

# Massenspektrometrische Untersuchungen an der Plasma-Grenzschicht

Klaus Henrich \*

Physikalisches Institut der Universität Bonn

und Karl Gerhard Müller

Universität Essen — Gesamthochschule

(Z. Naturforsch. **29 a**, 1276—1283 [1974] ; eingegangen am 11. Juli 1973)

## Mass Spectrometry at the Plasma Sheath

Mass spectrometric measurements of positive ions emerging from Ar-plasmas at 0.1—0.6 Torr are described. The adaption of the mass spectrometer requires besides the extraction probe an ion optical system, which causes the focussing and bunching of the ion current on the entrance of the time-of-flight mass spectrometer. Systematic measurements of the velocity distributions of the different ion species reveal:

1. The Bohm-criterion is confirmed. In front of the wall the ions are heated in the quasineutral zone and are accelerated in the space charge zone, which here is in the order of magnitude of the ion mean free path.
2. Heating and accelerating increase with growing ion current to the extraction probe.
3. A further increase of the probe current causes collisions in the space charge zone which gives rise to a drop of the transmission of the optical system.
4. The measurement of the current of one ion species as a function of the probe current is a simple experimental proof for collisions of the ions in the space charge zone.

## Einleitung

Massenspektrometrische Methoden sind zur Identifizierung der Plasmakomponenten oft eingesetzt worden<sup>1,2</sup>, wie es vor allem zur Bestimmung von Beweglichkeiten und Reaktionen der Ionen notwendig ist. Die Ionen verlassen das Plasma entweder durch eine durchbohrte metallische Wandsonde, deren frei wählbares Sondenpotential eine Extraktion der Ladungsträger ermöglicht, oder sie effundieren<sup>3-5</sup> durch ein Loch in der Glaswand mit festem Wandpotential. Ein Rückschluß auf das wandnahe Plasma über den Teilchenstrom zur Wand ist jedoch in beiden Fällen nur dann möglich, wenn die Veränderungen der Ionen in der Grenzschicht vor der Wand bekannt oder vernachlässigbar sind; hier können wegen der hohen elektrischen Felder Stoßprozesse stattfinden, die im stoßbestimmten quasineutralen Plasma nicht auftreten. Die Untersuchung des Einflusses der Grenzschicht auf die Ionengeschwindigkeitsverteilungen ist daher von besonderer Bedeutung.

## Grenzschicht

Bei der Extraktion und der Effusion ist die Wand gegenüber dem Plasma immer mehr oder weniger stark negativ aufgeladen. Die so entstehende Grenzschicht teilt man zweckmäßig in zwei Zonen auf:

Die Raumladungszone\*\* liegt direkt vor der Wand. Hier herrschen hohe elektrische Felder und ein Überschub an Ionen. Die Ausdehnung hat die Größenordnung einiger Debye-Längen  $\lambda_D$ . Abhängig von der Größenordnung der freien Weglänge  $\lambda_i$  der Ionen im Vergleich zu  $\lambda_D$  unterscheiden wir die stoßfreie ( $\lambda_i \gg \lambda_D$ ) und die stoßbestimmte Raumladungszone ( $\lambda_i \ll \lambda_D$ ).

Die quasineutrale Zone liegt zwischen Raumladungszone und ungestörtem Plasma. Sie ist notwendig für den Transport der Ionen zur Wand, der mit einer Aufheizung der Ionen verbunden ist. Die Dichte der Ladungsträger nimmt zur Wand hin gemäß einer Boltzmann-Verteilung ab. Das elektrische Feld  $E$  erreicht bei stoßfreier Raumladungszone den zur Erfüllung des Bohm-Kriteriums<sup>6</sup>

$$\varepsilon_i \geq 1/2 k T_e \quad (1)$$

notwendigen Wert

$$E_{\text{Bohm}} = k T_e / e \lambda_i, \quad (2)$$

$\varepsilon_i$ : mittlere kinetische Energie der Ionen,  $T_e$ : Elektronentemperatur.

\* D 5. Sonderdruckanforderungen bitte an Prof. Dr. K. G. Müller, Universität Essen — Gesamthochschule, D-4300 Essen, Unionstraße 2.

\*\* In der Sondentheorie ist es üblich, vereinfacht die Raumladungszone mit der Schicht zu identifizieren. In eindeutigen Fällen schließen wir uns diesem Sprachgebrauch an.



### Geschwindigkeitsverteilungen

Die Geschwindigkeitsverteilung der Ionen, die die Wand erreichen, unterscheidet sich erheblich von der Verteilung im Inneren des Plasmas, denn die Ionen-geschwindigkeiten werden sowohl von der quasi-neutralen Zone als auch von der Raumladungszone verändert. Im ungestörten Plasma haben die Ionen eine Maxwell-Verteilung mit der Temperatur  $T_i$ , die in den von uns untersuchten Niederdruckplasmen ungefähr der Neutralgastemperatur  $T_n$  entspricht. In der quasineutralen Zone findet eine Aufheizung der Ionen durch die ansteigende Feldstärke statt. Die Verteilung wird asymmetrisch. Fahr und Müller<sup>7</sup> berechnen die Geschwindigkeitsverteilung für hohe, konstante Felder unter der Voraussetzung von Umladungsstößen bei konstanter freier Weglänge  $\lambda_i$  zu:

$$f(\mathbf{v}) = \frac{A}{\pi^{\frac{3}{2}}} n_i \exp \left[ -A(v_x^2 + v_y^2) - v_z^2 \right] (1 + \Phi(\sqrt{A} v_z)), \quad (3)$$

