen nutzbar machen [9, 10]. Der in dieser Arbeit untersuchte Doppelpjet qualifiziert sich in vielfacher Hinsicht für diese Eigenschaften.

## 1.2 Leistungseinkopplung in technischen Plasmen

Im Folgenden wird die Leistungseinkopplung in technische Plasmen näher betrachtet. Es wird zwischen kapazitiver und induktiver Leistungseinkopplung unterschieden. Beide Arten werden hinsichtlich ihrer Funktionsweise, spezifischer Eigenschaften und ihrer technologischen Vor- und Nachteile beschrieben. Abschließend wird auf Modenübergänge und Hysteresephänomene bei induktiv gekoppelten Plasmen eingegangen.

### 1.2.1 Kapazitiv gekoppelte Plasmen

Kapazitiv gekoppelte Plasmen, oder auch CCPs (capacitively coupled plasma) stellen eine der am weitesten verbreiteten Methoden der Plasmaerzeugung dar und bilden die Grundlage für viele industrielle plasmatechnische Anwendungen [18]. CCPs bestehen im Wesentlichen aus zwei einander gegenüberliegenden Elektroden in einem Vakuumgefäß, in deren Zwischenraum ein Plasma erzeugt wird. Sie werden in einem weiten Frequenzbereich von etwa 1 MHz bis 100 MHz betrieben; typischerweise bei 13.56 MHz [19]. Je nachdem, ob die beiden Elektroden von gleicher Größe und Form sind, oder nicht, spricht man von einem symmetrischen, bzw. asymmetrischen CCP.

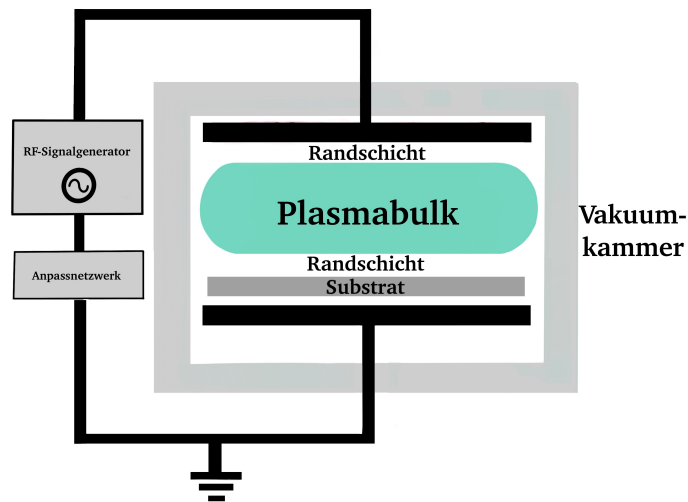


Abbildung 1.1: Vereinfachte Darstellung eines kapazitiv gekoppelten Plasmas (CCP). Der Plasmabulk baut sich zwischen den beiden Elektroden auf und wird durch die Randschichten begrenzt. Das zur Prozessierung vorgesehene Substrat befindet sich in der Vakuumkammer.

## 1.2 Leistungseinkopplung in technischen Plasmen

Im Folgenden wird die Leistungseinkopplung in technische Plasmen näher betrachtet. Es wird zwischen kapazitiver und induktiver Leistungseinkopplung unterschieden. Beide Arten werden hinsichtlich ihrer Funktionsweise, spezifischer Eigenschaften und ihrer technologischen Vor- und Nachteile beschrieben. Abschließend wird auf Modenübergänge und Hysteresephänomene bei induktiv gekoppelten Plasmen eingegangen.

### 1.2.1 Kapazitiv gekoppelte Plasmen

Kapazitiv gekoppelte Plasmen, oder auch CCPs (capacitively coupled plasma) stellen eine der am weitesten verbreiteten Methoden der Plasmaerzeugung dar und bilden die Grundlage für viele industrielle plasmatechnische Anwendungen [18]. CCPs bestehen im Wesentlichen aus zwei einander gegenüberliegenden Elektroden in einem Vakuumgefäß, in deren Zwischenraum ein Plasma erzeugt wird. Sie werden in einem weiten Frequenzbereich von etwa 1 MHz bis 100 MHz betrieben; typischerweise bei 13.56 MHz [19]. Je nachdem, ob die beiden Elektroden von gleicher Größe und Form sind, oder nicht, spricht man von einem symmetrischen, bzw. asymmetrischen CCP.

