

Reproduzierbarkeit von Dichte- und Temperaturverläufen im COST-Mikroplasmajet

Reproducibility of density and temperature profiles in the COST-Microplasmajet

Bachelorarbeit

im Studiengang
„Bachelor of Science“
im Fach Physik

an der Fakultät für Physik und Astronomie
der Ruhr-Universität Bochum

von
David Frithjof Steuer

aus
Herne

Bochum 2018

Erklärung

Versicherung gemäß § 16 Nr. 6 Bachelor-Prüfungsordnung 2013

Hiermit versichere ich, dass ich meine Bachelor-Arbeit selbständig angefertigt und verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt sowie Zitate kenntlich gemacht habe. Meine Bachelor-Arbeit habe ich in dieser oder ähnlicher Form noch bei keiner anderen Fakultät der Ruhr-Universität Bochum oder bei einer anderen Hochschule eingereicht.

Bochum, den 10. September 2018

(David Steuer)

1. Gutachter: Dr. Volker Schulz-von der Gathen
2. Gutachter: Prof. Dr. Achim von Keudell

Abstract

Es wurden Dichte- und Temperaturverläufe unter Variation von Position, Leistung und Gasbeimischung im COST-Mikroplasmajet untersucht. Dabei standen die Methoden der Aktinometrie, sowie der Resonanzspektroskopie im Mittelpunkt. Anhand von vergleichbaren TALIF-Messungen konnte die Anwendbarkeit der Aktinometrie für die Bestimmung von atomaren Sauerstoffdichten demonstriert werden.

Temperaturverläufe aus der Resonanzspektroskopie wurden mit Rotationstemperaturen des *second positive band* von Stickstoff verglichen und belegt.

Jede Messung wurde an verschiedenen Tagen wiederholt, um die Reproduzierbarkeit der gemessenen Verläufe zu bewerten, sowie den COST-Jet als Referenzquelle zu überprüfen.

Density and temperature profiles with variation of position, power and gas admixture were investigated in the COST microplasmajet. The methods of actinometry and resonance spectroscopy were the main focus of this thesis. Using comparable TALIF measurements, the applicability of actinometry for the determination of atomic oxygen densities could be demonstrated.

Temperature profiles from resonance spectroscopy were compared and verified with rotational temperatures of the *second positive band* of nitrogen.

Each measurement was repeated on different days to evaluate the reproducibility of the measured profiles and to confirm the COST-Jet as reference source.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
1.1	Motivation	1
1.2	Zielsetzung	1
2	Physikalische Grundlagen	2
2.1	Plasmen	2
2.2	Niedertemperatur-Atmosphärendruckplasmen	2
2.2.1	COST-Mikroplasmajet	3
2.3	Optische Emissionsspektrometrie	3
2.3.1	Aktinometrie	4
2.3.2	Rotationstemperaturen	7
2.3.3	Resonanzverbreiterung	8
3	Experimenteller Aufbau	9
3.1	Gasversorgung	9
3.2	Spektrographen	10
3.3	Leistungsmessung	11
4	Vorbereitende Messungen	12
4.1	Kalibration der Spektrometer	12
4.2	Bestimmung der förderlichen Spaltbreite	13
4.3	Bestimmung des Instrumentenprofils	13
4.4	Referenzbedingungen	14
5	Ergebnisse	17
5.1	Dichteverläufe	17
5.1.1	Ortsaufgelöste Aktinometrie	20
5.1.2	Variation der Leistung	23
5.1.3	Variation der Gasmischung	25
5.2	Temperaturverläufe	26
5.3	Reproduzierbarkeit	29
6	Fazit und Zusammenfassung	30
7	Ausblick	31
	Literaturverzeichnis	32
	Danksagung	34

1. Einleitung

1.1 Motivation

Die Bedeutung von Atmosphärendruckplasmen für technische Anwendungen ist in den letzten Jahren gestiegen. Neben Oberflächenmodifikationen, wird die Konversion von CO_2 forciert [1, 2]. Ein weiteres Anwendungsfeld bietet die Medizin. Mit Hilfe von Mikroplasmajets, können reaktive Spezies erzeugt und direkt emittiert werden. Der Vorteil von Applikationen dieser Art ist das nicht-thermische Gleichgewicht. Auch wenn hohe Elektronenenergien verfügbar sind, um reaktive Spezies zu erzeugen, bleibt die emittierte Gastemperatur kalt, sodass Wunden oder Tumore direkt behandelt werden können [3, 4]. Für Anwendungen jeglicher Art, ist eine genaue Kenntnis der Plasmaparameter unabdingbar. Aus diesem Grund sind einfache, nicht invasive Diagnostikmethoden gefragt.

Der *COST Reference Microplasma Jet* [4], der in dieser Arbeit genutzt wird, ist für optische Diagnoseverfahren optimiert. Da dieser als Referenzquelle entwickelt wurde, ist die Reproduzierbarkeit von Ergebnissen von Bedeutung.

Frühere Arbeiten konnten Dichteprofile von atomarem Sauerstoff (reaktive Spezies) mit Hilfe von *two photon absorption laser-induced fluorescence* (TALIF) messen. Da TALIF mit einem hohen experimentellen Aufwand verbunden ist, sind Alternativen erstrebenswert.

Neben der Dichte von reaktiven Spezies, ist die Gastemperatur von Relevanz. Diese spiegelt sich nicht nur in der Plasmachemie wider, sondern ist auch für technische Anwendungen des Jets essenziell. Da der COST-Jet mit einer Radiofrequenz-Wechselspannung betrieben wird, können Störungen in elektronischen Temperatursensoren hervorgerufen werden.

Daher ist auch hier die Suche nach weiteren Methoden sinnvoll.

In der Literatur wurden die Methoden der Aktinometrie (Dichtemessung) [5–8], sowie der Resonanzspektroskopie (Temperaturmessung) [9, 10], als vielversprechende alternative Diagnostiken beschrieben. Diese werden in der vorliegenden Arbeit verwendet und bewertet.

1.2 Zielsetzung

In dieser Arbeit sollen Dichte- und Temperaturverläufe im COST-Mikroplasmajet gemessen werden. Mit der Methode der Aktinometrie werden Dichteverläufe aufgenommen. Dabei sollen Parameter, wie Messposition, Gasbeimischung und Plasmaleistung, variiert werden. Die Ergebnisse werden mit Verläufen aus TALIF-Messungen unter analogen Bedingungen verglichen. Daraus sollen Aussagen über die Anwendbarkeit der Aktinometrie als Diagnostik formuliert werden.

Mit Hilfe der Resonanzspektroskopie sollen Temperaturverläufe gemessen werden. Anhand der Ergebnisse soll ebenfalls eine Verwendbarkeit der Methode diskutiert werden.

Neben den verschiedenen Diagnostiken und deren Anwendbarkeit, soll die Reproduzierbarkeit der Ergebnisse im Mittelpunkt der Arbeit stehen. Dazu werden die Messungen an verschiedenen Tagen durchgeführt und auf ihre Konstanz überprüft.

2. Physikalische Grundlagen

2.1 Plasmen

Der Begriff Plasma wurde von Irving Langmuir geprägt und beschreibt [11]:

„...ein quasineutrales Gas geladener und ungeladener Teilchen das kollektives Verhalten zeigt [12]“

Die genannten Plasmakriterien können folgendermaßen geprüft werden:

- Um sicherzustellen, dass Quasineutralität herrscht, muss die Ausdehnung des Plasmas L größer als die Debyelänge sein:

$$L > \lambda_D = \left(\frac{\epsilon_0 k_B T}{n_0 e^2} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (2.1)$$

- Kollektives Verhalten ist gewährleistet, wenn deutlich mehr als ein Teilchen innerhalb der Debye-Kugel ist.

$$N_D = \frac{4\pi}{3} \lambda_D^3 n \gg 1 \quad (2.2)$$

- Die elektrostatische Wechselwirkung soll über der normalen Gaskinetik dominieren. Daher muss das Produkt aus Plasmafrequenz und Stoßzeit mit Neutralen größer als eins sein.

$$\tau_0 \omega_p = \tau_0 \left(\frac{ne^2}{\epsilon_0 m} \right)^{\frac{1}{2}} \gg 1 \quad (2.3)$$

Häufig wird ein Plasma durch den vierten Aggregatzustand beschrieben, da der Zustand aus der gasförmigen Phase hervorgeht.

In der Natur befinden sich zum Beispiel Sterne im Plasmazustand. Auf der Erde können natürliche Plasmen beobachtet werden, wenn Sonnenwinde auf die Erdatmosphäre treffen und diese zum Leuchten anregen.

Neben dem Ziel die Kernfusion auf der Erde als Energiequelle zu nutzen, haben Plasmen heute verschiedenste technische Anwendung wie zum Beispiel Beleuchtungstechnik (Leuchtstoffröhren) oder Oberflächenbehandlungen.

Plasmen können in Nieder- und Hochtemperaturplasmen eingeteilt werden. Auch die Drücke bei denen das Plasma gezündet wird, unterscheiden sich angefangen von wenigen Pascal, über den Atmosphärendruck, bis hin zu einigen 100 Milliarden Pascal in der Sonne.

2.2 Niedertemperatur-Atmosphärendruckplasmen

Diese Arbeit beschäftigt sich mit einem Niedertemperaturplasma, das bei Atmosphärendruck gezündet wird. Da die Zündspannung eines Plasmas, nach dem Gesetz von Paschen, sowohl von dem Elektrodenabstand als auch dem Druck abhängt [13], bietet sich im Atmosphärendruck ein Mikroplasma mit geringem Elektrodenabstand an. Eine Radiofrequenzentladung (RF-Entladung) zündet das Plasma mit Hilfe eines oszillierenden elektrischen Feldes. Die leichteren Elektronen folgen diesem Feld, wohingegen die Ionen, aufgrund ihrer Masse, nahezu in Ruhe bleiben. Die Elektronentemperatur liegt daher bei einigen eV, wobei die Ionen kalt bleiben. Es liegt ein nicht-thermisches Gleichgewicht vor.

2.2.1 COST-Mikroplasmajet

Der COST-Mikroplasmajet ist ein Beispiel für ein Niedertemperatur-Atmosphärendruckplasma. Dieser wurde, aufgrund der Vielzahl verschiedener Jets, innerhalb der europäischen *Cooperation in Science and Technology* (COST) Action MP1011, als Referenzquelle entwickelt. Ziel ist es die Vergleichbarkeit von Ergebnissen verschiedener Gruppen weltweit zu erlangen [4]. Aus diesem Grund ist die Reproduzierbarkeit von Ergebnissen von großer Bedeutung.

Die RF-Entladung ist mit einer Frequenz von 13,56 MHz kapazitiv gekoppelt. Der Jetkopf, in dem die Entladung stattfindet, ist in Abbildung 2.1b dargestellt.

Durch Edelstahlrohre gelangt die Gasmischung in den 1 mm x 1 mm x 30 mm großen Entladungskanal. Die parallelen Edelstahlelektroden werden von durchsichtigen Quartzplatten verdeckt, sodass optimale Bedingungen für optische Diagnoseverfahren bestehen. Die Konstruktion ist mit Vakuumskleber (Torrseal®) abgedichtet, um Verunreinigungen der Umgebungsluft zu minimieren. Außerdem besteht der Jet ausschließlich aus medizinisch akzeptierten Materialien.

Im Inneren ersetzt ein einstellbarer LC-Schwingkreis ein externes Matching-Netzwerk, um die Leistung optimal in das Plasma einkoppeln zu können. Hinzu kommen Strom- und Spannungssonden, mit denen die Leistung gemessen werden kann (siehe Abbildung 2.1a). Die Spannungssonde misst den Spannungsabfall zwischen den beiden Elektroden. Der Strom wird aus dem Spannungsabfall U_c über den Widerstand $R_m = 4,7 \Omega$ gemessen. $R_t = 50 \Omega$ beschreibt den Innenwiderstand der Kabel. Da Strom und Spannung um eine Phase φ verschoben sind folgt die Leistung aus dem Produkt aus Strom, Spannung und dem Kosinus der Phase.

$$I = U_c \frac{R_m + R_t}{R_m R_t} \quad (2.4)$$

$$P = IU \cos \varphi \quad (2.5)$$

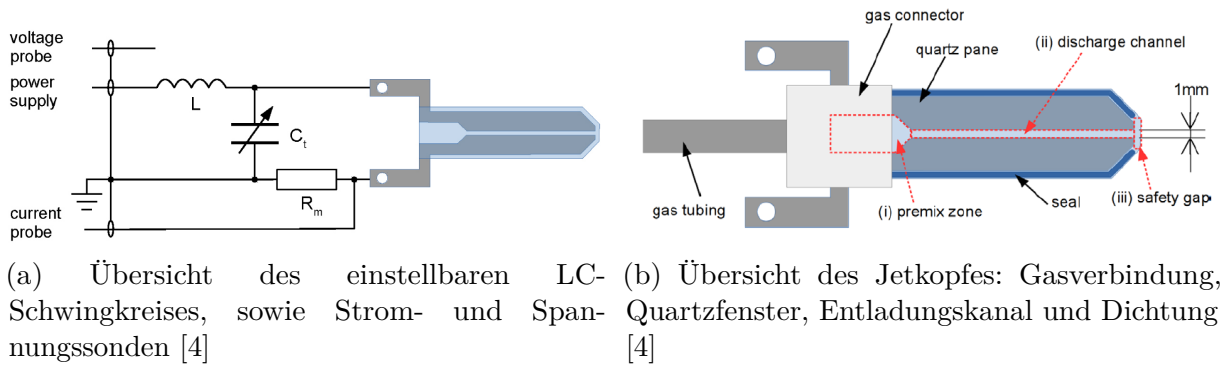


Abbildung 2.1

2.3 Optische Emissionsspektrometrie

Die optische Emissionsspektrometrie (OES) erlaubt es, durch die Beobachtung der Strahlung eines Plasmas, Aussagen über wichtige Plasmaparameter zu treffen, ohne dabei das Plasma zu beeinflussen.

Dabei wird das emittierte Licht durch ein Gitter in seine spektralen Anteile aufgeteilt.

Die Intensität dieser Anteile kann zum Beispiel mit einer Kamera gemessen und einer Wellenlänge zugeordnet werden. Im Fall des COST-Jets ist das resultierende Spektrum nicht kontinuierlich, sondern zeigt einzelne Linien. Jede Linie steht für einen Übergang von einem höheren zu einem niedrigerem Energieniveau.

Die Messung der Intensitäten bestimmter Wellenlängen bietet die Grundlage für weitere Diagnostikmethoden, wie zum Beispiel die Aktinometrie, die Resonanzspektroskopie, sowie die Messung von Stickstoff-Rotationstemperaturen. Diese werden im weiteren Verlauf dieser Arbeit genauer beschrieben.

2.3.1 Aktinometrie

Das Verfahren der Aktinometrie wurde 1980 von J. W. Coburn und M. Chen eingeführt um atomare Fluordichten zu bestimmen [14]. Die Methode basiert auf optischer Emissionsspektrometrie und vergleicht die Intensitäten zweier spektralen Linien. Neben einer Spektrallinie des zu untersuchenden Atoms, wird zusätzlich die Emission eines Aktinometergases beobachtet.

Im Vergleich zu anderen Diagnoseverfahren, wie zum Beispiel *two photon absorption laser-induced fluorescence* (TALIF), ist die Aktinometrie weniger aufwendig und günstiger [15]. Für die Bestimmung von Sauerstoffdichten wird häufig eine kleine Argonbeimischung verwendet [6–8].