wobei die  $z$ -Achse die Koordinate senkrecht zur Wand hin gerichtet ist,  $\mathbf{v}$  auf  $T_n$  normiert,

$$A = e E \lambda_i / k T_n \quad (4)$$

und  $\Phi$  die Fehlerfunktion ist. Setzen wir in Gl. (4) den Ausdruck für die zur Schichtbildung notwendige Mindestfeldstärke (2) ein, so ergibt sich

$$A_{\min} = T_e / T_n. \quad (5)$$

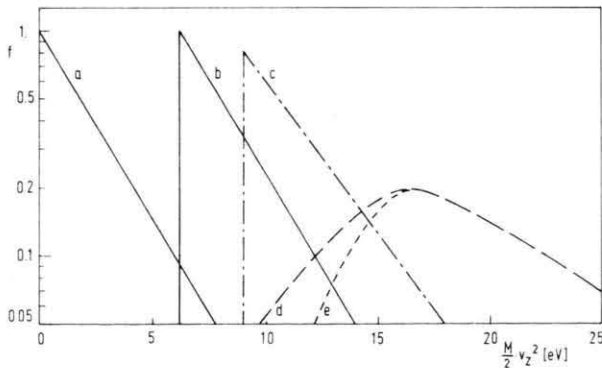


Abb. 1. Verteilung der  $z$ -Komponente der Geschwindigkeit der Ionen in der Schicht. Normierung  $f_a(0) = 1$ .

- Geschwindigkeitsverteilung bei starkem elektrischem Feld (Fahr und Müller<sup>7</sup>).
- Verteilung a) nach Beschleunigung in der stoßfreien Raumladungsschicht.
- Durch erhöhte Sondenspannung stärker aufgeheizte und beschleunigte Verteilung.
- Qualitative Darstellung einer Geschwindigkeitsverteilung vor der Wand bei stoßbestimmter Grenzschicht.
- Massenspektrometermeßkurve für die Verteilung d) wegen der verringerten Transmission für Ionen mit großer Querkomponente der Geschwindigkeit.

Mit den in unserem Experiment gemessenen Werten  $T_e \approx 30\,000\,^\circ\text{K}$ ,  $T_n \approx 300\,^\circ\text{K}$  wird  $A \approx 100$ . Dieses ist der kleinstmögliche Wert von  $A$  in der Raumladungszone.

Als Beispiel für eine aufgeheizte Ionenverteilung an der Grenze quasineutraler Zone – Raumladungszone ist in Abb. 1 Kurve a die zu  $A = 100$  gehörende Geschwindigkeitsverteilung dargestellt. In der stoßfreien Raumladungszone werden die Ionen dann noch durch die dort anliegende Spannungsdifferenz beschleunigt (Kurve b). Mit zunehmender Sondenspannung nimmt sowohl die Aufheizung in der quasineutralen Zone als auch die Beschleunigung in der Raumladungszone zu (Kurve c). Setzen jetzt jedoch Stöße in der Raumladungszone ein, so verbreitert sich die Geschwindigkeitsverteilung zu der in Kurve d angedeuteten Form. Tritt bei den Stößen noch eine Querkomponente ( $v_x, v_y$ ) der Geschwindigkeit auf, wie es mit Ausnahme der Umladungsstöße der Fall ist, dann wird die Meßbarkeit der Kurve d wegen der veränderten Transmission für Ionen gestört, und wir erwarten als Meßergebnis eine Geschwindigkeitsverteilung vom Typ der Kurve e.

Liegen im Plasma verschiedene Ionensorten vor, so wird der Mechanismus der Grenzschicht vor der Sonde durch die häufigste Ionensorte bestimmt. Es besteht dann die Möglichkeit, daß auf Grund der unterschiedlichen Stoßquerschnitte für die verschiedenen Ionen die eine Ionensorte in der Schicht stößt, die andere nicht.

Brömer und Hesse<sup>8</sup> ziehen aus Messungen der Ionenströme in Abhängigkeit von der Extraktionsspannung Rückschlüsse auf die  $z$ -Komponente der Ionengeschwindigkeit und damit auf die Art der Stöße in der – wegen des verwendeten Neutralgasdrucks von einigen Torr – stoßbestimmten Schicht. Detaillierte Information über die Stöße in der Schicht liefern jedoch erst die Geschwindigkeitsverteilungen der in das Massenspektrometer eintretenden Ionen. Geschwindigkeitsverteilungen des gesamten Ionenstroms aus Gasentladungen ohne Verwendung eines Massenspektrometers sind gemessen worden von Chaudhri<sup>9</sup>, Hinzpeter<sup>10</sup>, Wada und Heil<sup>11</sup> und Franklin, Studniarz und Gosh<sup>12</sup>. Massenspektrometrische Untersuchungen über die Geschwindigkeitsverteilungen einzelner Ionensorten bei ihrem Austritt aus der Anode oder Kathode sind ebenfalls schon mehrfach durchgeführt worden, so z. B. von Davis und Vanderslice<sup>13</sup>. Pahl, Lindinger

und Howorka<sup>14</sup> messen bei ihrer massenspektrometrischen Untersuchung des Mechanismus der zylindrischen Hohlkathode auch Energieverteilungen der Ionen im negativen Glimmlicht. Böhme und Goodings<sup>15</sup> führten Messungen mit einer Gegenspannungsmethode und gleichzeitiger Verwendung eines Quadrupolmassenspektrometers durch zur Bestimmung der Ionengeschwindigkeitsverteilungen aus einer Stickstoff-Mikrowellenentladung. Bei ihren Entladungsbedingungen ist wegen des geringen Drucks nicht mit Stößen in der Raumladungsschicht zu rechnen, was auch durch die Meßergebnisse bestätigt wird.

