

3 Theoretische Beschreibung der Deposition von Nanopartikeln

Transportvorgänge von Partikeln zu Oberflächen können auf unterschiedliche Weise betrachtet werden, zum einen mit dem Eulerschen Ansatz als Kontinuumsprozeß und zum anderen mit dem Lagrangeschen Ansatz in Form von Einzeltrajektorien. Im ersten Fall wird die Partikelphase als Kontinuum betrachtet, wodurch Aussagen über das Verhalten der Partikelphase als Ganzes im Vordergrund stehen. Ein wichtiger Parameter bei dieser Betrachtungsweise ist die Partikelflußdichte, mit der das Bewegungsverhalten der Partikelphase beschrieben wird. Sie setzt sich aus einem diffusiven Anteil, der durch das erste Ficksche Gesetz beschrieben wird, und einem Term zur Berücksichtigung des konvektiven sowie durch externe Kräfte hervorgerufenen Transportes zusammen [30]. Untersuchungen hierzu wurden von [31], [32], [33], [34] hinsichtlich der Abscheidung von Partikeln auf Waferoberflächen, die mit einer partikelbeladenen, laminaren Staupunktströmung angeströmt wurden, durchgeführt. Durch die Beschreibung der Partikelphase als Kontinuum, ist diese Methode für die makroskopische Untersuchung der Deposition gut geeignet. Die Bewegung einzelner Partikel wird hierbei nicht betrachtet, so daß keine Aussage über deren Anordnung auf Oberflächen gemacht werden kann. Dies wird durch den Lagrangeschen Ansatz ermöglicht, bei dem das Einzelpartikel im Vordergrund steht. Die Wechselwirkung mit seiner Umgebung, in die auch die Eigenschaften der Substratoberfläche einfließen, kann in einer Kräftebilanz und damit durch die Bewegungsgleichung dargestellt werden. Die Lösung der Bewegungsgleichung führt zur Berechnung von Trajektorien, die Aussagen über die zu erwartende Anordnung der Partikel auf der Substratoberfläche erlauben.

In Abbildung 3.1 ist der einfachste Fall des Depositionsvorganges schematisch dargestellt. Es wird von einem Gasvolumen über einer glatten Oberfläche ausgegangen, in dem die Partikelphase zufällig verteilt vorliegt. Die Annahme einer zufälligen Verteilung liegt durch den

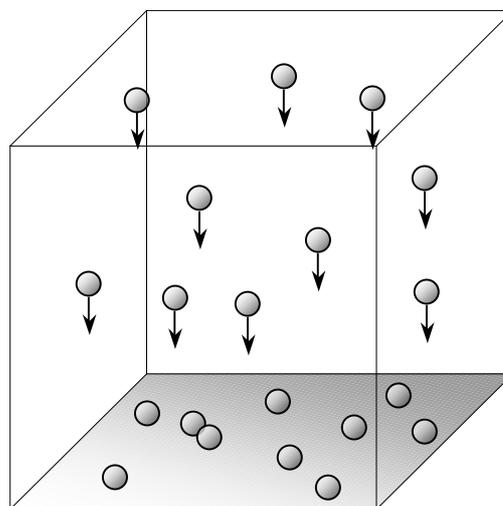


Abbildung 3.1: Gradlinige Deposition von Partikeln

großen Einfluß der Brownsche Bewegung der Partikel im betrachteten Größenbereich nahe. Unter der weiteren Annahme, daß die Partikel keinerlei Wechselwirkungen untereinander ausüben und sich aufgrund einer Kraft, die senkrecht zur Substratoberfläche wirkt, gradlinig auf die Oberfläche zu bewegen, erfolgt nun eine Belegung der Substratoberfläche mit Partikeln. Als Maß für die Anzahl an deponierten Partikeln pro Flächeneinheit wird im Rahmen dieser Arbeit die Belegungsdichte verwendet, die hier in Partikeln pro Quadratmikrometer angegeben wird. Die zweidimensionale Verteilung der abgeschiedenen Partikel auf der Oberfläche stellt eine Projektion der zufälligen dreidimensionalen Verteilung in der Gasphase dar. Da die Partikel im Volumen gleichverteilt sind, ist die Wahrscheinlichkeit einer Deposition eines Partikels auf der Substratoberfläche für jeden Punkt ebenfalls gleichverteilt. Mit zunehmender Belegungsdichte nimmt jedoch die unbelegte Fläche ab und es steigt die Wahrscheinlichkeit, daß ein ankommendes Partikel auf ein bereits deponiertes trifft. Das entstehende Ensemble wird im folgenden als „Agglomerat“ bezeichnet, isoliert auf der Oberfläche liegende Partikel als „Einzelpartikel“. Dieser Vorgang läßt sich numerisch simulieren, indem Kugeln mit dem Durchmesser d_p aus einer Startebene heraus mit senkrecht zu dieser Ebene gerichteten Trajektorien auf eine Zielebene „abgeschieden“ werden. Dabei sind die Startkoordinaten in der Startebene zufällig verteilt. Nach jedem „deponierten“ Partikel wird das Verhältnis der

Anzahl der Einzelpartikel $N_{Einzelpartikel}$, zur Anzahl N_{Total} der insgesamt abgeschiedenen Partikel neu bestimmt. Dieses Verhältnis ist in Abbildung 3.2 für Partikeldurchmesser d_p von 10 nm, 20 nm, 30 nm, 50 nm und 80 nm in Abhängigkeit von der Belegungsdichte dargestellt. Die Kurven stellen jeweils die Mittelwerte aus fünf Simulationen dar, die für eine Fläche der Zielebene von $9 \mu\text{m}^2$ berechnet wurden.

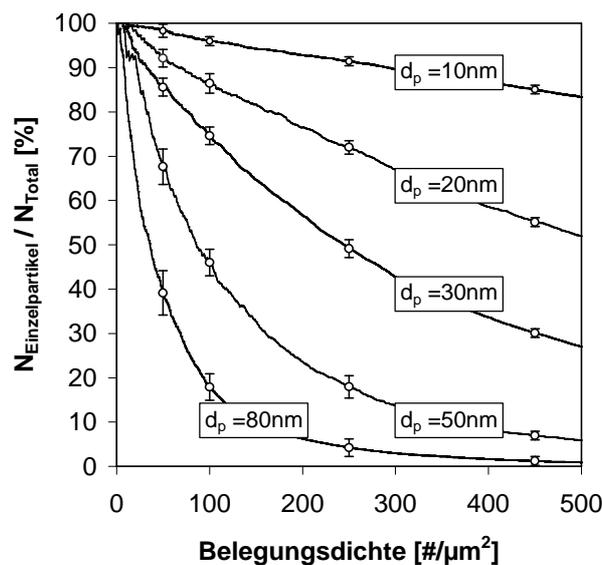


Abbildung 3.2: Anteil an Einzelpartikeln in Abhängigkeit von der Belegungsdichte bei zufälliger Verteilung der Partikel