Die Intensität einer Spektrallinie (zum Beispiel Sauerstoff) ist abhängig von einer optischen Konstanten c (Empfindlichkeit des Spektrometers in Abhängigkeit der Wellenlänge, Reflexion, Beugung, Streuung), der Energie $h\nu$, dem Einsteinkoeffizienten für spontane Emission A_{ij} , der Elektronendichte n_e , der Anregungsrate aus dem Grundzustand k_e , der Sauerstoffdichte im Grundzustand $[O]$, sowie der Lebensdauer des angeregten Zustandes τ .

$$I_O = ch\nu A_{ij} n_e k_e [O] \tau \quad (2.6)$$

Die Anregungsrate aus dem Grundzustand k_e ist neben dem Elektronenstoßanregungsquerschnitt $\sigma(\epsilon)$ und der Elektronengeschwindigkeit $\sqrt{2\epsilon/m_e}$ auch von der Elektronenenergieverteilungsfunktion (EEDF) $f(\epsilon)$ abhängig. Letztere ist jedoch meist unbekannt.

$$k_e = \int_{E_0}^{\infty} f(\epsilon) \sigma(\epsilon) \sqrt{2\epsilon/m_e} d\epsilon \quad (2.7)$$

Wird das Verhältnis von zwei Spektrallinien gebildet, kann die EEDF unter bestimmten Voraussetzungen vernachlässigt werden:

1. Die Elektronenstoßanregungsquerschnitte haben die selbe Form, insbesondere in der Nähe der Schwellenenergie [6].

Der Anregungsquerschnitt $\sigma(\epsilon)$ kann in eine Formfunktion ϕ und einen Maximalwert σ_m aufgeteilt werden.

$$\sigma(\epsilon) = \sigma_m \phi(\epsilon) \quad (2.8)$$

Sind die Schwellenenergie E_0 sowie die Form ϕ bei einer Argon- und Sauerstofflinie ähnlich, kann ein Verhältnis gebildet werden. Dabei steht der Exponent 1 für Sauerstoff und 2 für Argon.

$$\frac{c^{(1)} I_O}{c^{(2)} I_{Ar}} = \frac{h\nu^{(1)} A_{ij}^{(1)} n_e [O] \tau^{(1)} \sigma_m^{(1)} \int_{E_0^{(1)}}^{\infty} f(\epsilon) \phi^{(1)}(\epsilon) \sqrt{2\epsilon/m_e} d\epsilon}{h\nu^{(2)} A_{ij}^{(2)} n_e [Ar] \tau^{(2)} \sigma_m^{(2)} \int_{E_0^{(2)}}^{\infty} f(\epsilon) \phi^{(2)}(\epsilon) \sqrt{2\epsilon/m_e} d\epsilon} \quad (2.9)$$

$$\frac{c^{(1)}I_O}{c^{(2)}I_{Ar}} = \frac{h\nu^{(1)}A_{ij}^{(1)}[O]\tau^{(1)}\sigma_m^{(1)}}{h\nu^{(2)}A_{ij}^{(2)}[Ar]\tau^{(2)}\sigma_m^{(2)}} \quad (2.10)$$

Der Integralterm der EEDF kann eliminiert werden, sodass die atomare Sauerstoffdichte nur noch von Konstanten und der Argondichte im Grundzustand abhängt. Die dazugehörigen Werte sind in Tabelle 2.1 dargestellt und werden im Folgenden in der Konstante C zusammengefasst.

$$[O] = C \frac{I_O}{I_{Ar}} [Ar] \quad (2.11)$$

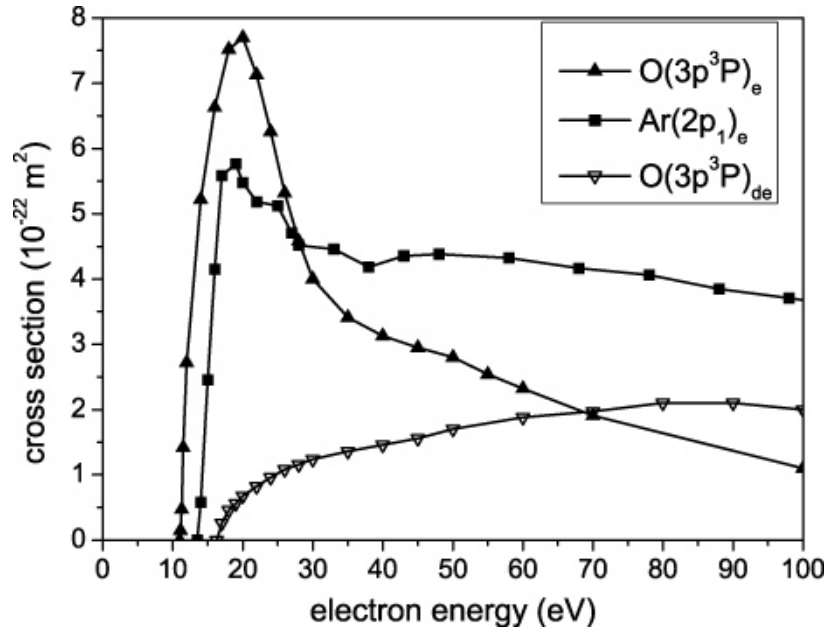


Abbildung 2.2: Direkte (e) und dissoziative (de) Elektronenstoßanregungsquerschnitte für $O(3p^3P)$ und $Ar(2p_1)$ [16]

Elektronenstoßanregungsquerschnitte für die Sauerstoff 844 nm-Linie ($3p^3P$) und die 750 nm-Argonlinie ($2p_1$) sind in Abhängigkeit der Elektronenenergie in Abbildung 2.2 gezeigt. Die Schwellenenergien weisen eine Differenz von 2,5 eV auf. Auch die Form der Wirkungsquerschnitte stimmt nicht exakt überein, sodass die angenommene Gleichheit von Schwellen und Verläufen nur teilweise erfüllt ist.

Tabelle 2.1: Konstanten für Aktinometrie

	Sauerstoff	Argon	Ref
λ [nm]	844,6	750,4	[17]
A_{ij} [s^{-1}]	$3,22 \cdot 10^7$	$4,45 \cdot 10^7$	[17]
τ [ns]	34,7	24	[18, 19]
σ_m [m^2]	$7,7 \cdot 10^{-22}$	$5,75 \cdot 10^{-22}$	[20–22]

Es wird vorausgesetzt, dass Sauerstoff und Argon nur aus dem Grundzustand heraus angeregt werden (Gleichung 2.6). Würden die betrachteten Zustände auch über andere Zweige bevölkert werden, wäre die gemessene Intensität größer, als die theoretisch angenommene Intensität. Aus diesem Grund müssen folgende Fälle ausgeschlossen werden:

2. Die Atome werden nicht durch Dissoziation angeregt [6].

Typischer Weise wird molekularer Sauerstoff als Gas verwendet. Dieser wird im Plasma zu atomarem Sauerstoff dissoziiert. Dabei kann ein Sauerstoffatom in den betrachteten Zustand angeregt werden.



Neben den direkten Elektronenstoßanregungsquerschnitten, ist auch der dissoziative Querschnitt der 844 nm-Linie in Abbildung 2.2 aufgetragen. Deutlich wird, dass dieser zwar gering im Vergleich zu dem direkten Querschnitt ist, jedoch nicht vernachlässigbar klein. Da der dissoziative Querschnitt bekannt ist, kann der Anteil der dissoziativen Anregung abgezogen werden.

$$[O] = C \frac{I_O}{I_{Ar}} [Ar] - \frac{\int_{E_0}^{\infty} f(\epsilon) \sigma_d(\epsilon) \sqrt{2\epsilon/m_e} d\epsilon}{\int_{E_0}^{\infty} f(\epsilon) \sigma_e(\epsilon) \sqrt{2\epsilon/m_e} d\epsilon} [O_2] \quad (2.13)$$

Für die 777 nm-Linie scheint der Anteil der dissoziativen Anregung zu dominieren [5]. Daher wird im Folgenden die 844 nm-Linie für die Aktinometrie verwendet.

3. Die Bevölkerung von angeregten Zuständen aus höheren Zuständen ist vernachlässigbar [6].
4. Kaskadenanregung, zum Beispiel über Metastabile, ist vernachlässigbar [6].

In vergleichbaren Arbeiten wurde der Fehler durch die Bevölkerung aus höheren Zuständen, sowie die Kaskadenanregung für die $\text{Ar}(2p_1)$ und $\text{O}(3p^3P)$ Zustände, als gering angesehen [6, 7].

Die Aktinometrie geht davon aus, dass sich die betrachteten Zustände komplett durch spontane Emission abregen. Strahlungslose Übergänge werden bei Betrachtung der Intensität nicht berücksichtigt.

5. Es gibt keine strahlungslose Abregung (quenching) [6].

Im Beispiel des $\text{O}(3p^3P)$ Zustandes, ist diese Bedingung nur teilweise gegeben. Die Quenchingraten verschiedener Reaktanten sind in Tabelle 2.2 gezeigt. Da die Quenchingraten in einem Niederdruckplasma gemessen wurden, entsteht bei der Übertragung in ein Atmosphärendruckplasma eine Unsicherheit. Unter Berücksichtigung dieser Unsicherheit, wird davon ausgegangen, dass die Argon- und Sauerstoffzustände gleich stark abgeregt werden und somit strahlungslose Übergänge vernachlässigt werden können.

Tabelle 2.2: Quenchingraten

Reaktant	$\text{Ar}(2p_1)$ [$10^{-10} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$]	$\text{O}(3p^3P)$ [$10^{-10} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$]
He	0,0031 [19]	0,017 [18]
O_2	7,6 [19]	9,4 [18]
Ar	0,16 [19]	0,14 [18]

Die Voraussetzungen lassen sich mit dem Corona-Modell zusammenfassen. Dieses geht davon aus, dass der Grundzustand überbevölkert ist. Außerdem herrscht ein Gleichgewicht zwischen Stoßanregung aus dem Grundzustand und spontaner Emission. Andere Abregungsprozesse werden vernachlässigt [23]. Auch wenn das Modell für den COST-Jet nur teilweise erfüllt ist (quenching, Anregung durch Dissoziation), können die beschriebenden notwendigen Bedingungen der Aktinometrie angenommen werden.

Hinzu kommen einige praktische Auswahlregeln:

6. Die betrachteten Zustände haben große Übergangswahrscheinlichkeiten, sodass die Intensität der Spektrallinie hoch ist [23].
7. Die spektralen Linien überlagern sich nicht mit anderen Emissionen [23].

2.3.2 Rotationstemperaturen

Neben den Linien aus elektronischen Übergängen sind auch Molekülbanden im Spektrum zu erkennen. Diese beinhalten zusätzliche Übergänge zwischen Vibrations- und Rotationsniveaus. Die Gesamtenergie eines Zustandes folgt daher aus der Summe der Beiträge:

$$E_{ges} = E_{el} + E_{vib} + E_{rot} \quad (2.14)$$

Die Energieunterschiede zwischen den in dieser Arbeit betrachteten Molekülzuständen liegt in der Größenordnung der thermischen Energie des Gases, sodass Anregungen durch Stöße möglich sind. Diese Stöße sind im Atmosphärendruck häufig, sodass die Zustandsverteilung annähernd einer Boltzmannverteilung entspricht [24, 25]. Dieser Boltzmannverteilung kann eine Rotationstemperatur zugeordnet werden. Stickstoffbanden bieten sich für die Messung von Rotationstemperaturen an, da das Gas als Verunreinigung in den Flaschen enthalten ist und somit nicht extra beigeführt werden muss. Um die Temperaturen bestimmen zu können, wird in dieser Arbeit das *second positive band* mit dem Übergang C-B, sowie dem Vibrationsübergang $v' = 2, v'' = 0$ untersucht.

Eine Temperatur kann mit Hilfe des Programms *N2 Temp* bestimmt werden, indem die gemessenen Spektren durch eine Fitroutine angepasst werden [26].

2.3.3 Resonanzverbreiterung

Eine weitere Methode, die auf die Temperatur schließen lässt, ist die Resonanzspektroskopie. Dabei wird die Verbreiterung einer Spektrallinie beobachtet.

Typische Verbreiterungsmechanismen sind die natürliche Linienverbreiterung (Unschärfelrelation), die Dopplerverbreiterung, sowie die Druckverbreiterung. Starkverbreiterung, Van der Waals-Verbreiterung und Resonanzverbreiterung sind Bestandteile der Druckverbreiterung.

Diese Arbeit beschäftigt sich mit der Resonanzverbreiterung (*self broadening*), die durch Stöße zwischen Atomen des gleichen Elements hervorgerufen wird. Dabei befindet sich ein Atom in dem oberen Zustand eines resonanten Übergangs (erlaubter Dipolübergang zum Grundzustand). Das stoßende Atom befindet sich im Grundzustand. Entweder der obere oder untere Zustand der beobachteten Spektrallinie muss dabei der obere Zustand des resonanten Übergangs sein. Die Wechselwirkung zwischen den Atomen kann durch ein Dipol-Dipol-Potential angenähert werden, das zu einem verbreitertem Lorentzprofil führt. Die Linienverbreiterung ist abhängig von einigen Konstanten und der Teilchendichte. Die Teilchendichte kann über die ideale Gasgleichung durch eine Temperatur ersetzt werden. Der Zusammenhang zwischen Linienbreite $\Delta\nu$ und Temperatur T ist in Gleichung 2.15 dargestellt. Dabei beschreibt K einen numerischen Koeffizienten, g_G und g_R die statistischen Gewichte des Grundzustandes bzw. des resonanten Zustandes, f_R die Oszillatorstärke, ν_R die Wellenzahl, p den Druck und k_B die Boltzmannkonstante [9, 27, 28].

$$\Delta\nu = K \frac{r_e}{\pi} \sqrt{\frac{g_G}{g_R}} \frac{f_R}{\nu_R} \frac{p}{k_B T} \quad (2.15)$$

In dieser Arbeit soll die 667 nm- Heliumlinie betrachtet werden. Diese entsteht durch einen Übergang aus dem 1s3d-Zustand in den 1s2p-Zustand. Letzterer Zustand ist über einen resonanten Übergang mit dem Grundzustand verbunden [17].

Vorherige Arbeiten konnten den Koeffizienten K , der hier untersuchten Linie, experimentell bestimmen [29, 30]. Die Konstanten können zusammengefasst werden, sodass die Temperatur folgender Maßen aus der Linienverbreiterung hervorgeht [10, 29, 30]:

$$T_G = 2,97 \cdot 10^{-9} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1} \frac{p}{\Delta\nu k_B} \quad (2.16)$$

Der Vorteil der Resonanzspektroskopie besteht darin, dass direkt die Temperatur des Arbeitsgases (Helium) gemessen werden kann. Demnach ist keine Verunreinigung, wie bei Beobachtung der Stickstoffbanden, notwendig.

3. Experimenteller Aufbau

Der experimentelle Aufbau um den COST-Jet ist von der Gasversorgung, bis hin zu verschiedenen Messgeräten auf einem mobilen Tisch montiert. Eine schematische Skizze ist in Abbildung 3.1 dargestellt.