Bisher fehlen in der Literatur systematische Ausmessungen der Geschwindigkeitsverteilungen der einzelnen Ionensorten eines Plasmas in Abhängigkeit von den Sonden- und Plasmaparametern in dem Bereich mit  $\lambda_i$  und  $\lambda_D$  in vergleichbarer Größenordnung. Dieser Bereich erscheint uns aber besonders sinnvoll zu sein zur Ermittlung von Information über den Übergang von stoßfreier zu stoßbestimmter Schicht. Unsere Meßergebnisse wurden deshalb mit der Gegenfeldmethode in diesem Bereich gewonnen.

### Apparatur

Das zu untersuchende Plasma, eine stationäre positive Säule, befindet sich in einem Glasrohr mit 16,5 mm Durchmesser. Die Extraktionssonde be-

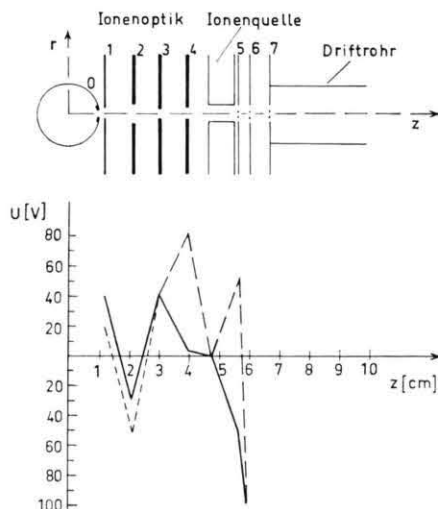


Abb. 2. Aufbau von Ionenoptik und TOF (Blendenanordnung maßstabgetreu) und Potentialverlauf  $U(z)$ : — in offenem Zustand, --- Abweichung bei geschlossenem Zustand, ---- Abweichung bei Energieanalyse zur Aussondierung von Energien kleiner  $\Delta U$ .

steht aus einem Platinplättchen von 50  $\mu\text{m}$  Dicke, das nach dem Einschmelzen in die Glaswand eine Sondenfläche von 1 mm Durchmesser besitzt mit einer Bohrung von 50  $\mu\text{m}$  Durchmesser. Durch dieses Loch gelangen sowohl Ionen als auch Neutrale in den Analysatorteil, der aus Ionenoptik und Time-of-flight-Massenspektrometer (Bendix RGA 1) besteht (Abbildung 2). Außer der Extraktionssonde ist in dem Entladungsrohr eine Zylindersonde aus Wolfram angebracht, die sowohl als Langmuirsche Sonde als auch als Referenzelektrode zur Extraktionssonde bei den massenspektrometrischen Messungen dienen kann.

Ein Diffusionspumpsystem mit hoher Saugleistung läßt den Betrieb des Massenspektrometers bis zu einem Druck von 5 Torr im Plasmagefäß zu.

Die Ionenoptik besteht aus kreisförmigen Lochblenden, deren Konstruktion die Kenntnis der Potentialverteilungen erfordert. Bei der von uns verwendeten Geometrie der Blendenanordnung bezüglich Abstand, Lochradius und Feldverhältnis auf beiden Seiten der Blende können wir nach Rechnungen von Glaser und Henneberg<sup>16</sup> die Blenden einzeln betrachten und uns auf achsennahe Strahlen beschränken. Das Potential in der Mitte der Blende läßt sich nach Glaser<sup>17</sup> mit der Formel für eine rotationssymmetrische Blende berechnen:

$$U(z) - B_{Bl} = \frac{r_0}{\pi} (E_1 - E_2) \left( \frac{|z|}{r_0} \arctan \frac{|z|}{r_0} + 1 \right) - \frac{z}{2} (E_1 + E_2) \quad (6)$$

mit  $E_1, E_2$ : Feldstärken auf beiden Seiten der Blende in großem Abstand,

$r_0$ : Lochradius,

$z$ : Achse der Rotationssymmetrie.

### Prinzip der Messung

Zur Analyse der Ionen und Neutralteilchen verwenden wir ein Flugzeitmassenspektrometer, das mit einer Frequenz von 50 kHz die Häufigkeitsmessung der Massen 1 bis 960 durchführt. Diese sehr schnelle Analyse des gesamten Massenspektrums ist für die Auswahl des Massenspektrometers entscheidend gewesen, da hier zwar stationär, später aber auch an schnellveränderlichen Plasmen mit Sample-Technik gemessen werden soll.

Jeder Meßzyklus beginnt mit einem Draw-Out-Puls, der die in der „Ionenquelle“ bereitgestellten