Das Diagramm zeigt, daß bei einer zufälligen Verteilung der Partikel auf dem Substrat eine Agglomeration der Partikel nicht vermieden werden kann. Desweiteren nimmt die Agglomerationswahrscheinlichkeit stark mit dem Partikeldurchmesser zu, was auf die quadratisch mit dem Partikeldurchmesser zunehmende projizierte Fläche der Partikel zurückzuführen ist. Aus diesen Überlegungen folgt, daß bei einem linearen Transport der Partikel bei senkrecht zur Substratoberfläche gerichteter Kraftwirkung auf die Partikel, die zufällige Verteilung im Volumen, zu einer zufälligen und damit unstrukturierten Verteilung auf der Fläche führt. Im Hinblick auf das Ziel einer strukturierten Anordnung der Partikel läßt sich daraus ableiten, daß parallel zur Substratoberfläche gerichtete Kräfte benötigt werden, um eine Überführung der zufälligen Verteilung im Volumen in eine strukturierte Anordnung auf der Fläche zu ermöglichen.

Für die Entwicklung eines Prozesses, mit dem sich eine strukturierte Anordnung von Nanopartikeln bewerkstelligen läßt, ist daher eine möglichst exakte Analyse möglicher Einflußparameter auf den Transportvorgang einzelner Partikel hin zu einer Substratoberfläche nötig. Als Grundvoraussetzung wird hier davon ausgegangen, daß die gasgetragenen Partikel durch die Strömung der Gasphase vom Ort ihrer „Entstehung“ in eine Depositionskammer transportiert werden. Die Strömung endet in Form einer Staupunktströmung auf einem glatten Substrat, das horizontal ausgerichtet ist. Die Partikelkonzentration in der Gasphase ist so gering, daß Wechselwirkungen von Partikeln in der Gasphase vernachlässigt werden können. Der betrachtete Partikelgrößenbereich umfaßt den Bereich zwischen 1 nm und 100 nm, wobei von monodispersen Partikeln ausgegangen wird. Für die Analyse wird der Transportvorgang in zwei Phasen eingeteilt, die im folgenden kurz beschrieben werden.

Die **erste Phase** beschreibt den Transport des Partikels vom Eintritt in die Depositionskammer bis in die Nähe des Substrates. Der Abstand vom Substrat ist dabei so groß, daß Wechselwirkungen zwischen Partikeln und Substrat ausgeschlossen werden können. In diesem Abschnitt wirken auf ein Partikel, wie Abbildung 3.3 veranschaulicht, die Schwerkraft F_{Schwer} , die Auftriebskraft F_{Auftrieb} , die Widerstandskraft F_{W} des umgebenden Fluids, die abhängig ist

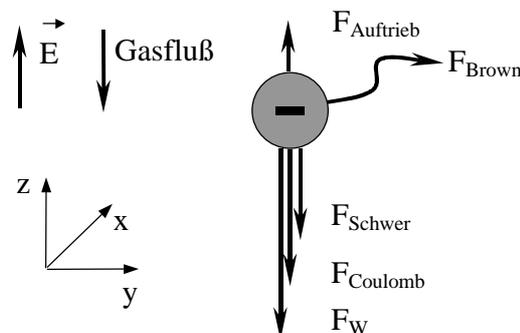


Abbildung 3.3: Kräftebilanz am Einzelpartikel in großer Entfernung vom Substrat

von der Strömungsgeschwindigkeit sowie eine stochastische Kraft $\mathbf{F}_{\text{Brown}}$, die verantwortlich ist für die zufällig gerichtete Brownsche Bewegung des Partikels. Im Falle einer elektrischen Ladung auf dem Partikel wirkt bei Präsenz eines elektrischen Feldes die Coulombsche Kraft $\mathbf{F}_{\text{Coulomb}}$, wobei in dieser Phase der Deposition von einem homogenen Feld ausgegangen wird, das über große Entfernungen (im Zentimeterbereich) konstant ist. Bis auf die stochastische Kraft $\mathbf{F}_{\text{Brown}}$ sind alle Kräfte in dieser Phase senkrecht zum Substrat ausgerichtet.

In der **zweiten Phase** befindet sich das Partikel im Nahbereich der Substratoberfläche. Diese Phase ist dadurch gekennzeichnet, daß das Substrat einen Einfluß auf den Transportvorgang ausübt. Dieser Einfluß hängt stark von der Entfernung des Partikels vom Substrat ab. Zunächst macht sich der Einfluß des Substrates durch die Umlenkung der Strömung parallel zum Substrat bemerkbar. Bei weiterer Annäherung an das Substrat nimmt der Einfluß der Strömung aufgrund der Abnahme der Strömungsgeschwindigkeit in der Geschwindigkeitsgrenzschicht kontinuierlich ab und ist schließlich bei Abständen unterhalb von ca. $5\ \mu\text{m}$ völlig vernachlässigbar. Bei Abständen unterhalb von $1\ \mu\text{m}$ treten aufgrund von Wechselwirkungen mit dem Substrat weitere Kräfte auf, die in Abbildung 3.4 dargestellt sind. Neben den, in der ersten Phase genannten Kräften ($\mathbf{F}_{\text{Auftrieb}}$, $\mathbf{F}_{\text{Schwer}}$ und \mathbf{F}_{W} wurden der besseren Übersichtlichkeit wegen nicht eingezeichnet), treten die van der Waals Kraft $\mathbf{F}_{\text{vdW_PS}}$ sowie bei geladenen Partikeln die Bildkraft \mathbf{F}_{Bild} , die beide ebenfalls senkrecht zur Substratoberfläche wirken, auf.