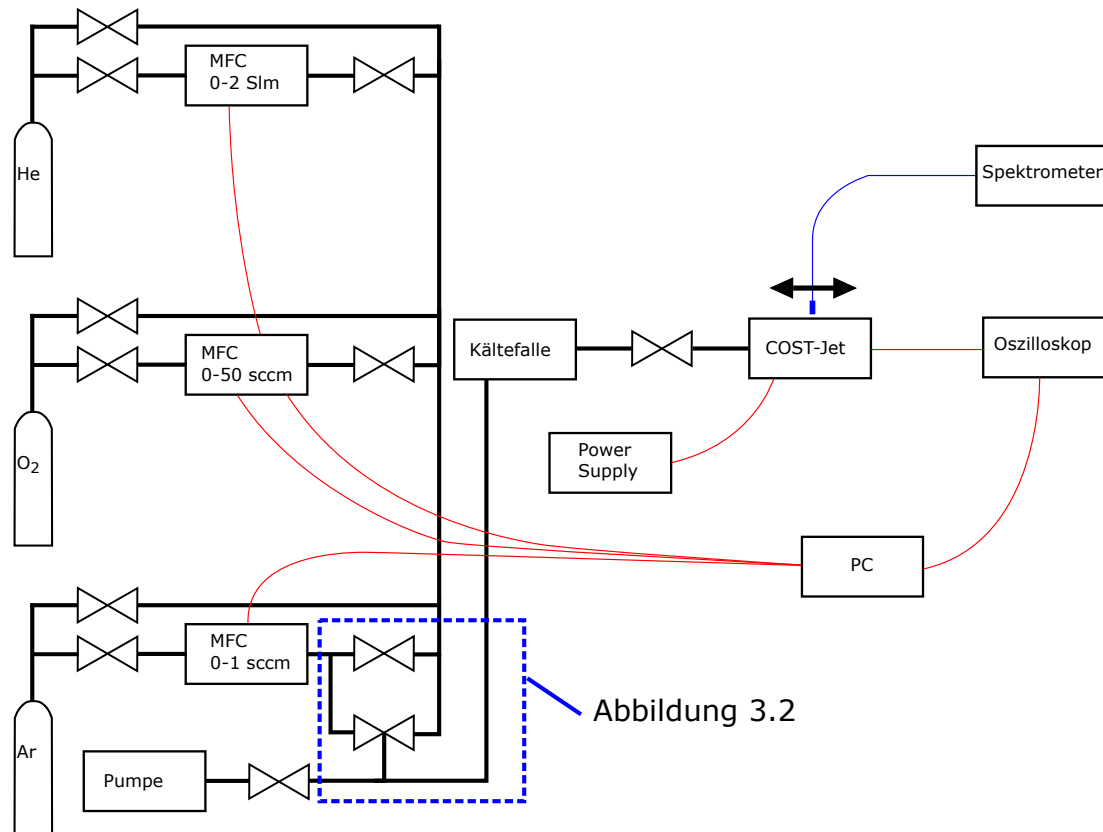


Abbildung 3.1: Schematische Skizze des Versuchsaufbaus

3.1 Gasversorgung

In dieser Arbeit wird das Plasma mit Helium, Sauerstoff und Argon betrieben. Die jeweiligen Gasflaschen sind über einstellbare "Mass Flow Controller" (MFC) der Firma Analyt mit dem COST-Jet verbunden. Da die Einstellgenauigkeit von dem Maximalfluss abhängt, werden für jedes Gas unterschiedliche MFCs verwendet. Eine mit einer Trockeneis-Alkohol-Mischung gefüllte Kältefalle lässt Wasserdampf in den Gasleitungen kondensieren. Die gesamte Gasversorgung kann mit Hilfe einer Pumpe abgesaugt werden, um Verunreinigungen zu minimieren. Aus diesem Grund besitzt jeder MFC einen Beipass.

Der Argonfluss wird im Folgenden, im Gegensatz zu dem Helium- und Sauerstofffluss, sehr gering eingestellt. Um sicherzustellen, dass trotzdem genug Argon den Jet erreicht, wurde der Aufbau optimiert. Über ein Drei-Wege-Ventil und ein dünnes Rohr kann der Heliumfluss direkt vor den Argon-MFC geleitet werden, um eine bessere Mischung der Gase zu erzielen (Abbildung 3.2).

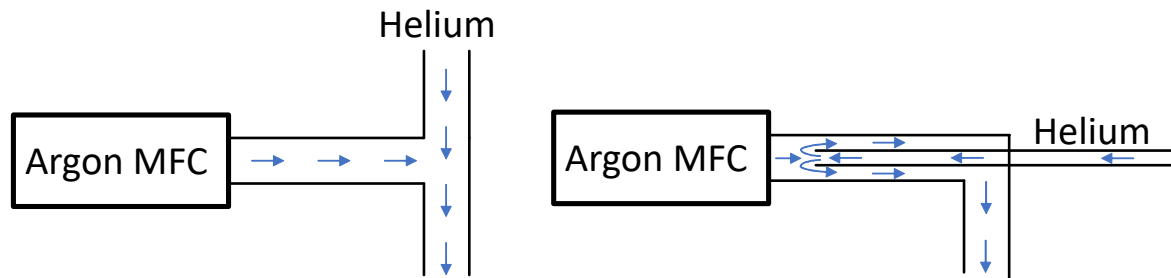


Abbildung 3.2: Herkömmliche Argonbeimischung (links) und optimierte Beimischung (rechts)

3.2 Spektrographen

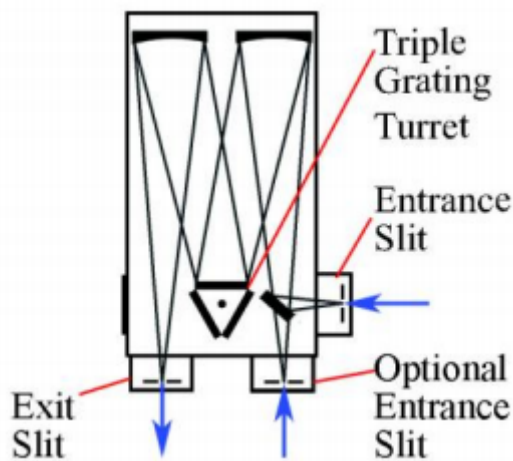


Abbildung 3.3: Aufbau ACTON [31]

Um Dichte- und Temperaturverläufe aufnehmen zu können, werden Spektrographen benötigt. Mit Hilfe einer lichtleitenden Faser (siehe Abbildung 3.1 (blau)) kann das Licht der Entladung in einen Spektrographen gekoppelt werden. Zunächst werden zwei USB-Spektrometer (Ocean Optics) genutzt. Für die Aktinometrie wird darüber hinaus noch ein ACTON Spektrometer verwendet (siehe Abbildung 3.3). Dieses ist mit einer lichtempfindlichen Kamera ausgestattet, sodass auch schwache Signale sichtbar gemacht werden können, sowie ein besseres Signal-Rausch-Verhältnis erzielt werden kann. Des Weiteren besteht die Möglichkeit zwischen drei verschiedenen Gittern (50/300/1800) zu wählen, um auf der einen

Seite eine bessere Auflösung zu erhalten oder auf der anderen Seite eine höhere Bandbreite darstellen zu können. Die wichtigsten Merkmale sind in Tabelle 3.1 dargestellt.

Tabelle 3.1: Spektrometer

Spektrometer	Auflösung [px/nm]	Bandbreite [nm]
ACTON 750 300 Linien/mm	8,5	113,87
ACTON 750 1800 Linien/mm	66,6	14,62
Ocean Optics HR4C3931	3,7	934,39
Ocean Optics HR4C3933	7,7	442,87

Da in der Resonanzspektroskopie Linienformen gemessen werden, ist eine Auflösung mit mehreren Pixeln pro Spektrallinie unabdingbar. Aus diesem Grund wird für diese Messungen das ACTON-Spektrometer mit einem hochauflösendem Gitter (1800 Linien/mm) verwendet. Außerdem kann der Eintrittsspalt weiter verringert werden, sodass die Auflösung erhöht werden kann (siehe Abschnitt 4.2).

Die Aktinometrie wird aufgrund der Lichtempfindlichkeit ebenfalls mit dem ACTON-Spektrometer durchgeführt. Allerdings wird hierbei ein breitbandiges Gitter (300 Linien/mm)

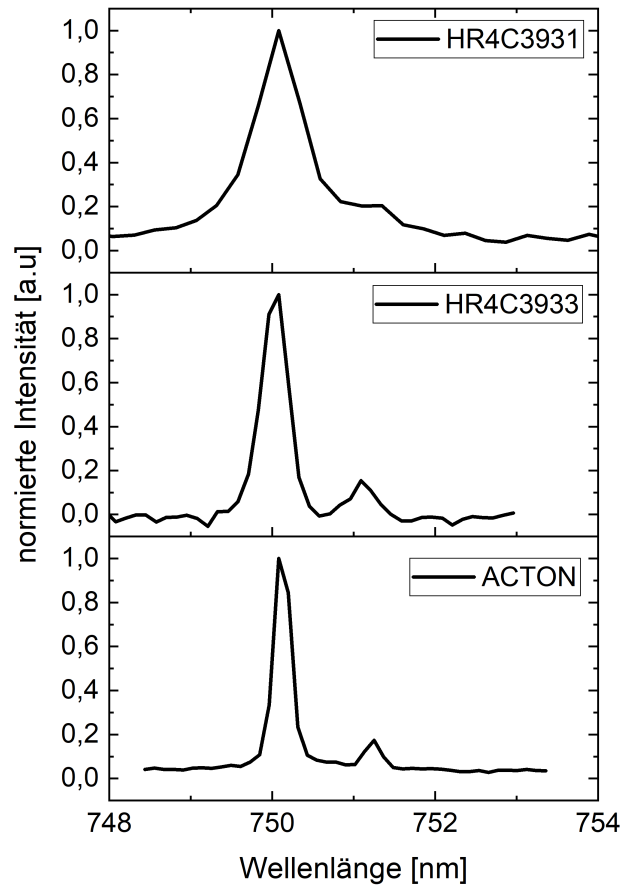


Abbildung 3.4: Vergleich der Auflösung zwischen USB-Spektrometern (OceanOptics) und ACTON (300 Linien/mm) am Beispiel der 750 nm-Argonlinie

verwendet, um die, für die Aktinometrie, interessanten Linien (844 nm und 750 nm) gleichzeitig messen zu können.

Da für orts aufgelöste Messungen eine Lichtleiterfaser mit geringem Durchmesser ($200\text{ }\mu\text{m}$) verwendet wird, ist auch hier die Lichtausbeute von Bedeutung.

Eine ausreichende Auflösung fällt ebenfalls ins Gewicht, da neben der zu betrachtenden Argon Linie (750 nm) noch eine weitere Argonlinie (751 nm) liegt. Um eine eindeutige Intensität bestimmen zu können, müssen die Linien getrennt werden. Ein Vergleich der drei Spektrographen anhand der 750 nm-Argonlinie ist in Abbildung 3.4 gezeigt. Das HR4C3931 kann die beiden Linien nicht mehr trennen, wohingehend das ACTON eine ausreichend gute Auflösung bietet. Mit dem HR4C3933 ist die Aktinometrie ebenfalls möglich.

3.3 Leistungsmessung

Die in den COST-Jet eingekoppelte Leistung, kann über eine Spannungsversorgung (Power Supply) stufenlos eingestellt werden. Ein Oszilloskop (Agilent Technologies DSO7104B) misst Strom, Spannung und Phasenverschiebung über die Sonden des Jets (siehe Abschnitt 2.2.1). Die eingekoppelte Leistung wird mit Hilfe eines Computers berechnet [32]. Bevor die Leistung gemessen werden kann, muss jedoch eine Referenzphase ohne Plasma aufgenommen werden. Außerdem wird ein, für jeden Jet individueller, Kalibrierfaktor benötigt, der über eine kommerzielle Spannungsprobe bestimmt wird [4].

4. Vorbereitende Messungen

4.1 Kalibration der Spektrometer

Die Empfindlichkeit von Kameras ist wellenlängenabhängig. Da für die Aktinometrie das Verhältnis von zwei Intensitäten gebildet wird, müssen Korrekturfaktoren gefunden werden, um absolute Intensitäten vergleichen zu können. Aus diesem Grund wird das Spektrum einer Kalibrierlampe (Ocean Optics LS-1-CAL), das näherungsweise dem eines schwarzen Strahlers entspricht, mit den Spektrometern aufgenommen. Das wahre Spektrum der Lampe ist durch den Hersteller angegeben. Wird das wahre Spektrum durch das gemessene Spektrum geteilt, können Faktoren gebildet werden, um von den gemessenen Intensitäten auf absolute Intensitäten zu schließen.

Das Spektrum der Lampe, sowie das gemessene Spektrum, ist in Abbildung 4.1 gezeigt. Obwohl die Intensität der Lampe mit steigender Wellenlänge zunimmt, fällt die gemessene Intensität ab 700 nm ab. Die resultierenden Korrekturfaktoren sind in Tabelle 4.1 aufgelistet.

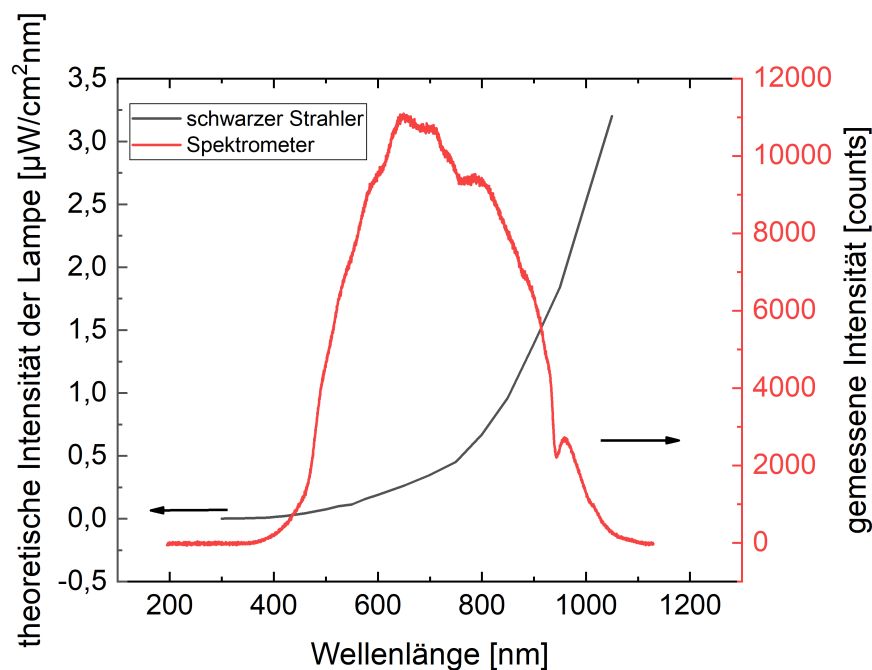


Abbildung 4.1: Absolute Intensität der Kalibrationslampe verglichen mit der gemessenen Intensität des Spektrographen (HR4C3931) nach 30 Minuten Aufwärmzeit

Tabelle 4.1: Korrekturfaktoren

Wellenlänge [nm]	HR4C3933	HR4C3931	ACTON
750,4	4,21	4,75	3,44
844,6	10,59	11,19	7,28

Mit Hilfe der Kalibrierfaktoren können die jeweiligen Aktinometriekonstanten (siehe Gleichung 2.11) bestimmt werden. Für das ACTON-Spektrometer, ist die Konstante in

Gleichung 4.1 angegeben:

$$C_{844/750} = 1,04 \quad (4.1)$$

4.2 Bestimmung der förderlichen Spaltbreite

Der Eintrittsspalt des ACTON Spektrometers ist variabel einstellbar. Es muss ein Kompromiss zwischen Auflösung (geschlossener Spalt) und Intensität (geöffneter Spalt) gefunden werden. Als Faustformel kann angenommen werden, dass der Eintrittsspalt mit dem Ausgangsspalt übereinstimmen sollte [23]. In dem hier vorliegenden Fall existiert im engeren Sinne kein Austrittsspalt. Die Austrittsbreite wird durch die Pixelgröße der Kamera ($26\mu\text{m}$) bestimmt. Die förderliche Spaltbreite entspricht der Spaltbreite, bei welcher die maximale Auflösung bei maximaler Signalstärke erzielt werden kann.