Ionen in ein — weiter unten ausführlich beschriebenes — System von Beschleunigungsgittern mit anschließendem feldfreien Driftröhr hineinzieht. Die Driftzeit der einzelnen Ionensorten bis zur Kathode des Massenspektrometers ist dann eine Funktion des Verhältnisses Ionenmasse zu Ionenladung  $M/q$ . Ein gutes Auflösungsvermögen des Flugzeitmassenspektrometers erhält man nur dann, wenn folgende Forderungen erfüllt sind: Zum Zeitpunkt des Draw-Out-Pulses muß der Unterschied der axialen Geschwindigkeitskomponenten  $\Delta v_z$  der Ionen in der Ionenquelle und die Verteilung in axialer Richtung  $z$  gering sein; ein großes  $\Delta z$  würde eine unterschiedliche Energieaufnahme der Ionen in den Beschleunigungsfeldern zur Folge haben. Bei der Neutralgasanalyse mit dem Massenspektrometer sind diese Forderungen erfüllt, da die durch Elektronenstoß in der Ionenquelle erzeugten Ionen nur sehr geringe Geschwindigkeiten haben. Die Analyse von Ionen aus einem Plasma ist jedoch nicht ohne zusätzliche Maßnahmen möglich, denn durch das Extraktionsloch gelangt ein kontinuierlicher Strom verschiedener Ionen mit teilweise hohen Energien bis zu 30 eV und nicht vernachlässigbaren radialen Geschwindigkeitskomponenten  $v_r$  in den Analysatorraum. Deshalb muß eine Ionenoptik zwischen Extraktionssonde und Massenspektrometereingang eingesetzt werden. Diese soll das Ziel haben, daß nur zum Zeitpunkt des Draw-Out-Pulses Ionen in der Ionenquelle sind und daß die Ionen außerdem die oben angegebenen Bedingungen zur Erlangung eines guten Auflösungsvermögens erfüllen. Die ersten Blenden sind stationär und sorgen für eine Abbildung der Ionen. Die folgenden Blenden werden gepulst betrieben, so daß Laufzeiteffekte ein kleines  $\Delta v_z$  und  $\Delta z$  bewirken. Von uns durchgeführte Rechnungen<sup>18</sup> zeigen, daß dazu  $v_z = 0$  sehr viel schlechter geeignet ist als ein großes  $v_z$ ; so erreichen wir z. B. für Ionen, die mit einem Energieunterschied  $\Delta W = \pm 5$  eV in den Analysator eintreten, noch eine Auflösung von  $M/\Delta M = 40$ .

### Geschwindigkeitsanalyse

An dem Potentialberg zwischen den Blenden 3 und 4 baut sich aus dem konstanten Ioneneinstrom eine bestimmte Geschwindigkeitsverteilung  $f(v_z, z)$  auf. Es gilt wegen der Kontinuitätsgleichung für den Strom  $j$  an zwei verschiedenen Stellen  $z$

$$dj = \text{const} = v_{z1} f(v_{z1}, z_1) dv_{z1} = v_{z2} f(v_{z2}, z_2) dv_{z2}. \quad (7)$$

Mit dem Energiesatz

$$\frac{1}{2} M v_{z1}^2 + q U(z_1) = \frac{1}{2} M v_{z2}^2 + q U(z_2) \quad (8)$$

folgt daraus

$$f(v_{z1}, z_1) = f(v_{z2}, z_2). \quad (9)$$

Der Gatepuls der Dauer  $t$  an Blende 4 erfaßt alle Ionen zwischen den beiden Blenden 3 und 4, die in Abhängigkeit vom Ort  $z$  mindestens die Minimalgeschwindigkeit

$$v_{\min} = \frac{z}{t} - \frac{q E_{\text{GP}}}{2M} t \quad (10)$$

besitzen.  $E_{\text{GP}}$  ist das Saugfeld bei anliegendem Gatepuls. Die Zahl der von einem Gatepuls erfaßten Ionen beträgt damit

$$N = F \int_0^d dz \int_{\sqrt{v_{\min}^2 + \frac{2q}{M}(E_B z + \Delta U)}}^{\infty} f(v_z, 0) v_z dv_z, \quad (11)$$

$E_B$ : Bremsfeld zwischen den Blenden 3 und 4,

$F$ : Querschnittsfläche des Strahls.

Hierbei haben wir mit Hilfe der Gln. (7) und (8)  $f(v_z, z)$  auf den Ort  $z = 0$  der Extraktionsdüse umgerechnet und den Potentialverlauf der Abb. 2 mit dem Bremsfeld  $E_B$  und der Potentialbarriere  $\Delta U$  berücksichtigt. Der Gatepuls wird so gewählt, daß der Beitrag der in dem Bremsfeld  $E_B$  reflektierten Ionen vernachlässigbar ist und der Draw-Out-Puls des Massenspektrometers alle diese Ionen erfaßt.

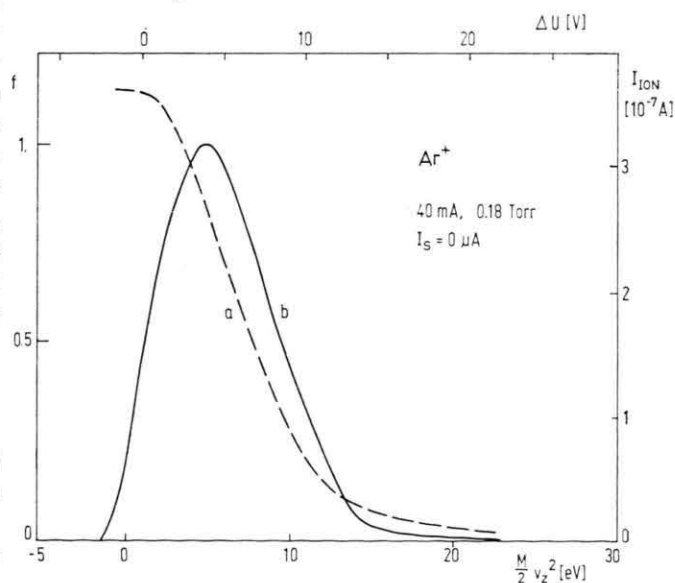


Abb. 3. a) Meßkurve der Energieverteilung; b) Geschwindigkeitsverteilung (Differentiation der Meßkurve).