Mit zunehmender Belegungsdichte steigt die Wahrscheinlichkeit, daß sich ein ankommendes Partikel einem bereits deponierten Partikel nähert. Dieser Fall wird in Abbildung 3.5 veranschaulicht. Es wirkt zwischen den Partikeln die van der Waals Kraft $\mathbf{F}_{\text{vdW_PP}}$. Aufgrund der Partikelladung wirkt zwischen den Partikeln die Bildkraft $\mathbf{F}_{\text{Bild_pp}}$. Desweiteren wird das homogene elektrische Feld in der Nähe des deponierten Partikels gestört, wodurch sich in Abhängigkeit von der Partikelladung die Coulombsche Kraft $\mathbf{F}_{\text{Coulomb}}$ auf das ankommende

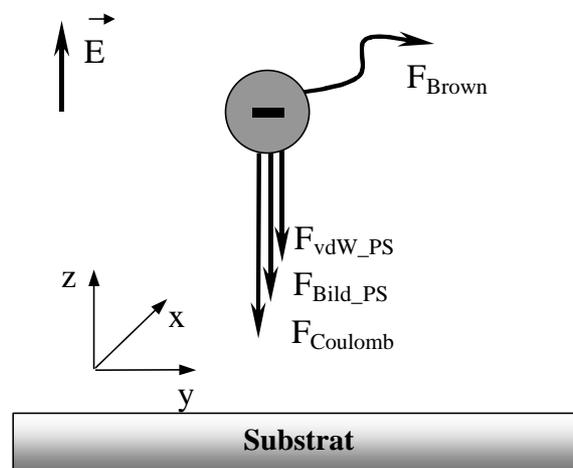


Abbildung 3.4: Kräftebilanz am Einzelpartikel im Nahbereich der Substratoberfläche

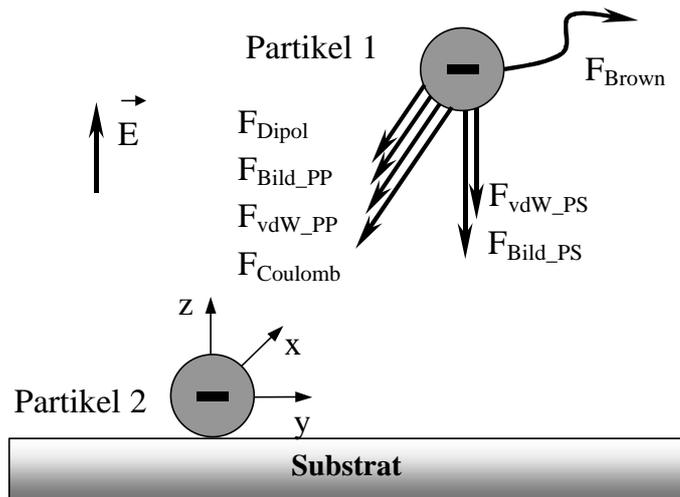


Abbildung 3.5: Kräftebilanz am Einzelpartikel bei Wechselwirkung mit einem bereits deponierten Partikel

Partikel ändert. In dem nun inhomogenen elektrischen Feld wirkt zusätzlich die Dipolkraft F_{Dipol} auf die Partikel. Da in dieser Phase aufgrund der seitlich wirkenden Kraftkomponenten eine Ablenkung der senkrecht zur Substratoberfläche gerichteten Bewegung des Partikels erfolgt, ist der Einfluß der Massenträgheit zu überprüfen.

3.1 Diskussion der Kräfte am Einzelpartikel

Im folgenden werden die Kräfte vorgestellt, die in den verschiedenen Phasen der Deposition, am Einzelpartikel angreifen. Das Ziel ist es, anhand der dominierenden Kräfte ein Modell des Depositionsvorganges aufzustellen, mit dem Parameter für eine gezielte Beeinflussung der Deposition identifiziert werden können. Alle vektoriellen Größen sind als fett gedruckte Buchstaben dargestellt.

Widerstandskraft

Die Bewegung eines Partikels durch die Gasphase führt zu einer Verdrängung des Gases, das in Schichten um das Partikel fließt, wobei die einzelnen Schichten übereinander gleiten. Die Widerstandskraft resultiert aus der Reibung zwischen diesen Schichten und läßt sich nach dem Stokeschen Gesetz für die Partikel im betrachteten Größenbereich unter $d_p = 100 \text{ nm}$, wie folgt berechnen /35/:

$$\mathbf{F}_W = \frac{3 \cdot \mathbf{p} \cdot \mathbf{h}_g \cdot d_p \cdot (\mathbf{v}_g - \mathbf{v}_p)}{C_c} \quad (3.1)$$

- mit:
- \mathbf{h}_g : Dynamische Viskosität des Trägergases [Nsm^{-2}]
 - \mathbf{v}_g : Geschwindigkeit des Trägergases [ms^{-1}]
 - \mathbf{v}_p : Geschwindigkeit des Partikels [ms^{-1}]
 - C_c : Cunningham-Slip-Korrekturfaktor

Eine wichtige Annahme des Stokeschen Gesetzes ist, daß die Geschwindigkeit zwischen Gasphase und Partikel an dessen Oberfläche null ist. Diese Annahme verliert ihre Gültigkeit, sobald der Partikeldurchmesser in der Größenordnung der freien Weglänge der Moleküle der Gasphase liegt. Dies ist für die zu untersuchenden Bedingungen gegeben. Die freie Weglänge von Stickstoff beträgt bei Normalbedingungen $l_g(\text{N}_2) = 66,5 \text{ nm}$. In diesem Fall ist die Widerstandskraft kleiner als durch das Stokesche Gesetz vorhergesagt wird. Dieser „Schlupf“ wird durch den Cunningham-Slip-Korrekturfaktor C_C berücksichtigt /35/:

$$C_C = 1 + \frac{l_g}{d_p} \cdot \left[2,34 + 1,05 \cdot \exp\left(\frac{-0,39 \cdot d_p}{l_g}\right) \right] \quad (3.2)$$

Mit zunehmendem Partikeldurchmesser geht C_C gegen eins. Nach /35/ ist das Stokesche Gesetz durch die Verwendung von C_C gültig bis hinunter zu $d_p = 1 \text{ nm}$, solange die Partikel-Reynoldszahl Re kleiner als eins ist. Die Reynoldszahl ist eine dimensionslose Kennzahl, die die Trägheitskraft des Partikels und die Scherkraft auf das Partikel aufgrund des Trägergases ins Verhältnis setzt und die sich wie folgt berechnet:

$$Re = \frac{\rho_g \cdot (v_g - v_p) \cdot d_p}{\eta_g} \quad (3.3)$$

mit: ρ_g : Dichte des Trägergases [kgm^{-3}]

Im Falle kleiner Reynoldszahlen ($Re < 1$) sind die viskosen Kräfte wesentlich größer als die Trägheitskräfte, was eine Voraussetzung für die Gültigkeit des Stokeschen Gesetzes ist. Für ein 100 nm großes Partikel in Stickstoff bei Normalbedingungen beträgt die Reynoldszahl lediglich 0,56, wenn eine Relativgeschwindigkeit zwischen Partikel und Gasphase von 100 ms^{-1} angenommen wird. Da sowohl die betrachtete Partikelgröße als auch die Relativgeschwindigkeit zwischen Partikel und Gasphase unterhalb dieser Werte liegen, folgt daraus, daß in der vorliegenden Arbeit die Widerstandskraft in der angegebenen Form berechnet werden darf.