Um die Spaltbreite zu bestimmen wurden Spektren einer Titan-Referenzlampe in Abhängigkeit der Spaltbreite aufgenommen. Abbildung 4.2 (rechts) zeigt die Signalstärke und Breite (FWHM) einer Referenzlinie in Abhängigkeit der Spaltbreite. Die maximale Signalstärke nimmt unterhalb von $90\mu\text{m}$ stark ab, wohingegen die Breite des Signals schon bei Spaltbreiten oberhalb von $40\mu\text{m}$ zunimmt. Die förderliche Spaltbreite kann aus dem Verhältnis von Signalstärke und Breite bestimmt werden (siehe Abb. 4.2 links). Das Maximum liegt bei $60\mu\text{m}$. Da im Folgenden Linienbreiten gemessen werden, ist das Auflösungsvermögen sehr wichtig. Die gemessenen Intensitäten sind auch bei einer Spaltbreite von $30\mu\text{m}$ noch ausreichend hoch, sodass dieser Wert als Eintrittsspalt gewählt wurde.

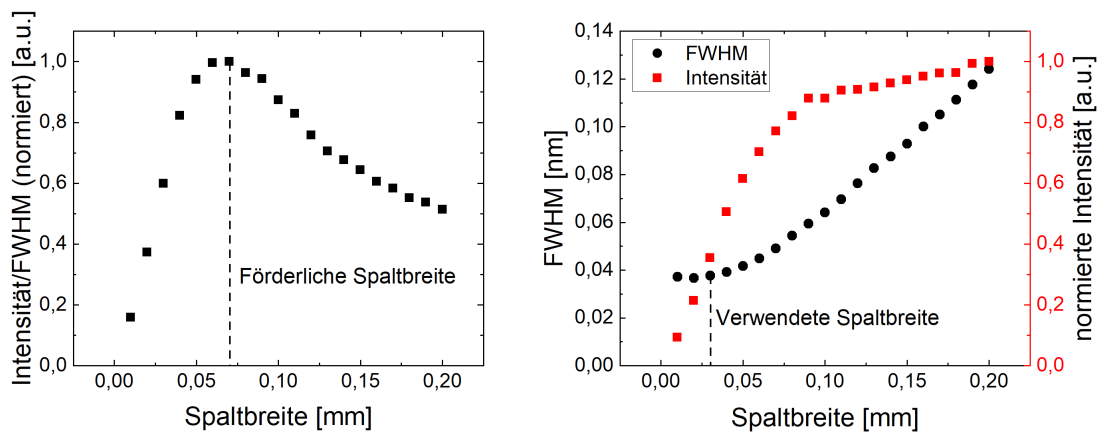


Abbildung 4.2: Signalstärke und FWHM einer Referenzlinie in Abhängigkeit der Spaltbreite

4.3 Bestimmung des Instrumentenprofils

Die Breite von Spektrallinien hängt nicht ausschließlich von Verbreiterungsmechanismen ab. Auch das Messgerät sorgt für eine gewisse Linienbreite. Diese Breite kann mit Hilfe eines Lasers bestimmt werden. Die Linienbreite des Lasers sollte so schmal sein, dass die gemessene Linienbreite näherungsweise dem Instrumentenprofil entspricht. Es wird die $632,7\text{nm}$ Linie eines HeNe-Lasers aufgenommen. Das Linienprofil lässt sich durch ein Voigtprofil mit einem Bestimmtheitsmaß von $R^2 = 0,997$ annähern. Dabei fällt auf, dass der Gaussanteil dominiert. Ein reines Gaussprofil besitzt hingegen ein Bestimmtheitsmaß

von $R^2 = 0,990$. Aufgrund der geringen Abweichung wird im Folgenden angenommen, dass das Instrumentenprofil gaussförmig ist. Die Linienbreite entspricht $0,0270\text{ nm}$. Das Instrumentenprofil ist in Abbildung 4.3 dargestellt. Zum Vergleich ist die 667 nm -Heliumlinie, anhand der die Resonanzverbreiterung gemessen werden soll, aufgetragen. Die Kurven unterscheiden sich, wie erwartet, in der Breite, jedoch auch in der Form. Wie oben beschrieben ist das Instrumentenprofil gaussförmig, wohingegen die resonante Linie eine Lorentzform aufweist.

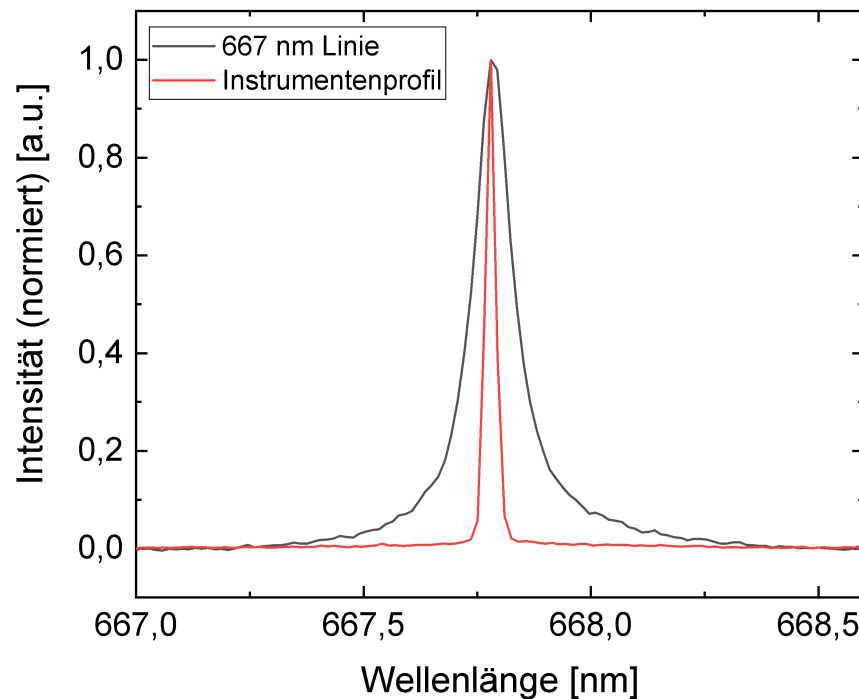


Abbildung 4.3: Instrumentenprofil (Wellenlänge verschoben) und 667 nm -Linie bei $1,2\text{ W}$

4.4 Referenzbedingungen

Um später vergleichbare Ergebnisse zu erhalten, ist es wichtig Referenzbedingungen zu schaffen und mögliche Fehlerquellen zu minimieren. Als Gasmischung wird im Folgenden 1 slm Helium (Arbeitsgas) mit einer 5 sccm Sauerstoffbeimischung verwendet. Ein Argonfluss von $0,2\text{ sccm}$ sorgt dafür, dass das Helium-Sauerstoff-Plasma nicht gestört wird, jedoch die 750 nm -Argonlinie im Spektrum zu sehen ist.

Verunreinigungen innerhalb der Gasleitung sollten gering gehalten werden. Aus diesem Grund werden vor Nutzung des COST-Jets alle Rohrleitungen abgepumpt. Es bietet sich an, den abgepumpten Aufbau mit Helium zu fluten und erneut abzupumpen.

Eine mit Trockeneis gefüllte Kältefalle reduziert die Verunreinigungen noch weiter, indem z.B. der Wasseranteil des Gases in der Falle kondensiert. Flüssiger Stickstoff kann in diesem Fall nicht verwendet werden, da Argon bei dieser Temperatur ebenfalls flüssig wird.

Um gleichbleibend reine Bedingungen zu schaffen, wird ein Überdruck in den Leitungen gehalten, sodass keine Umgebungsluft in die Leitungen strömen kann. Aus diesem Grund wird das Letzte Ventil vor dem Jet erst geöffnet, sobald ein Überdruck besteht und wieder

geschlossen, bevor der Gasfluss abgestellt wird.

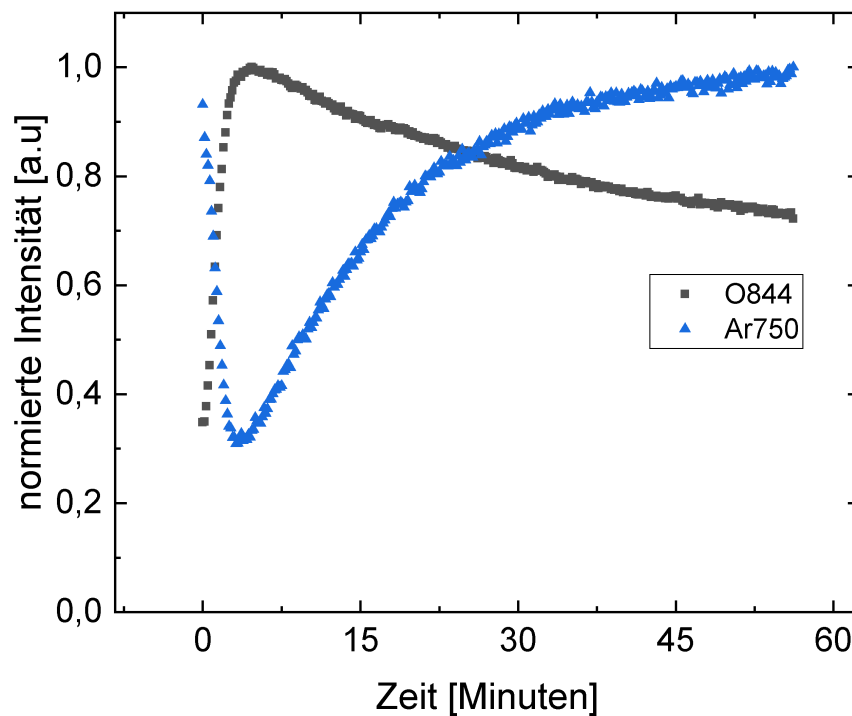


Abbildung 4.4: Intensitätsverläufe der 750 nm-Argonlinie und 844 nm-Sauerstofflinie nach Inbetriebnahme des Costjets

Aus vorherigen Arbeiten ist bekannt, dass der COST-Jet eine gewisse Aufwärmzeit (ca. 20 Minuten) benötigt, bis das Plasma stabil bleibt [4]. Aus diesem Grund wird mit den Messungen erst dann begonnen, wenn die Aufwärmzeit vorüber ist.

Intensitätsverläufe der später verwendeten Linien in Abhängigkeit der Zeit sind in Abbildung 4.4 gezeigt. Die Sauerstofflinie steigt zunächst an. Nach ca. 4 Minuten erreicht die Intensität ein Maximum und fällt danach ab. Die Argonlinie verhält sich gegenläufig. Das Minimum nach 4 Minuten kann durch eine weitere Messung erklärt werden. Wird das Plasma erst 10 Minuten nach Öffnung des Ventils und eingestelltem Gasfluss gezündet, existiert kein Minimum. Der Intensitätsverlauf lässt sich damit auf den hohen Druckabfall bei Öffnung des Ventils zurückführen.

Der weitere Verlauf lässt sich zum einen durch eine thermische Aufheizung des Jets erklären.

Zum anderen dauert es, trotz der optimierten Beimischung, bis der kleine Argonfluss im Plasma ankommt und messbar wird. Nach einer Stunde ist weder die Sauerstoff-, noch die Argonlinie vollständig gesättigt. Allerdings nähern sich beide Linien einem Plateau, sodass im weiteren Verlauf keine großen Änderungen zu erwarten sind. Im Folgenden wird eine Aufwärmzeit von einer Stunde eingehalten. Dies kann einen systematischen Fehler in zeitunabhängigen Messungen hervorrufen.

Ein Übersichtsspektrum des Jets, mit und ohne der oben beschriebenen Referenzbedingungen, ist in Abbildung 4.5 dargestellt.

Ohne den Pump- und Spülvorgang sind deutliche Verunreinigungen, zum Beispiel durch Stickstoff, zu erkennen. Auffällig ist, dass die, für die Aktinometrie benötigte, 750 nm-Argonlinie erst durch die Referenzbedingungen sichtbar wird. Nach dem Pump- und Spülvorgang, sowie der Aufwärmzeit, gehen die Verunreinigungen zurück. Neben Stickstoff, das als Verunreinigung in den Gasflaschen enthalten ist, sind nur die beigelegten Gase (Helium, Sauerstoff und Argon) im Spektrum zu sehen.

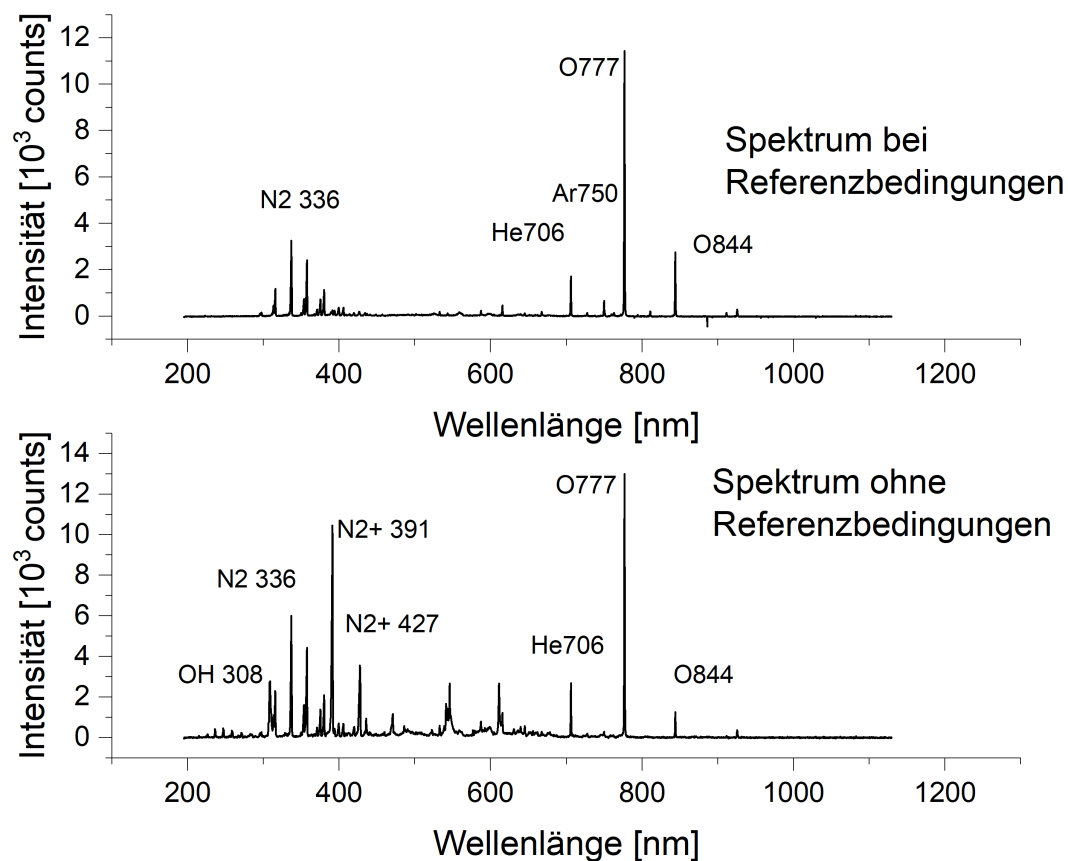


Abbildung 4.5: Vergleich eines Spektrums bei Referenzbedingungen (Abpumpen, Spülen, Kältefalle, Aufwärmzeit) und eines Spektrums bei Inbetriebnahme des Jets (Ocean Optics HR3931 bei 1 slm He, 5 sccm O₂ und 0,2 sccm Ar)

5. Ergebnisse

5.1 Dichteverläufe

Im Folgenden sollen Verläufe von atomaren Sauerstoffdichten in Abhängigkeit der Position, der Leistung, sowie der Sauerstoffbeimischung gemessen werden. Zunächst werden die Referenzbedingungen geschaffen. Dazu wird der Aufbau abgepumpt und gespült, sowie eine Aufwärmzeit von einer Stunde eingehalten.