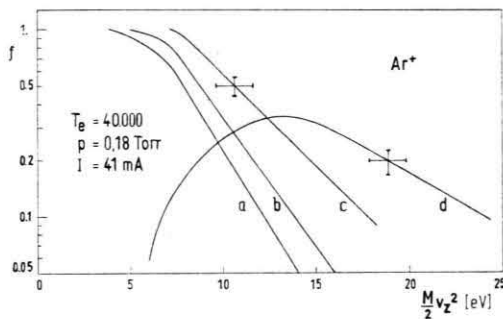
Differentiation nach  $\Delta U$  liefert

$$\frac{\partial N}{\partial \Delta U} = -\frac{q}{M} F \int_0^d dz \cdot f \left( \sqrt{v_{\min}^2 + \frac{2q}{M} (E_B z + \Delta U)}, 0 \right). \quad (12)$$

Diese Gleichung wurde zur Berechnung von  $f$  numerisch ausgewertet. Ein Beispiel von  $N$  bzw. dem daraus resultierenden Ionenstrom im Massenspektrometer als Funktion von  $\Delta U$  und dem mit Gl. (12) berechneten  $f$  als Funktion von  $M v_z^2/2$  zeigt Abbildung 3.

### Messungen

Die Geschwindigkeitsverteilungen der Ionen wurden an Plasmen der positiven Säule in Argon gemessen in dem Druckbereich 0,18–0,58 Torr bei Trägerdichten von ca.  $10^9$  Teilchen/cm<sup>3</sup>, Elektronentemperaturen von 2,6–4,3 eV und  $2 > \lambda_n/\lambda_D > 1$ .



| Kurve Nr. | Sondenstrom $I_s$ [ $\mu$ A] | Sondenspannung $-U_s$ [V] | $\Delta U_s$ | Energie des Maximums $e U_{\max}$ [eV] | $\Delta U_{\max}$ | $T_i$ [eV] |
|-----------|------------------------------|---------------------------|--------------|--|-------------------|------------|
| a         | -3                           | -2                        | 2            | 3,5                                    | 1,5               | 2,7        |
| b         | 0                            | 0                         | 2,5          | 5,0                                    | 1,2               | 3,0        |
| c         | +1,5                         | +2,5                      | 12,5         | 6,2                                    | 5,3               | 4,4        |
| d         | +3,0                         | +15                       | 11,5         | 11,5                                   |                   | 8,6        |

Abb. 4. Energieverteilungen von  $\text{Ar}^+$ -Ionen aus einem Ar-Plasma ( $p = 0,18$  Torr,  $I = 41$  mA,  $T_e = 3,4$  eV,  $\lambda_n/\lambda_D = 1,9$ ) bei verschiedenen Sondenströmen. Die angegebenen Fehler beziehen sich auf den Bereich  $0,1 \leq f \leq 0,9$ .

In Abb. 4 ist ein Beispiel für die Veränderung der auf die Wand gerichteten Komponente der Verteilung von  $\text{Ar}^+$  in Abhängigkeit vom Sondenstrom dargestellt. Die Ionentemperaturen wurden aus den Steigungen der Kurven a–d unter der Annahme einer Maxwell-Verteilung gewonnen. Für die Kurve

d ist diese Temperatur nur ein Richtwert, da hier sicherlich keine Maxwell-Verteilung vorliegt.

Zum übersichtlichen Vergleich der Geschwindigkeitsverteilungen der einzelnen Ionensorten  $\text{Ar}^+$  und  $\text{Ar}_2^+$  der untersuchten Plasmen werden die Kurven durch einen Punkt ersetzt: das jeweilige Maximum  $f_{\max}$  gilt als Maßzahl für die Form der Ionenverteilung; ein großer Wert entspricht einer Verteilung mit geringer Halbwertsbreite und ein kleiner Wert einer flachen, breiten Verteilung. Die sich so ergebenden Kurven für die mit ca. 90% häufigste Ionensorte  $\text{Ar}^+$  und für die mit nur ca. 10% auftretenden  $\text{Ar}_2^+$ -Ionen sind in den Abb. 5, 6, 8 und 9 dargestellt. Zusätzlich ist in den Abb. 7 und 10 jeweils ein Beispiel des entsprechenden Verlaufs des Stroms dieser Ionensorten aufgetragen.

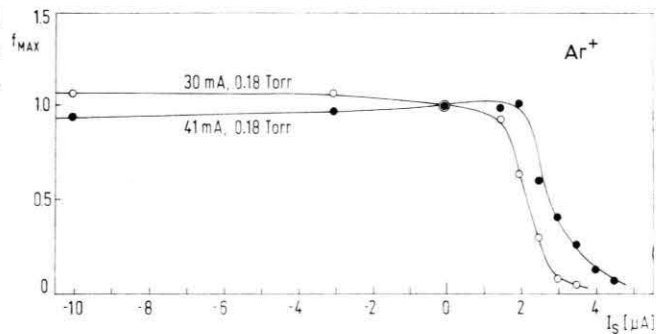


Abb. 5. Veränderung der Geschwindigkeitsverteilungen von  $\text{Ar}^+$ , charakterisiert durch das Maximum  $f_{\max}$ , in Abhängigkeit von dem Sondenstrom  $I_s$ .