Aus Gleichung (3.1) läßt sich die Mobilität B eines Partikels ableiten:

$$B = \frac{v_g - v_p}{F_W} = \frac{C_C}{3 \cdot \rho_g \cdot \eta_g \cdot d_p} \quad (3.4)$$

Wirkt eine äußere Kraft F_{extern} wie z.B. die Schwerkraft auf das Partikel, stellt sich zwischen dieser und der Widerstandskraft sehr schnell ein Gleichgewicht ein. Im Gleichgewichtszustand gilt dann:

$$\mathbf{F}_{\text{extern}} = \mathbf{F}_W = \frac{\mathbf{v}_g - \mathbf{v}_p}{B} \quad (3.5)$$

Daraus folgt, daß die Endgeschwindigkeit eines Partikels in einem Kraftfeld relativ zur Gasphase durch Multiplikation der äußeren Kraft mit der Mobilität B berechnet werden kann:

$$\mathbf{v}_g - \mathbf{v}_p = \mathbf{F}_{\text{extern}} \cdot B \quad (3.6)$$

Das Produkt aus der Mobilität und der Partikelmasse m_p ergibt die Relaxationszeit t_p , die eine wichtige Größe zur Charakterisierung der Partikelbewegung darstellt. Es ist die Zeit, die ein Partikel benötigt, um auf eine Änderung der äußeren Kräfte zu reagieren und seine Geschwindigkeit den neuen Bedingungen anzupassen /35/:

$$t_p = m_p \cdot B = \frac{\mathbf{r}_p \cdot d_p^2 \cdot C_c}{18 \cdot \mathbf{h}_g} \quad (3.7)$$

mit: \mathbf{r}_p : Dichte des Partikelmaterials [kgm^{-3}]

Zur Veranschaulichung ist die Abhängigkeit der Relaxationszeit vom Partikeldurchmesser in Abbildung 3.6 schematisch dargestellt. Aus dem Diagramm geht hervor, daß die Relaxationszeit beispielsweise eines 30 nm großen Indiumpartikels bei den gegebenen Versuchsbedingungen ca. 146 ns beträgt. Für die Simulation der Bewegung eines Partikels dieser Größe folgt daraus, daß bei der Lösung der Bewegungsgleichung die Massenträgheit berücksichtigt werden muß, sobald die betrachteten Zeitintervalle kleiner als $t_p = 146$ ns werden.

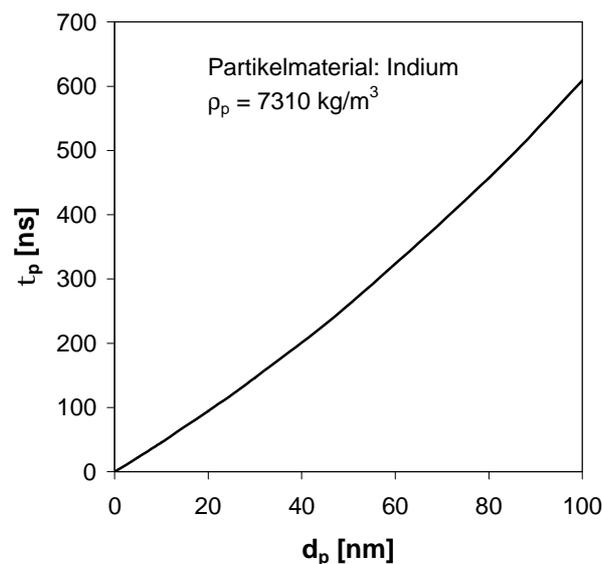


Abbildung 3.6: Abhängigkeit der Relaxationszeit vom Partikeldurchmesser berechnet für Indiumpartikel in Stickstoff bei Normalbedingungen

Diffusionskraft – Brownsche Bewegung

Partikel, die in einem Gas dispergiert sind, unterliegen ständigen Kollisionen mit den Gasmoleküle, die als elastische Stöße angesehen werden können, durch deren Impulsübertragung kinetische Energie an das Partikel übertragen wird. Da die Kollisionen in allen Raumrichtungen mit der gleichen Wahrscheinlichkeit erfolgen, ist der übertragene Gesamtimpuls im zeitlichen Mittel null. Die Impulsübertragung unterliegt jedoch Fluktuationen, die zum einen auf die statistische Verteilung der Moleküle im Raum und zum anderen auf ihre Geschwindigkeitsverteilung zurückzuführen sind, die eine sehr schnell variierende stochastische Kraftwirkung auf das Partikel zur Folge hat. Dies führt zur Brownschen Bewegung, also einer stochastischen Bewegung der Partikel. Unter Diffusion wird der Nettotransport der Partikelphase in einem Konzentrationsgradienten verstanden, der immer von Regionen hoher zu Regionen niedriger Konzentration erfolgt. Beide Prozesse werden durch den Diffusionskoeffizienten D beschrieben, der sich mit der Stokes-Einstein-Gleichung wie folgt berechnen läßt /35/:

$$D = k \cdot T \cdot B \quad (3.8)$$

mit: k: Boltzmannkonstante [$1,381 \cdot 10^{-23} \text{ JK}^{-1}$]
 T: Temperatur der Gasphase [K]

Im Gleichgewicht entspricht die mittlere kinetische Energie der Partikel der thermischen Energie der Gasphase:

$$\frac{1}{2} \cdot m_p \cdot c_{Brown}^2 = \frac{3}{2} k \cdot T \quad (3.9)$$

mit: c_{Brown} : mittlere Brownsche Geschwindigkeit in [ms^{-1}]

Daraus folgt für sphärische Partikel mit:

$$m_p = \frac{\rho}{6} \cdot d_p^3 \cdot r_p \quad (3.10)$$

die Gleichung für die mittlere Brownsche Geschwindigkeit eines Partikels:

$$c_{Brown} = \sqrt{\frac{18 \cdot k \cdot T}{\rho \cdot d_p^3 \cdot r_p}} \quad (3.11)$$

Der Vergleich von c_{Brown} mit der Geschwindigkeit, die ein Partikel aufgrund einer äußeren Kraft erreicht, ermöglicht eine Aussage darüber, ob die Partikelbewegung durch Diffusion oder durch die angreifende Kraft dominiert wird.

Im folgenden werden die verschiedenen externen Kräfte kurz beschrieben und anschließend hinsichtlich ihrer Wirkung auf Nanopartikel miteinander verglichen.