Um die Reproduzierbarkeit der Ergebnisse zu überprüfen, werden alle Messungen an verschiedenen Tagen wiederholt. Die Spektren werden mit dem ACTON-Spektrographen aufgenommen. Vor der Messung wird ein Hintergrundspektrum aufgenommen, das automatisch von den Messungen abgezogen werden kann. Die atomare Sauerstoffdichte wird mit Gleichung 2.11 errechnet. Die Intensitäten werden aus dem Spektrum berechnet, indem über den Peak der jeweiligen Linie integriert wird.

Bevor die atomaren Sauerstoffdichten aus den gemessenen Linienintensitäten errechnet werden können, sollen weitere Überlegungen in die Auswertung mit einbezogen werden:

Argondichte

Für die Bestimmung der Sauerstoffdichte ist eine genaue Kenntnis der Argondichte essentiell. Diese wird aus dem eingestellten Argonfluss, dem Heliumfluss, der Atomdichte von Argon, sowie der Argonmasse berechnet.

$$[Ar] = \frac{\Phi_{Ar}\rho_{Ar}}{\Phi_{He}m_{Ar}} \quad (5.1)$$

Bei einem Vergleich der beiden Argonbeimischungsmethoden (Abbildung 3.2), wird, ein in Abbildung 5.1 dargestellter, Unterschied deutlich. Wird das Plasma zunächst mit optimierter Beimischung gezündet und nach ca. 2 Stunden auf die herkömmliche Methode umgestellt, ergibt sich eine Abweichung der gemessenen Intensität.

Zwei asymptotische Fits ($a - bc^x$) zeigen die Grenzwerte der Kurven (Tabelle 5.1). Das Verhältnis entspricht einer Abweichung von 18%.

Tabelle 5.1: Fitparameter: Verhalten der Argonbeimischung

Parameter	optimierte Beimischung	herkömmliche Beimischung
a	0,81	0,99
b	0,18	15,73
c	0,37	0,22

Da der Mass flow controller für die herkömmliche Methode kalibriert ist und die gemessene Intensität bei kleinen Argonbeimischungen linear von dem Argonfluss abhängt, kann davon ausgegangen werden, dass der eigentliche Argonfluss um 18% geringer ist, als eingestellt.

Wirkungsquerschnitte

Die Wirkungsquerschnitte für Elektronenstoßanregung sind in Abbildung 2.2 gezeigt. Der Fehler, der durch die Annahme von Gleichheit der Schwellen und Formen hervorgerufen

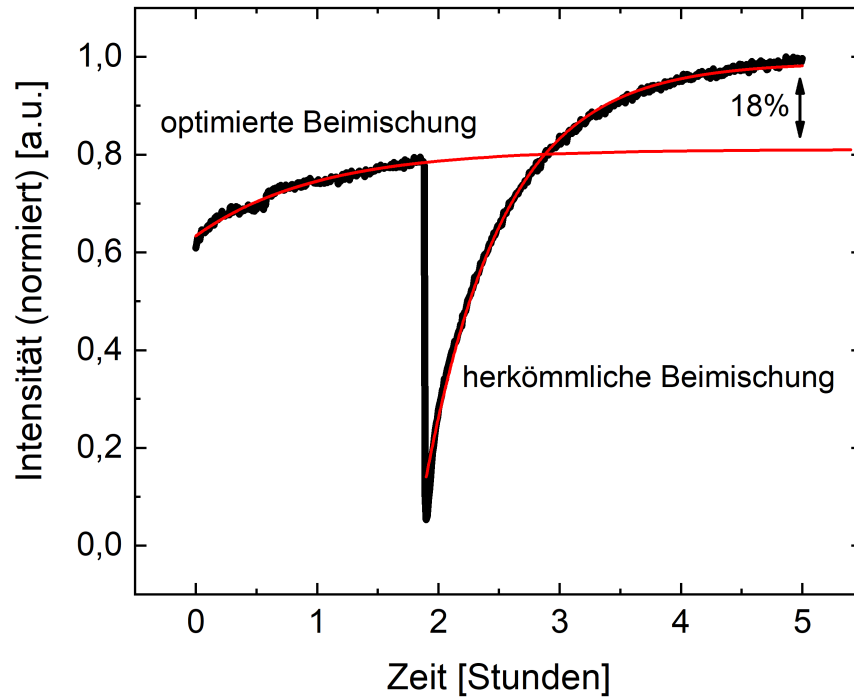


Abbildung 5.1: Vergleich zwischen herkömmlicher und optimierter Beimischung: 1 slm He, 5 sccm O₂ und 0,2 sccm Ar

wird, kann verringert werden, wenn, anstatt des Maximums, das Integral der Wirkungsquerschnitte verwendet wird.

Da Helium als Arbeitgas (99%) verwendet werden soll, kann die Annahme getroffen werden, dass die EEDF eine Rechteckform besitzt und ab der Ionisationsenergie von Helium (24,59 eV) abfällt [26]. Demnach kann der Wert als obere Integralgrenze gewählt werden.

$$\sigma_{int} = \int_{E_0}^{24,59} \sigma(\epsilon) dE \quad (5.2)$$

Die durch Integration errechneten Wirkungsquerschnitte sind in Tabelle 5.2 aufgelistet.

Tabelle 5.2: Integrierte Wirkungsquerschnitte

Zustand	σ_{int} 10 ⁻²² m ² eV	Ref
O(3p ³ P) _e	79,5	[20]
Ar(2p ₁) _e	36,46	[21]
O(3p ³ P) _{de}	4,7	[20]

Dissoziative Anregung

Da der Wirkungsquerschnitt für dissoziative Anregung bekannt ist, kann der Beitrag mit in die Rechnung einbezogen werden (Gleichung 2.13). Mit Hilfe von Tabelle 5.2 kann die atomare Sauerstoffdichte folgendermaßen bestimmt werden:

$$[O] = C \frac{I_O}{I_{Ar}} [Ar] - 0,06 [O_2] \quad (5.3)$$

Die molekulare Sauerstoffdichte kann dabei analog zur Argondichte (Gleichung 5.1) aus dem eingestellten Sauerstofffluss berechnet werden. Es ist zu beachten, dass ein Teil des zugeführten Sauerstoffs dissoziiert wird. Dieser Anteil kann über die Aktinometriemessung ohne Korrektur des dissoziativen Anteils abgeschätzt werden. Die resultierende molekulare Sauerstoffdichte ergibt sich zu:

$$[O_2^{res}] = [O_2^{Fluss}] - \frac{1}{2}[O] \quad (5.4)$$

Berechnung der atomaren Sauerstoffdichte unter Berücksichtigung der statistischen Fehler

Werden die oben genannten Punkte in die Berechnung mit aufgenommen, ergibt sich eine signifikante Änderung des Ergebnisses. Diese wird in Tabelle 5.3 anhand eines Beispielwertes dargestellt. Im Zentrum des Entladungskanals wird bei einer Leistung von 1 W ein Intensitätsverhältnis von 3,5 gemessen (1 slm He, 5 sccm O₂ und 0,2 sccm Ar). Die verschiedenen Korrekturen werden aufeinander aufbauend einbezogen, sodass bei Betrachtung des dissoziativen Anteils, alle vorherigen Korrekturen berücksichtigt sind.

Tabelle 5.3: Änderung der errechneten atomaren Sauerstoffdichte durch verschiedene Korrekturen

Methode	[O] [10 ²¹ m ⁻³]
ohne Korrektur	32,02
reduzierter Argonfluss	26,25
integrierte Wirkungsquerschnitte	16,12
dissoziativer Anteil	8,91

Deutlich wird der Einfluss der Korrekturen auf das Ergebnis, sodass diese in folgenden Berechnungen mit einbezogen werden.

Die berechnete Sauerstoffdichte geht mit einem statistischem Fehler einher, der sich aus einer Unsicherheit der gemessenen Intensitäten, sowie der optischen Korrekturfaktoren zusammensetzt. Intensitäten werden mehrfach gemessen, sodass eine Standardabweichung bestimmt werden kann. Bei erneuter Messung der optischen Korrekturfaktoren fiel eine Änderung von ca. 5% auf. Mit diesen Werten kann der Fehler nach Gauss, pro Messpunkt berechnet werden.

Systematische Fehler

Neben den besprochenen Unsicherheiten, müssen noch systematische Fehler beachtet werden. Es muss davon ausgegangen werden, dass zu Beginn der Messungen weder die Argon- noch die Sauerstoffbeimischung gesättigt ist (Abbildung 4.4).

Auch wenn die Abweichung des Argonflusses, aufgrund der Beimischungsmethode, in die Rechnung mit einbezogen wird, ist davon auszugehen, dass die Korrektur mit einer nicht bestimmten Unsicherheit behaftet ist.

Insgesamt müssen die Annahmen und Vereinfachungen der Aktinometrie berücksichtigt werden. Die Annahme, dass die EEDF eine Rechteckform aufweist und ab 24,59 eV abfällt,

bewirkt eine Unsicherheit in den verwendeten Anregungsraten. Hinzu kommen Unsicherheiten der Wirkungsquerschnitte und Lebensdauern, da diese ebenfalls experimentell im Niederdruck bestimmt wurden.

5.1.1 Ortsaufgelöste Aktinometrie

Es werden Spektren entlang des Entladungskanals des Jets aufgenommen. Die Ortsauflösung kann mit Hilfe einer dünnen Lichtleiterfaser ($200\text{ }\mu\text{m}$) verbessert werden. Wird die Faser so nah wie möglich an die Entladung gebracht, kann die Fläche des beobachteten Lichtkegels auf ca. 1 mm Durchmesser reduziert werden. Es ist darauf zu achten, dass der Metallkopf der Faser den Jet nicht berührt, um die RF-Entladung nicht zu beeinflussen. Eine computergesteuerte x-y-z-Verschiebung bewegt die Faser entlang des Entladungskanals. Dabei besteht die Möglichkeit die Faser sowohl horizontal, als auch vertikal auszurichten. Indem mit einem Laser in die Faser geleuchtet wird, kann der Messpunkt sichtbar gemacht werden. Messpunkte werden im Abstand von 1 mm aufgenommen. Dabei steht die Position -30 mm für den Beginn des Kanals. Der Effluent beginnt bei 0 mm .

Um einen systematischen Fehler, zum Beispiel durch eine zeitliche Änderung des Plasmas, zu vermeiden, wird die Messrichtung innerhalb einer Messreihe geändert.

Die Ergebnisse sind in Abbildung 5.2 dargestellt. Die drei Messungen entsprechen drei Messtagen mit jeweils sechs Messreihen. Die gezeigten Punkte sind die Mittelwerte eines Tages. Die Fehlerbalken entsprechen der Fehlerfortpflanzung nach Gauß (Abschnitt 5.1).

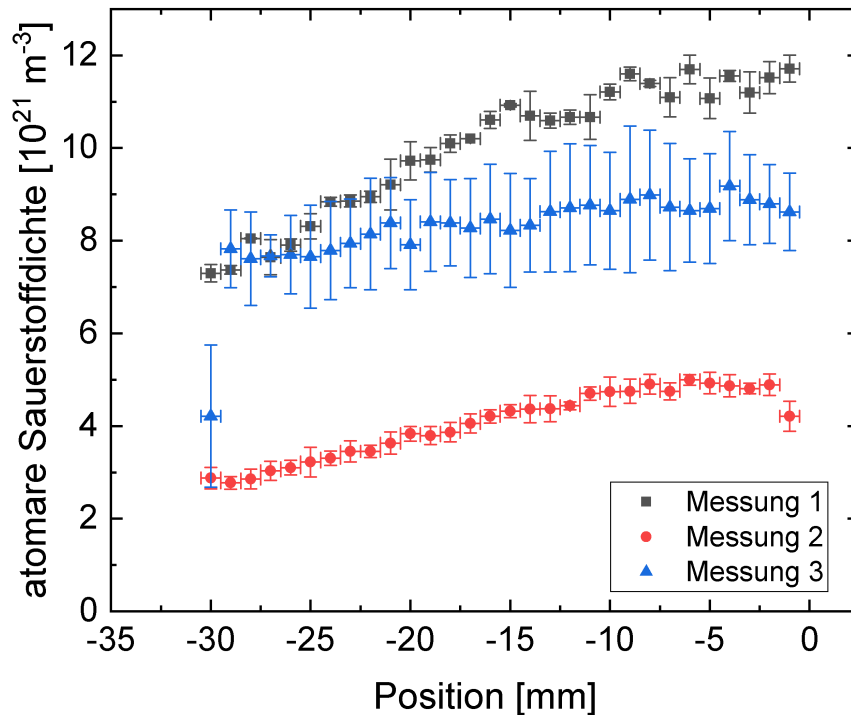


Abbildung 5.2: Ortsaufgelöste Aktinometrie: 1 slm He , 5 sccm O_2 , $0,2\text{ sccm Ar}$, $1,2\text{ W}$, 750 nm Ar und 844 nm O

Bei einem Sauerstofffluss von 5 sccm ergibt sich eine molekulare Sauerstoffdichte von $1,35 \cdot 10^{23}\text{ m}^{-3}$. Daraus folgen Dissoziationsraten von $1\text{--}4\%$, die aus der Literatur bekannt sind [33]. Trotz ähnlicher Verläufe, auf die noch eingegangen werden soll, weichen die

absoluten Werte der einzelnen Messungen um bis zu 300% voneinander ab.

Die statistischen Abweichungen (Abschnitt 5.1) liegen bei Messung 1 und 2 bei 7-12%. Messung 3 hingegen zeigt eine statistische Unsicherheit von bis zu 60%. Zwischen Messung 2 und 3 wurde die Heliumflasche des Aufbaus gewechselt, sodass zwischenzeitlich kein Überdruck in den den Leitungen bestand. Eine erhöhte Verunreinigung des Plasmas, im Vergleich zu vorherigen Messungen, kann demnach, trotz Pump- und Spülvorgang, nicht ausgeschlossen werden.

Hinzu kommen mögliche Fehler durch die Ausrichtung der Faser. Trotz Justierung mit Hilfe des Lasers, weist der Messpunkt einen Fehler von ca. 0,5 mm auf. Deutlich wird die horizontale Abweichung bei Betrachtung der Intensitätsverläufe (5.3 links). Am Ausgang des Entladungskanals ($x = -1$ mm) weisen die Intensitäten darauf hin, dass die Faser zum Teil auf den Effluents gerichtet war und nicht ausschließlich auf den Entladungskanal. Steht der Jet nicht parallel zur Faser, ergibt sich bei einer Variation der Position ein Fehler in vertikaler Richtung. Daher kann nicht ausgeschlossen werden, dass ein Teil der Messungen nicht exakt mittig ausgerichtet ist. Dies kann, neben einem schlechteren Signal-Rausch-Verhältnis, auch zu einer Ausrichtung auf die Randschicht des Plasmas führen, in der unter Umständen andere Anregungsmechanismen ablaufen als im Zentrum des Entladungskanals. Trotzdem sollte, bei der Größe der Messfläche (1 mm Durchmesser), das Zentrum der Entladung in jeder Messung enthalten sein.

Für ein besseres Verständnis der Ergebnisse, sind die Intensitätsverläufe von Messung 2 in Abbildung 5.3 (links) gezeigt. Während die Argonlinie fällt, steigt die Sauerstofflinie ab -25 mm. Das Maximum wird bei -10 mm erreicht. Die letzten 10 mm verlaufen die Argon- und Sauerstofflinie annähernd parallel, was zu einer konstanten Sauerstoffdichte führt.