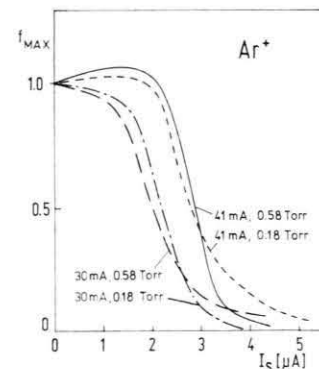


Abb. 6. Veränderung der Geschwindigkeitsverteilung von  $\text{Ar}^+$  im besonders interessanten Bereich mit  $I_s \geq 0 \mu\text{A}$ .

In den von uns untersuchten Plasmen treten die  $\text{H}_3\text{O}^+$ -Ionen nur in geringer Konzentration auf. Wegen der dadurch entstandenen Meßfehler wurden die  $\text{H}_3\text{O}^+$ -Messungen nicht systematisch ausgewertet.

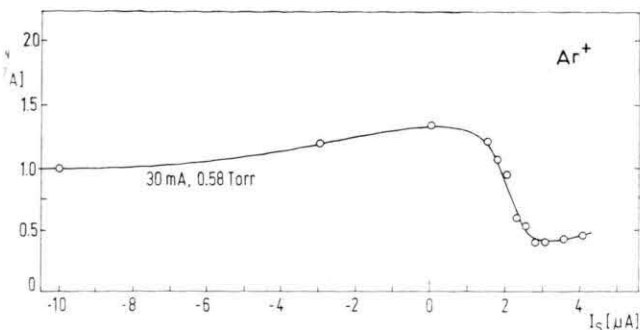


Abb. 7.  $\text{Ar}^+$ -Strom zur Sonde als Funktion des gesamten Sondenstroms.

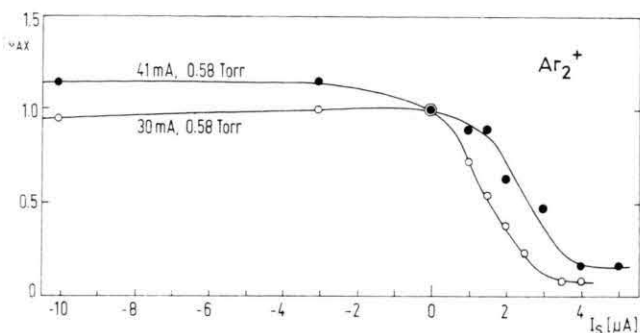


Abb. 8. Veränderung der Geschwindigkeitsverteilungen von  $\text{Ar}_2^+$ , charakterisiert durch das Maximum  $f_{\text{max}}$ , in Abhängigkeit von dem Sondenstrom  $I_S$ .

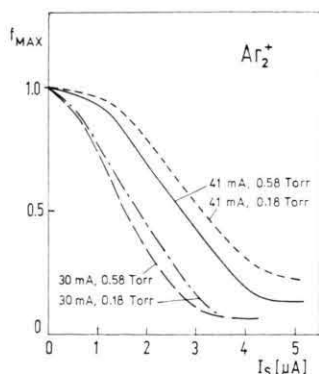


Abb. 9. Veränderung der Geschwindigkeitsverteilung von  $\text{Ar}_2^+$  in besonders interessanten Bereich mit  $I_S \geq 0 \mu\text{A}$ .

### Diskussion

Die Kurvenform der Geschwindigkeitsverteilungen zeigt bei Veränderung des Sondenstroms für die Ionen  $\text{Ar}^+$  und  $\text{Ar}_2^+$  ein ähnliches Verhalten.

Im einzelnen erkennt man schon bei sehr geringen Sondenströmen eine Aufheizung und eine Beschleunigung gegenüber der ungestörten Maxwell-

Verteilung im Innern des Plasmas. Die Temperatur der Ionen ist in der Größenordnung der Elektrentemperatur des Plasmas von ca. 2,6 eV. In Übereinstimmung mit dem Bohm-Kriterium [Gl. (1)] werden die Ionen in der Übergangszone auf diese Temperatur aufgeheizt, zusätzlich werden sie in der stoßlosen Raumladungzone beschleunigt (Abbildungen 4 a – c).

Mit zunehmenden Ionenströmen und damit positiven Sondenspannungen dehnt sich die Schicht aus, Aufheizung und Beschleunigung der Ionen nehmen zu. Erreicht die Dicke der Raumladungzone schließlich die Größenordnung der freien Weglänge der einzelnen Ionensorten, so verändern die Stöße die Form der Verteilung. Aus der aufgeheizten und beschleunigten Maxwell-Verteilung wird eine flache, breite Verteilung, in der vor allem der Anteil an langsamen Ionen zunimmt (Abbildung 4 d).

Der Beginn der stoßbestimmten Schicht liegt in einem engen Bereich des Sondenstroms und erweist sich als unterschiedlich für die verschiedenen Plasmen und die verschiedenen Ionensorten. Er zeigt sich in den Abb. 5, 6, 8 und 9 durch einen starken Abfall des Maximums  $f_{\text{max}}$  der Verteilung als Funktion des Ionenstroms.

Der Einsatzzpunkt der Stöße wird von der Zahl der Stöße über einer Debye-Länge, dem Verhältnis  $\lambda_i/\lambda_0$ , bestimmt. Bei festen Plasmamparametern ist er von der Ionensorte abhängig. Bei fester Ionensorte ergibt sich, wie auch das einfache Modell im Anhang zeigt, eine Abhängigkeit des Einsatzes der Stöße vom Entladungsstrom und nicht vom Neutralgasdruck (Abb. 6 und 9).