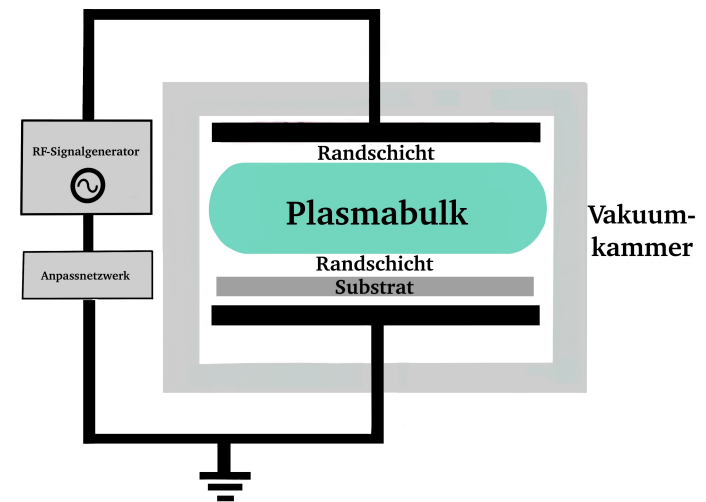


Abbildung 1.1: Vereinfachte Darstellung eines kapazitiv gekoppelten Plasmas (CCP). Der Plasmabulk baut sich zwischen den beiden Elektroden auf und wird durch die Randschichten begrenzt. Das zur Prozessierung vorgesehene Substrat befindet sich in der Vakuumkammer.

Der typische Aufbau eines CCPs ist in Abbildung 1.1 gezeigt. Zwischen den Elektroden bildet sich ein starkes elektrisches Wechselfeld aus, auf das die im Gas vorhandenen freien Elektronen reagieren. Das Zusammenspiel aus der Beschleunigung durch das elektrische Feld und Stößen lässt die Elektronen an Energie gewinnen. Die Kollision ausreichend schneller Elektronen mit Neutralgasteilchen führt zur Ionisation letzterer. Die dabei frei werdenden Elektronen können ihrerseits die Ionisation fortsetzen, sofern sie ausreichend hohe Energien besitzen. Dabei bezeichnet man das Zusammenwirken aus Beschleunigung der Elektronen und Ionisierung auch als (Plasma-)Heizung. Oberhalb einer bestimmten Durchbruchsspannung zündet die Entladung und ein Plasma entsteht. Ionen und Neutralgasteilchen bleiben jedoch nahezu unbeeinflusst durch die HF-Felder. Infolgedessen befindet sich die Entladung fernab vom thermischen Gleichgewicht und es stellen sich sehr unterschiedliche Temperaturen für Elektronen, Ionen und das Neutralgas ein ( $T_e \gg T_i \approx T_g$ ). Es kommt zur Ausbildung eines quasi neutralen Plasmabulks im Zentrum und stark elektronenverarmerter Randschichten vor den Elektroden [19].