Schwerkraft und Auftriebskraft

Die aufgrund der Erdanziehung auf ein Partikel wirkende Schwerkraft wird vermindert durch die entgegengesetzt wirkende Auftriebskraft. Die resultierende Gesamtkraft wird in der folgenden Weise berechnet /35/:

$$\mathbf{F}_{S-A} = -(m_p - m_g) \cdot \mathbf{g} = -\frac{1}{6} \cdot d_p^3 \cdot (\mathbf{r}_p - \mathbf{r}_g) \cdot \mathbf{g} \quad (3.12)$$

mit: m_g : Masse des verdrängten Gasvolumens
 \mathbf{g} : Erdbeschleunigung; $g = 9,81 \text{ ms}^{-1}$

Aus der Gleichung geht hervor, daß die Schwerkraft in der dritten Potenz vom Partikeldurchmesser abhängt. Sie nimmt daher mit kleiner werdendem Partikeldurchmesser sehr stark ab.

Coulombsche Kraft aufgrund eines homogenen elektrischen Feldes

Befindet sich ein geladenes Partikel in einem homogenen elektrischen Feld, wirkt die Coulombsche Kraft $F_{Coulomb}$. Diese Kraft ruft eine Partikelbewegung entlang der Feldlinien des elektrischen Feldes hervor, die als Elektrophorese bezeichnet wird. Sie kann unter der Voraussetzung eines homogenen, senkrecht zur Oberfläche ausgerichteten Feldes mit konstanter Feldstärke E wie folgt berechnet werden:

$$\mathbf{F}_{Coulomb} = -q \cdot e \cdot \mathbf{E}_0 \quad (3.13)$$

mit: q : Anzahl der elektrischen Ladungen auf dem Partikel
 e : Elementarladung; $e = 1,602 \cdot 10^{-19} \text{ C}$
 \mathbf{E}_0 : Elektrische Feldstärke in $[\text{Vm}^{-1}]$

Aus der Gleichung folgt, daß sich negativ geladene Partikel bei positivem elektrischen Feld in negativer z-Richtung, also auf die Elektrode zu bewegen. $F_{Coulomb}$ ist im Fall eines homogenen elektrischen Feldes unabhängig von der Entfernung des Partikels von der Elektrode. Zudem ist sie, unter der Voraussetzung, daß die Ladung keine Funktion des Partikeldurchmessers ist, unabhängig vom Partikeldurchmesser.

Bildkraft

Befindet sich ein geladenes Partikel in der Nähe einer Oberfläche, so wird durch die Ladung eine Bildladung induziert, die sich im doppelten Abstand S vom Partikel befindet. Dabei ist S der Abstand zwischen Partikelmittelpunkt und Substratoberfläche. Die Wechselwirkung zwischen der Partikel- und der Bildladung äußert sich in Form der Bildkraft F_{Bild} :

$$\mathbf{F}_{Bild_PS} = -\frac{(q \cdot e)^2}{4 \cdot \mathbf{p} \cdot \mathbf{e}_0 \cdot \mathbf{e}_3 \cdot (2 \cdot S)^2} \cdot \frac{\mathbf{e}_2 - \mathbf{e}_3}{\mathbf{e}_2 + \mathbf{e}_3} \cdot \mathbf{n} \quad (3.14)$$

mit: \mathbf{e}_0 : Elektrische Feldkonstante; $\mathbf{e}_0 = 8,85 \cdot 10^{-12} \text{ AsV}^{-1} \text{ m}^{-1}$
 \mathbf{e}_2 : Dielektrizitätskonstante des Substrates
 \mathbf{e}_3 : Dielektrizitätskonstante des Trägergases
 \mathbf{n} : Normalvektor senkrecht zur Substratoberfläche

Für die Abscheidung von Partikeln aus einer Gasphase wirkt sie immer anziehend, da $\mathbf{e}_2 - \mathbf{e}_3$ für alle Gas-Festkörper Kombinationen positiv ist. Die Gleichung zeigt weiterhin, daß die Kraft mit dem Quadrat des doppelten Abstandes S von der Oberfläche abnimmt und unabhängig vom Partikeldurchmesser ist. Sie nimmt jedoch mit dem Quadrat der Partikelladung zu.

Die Bildkraft zwischen zwei geladenen Partikeln läßt sich wie folgt berechnen /37/:

$$\mathbf{F}_{Bild_PP} = -\left(\frac{d_p^2 \cdot (q_1 \cdot e)^2}{8 \cdot \mathbf{p} \cdot \mathbf{e}_0 \cdot S_1^3} - \frac{2 \cdot d_p^2 \cdot S_1 \cdot (q_1 \cdot e)^2}{\mathbf{p} \cdot \mathbf{e}_0 \cdot (4 \cdot S_1^2 - d_p^2)} \right) \cdot \mathbf{m} \quad (3.15)$$

$$-\left(\frac{d_p^2 \cdot (q_2 \cdot e)^2}{8 \cdot \mathbf{p} \cdot \mathbf{e}_0 \cdot S_1^3} - \frac{2 \cdot d_p^2 \cdot S_1 \cdot (q_2 \cdot e)^2}{\mathbf{p} \cdot \mathbf{e}_0 \cdot (4 \cdot S_1^2 - d_p^2)} \right) \cdot \mathbf{m}$$

mit S : Abstand zwischen den Mittelpunkten der Partikel
 \mathbf{m} : Normalvektor vom Mittelpunkt des ankommenden zum Mittelpunkt des bereits deponierten Partikels

Im Fall ungeladener Partikel auf dem Substrat ist der zweite Term null.

Coulombsche Kraft aufgrund des elektrischen Feldes um kugelförmige Partikel auf glatter Substratoberfläche

Abbildung 3.7 zeigt den Verlauf der Feldlinien sowie der Äquipotentiallinien um ein ungeladenes bzw. ein einfach negativ geladenes 30 nm großes Partikel aus Metall auf einer glatten dielektrischen Substratoberfläche. Über dem Substrat ist ein ansonsten homogenes elektrisches Feld mit einer Feldstärke von $E_o = 300 \text{ kV m}^{-1}$. Die Skizzen der Felder, die mit Quick-Field[®] berechnet wurden, veranschaulichen die Verdichtung der Äquipotentiallinien um das Partikel, die gleichbedeutend sind mit einer Erhöhung der elektrischen Feldstärke. Die eingezeichneten Vektoren geben Aufschluß über die Richtung des elektrischen Feldes. Ein negativ geladenes Partikel erfährt eine Kraftwirkung, die der Richtung der Vektoren entgegengesetzt wirkt. Wie in Gleichung (3.13) gezeigt wurde, ist die Coulombsche Kraft auf ein geladenes Partikel das Produkt aus der Partikelladung und der elektrischen Feldstärke. Daraus folgt, daß zur Berechnung der Coulombschen Kraft zwischen einem ankommenden Partikel und einem bereits deponierten Partikel, das elektrische Feld um dieses Partikel bekannt sein muß.