Der Vergleich der  $\text{Ar}^+$ - mit den  $\text{Ar}_2^+$ -Verteilungen aus gleichen Plasmen läßt trotz der schlechteren Meßgenauigkeit für  $\text{Ar}_2^+$  erkennen, daß  $\text{Ar}_2^+$  schon bei geringeren Sondenströmen bzw. -spannungen stößt (Abb. 6, 9), d. h. der Stoßquerschnitt ist größer als derjenige der  $\text{Ar}^+$ -Ionen. Die hier vor allem in Frage kommenden Stoßprozesse sind der elastische Stoß und der Umladungsstoß. Während die Querschnitte für die Stöße der  $\text{Ar}^+$  bekannt sind, ist dieses für die  $\text{Ar}_2^+$ -Ionen nicht der Fall. Es muß jedoch bei jedem Stoß mit einer Zerstörung des Ions dieses instabilen Moleküls gerechnet werden.

Die hier nicht dargestellten Messungen der  $\text{H}_3\text{O}^+$ -Ionen-Geschwindigkeitsverteilungen und Gesamtströme zeigen im Rahmen der uns möglichen Meßgenauigkeit, daß diese Ionensorte bei unseren Plas-

men auch bei hohen Ziehspannungen an der Extraktionssonde keine Stöße erleiden, denn die Verteilungen werden nur geringfügig breiter, die typische Form der aufgeheizten und beschleunigten Maxwell-Verteilung bleibt erhalten.

Die Messungen der einzelnen Ionenströme als Funktion der Sondenspannung (Abb. 7 und 10) zeigen folgenden Verlauf: Auch hier zeigt sich der Einsatz der Stöße durch eine Abnahme der dargestellten Meßwerte, denn in beiden Fällen wird wegen der durch die Stöße erzeugten großen Radialkomponente der Geschwindigkeit die Transmission der Ionenoptik verringert. Im Gegensatz zu den  $f_{\max}(I_s)$ -Kurven jedoch findet diese Abnahme in einem kleinen  $I_s$ -Bereich statt. Dies erklärt sich dadurch, daß bei den  $f_{\max}(I_s)$ -Kurven neben den Stößen zusätzlich auch noch die Beschleunigung der Ionen zu einer Abnahme der Dichte und damit von  $f$  führt.

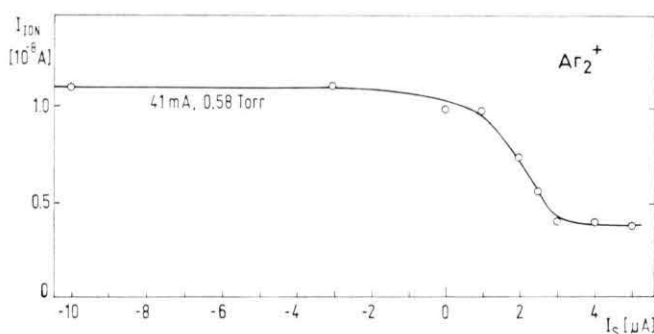


Abb. 10.  $\text{Ar}_2^+$ -Strom zur Sonde als Funktion des gesamten Sondensstroms.

Ein Vergleich unserer Ergebnisse mit den Messungen anderer Autoren ist wegen der wenigen bisher vorhandenen Daten nur für diese Gesamtströme einzelner Ionensorten in Abhängigkeit von der Sondenspannung möglich, und auch hier muß auf Messungen an anderen Plasmen und Ionensorten zurückgegriffen werden. In Abb. 11 haben wir zwei Messungen anderer Autoren wiedergegeben, die bei stoßfreier und bei stoßbestimmter Grenzschicht durchgeführt worden sind. Tragen wir in diese Abbildung eine unserer Messungen ein, die als Beispiel für alle  $\text{Ar}^+$ - und  $\text{Ar}_2^+$ -Gesamtstrommessungen gelten soll, so erhalten wir für geringe Sondenspannungen eine qualitative Übereinstimmung mit den Messungen bei stoßfreier Schicht (Kurve b). Bei einer bestimmten Spannung zeigt dann der Verlauf des Ionenstroms einen durch die Stöße be-

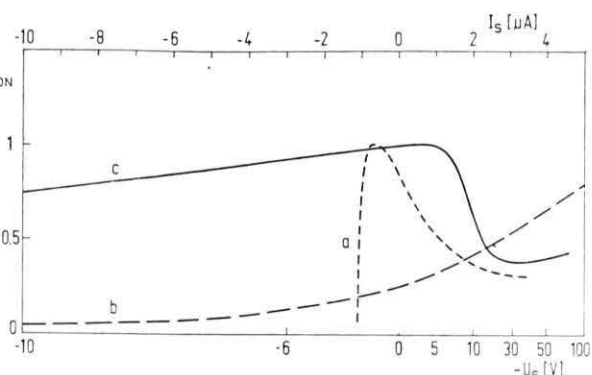


Abb. 11. Strom einer Ionensorte auf die Extraktionssonde. Messungen verschiedener Autoren:

- a) Brömer und Hesse<sup>8</sup>,  $\text{N}_4^+$  aus einem HF-Stickstoffplasma bei 8,2 Torr.
- b) Novak und Waidmann<sup>19</sup>,  $\text{H}^+$  aus einem HF-Wasserstoffplasma bei 0,06 Torr.
- c) Eigene Messung  $\text{Ar}^+$  aus Ar-Plasma bei 30 mA-Entladungsstrom und 0,58 Torr.

dingten Abfall, der auch bei Messungen an stoßbestimmten Schichten gefunden wird (Kurve a).