Werden die Dichteprofile auf ihr Maximum normiert, werden die ähnlichen Verläufe deutlich (Abbildung 5.3 rechts). Zunächst steigt die atomare Sauerstoffkonzentration von Beginn des Entladungskanals (-30 mm) bis hin zur Mitte des Kanals (-15 mm). In Richtung des Effluents (0 mm) flacht die Steigung ab. Während Messung 1 und 2 annähernd deckungsgleich verlaufen, ist eine Abweichung in Messung 3 erkennbar. Diese lässt sich auf die oben beschriebene statistische Unsicherheit zurückführen.

Der hier gemessene Verlauf war physikalisch zu erwarten. Gelangt molekularer Sauerstoff in die Entladung, wird dieser nach und nach dissoziiert, womit die Zunahme der atomaren Sauerstoffdichte erklärt werden kann. Ab einem gewissen Punkt entsteht ein plasmachemisches Gleichgewicht. Die Dissoziation wird durch Vernichtungsprozesse (Rekombination zu O_2 oder Bildung von O_3) neutralisiert.

Trotz der diskutierten Unsicherheiten, können die Ergebnisse mit TALIF-Messungen verglichen werden (Abbildung 5.4). Bei ähnlichen Bedingungen ist ebenfalls zu Beginn ein starker Anstieg der atomaren Sauerstoffdichte erkennbar, der nach ca. 10 mm abflacht. Auch die absoluten Dichten liegen in der gleichen Größenordnung der Aktinometriemessung (10^{21} m^{-3}).

Die Ortsauflösung ist bei TALIF-Messungen durch den Fokuspunkt des Lasers gegeben, wohingegen bei der Aktinometrie über einen Raumwinkel mit 1 mm Durchmesser gemittelt wird. Daher können große Dichtegradienten in kleinen Dimensionen, wie in der TALIF-Messung zu sehen, nicht mit der Aktinometrie aufgelöst werden.

Des Weiteren ist die Generatorleistung nicht mit der gemessenen Plasmaleistung vergleichbar. Auch die Geometrie, des für die TALIF-Messungen verwendeten Jets, ist eine andere, als die des COST-Jets, sodass die Abweichungen gerechtfertigt werden können.

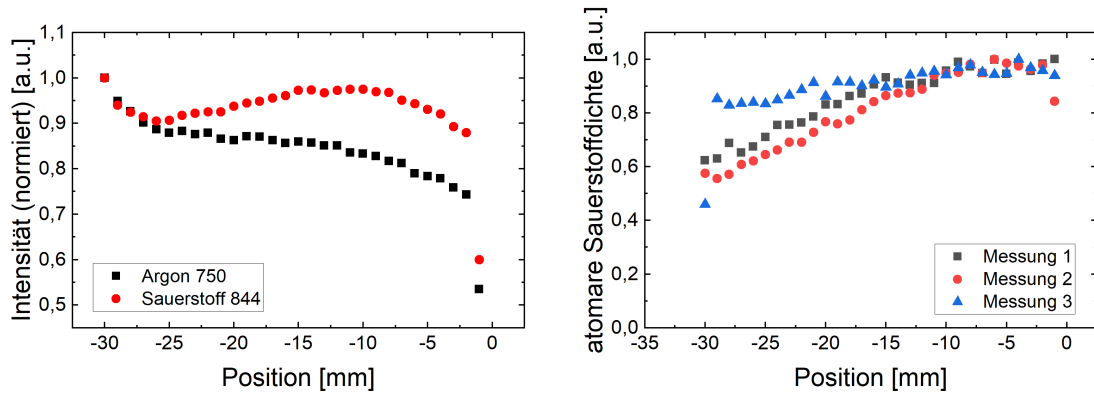


Abbildung 5.3: Intensitätsverläufe von Messung 2 in Abhängigkeit der Position (links) und normierte Dichteverläufe (rechts)

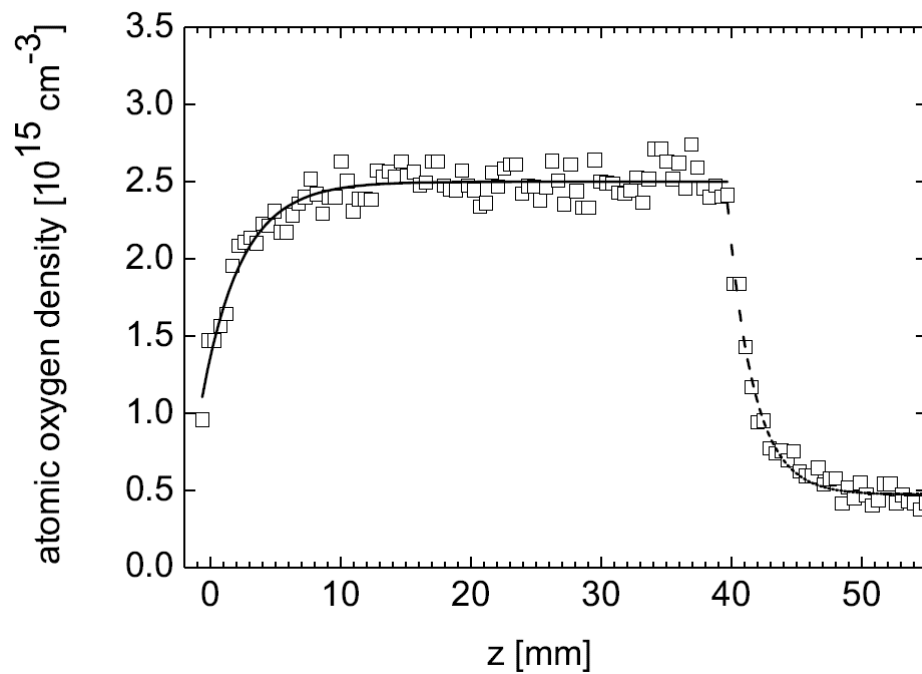


Abbildung 5.4: Atomare Sauerstoffdichte in Abhängigkeit der Position, 1,5slm He, 9sccm O₂, 12 W Generatorleistung [33]

5.1.2 Variation der Leistung

Das Vorgehen bei der Aktinometrie unter Variation der Leistung ist ähnlich wie das unter Variation der Position. Es wird eine größere Faser ($400\text{ }\mu\text{m}$) verwendet, um mehr Licht in den Spektrographen koppeln zu können. Ausgerichtet wird die Faser auf das Zentrum des Entladungskanals. Die resultierende Leistung wird durchgehend gemessen und kann durch Änderung der Spannung variiert werden. Um einen Fehler zu vermeiden wird jede Messung mit der gleichen Referenzphase durchgeführt (siehe Abschnitt 3.3). Es wird wieder an drei Tagen gemessen.

Die Ergebnisse sind in Abbildung 5.5 gezeigt. Pro Tag werden Mittelwerte und Fehlerfortpflanzung unter Berücksichtigung der Standardabweichung der Intensität errechnet. Der Fehler in x-Richtung beschreibt die Einstellgenauigkeit der Leistung. Eine lineare Anpassung pro Messung verdeutlicht den Verlauf.

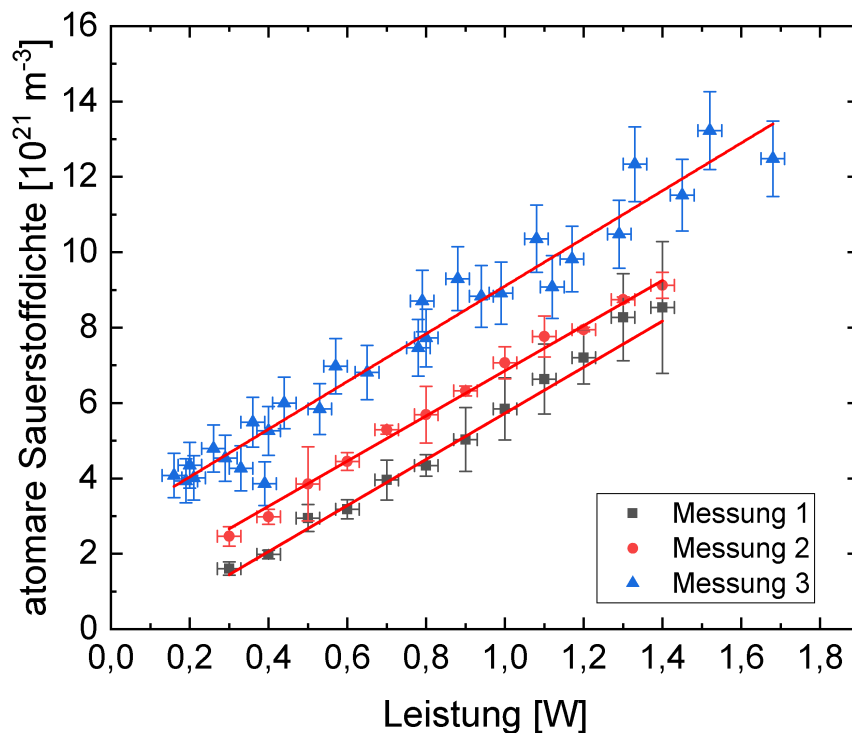


Abbildung 5.5: Aktinometrie unter Variation der Leistung: 1 slm He, 5 sccm O₂, 0,2 sccm Ar, in der Mitte des Entladungskanals ($x = -15\text{ mm}$), 750 nm Ar und 844 nm O

Wie schon oben beobachtet unterscheiden sich die absoluten Werte der einzelnen Messungen. Trotzdem wird deutlich, dass die Messungen den gleichen linearen Verlauf nehmen. Die Fitparameter sind in Tabelle 5.4 gezeigt.

Die Steigung der einzelnen Messungen ist jeweils gleich. Lediglich der Schnittpunkt mit der Y-Achse ist um maximal $3,16 \cdot 10^{21}\text{ m}^{-3}$ verschoben. Trotz der Abweichung, liegen einige Messungen innerhalb der statistischen Fehlertoleranzen der jeweils anderen Messungen, sodass eine Reproduzierbarkeit teilweise gegeben ist.

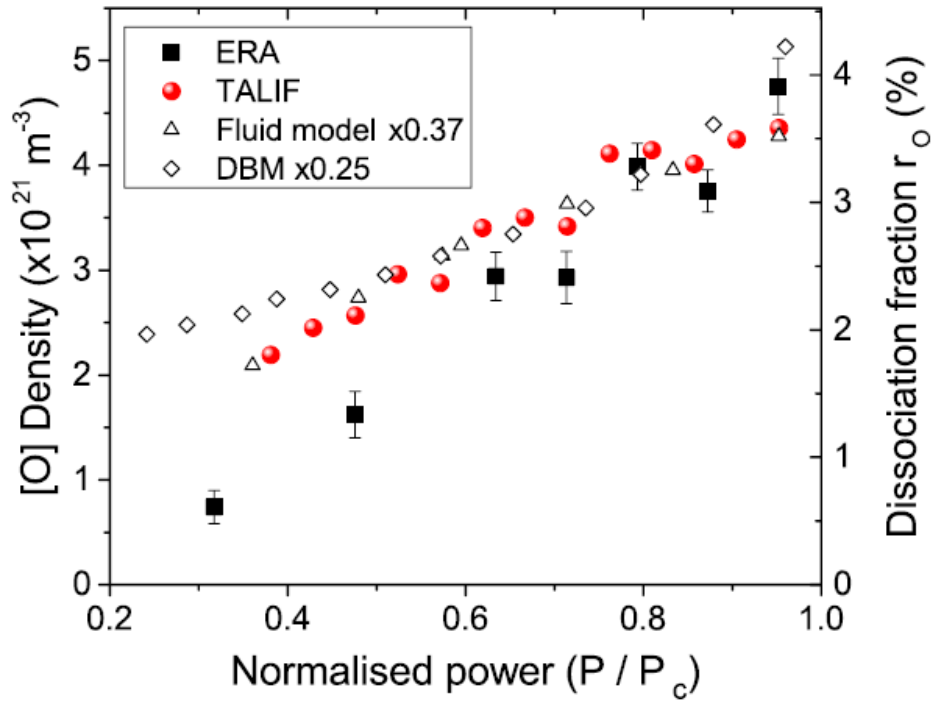


Abbildung 5.6: Atomare Sauerstoffdichte in Abhängigkeit der Plasmaleistung, 1 slm He, 0,5% O₂, 0,1% Ar [7]

Tabelle 5.4: Fitparameter Leistungsveränderung

Messung	Steigung [$10^{21} \text{ m}^{-3} \text{ W}^{-1}$]	Y-Schnittpunkt [10^{21} m^{-3}]
1	$6,11 \pm 0,22$	$-0,39 \pm 0,12$
2	$5,99 \pm 0,15$	$0,87 \pm 0,17$
3	$6,33 \pm 0,27$	$2,77 \pm 0,20$

Arthur Greb u.a. haben in einem Vorgänger des COST-Jets atomare Sauerstoffdichten bei vergleichbaren Bedingungen (Leistung und Gasmischung) gemessen [7]. Dabei wurde die *Energy Resolved Actinometry (ERA)* mit TALIF-Messungen verglichen. Hinzu kommen verschiedene Modelle. Die Ergebnisse sind in Abbildung 5.6 dargestellt.

Der lineare Verlauf der Dichte wird mit beiden Methoden (Aktinometrie und TALIF) deutlich. Dabei ist zu beachten, dass kleine Unterschiede, wie zum Beispiel ein geänderter Leistungsbereich, durch den anderen Jet hervorgerufen werden können.

Des Weiteren wurde der dissoziative Anteil, trotz gleicher Gasbeimischung, größer als in dieser Arbeit abgeschätzt (Vernachlässigung der atomaren Sauerstoffkonzentration), sodass die Werte tendenziell kleiner sind.

Mit Rücksicht auf diese Abweichungen ist auch die Größenordnung der atomaren Sauerstoffkonzentration von 10^{21} m^{-3} vergleichbar.

5.1.3 Variation der Gasmischung

Neben der Position und Leistung kann auch die Sauerstoffbeimischung variiert werden. Dazu wird die gleiche Position, wie schon zuvor bei der Leistungsvariation gewählt. Es wird ebenfalls die $400\text{ }\mu\text{m}$ Faser verwendet. Da die Änderung der Beimischung das Plasma ändert, wird die Leistung konstant auf 1 W nachgeregelt. Zwischen zwei Messungen wird eine Zeit von 5 Minuten gewartet, damit sich ein Gleichgewicht im Plasma einstellen kann. Die Ergebnisse sind in Abbildung 5.7 gezeigt. Wie zuvor werden Mittelwerte und Fehler von jeweils einem Tag gebildet. Bei Erhöhung der Sauerstoffbeimischung steigt die atomare

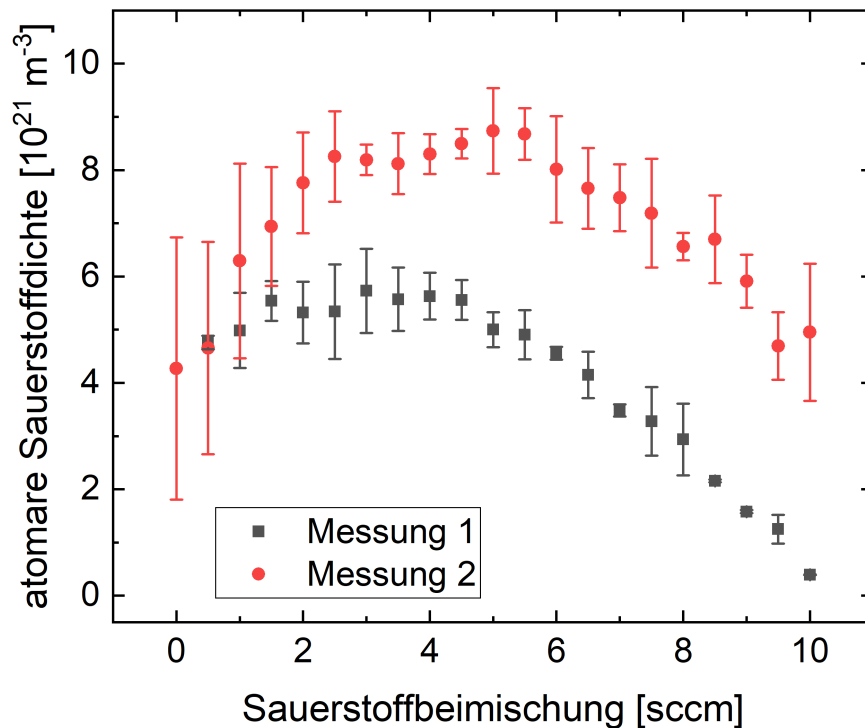


Abbildung 5.7: Aktinometrie unter Variation der Gasbeimischung: 1 slm He, 0,2 sccm Ar, in der Mitte des Entladungskanals ($x = -15\text{ mm}$), 1 W, 750 nm Ar und 844 nm O

Sauerstoffdichte zunächst an. Bei 3 bzw. 5 sccm Beimischung ist ein Maximum zu erkennen, sodass die atomare Sauerstoffdichte bei höheren Beimischungen wieder abfällt.