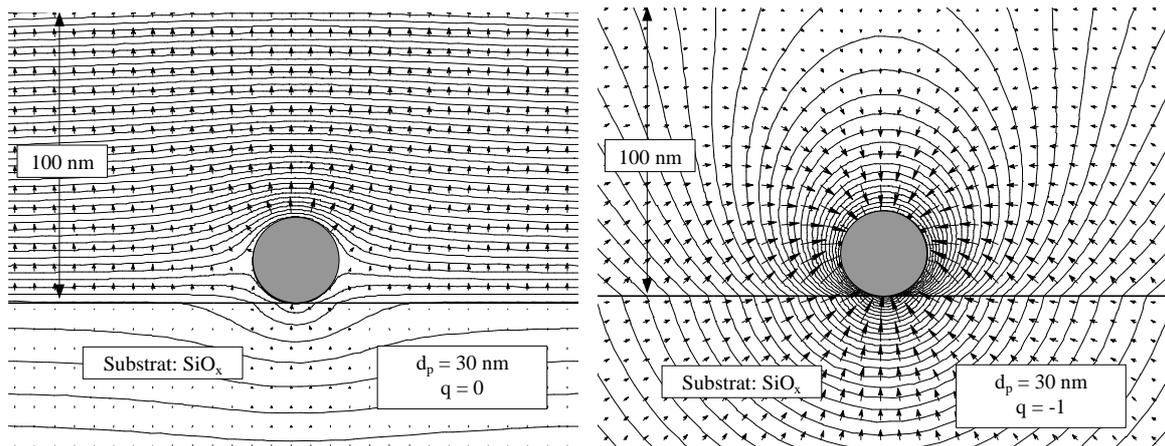


Abbildung 3.7: Verlauf der elektrischen Feldlinien sowie Äquipotentiallinien um ein ungeladenes (links) bzw. geladenes (rechts) Metallpartikel auf einem dielektrischen Substrat

Das elektrische Feld um eine Kugel läßt sich durch die Superposition der Einzelfelder berechnen. Das Gesamtfeld setzt sich dabei aus dem homogenen elektrischen Feld E_0 , dem Feld um die ungeladene Kugel sowie dem Feld um eine Punktladung zusammen, die im Kugelmittelpunkt angeordnet ist. Es ergibt sich damit für das elektrische Feld um eine (geladene) Kugel in einem homogenen elektrischen Feld E_0 in kartesischen Koordinaten /36/:

$$\mathbf{E}_{ges} = \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 3 \cdot E_0 \cdot r_p^3 \cdot \frac{x \cdot z}{r^5} + \frac{q_2 \cdot e}{4 \cdot \mathbf{p} \cdot \mathbf{e}_0 \cdot \mathbf{e}_3} \cdot \frac{x}{r^3} \\ 3 \cdot E_0 \cdot r_p^3 \cdot \frac{y \cdot z}{r^5} + \frac{q_2 \cdot e}{4 \cdot \mathbf{p} \cdot \mathbf{e}_0 \cdot \mathbf{e}_3} \cdot \frac{y}{r^3} \\ E_0 \cdot \left(1 - r_p^3 \cdot \left(\frac{x^2 + y^2 - 2 \cdot z^2}{r^5} \right) \right) + \frac{q_2 \cdot e}{4 \cdot \mathbf{p} \cdot \mathbf{e}_0 \cdot \mathbf{e}_3} \cdot \frac{z}{r^3} \end{bmatrix} \quad (3.16)$$

mit: q_2 : Anzahl der elektrischen Ladungen auf deponiertem Partikel

r_p : Partikelradius [m]

$r = \sqrt{x^2 + y^2 + z^2}$: Abstand vom Kugelmittelpunkt [m]

Aus Gleichung (3.16) ergibt sich mit $q_2 = 0$, $x = y = 0$, $z = r_p$ die elektrische Feldstärke direkt über einem ungeladenen Partikel zu:

$$\mathbf{E}_{ges} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ E_z \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 3 \cdot E_0 \end{bmatrix} \quad (3.17)$$

Daraus folgt, daß unmittelbar über einem ungeladenen Metallpartikel die elektrische Feldstärke den dreifachen Wert des homogenen Feldes annimmt und damit eine verstärkte Anziehung auf ankommende Partikel ausgeübt wird.

Dipolkraft

Befindet sich ein metallisches oder dielektrisches Partikel in einem elektrischen Feld erfolgt eine Polarisation dieses Partikels, und es bildet sich ein elektrischer Dipol. In einem homogenen elektrischen Feld erfährt das Partikel aufgrund der Polarisation keine Kraftwirkung. Das ist darauf zurückzuführen, daß die Dipolkraft \mathbf{F}_{Dipol} das Produkt darstellt, aus dem Dipolmoment \mathbf{p}_p und dem Gradienten des elektrischen Feldes [37/], der im homogenen elektrischen Feld null ist:

$$\mathbf{F}_{Dipol} = \mathbf{p}_p \cdot \nabla \mathbf{E}_{ges} \quad (3.18)$$

Wie der vorhergehende Abschnitt gezeigt hat, ist das elektrische Feld um deponierte Partikel jedoch stark inhomogen. Zur Überprüfung, inwieweit die Dipolkraft einen Einfluß auf die Partikelbewegung hat, muß der Feldgradient bekannt sein. Aus Gleichung (3.16) läßt er sich wie folgt berechnen:

$$\nabla \mathbf{E}_{ges} = \begin{bmatrix} 3 \cdot E_0 \cdot r_p^3 \cdot z \cdot \left(\frac{1}{r^5} - \frac{5 \cdot x^2}{r^7} \right) + \frac{q_2 \cdot e}{4 \cdot \mathbf{p} \cdot \mathbf{e}_0 \cdot \mathbf{e}_3} \cdot \left(\frac{1}{r^3} - \frac{3 \cdot x^2}{r^5} \right) \\ 3 \cdot E_0 \cdot r_p^3 \cdot z \cdot \left(\frac{1}{r^5} - \frac{5 \cdot y^2}{r^7} \right) + \frac{q_2 \cdot e}{4 \cdot \mathbf{p} \cdot \mathbf{e}_0 \cdot \mathbf{e}_3} \cdot \left(\frac{1}{r^3} - \frac{3 \cdot y^2}{r^5} \right) \\ E_0 \cdot r_p^3 \cdot \left(\frac{-4 \cdot z^4}{r^5} + \frac{5 \cdot z \cdot (x^2 + y^2 + 2 \cdot z^2)}{r^7} \right) + \left(\frac{1}{r^3} - \frac{3 \cdot z^2}{r^5} \right) \end{bmatrix} \quad (3.19)$$