In den Randschichten fällt der größte Teil der Spannung kapazitiv ab, wohingegen der Bulk abgeschirmt ist und nur einen Ohmschen Spannungsabfall aufweist. Dieser Umstand führt zu einem inhärenten Nachteil der kapazitiven Kopplung: Lediglich der Ohmsche Spannungsabfall über dem Bulk (die s.g. Bulkspannung) trägt zur Heizung der dort eingeschlossenen Elektronen bei. Die über den Randschichten abfallende Spannung erhöht hingegen in erster Linie die Energie der Ionen, welche aufgrund der Randschichtspannung eine Beschleunigung in Richtung der Elektroden erfahren [19]. Dies ist in mehrerer Hinsicht problematisch. Zum einen begrenzt es die Effizienz der Energieeinkopplung: Da die Elektronen einen Teil ihrer Energie durch Stöße an die Ionen übertragen, entziehen Ionenverluste dem Plasma ebenfalls Energie und begrenzen letztlich die erreichbare Elektronendichte. Zum anderen führt das ständige Auftreffen von Ionen auf die Elektroden zu deren Aufheizung und Erosion. Die technischen Auswirkungen dieses Effekts reichen von der Kontamination des Plasmas bis hin zur Zündung eines unerwünschten Lichtbogens [6]. Insbesondere die begrenzte Effizienz und erreichbare Elektronendichte stellen technologische Nachteile dar und haben die Suche nach alternativen Formen der Leistungseinkopplung motiviert. Sie stehen Vorteilen wie dem einfachen und kostengünstigen Aufbau von CCP Anlagen gegenüber.

Der typische Aufbau eines CCPs ist in Abbildung 1.1 gezeigt. Zwischen den Elektroden bildet sich ein starkes elektrisches Wechselfeld aus, auf das die im Gas vorhandenen freien Elektronen reagieren. Das Zusammenspiel aus der Beschleunigung durch das elektrische Feld und Stößen lässt die Elektronen an Energie gewinnen. Die Kollision ausreichend schneller Elektronen mit Neutralgasteilchen führt zur Ionisation letzterer. Die dabei frei werdenden Elektronen können ihrerseits die Ionisation fortsetzen, sofern sie ausreichend hohe Energien besitzen. Dabei bezeichnet man das Zusammenwirken aus Beschleunigung der Elektronen und Ionisierung auch als (Plasma-)Heizung. Oberhalb einer bestimmten Durchbruchsspannung zündet die Entladung und ein Plasma entsteht. Ionen und Neutralgasteilchen bleiben jedoch nahezu unbeeinflusst durch die HF-Felder. Infolgedessen befindet sich die Entladung fernab vom thermischen Gleichgewicht und es stellen sich sehr unterschiedliche Temperaturen für Elektronen, Ionen und das Neutralgas ein ( $T_e \gg T_i \approx T_g$ ). Es kommt zur Ausbildung eines quasi neutralen Plasmabulks im Zentrum und stark elektronenverarmerter Randschichten vor den Elektroden [19].

In den Randschichten fällt der größte Teil der Spannung kapazitiv ab, wohingegen der Bulk abgeschirmt ist und nur einen Ohmschen Spannungsabfall aufweist. Dieser Umstand führt zu einem inhärenten Nachteil der kapazitiven Kopplung: Lediglich der Ohmsche Spannungsabfall über dem Bulk (die s.g. Bulkspannung) trägt zur Heizung der dort eingeschlossenen Elektronen bei. Die über den Randschichten abfallende Spannung erhöht hingegen in erster Linie die Energie der Ionen, welche aufgrund der Randschichtspannung eine Beschleunigung in Richtung der Elektroden erfahren [19]. Dies ist in mehrerer Hinsicht problematisch. Zum einen begrenzt es die Effizienz der Energieeinkopplung: Da die Elektronen einen Teil ihrer Energie durch Stöße an die Ionen übertragen, entziehen Ionenverluste dem Plasma ebenfalls Energie und begrenzen letztlich die erreichbare Elektronendichte. Zum anderen führt das ständige Auftreffen von Ionen auf die Elektroden zu deren Aufheizung und Erosion. Die technischen Auswirkungen dieses Effekts reichen von der Kontamination des Plasmas bis hin zur Zündung eines unerwünschten Lichtbogens [6]. Insbesondere die begrenzte Effizienz und erreichbare Elektronendichte stellen technologische Nachteile dar und haben die Suche nach alternativen Formen der Leistungseinkopplung motiviert. Sie stehen Vorteilen wie dem einfachen und kostengünstigen Aufbau von CCP Anlagen gegenüber.