Der Anstieg der atomaren Sauerstoffdichte kann zunächst dadurch erklärt werden, dass mehr molekularer Sauerstoff für die Dissoziation zu Verfügung steht. Ab einem gewissen Punkt können jedoch auch Rotations- und Vibrationszustände des Sauerstoffmoleküls angeregt werden, sodass weniger Energie für die Dissoziation verfügbar ist und die atomare Sauerstoffdichte wieder sinkt.

Neben den oben schon diskutierten Fehlern, kann es hier zu einer Unsicherheit durch die Wartezeit kommen. Ist das Plasma noch nicht konstant, werden, je nach positiver oder negativer Änderung, zu große oder zu kleine Werte gemessen.

Dieses Ergebnis bestätigt, dass der COST-Jet bei einer Sauerstoffbeimischung von 5 sccm, die auch in den vorherigen Messungen verwendet worden ist, die effektivste Dissoziationsrate besitzt.

Auffällig ist der Einfluss des dissoziativen Anteils. Wird dieser vernachlässigt, ist kein Maximum zu erkennen und die Sauerstoffdichte nimmt einen stark veränderten Verlauf. Trotz möglicher Fehlerquellen stimmt das Profil mit der Literatur überein.

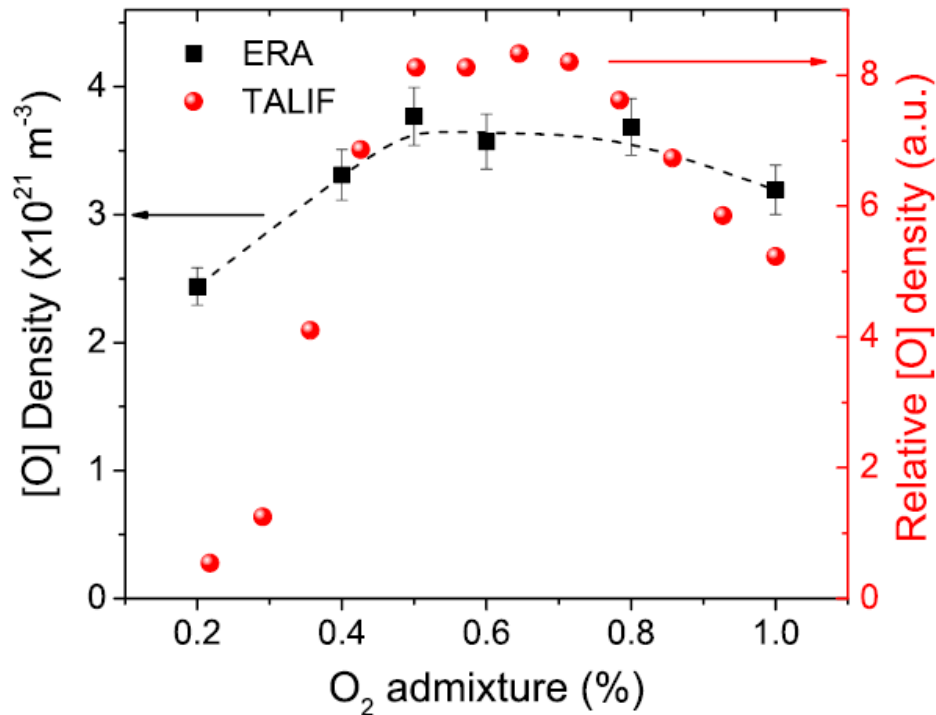


Abbildung 5.8: Atomare Sauerstoffdichte in Abhängigkeit der Sauerstoffbeimischung, 1 slm He, 0,1% Ar [7]

Vergleichbare Aktinometrie und TALIF-Messungen sind in Abbildung 5.8 dargestellt. Sowohl die Größenordnung der absoluten Messwerte, als auch die Position des Maximums können unter Berücksichtigung der Unsicherheiten reproduziert werden.

5.2 Temperaturverläufe

Mit Hilfe der Resonanzspektroskopie soll die Gastemperatur des Jets bestimmt werden. Dazu wird der Jet bei den oben beschriebenen Referenzbedingungen betrieben. Allerdings wird ausschließlich 1 slm Helium ohne Beimischung verwendet. Mit Hilfe des 1800-Strichgitters (ACTON) wird bei einem Eintrittsspalt von 30 μm die 667 nm-Linie aufgenommen.

Da Molekülspektren höherer Ordnung im Spektrum zu erkennen sind, wird ein Filter zwischen Entladung und Lichtleiterfaser benötigt. Der Vergleich (mit und ohne Filter) ist in Abbildung 5.9 gezeigt. Es können sowohl störende Linien entfernt, als auch das Signal-Rausch-Verhältnis verbessert werden.

Es sollen Temperaturen in Abhängigkeit der Plasmaleistung gemessen werden. Dazu wird eine Leistung eingestellt und die Breite (FWHM) der Heliumlinie gemessen. Im Folgenden wird der Filter entfernt und das *second positive Band* von Stickstoff aufgenommen. Nach einer Änderung der Leistung wird jeweils 10 Minuten gewartet, damit sich der Jet auf- bzw. abwärmen kann. Es ist darauf zu achten, dass der metallische Filter die Leistungsmessung nicht beeinflusst, da dieser direkt vor den Elektroden angebracht wird, und somit das RF-Signal stören kann. In einigen Fällen muss die Spannung nachgeregelt werden.

Um die Linienbreite der 667 nm Linie messen zu können muss zunächst eine Basislinie gefunden werden. Dazu wird eine Gerade an den Untergrund angelegt und von den Daten abgezogen.

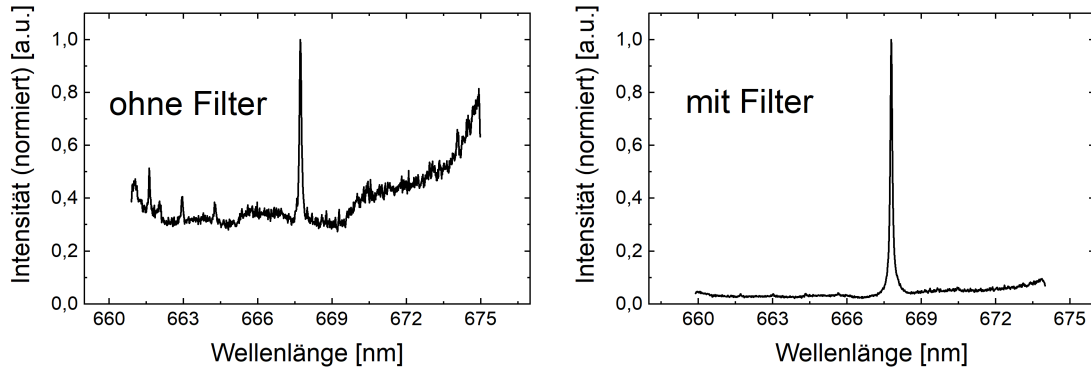


Abbildung 5.9: Vergleich: 667 nm-Heliumlinie ohne und mit Filter

An das korrigierte Spektrum kann ein Voigtfit angepasst werden. Der dominierende Anteil des Lorentzanteils wird durch die Resonanzverbreiterung hervorgerufen [10]. Eine Van der Waals Verbreiterung kann für die 667 nm Linie vernachlässigt werden.

Der Gaussanteil setzt sich aus dem Instrumentenprofil (Abschnitt 4.3), sowie einer Dopplerverbreiterung zusammen. Andere Arbeiten haben zuvor Gastemperaturen zwischen 20 und 75 °C bestimmt [4, 34]. Damit läge die Dopplerverbreiterung der 667 nm-Linie zwischen 4,1 und 4,4 pm.

$$\Delta\lambda = \frac{\lambda_0}{c} \sqrt{\frac{8k_B T \ln 2}{m_{He}}} \quad (5.5)$$

Die Breite einer Faltung zweier Gaussprofile setzt sich aus den einzelnen Breiten zusammen.

$$\sigma = \sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2} \quad (5.6)$$

Bei einer Kombination aus Doppler- und Instrumentenprofil fällt auf, dass die Dopplerverbreiterung im Folgenden vernachlässigt werden kann. Mit diesen Annahmen bestehen die gemessenen Profile ausschließlich aus der Resonanzverbreiterung (Lorentz), sowie dem Instrumentenprofil (Gauss).

Innerhalb der Voigtanpassung wird die Gaussbreite (Instrumentenprofil) als fester Parameter übergeben. Die resultierende Lorentzbreite wird für die Berechnung der Temperatur verwendet (Gleichung 2.16).

Eine beispielhafte Anpassung ist in Abbildung 5.10 gezeigt. Die Lorentzbreite wird zu 101 pm bestimmt. Dies entspricht einer Temperatur von 318 K. Bis auf eine Asymmetrie am rechten Flügel, kann die Messung angepasst werden. Das Bestimmtheitsmaß liegt bei $R^2 = 99,7\%$.

Als Referenz dienen die Rotationstemperaturen aus den Stickstoffspektren. Zwei angepasste Spektren bei einer Plasmaleistung von 700 mW sind in Abbildung 5.11 gezeigt. Der Unterschied liegt in der Wahl der Lorentzbreite, die vor der Anpassung festgelegt werden muss. Bei einer geringeren Breite kann der Bereich höherer Wellenlängen, insbesondere der Peak bei 380 nm besser angepasst werden, wohingegen bei höheren Breiten die restliche Bandstruktur genauer angepasst werden kann. Letztere wird im weiteren Vorgehen als Referenz herangezogen. Der Unterschied der beiden Anpassungen wird als Unsicherheit verwendet.

Die Ergebnisse sind in Abbildung 5.12 dargestellt. Die Verläufe werden jeweils linear angepasst. Aufgrund eines geringen Signal-Rausch-Verhältnisses bei kleinen Leistungen, ergab

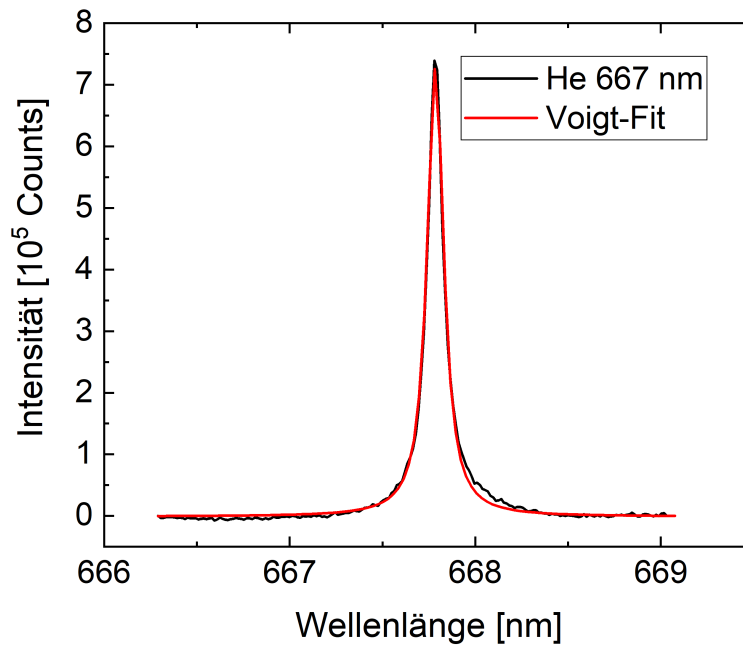


Abbildung 5.10: Voigtfit der 667 nm Heliumlinie bei 1,17 W

sich ein Ausreißer in den Rotationstemperaturen, der nicht in die Anpassung einbezogen wird.

Die Fehlerbalken entstehen zum einen durch die Unsicherheit des Voigtprofils (Resonanzverbreiterung) und zum anderen durch die beschriebene Wahl der Lorentzbreite (Rotationstemperaturen). Die Einstellgenauigkeit der Leistung spiegelt sich in einem Fehlerbalken in x-Richtung wider.

Die gemessenen Rotationstemperaturen liegen unter Berücksichtigung der Fehlerbalken in einem realistischen Intervall zwischen 60 und 90 °C. Auch der lineare Anstieg war zu erwarten [4]. Der lineare Trend lässt sich mit Hilfe der Resonanzverbreiterung reproduzieren. Die Steigungen liegen innerhalb der Fehlertoleranzen der jeweils anderen Methode (Tabelle 5.5).