Der Verlauf des Ionenstroms als Funktion der Sondenspannung bzw. des -stromes läßt eine Aussage über das Auftreten von Stößen in der Raumladungszone zu. Hiermit hat man ein einfaches experimentelles Mittel in der Hand zur Beantwortung der wichtigen Frage nach der Stoßfreiheit einer Grenzschicht.

## Anhang

### Abschätzung der Ausdehnung der Grenzschicht

Zur Abschätzung der Abhängigkeit des Verhältnisses Debye-Länge  $\lambda_D$  zur mittleren freien Weglänge  $\lambda_i$  von den Entladungsparametern Neutralgasdruck  $p$  und Strom  $I$  verwenden wir die Gleichung für den axialen Strom der Ladungsträger im Plasma:

$$I = e n_e b_e E_z F, \quad (13)$$

- $n_e$ : Elektronendichte,
- $b_e$ : Elektronenbeweglichkeit,
- $E_z$ : axiales elektrisches Feld im Entladungsröhre und
- $F = \pi R^2$ : Fläche des Entladungsquerschnittes.

Aufgrund von Messungen, deren Ergebnis Francis<sup>20</sup> zusammenfassend dargestellt hat, gelten in unserem Parameterbereich angenähert folgende Beziehungen für das axiale elektrische Feld  $E_z$ :

$$E_z \sim 1/R \quad (14)$$

und für die Abhängigkeit der Elektronendichte  $n_e$  von dem Neutralgasdruck  $p$

$$T_e \sim 1/Rp. \quad (15)$$

Weiterhin gilt

$$b_e \sim 1/p. \quad (16)$$

Für konstanten Strom folgt wegen (14) und (16) aus (13):

$$n_e \sim p, \text{ für } I = \text{const.} \quad (17)$$

Setzen wir in die Debye-Länge

$$\lambda_D \sim \sqrt{T_e/n_e} \quad (18)$$

die Abhängigkeiten (15) und (17) ein, so erhalten wir

$$\lambda_D \sim 1/p, \quad (19)$$

und es gilt:

$$p \lambda_D = \lambda_D/\lambda_i = \text{const.} \quad (20)$$

Eine Änderung des Neutralgasdrucks hat keinen Einfluß auf die Zahl der Stöße der Ionen in der Schicht. Eine Erhöhung des Stromes hat wegen (13) und (18) eine Erhöhung der Ladungsträgerdichte und eine Verminderung der Debye-Länge und damit der Schichtdicke zur Folge. Die Stöße in der Schicht setzen also bei höheren Strömen erst bei größeren Ziehspannungen ein.

Wir danken dem Landesamt für Forschung der Landesregierung von Nordrhein-Westfalen für die finanzielle Unterstützung. Weiterhin gilt unser Dank der Gesellschaft für Mathematik und Datenverarbeitung in Bonn, welche uns für die numerischen Rechnungen ihre Rechenanlage IBM 7090/1410 zur Verfügung stellte.

- <sup>1</sup> H. W. Drawin, Mass Spectrometry of Plasmas, in Lochte-Holtgreven, Plasma Diagnostics, Amsterdam 1968.
- <sup>2</sup> M. Schmidt u. G. Hinzpeter, Beitr. Plasmaphysik **10**, 173 [1970].
- <sup>3</sup> M. Pahl, Z. Naturforsch. **12a**, 632 [1957].
- <sup>4</sup> M. Pahl u. U. Weimer, Z. Naturforsch. **13a**, 745 [1958].
- <sup>5</sup> P. F. Knewstubb u. A. W. Tickner, J. Chem. Phys. **36**, 674, 684 [1962]; **37**, 2941 [1962]; **38**, 464 [1963].
- <sup>6</sup> Zusammenfassung der Problematik bei Schott, Electrical Probes in Lochte-Holtgreven, Plasma Diagnostics, Amsterdam 1968.
- <sup>7</sup> H. Fahr u. K. G. Müller, Z. Physik **200**, 343 [1967].
- <sup>8</sup> H. H. Brömer u. J. Hesse, Z. Naturforsch. **23a**, 1960 [1968].
- <sup>9</sup> R. M. Chaudhri, Proc. 7th Int. Conf. Ion. Phen. Gas, Belgrad 1966, I, 392.
- <sup>10</sup> G. Hinzpeter, Ann. Phys. 7. Folge, **12**, 343 [1966].
- <sup>11</sup> I. Y. Wada u. H. Heil, Proc. 7th Int. Conf. Ion. Phen. Gas, Belgrad 1966, III, 247.

- <sup>12</sup> J. L. Franklin, S. A. Studniarz u. P. K. Gosh, J. Appl. Phys. **39**, 2052 [1968].
- <sup>13</sup> W. D. Davis u. T. A. Vanderslice, Phys. Rev. **131**, 219 [1963].
- <sup>14</sup> M. Pahl, W. Lindinger u. F. Howorka, Z. Naturforsch. **27a**, 678 [1972].
- <sup>15</sup> D. K. Böhme u. J. M. Goodings, J. Appl. Phys. **37**, 4261 [1966].
- <sup>16</sup> A. Glaser u. W. Henneberg, Z. techn. Physik **16**, 222 [1935].
- <sup>17</sup> W. Glaser, Grundlagen der Elektronenoptik, S. 315–345, Wien 1952.
- <sup>18</sup> K. Henrich, Dissertation Universität Bonn 1972.
- <sup>19</sup> M. Novak u. G. Waidmann, Z. angew. Physik **31**, 300 [1971].
- <sup>20</sup> G. Francis, The Glow Discharge at Low Pressure, in Handbuch der Physik XXII, Springer-Verlag, Berlin 1956.