Das Dipolmoment \mathbf{p}_p ist von der Dielektrizitätskonstanten des Partikels \mathbf{e}_1 und der Dielektrizitätskonstanten des Trägergases \mathbf{e}_3 abhängig und berechnet sich wie folgt:

$$\mathbf{p}_p = 4 \cdot \mathbf{p} \cdot \mathbf{e}_0 \cdot \mathbf{e}_3 \cdot \frac{\mathbf{e}_1 - \mathbf{e}_3}{\mathbf{e}_1 + 2 \cdot \mathbf{e}_3} \cdot r_p^3 \cdot \mathbf{E}_{ges} \quad (3.20)$$

Für metallische Partikel geht der Term

$$\frac{\mathbf{e}_1 - \mathbf{e}_3}{\mathbf{e}_1 + 2 \cdot \mathbf{e}_3}$$

gegen eins, da in diesem Fall die Dielektrizitätskonstante der Partikel \mathbf{e}_1 gegen unendlich geht. Wird die Gleichung für \mathbf{p}_p in Gleichung (3.18) eingesetzt, ergibt sich für die Dipolkraft:

$$\mathbf{F}_{Dipol} = 4 \cdot \mathbf{p} \cdot \mathbf{e}_0 \cdot \mathbf{e}_3 \cdot \frac{\mathbf{e}_1 - \mathbf{e}_3}{\mathbf{e}_1 + 2 \cdot \mathbf{e}_3} \cdot r_p^3 \cdot \mathbf{E} \cdot \nabla \mathbf{E} \quad (3.21)$$

Van der Waals Kraft

Die Ursache für die van der Waals Kraft liegt auf atomarer Ebene. Durch die Bewegung der Elektronen um die Atomkerne werden Schwankungen der Ladungsschwerpunkte der positiven und negativen Ladungen im Molekül hervorgerufen. Hierdurch wird das Molekül immer wieder vorübergehend zu einem elektrischen Dipol, der benachbarte, ebenfalls polarisierte Moleküle anzieht. Diese Anziehung wird durch das Lennard-Jones-Potential beschrieben /38/:

$$w(r) = -\frac{C_1}{r^6} + \frac{C_2}{r^{12}} \quad (3.22)$$

$$\begin{aligned} \text{mit: } C_1: & 10^{-77} \text{ Jm}^6 \\ C_2: & 10^{-134} \text{ Jm}^{12} \\ r: & \text{Abstand in [m]} \end{aligned}$$

Der erste Term beschreibt dabei die reine Anziehung aufgrund des Dipolmomentes zwischen zwei Atomen. Der zweite Term beschreibt die Abstoßung aufgrund der Rumpfelektronen der Atome. Diese Abstoßung ist nur dann von Bedeutung, wenn der Abstand zwischen den Atomen in der Größenordnung eines Atomdurchmessers liegt.

Befindet sich ein einzelnes Atom oder kleines Molekül in der Nähe eines festen Körpers, steht es in Wechselwirkung mit allen Atomen des Körpers. Nach einem Ansatz von Hamaker gilt, daß die einzelnen Wechselwirkungsenergien durch den ersten Term in Gleichung (3.22) dargestellt werden können. Durch paarweise Addition der Wechselwirkungsenergien zwischen dem einzelnen Molekül und den Atomen des Körpers folgt für die Gesamtenergie /38/:

$$w(D) = -\frac{\mathbf{p} \cdot \mathbf{C}_1 \cdot \mathbf{r}}{6 \cdot S^3} \quad (3.23)$$

S entspricht der Entfernung des Moleküls von dem Körper und \mathbf{r} der Dichte der Atome im Körper.

Von Gleichung (3.23) ausgehend, kann nun berechnet werden, welche Wechselwirkungsenergien zwischen einem kugelförmigen Körper vor einer glatten Oberfläche oder zwischen zwei kugelförmigen Körpern auftreten. In diesem Fall werden paarweise die Wechselwirkungsenergien aller Atome beider Körper aufaddiert. Für eine Kugel vor einer glatten Oberfläche führt dies auf /38/:

$$W(S) = -\frac{\mathbf{p}^2 \cdot \mathbf{C}_1^2 \cdot \mathbf{r}^2}{6} \cdot \int_{z=0}^{z=2r_p} \frac{(2 \cdot r_p - z) \cdot z}{(S + z)^3} dz \quad (3.24)$$

Das Integral ist analytisch lösbar. Die entsprechende Gleichung für zwei kugelförmige Partikel lautet in geschlossener Form /39/:

$$W(S) = -\frac{\mathbf{p}^2 \cdot C_1^2 \cdot \mathbf{r}^2}{6} \cdot \left[\frac{2 \cdot r_p^2}{S^2 + 4 \cdot r_p \cdot S} + \frac{2 \cdot r_p^2}{(S + 2 \cdot r_p)^2} + \ln \left[1 - \frac{4 \cdot r_p^2}{(S + 2 \cdot r_p)^2} \right] \right] \quad (3.25)$$

Die Variable S steht in beiden Fällen für den minimalen Abstand zwischen den jeweiligen Körpern. Der Großbuchstabe W in den Gleichungen wurde zur Unterscheidung zwischen den Wechselwirkungsenergien zwischen Atomen ($w(r)$: Atom-Atom, $w(S)$: Atom-Körper) und zwischen Körpern ($W(S)$) gewählt.

Die Ableitung der Wechselwirkungsenergien in Abhängigkeit vom Abstand entsprechend der folgenden Gleichung führt auf die resultierende Kraft zwischen den Körpern:

$$F_{vdW}(S) = -\frac{W(S)}{dS} \quad (3.26)$$

Daraus ergibt sich für die van der Waals Kraft zwischen einem Partikel und einer glatten Oberfläche:

$$F_{vdW_PS} = -\frac{2 \cdot A_H}{3} \cdot \frac{r_p^3}{S^2 \cdot (S + 2 \cdot r_p)^2} \quad (3.27)$$

und für zwei kugelförmige Partikel:

$$F_{vdW_PP} = -\frac{32 \cdot A_H}{3} \cdot \frac{r_p^6}{S^2 \cdot (S + 4 \cdot r_p)^2 \cdot (S + 2 \cdot r_p)^3} \quad (3.28)$$