Die Temperaturen aus der Resonanzverbreiterung liegen zwischen 40 und 60 °C. Der

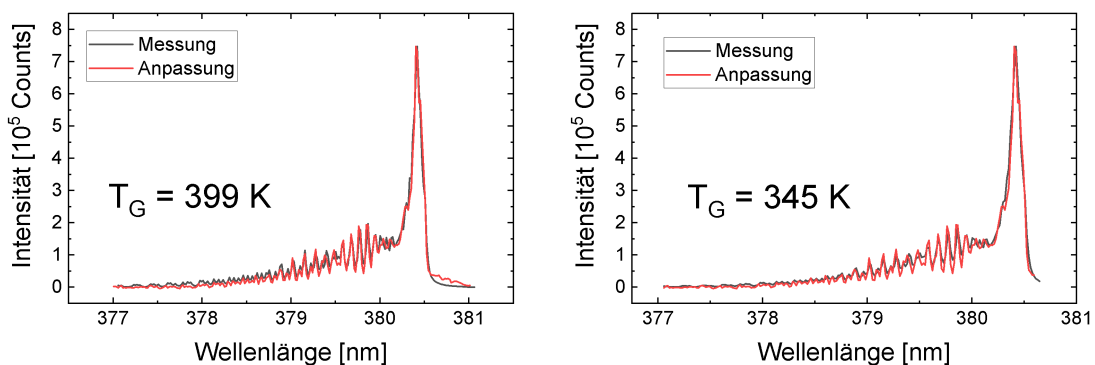


Abbildung 5.11: Angepasste Stickstoffspektren bei 700 mW: 0,017 nm Lorentzbreite (links) und 0,021 nm Lorentzbreite(rechts)

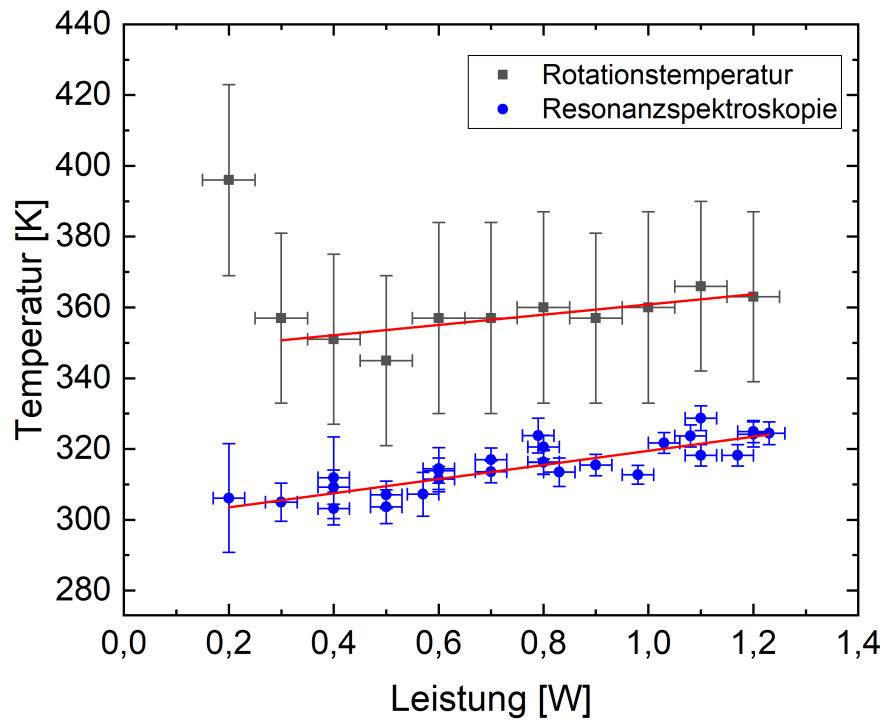


Abbildung 5.12: Temperaturverläufe: Rotationstemperaturen (0,021 nm Lorentzbreite) und Temperaturen aus Resonanzverbreiterung in Abhängigkeit der Leistung

Tabelle 5.5: Fitparameter Temperaturverläufe

	Rotationstemperatur	Resonanzverbreiterung
Steigung [K/W]	$14,47 \pm 4,69$	$19,97 \pm 2,75$
Y-Achsenabschnitt [K]	$346,37 \pm 3,78$	$299,51 \pm 2,50$

Schnittpunkt mit der Y-Achse bei 300 K ist physikalisch sinnvoll, da die Gastemperatur ohne eingeschaltetes Plasma bei Raumtemperatur liegt.

Eine mögliche Fehlerquelle stellt die verwendete Konstante dar (Gleichung 2.16). Diese wurde für ein Niederdruckplasma experimentell bestimmt [29]. Hinzu kommen die vernachlässigten Verbreiterungsmechanismen. Stammt ein Teil der Lorentzbreite aus einem anderen Mechanismus, ist die resultierende Temperatur höher.

5.3 Reproduzierbarkeit

Teilweise liegen die präsentierten Ergebnisse von verschiedenen Tagen innerhalb der Fehlertoleranzen der jeweils anderen Messung. Allerdings gibt es auch, wie zum Beispiel bei der orts aufgelösten Aktinometrie, große Abweichungen.

Die Unsicherheit durch die Argonbeimischung konnte in dieser Arbeit nur abgeschätzt werden. Die Ergebnisse legen jedoch nahe, dass der Argonfluss die Ursache der gemessenen Dichteabweichungen ist.

Unter Berücksichtigung dieser Annahme sind die Messungen reproduzierbar, sodass der COST-Jet unter den verwendeten Bedingungen eine konstante Plasmaquelle darstellt.

6. Fazit und Zusammenfassung

Die Methode der Aktinometrie konnte in dieser Arbeit verwendet werden, um Dichteverläufe von atomarem Sauerstoff zu messen. Ortsaufgelöste Messungen zeigten steigende Verläufe mit anschließendem Gleichgewicht, die mit vorherigen TALIF-Messungen zu vergleichen sind.

Bei einer Variation der Leistung wurde eine lineare Abhängigkeit der atomaren Sauerstoffdichte bestimmt.

Ebenfalls konnte die aus TALIF-Messungen bekannte Abhängigkeit der Sauerstoffbeimischung reproduziert werden.

Bei allen Messungen fiel der große Einfluss des dissoziativen Anteils auf. Wird dieser nicht beachtet, stimmen die Ergebnisse nicht mit der Literatur überein.

Die größten Messunsicherheiten wurden in dieser Arbeit durch Schwankungen des Argonflusses hervorgerufen. Diese ließen sich zum einen durch die Methode der Beimischung erklären und abschätzen. Zum anderen wurde die Zeit, bis die Argondichte im Plasma gesättigt ist, als zu gering eingeschätzt.

Die Reproduzierbarkeit der Ergebnisse, auch im Hinblick auf die Konstanz des COST-Jets, konnte teilweise gezeigt werden. Trotz einer Differenz von einigen absoluten Messwerten, wurden jeweils die gleichen Verläufe beobachtet. Die Abweichungen lassen sich durch statistische, sowie systematische Fehler (Argonfluss) rechtfertigen, sodass die Kontinuität des COST-Jets anhand der Ergebnisse nicht in Frage gestellt werden muss.

Zusammenfassend kann die Aktinometrie als anwendbare Alternative zu experimentell aufwändigeren Methoden, wie TALIF, bewertet werden. Trotz der hier gezeigten Ergebnisse, müssen die Annahmen und Vereinfachungen der Methode bedacht und für jedes Plasma neu auf ihre Zulässigkeit überprüft werden.

Neben den Dichteverläufen von atomarem Sauerstoff, wurden Temperaturverläufe mit Hilfe der Resonanzspektroskopie aufgenommen. Die Ergebnisse liegen in einem, für den COST-Jet, glaubwürdigen Intervall und konnten mit Hilfe von Rotationstemperaturen aus Stickstoffbanden annähernd reproduziert werden. Es konnte ein klarer linearer Trend bestimmt werden, der aus anderen Arbeiten bekannt ist.

Trotz verschiedener theoretischer Annahmen (Zusammensetzung des Voigtprofils), die eine Unsicherheit hervorrufen können, kann mit dieser Methode die Temperatur des Arbeitsgases bestimmt werden. Die Aufnahme von Rotationsspekten benötigt hingegen eine Verunreinigung bzw. eine Beimischung von Stickstoff.

Abschließend kann, auf Grund der vergleichbaren Ergebnisse, die Resonanzspektroskopie als Alternative für störanfällige elektronische, sowie von Verunreinigungen abhängige Messungen, angesehen werden.

7. Ausblick

Auch wenn mit Hilfe der Aktinometrie vertrauenswürdige Ergebnisse produziert werden konnten, sind Schwierigkeiten bei Bestimmung der Argondichte sichtbar geworden.

Um den genauen Einfluss auf die Aktinometriemessungen bestimmen zu können, müssen die Unterschiede der verschiedenen Beimischungsmethoden genauer geklärt werden. Dabei geht es um die Frage, wie reproduzierbar der in dieser Arbeit beschriebende Korrekturfaktor ist.

Darüber hinaus muss geklärt werden, wie die Zeit zwischen Einstellung des Flusses am mass flow controller und Sättigung im Plasma verkürzt werden kann, da eine konstante Argondichte für die Aktinometrie essentiell ist.

Die Belastbarkeit von Aktinometriemessungen könnte mit Ausschluss dieser Fehlerquellen noch detaillierter bewertet werden.

Bei allen Dichtemessungen wurde außer Acht gelassen, dass unter Umständen Umgebungsluft zurück in den Entladungskanal strömt (Backflow). Dadurch gelangen sowohl Verunreinigungen als auch Sauerstoff in die Entladung, die die Berechnungen der Aktinometrie erschweren. Der Einfluss des Backflows auf die Dichteverläufe könnte in Zukunft überprüft und abgeschätzt werden.

Ebenfalls kann die Resonanzspektroskopie (Temperaturmessung) verbessert werden. Bei den hier präsentierten Ergebnissen wurden sämtliche Verbreiterungsmechanismen vernachlässigt. Auch die verwendete Konstante ist kritisch zu hinterfragen. Zukünftige Arbeiten könnten diese Punkte aufnehmen und weiterführen.

Literatur

- [1] T Urbanietz u. a. „Non-equilibrium excitation of CO₂ in an atmospheric pressure helium plasma jet“. In: *Journal of Physics D: Applied Physics* 51.34 (2018), S. 345202.
- [2] K. Fricke u. a. „Investigation of Surface Etching of Poly(Ether Ether Ketone) by Atmospheric-Pressure Plasmas“. In: *IEEE Transactions on Plasma Science* 40.11 (Nov. 2012), S. 2900–2911. ISSN: 0093-3813.
- [3] M G Kong u. a. „Plasma medicine: an introductory review“. In: *New Journal of Physics* 11.11 (2009), S. 115012.
- [4] J Golda u. a. „Concepts and characteristics of the ‘COST Reference Microplasma Jet’“. In: *Journal of Physics D: Applied Physics* 49.8 (2016), S. 084003.
- [5] R. E. Walkup, K. L. Saenger und G. S. Selwyn. „Studies of atomic oxygen in O₂+CF₄ rf discharges by two-photon laser-induced fluorescence and optical emission spectroscopy“. In: *The Journal of Chemical Physics* 84.5 (1986), S. 2668–2674.
- [6] H. M. Katsch u. a. „Detection of atomic oxygen: Improvement of actinometry and comparison with laser spectroscopy“. In: *Journal of Applied Physics* 88.11 (2000), S. 6232–6238.
- [7] Arthur Greb u. a. „Energy resolved actinometry for simultaneous measurement of atomic oxygen densities and local mean electron energies in radio-frequency driven plasmas“. In: *Applied Physics Letters* 105.23 (2014), S. 234105.
- [8] D V Lopaev u. a. „Actinometry of O, N and F atoms“. In: *Journal of Physics D: Applied Physics* 50.7 (2017), S. 075202.
- [9] Andrei Pipa u. a. „Resonance broadening of argon lines in a micro-scaled atmospheric pressure plasma jet (argon μ APPJ)“. In: 106 (Juni 2015), S. 244104.
- [10] Vlasta Horvatic u. a. „Atmospheric helium capillary dielectric barrier discharge for soft ionization: broadening of spectral lines, gas temperature and electron number density“. In: *J. Anal. At. Spectrom.* 29 (3 2014), S. 498–505.
- [11] Lewi Tonks und Irving Langmuir. „Oscillations in Ionized Gases“. In: *Phys. Rev.* 33 (2 Feb. 1929), S. 195–210.
- [12] Achim von Keudell. *Vorlesungsskript: Einführung in die Plasmaphysik*. Ruhr-Universität Bochum, 2017.
- [13] Alexander Fridman. *Plasma Chemistry*. Cambridge University Press, 2008.
- [14] J. W. Coburn und M. Chen. „Optical emission spectroscopy of reactive plasmas: A method for correlating emission intensities to reactive particle density“. In: *Journal of Applied Physics* 51.6 (1980), S. 3134–3136.
- [15] H Döbele u. a. „Laser-induced fluorescence measurements of absolute atomic densities: Concepts and limitations“. In: *Plasma Sources Science and Technology* 14 (Mai 2005).
- [16] S. Reuter u. a. „Diagnostic based modeling for determining absolute atomic oxygen densities in radio-frequency atmospheric pressure helium-oxygen plasmas“. In: *4th international congress on cold atmospheric pressure plasmas: sources and applications, proceedings*. Hrsg. von C Leys und R Morent. Universiteit Gent, 2009, S. 111–112.

- [17] *NIST Atomic Spectra Database Lines Form*. https://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/lines_form.html. Accessed: 2018-06-21.
- [18] K Niemi, V Schulz-von der Gathen und H F Doebele. „Absolute atomic oxygen density measurements by two-photon absorption laser-induced fluorescence spectroscopy in an RF-excited atmospheric pressure plasma jet“. In: *Plasma Sources Science and Technology* 14.2 (2005), S. 375.
- [19] N. Sadeghi u. a. „Quenching rate constants for reactions of Ar(4p[1/2]0,4p[1/2]0,4p[3/2]2, and 4p[5/2]2) atoms with 22 reagent gases“. In: *The Journal of Chemical Physics* 115.7 (2001), S. 3144–3154.
- [20] J. Ethan Chilton u. a. „Measurement of electron-impact excitation into the 3p⁵4p levels of argon using Fourier-transform spectroscopy“. In: *Phys. Rev. A* 57 (1 1998), S. 267–277.
- [21] M. Bruce Schulman u. a. „Emission from oxygen atoms produced by electron-impact dissociative excitation of oxygen molecules“. In: *Phys. Rev. A* 32 (4 1985), S. 2100–2116.
- [22] Russ R. Laher und Forrest R. Gilmore. „Updated Excitation and Ionization Cross Sections for Electron Impact on Atomic Oxygen“. In: *Journal of Physical and Chemical Reference Data* 19.1 (1990), S. 277–305.
- [23] Volker Schulz-von der Gathen. *Vorlesungsskript: Plasmadiagnostik*. Ruhr-Universität Bochum, 2010.
- [24] O Motret u. a. „Rotational temperature measurements in atmospheric pulsed dielectric barrier discharge - gas temperature and molecular fraction effects“. In: *Journal of Physics D: Applied Physics* 33.12 (2000), S. 1493.
- [25] A N Goyette u. a. „An experimental comparison of rotational temperature and gas kinetic temperature in a H₂ discharge“. In: *Journal of Physics D: Applied Physics* 29.5 (1996), S. 1197.
- [26] Volker Schulz- von der Gathen. personal communication. 31. Aug. 2018.
- [27] Hans-Joachim Kunze. *Introduction to Plasma Spectroscopy*. Springer, 2009. ISBN: 978-3-642-02233-3.
- [28] Hans R. Griem. *Plasma Spectroscopy*. McGraw-Hill Book Company, 1964.
- [29] A Atiola u. a. „Temperature dependence of self-broadening at low densities in singlet spectral lines of helium“. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 21.2 (1988), S. 249.
- [30] A C Lindsay u. a. „Absorption measurements of resonance broadening in helium“. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 22.12 (1989), S. L303.
- [31] *Operating Instructions Acton Series SP-2750*. Princeton Instruments.
- [32] Julian Held. personal communication. 2. Juli 2018.
- [33] Niklas Knake. „Build-up of Atomic Oxygen Densities in the Discharge Core of a Micro-Scaled Atmospheric Pressure Plasma Jet“. dissertation. Ruhr-Universität Bochum, 2010.
- [34] Isabel Pietka. *Energiebilanz im COST-Mikroplasmajet bei Betrieb in Argon*. 2017.

Danksagung

Zum Abschluss möchte ich mich bei allen bedanken, die diese Arbeit möglich gemacht und mich in den letzten Monaten unterstützt haben.

Ein ganz besonderer Dank gilt Dr. Volker Schulz-von der Gathen, der mir diese Arbeit am Lehrstuhl für Experimentalphysik II ermöglicht hat und zu jeder Zeit für mich ansprechbar war.

Ebenfalls möchte ich Prof. Dr. Achim von Keudell danken, der diese Arbeit als Zweitgutachter gelesen hat.

Vielen Dank an Patrick Preissing und Julian Held, die mir bei Problemen jeglicher Art zur Seite standen und mich sowohl inhaltlich als auch bei praktischen Fragen im Labor unterstützt haben.

Ein herzliches Dankeschön geht an Maike Kai und Steffen Schüttler, die mit ihrer Hilfsbereitschaft für eine tolle Atmosphäre im Büro gesorgt haben.

Ein weiterer Dank gilt allen Mitarbeitern des Lehrstuhls, die für ein entspanntes Arbeitsklima sorgten.