S stellt dabei in beiden Gleichungen den minimalen Abstand der Oberflächen der beiden Körper (Partikel/Substrat bzw. Partikel/Partikel) dar. In den beiden Gleichungen wurde der Term $C_1 \mathbf{p}^2 \mathbf{r}^2$ durch die Hamakerkonstante A_H ersetzt. Eine Möglichkeit die Hamakerkonstante exakt zu berechnen liegt in der Lifshitz-Theorie. Hierbei bleiben die Atome unbeachtet und die Körper werden als Kontinuum angesehen. Die Wechselwirkungsenergie wird durch Stoffeigenschaften wie die Dielektrizitätskonstante und den Brechungsindex bestimmt. Die Lösung ist nur durch numerische Verfahren möglich. Eine Näherungslösung, die für Abstände von $S < 5$ nm sehr gut mit der exakten Lösung übereinstimmt, wird in /38/ angegeben:

$$A_{H131} = \frac{3}{4} \cdot k \cdot T \cdot \left(\frac{\mathbf{e}_1 - \mathbf{e}_3}{\mathbf{e}_1 + \mathbf{e}_3} \right)^2 + \frac{3 \cdot h \cdot \mathbf{n}_e}{16 \cdot \sqrt{2}} \cdot \frac{(n_1^2 - n_3^2)^2}{(n_1^2 + n_3^2)^{\frac{3}{2}}} \quad (3.29)$$

mit: h : Planksches Wirkungsquantum; $h = 6,626 \cdot 10^{-34}$ Js
 \mathbf{n}_e : Hauptabsorptionsfrequenz im UV-Bereich;
 Ein typischer Wert ist $\mathbf{n}_e \approx 3 \cdot 10^{15}$ s⁻¹
 n_1, n_3 : Brechungsindizes

Diese Gleichung beschreibt die Hamakerkonstante für zwei Körper des selben Materials 1 in einem Medium 3. Sie gilt in dieser Form für alle dielektrischen Materialien. Für Metalle trifft sie nicht zu, da ϵ hier unendlich ist. In /38/ wird gezeigt, daß bei Metallen die Hamakerkonstante A_H in guter Näherung $4 \cdot 10^{-19}$ J beträgt.

Da die Abscheidung eines Partikelmaterials auf unterschiedlichen Substratmaterialien untersucht werden soll, werden die Hamakerkonstanten A_{H132} zwischen unterschiedlichen Materialien benötigt. Hierfür müssen zunächst die Hamakerkonstanten A_{H131} und A_{H232} nach Gleichung (3.29) berechnet werden. Aus diesen kann dann näherungsweise A_{H132} berechnet werden /38/:

$$A_{H132} \approx \sqrt{A_{H131} \cdot A_{H232}} \quad (3.30)$$

3.2 Einordnung der Kräfte nach ihrer Reichweite und ihrem Einfluß auf die Partikelbewegung

Im folgenden werden die einzelnen Kräfte hinsichtlich ihres Einflusses auf die Partikelbewegung diskutiert und miteinander verglichen, um die Kräfte herauszustellen, die in der jeweiligen Phase der Deposition dominieren. Es werden dafür die einzelnen Kräfte F_{extern} , die auf ein Partikel wirken, in Abhängigkeit vom Abstand des Partikels von der Substratoberfläche dargestellt.

Abbildung 3.8 veranschaulicht am Beispiel eines einfach bzw. vierfach geladenen 30 nm großen Indiumpartikels, bei einer elektrischen Feldstärke von 300 kV/m, die Abhängigkeit der wirkenden Kräfte in pN vom Abstand S in nm von der Substratoberfläche. Wegen der logarithmischen Auftragungsweise sind die Beträge der Kräfte dargestellt. Alle Kräfte wirken in Richtung des Substrates. Aus dem Diagramm läßt sich ableiten, daß die Summe aus Auftriebs- und Schwerkraft des Partikels gegenüber allen anderen Kräfte vernachlässigbar ist. Die anderen Kräfte liegen bei einem Abstand von 100 nm vom Substrat zwischen 0,003 pN (van der Waals Kraft) und 0,2 pN (Coulombsche Kraft bei vierfach geladenen Partikeln). Bei Annäherung des Partikels von $S = 100$ nm auf $S = 1$ nm nimmt die van der Waals Kraft um etwa

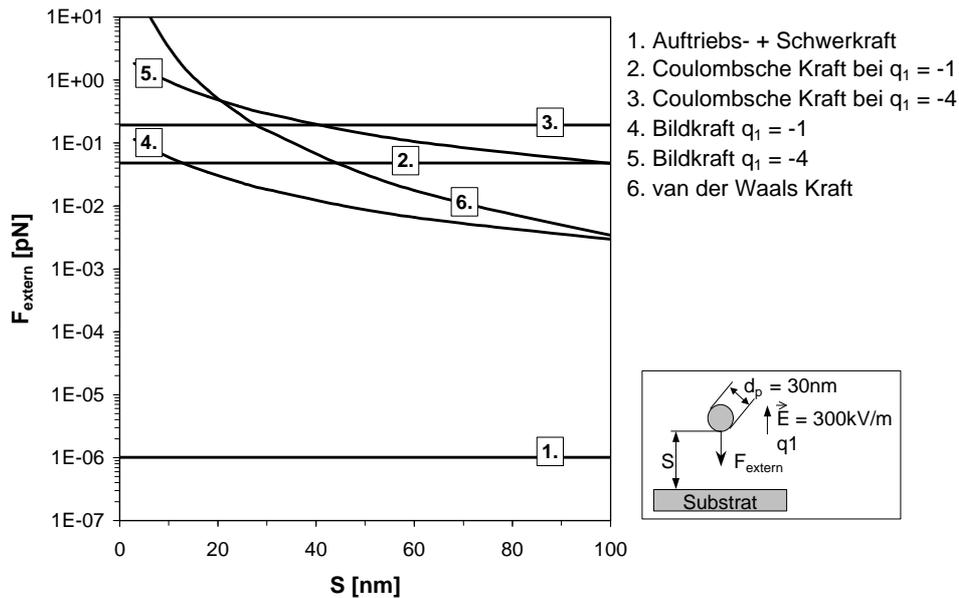


Abbildung 3.8: Kräfte auf ein 30 nm großes Indiumpartikel bei Annäherung an eine Substratoberfläche

fünf Größenordnungen zu und stellt bei einem Abstand von $S < 20$ nm die dominierende Kraft dar. Bei der Bildkraft macht sich die quadratische Abhängigkeit von der Partikelladung deutlich bemerkbar. In einem Abstand von 100 nm von der Substratoberfläche hat sie auf ein vierfach geladenes Partikel den gleichen Einfluß wie die Coulombsche Kraft bei 300 kV/m auf ein einfach geladenes Partikel, mit dem Unterschied, daß sie nicht bei abnehmendem Abstand wie die Coulombsche Kraft konstant bleibt, sondern um mehr als eine Größenordnung zunimmt.

Abbildung 3.9 gibt Aufschluß über die wirkenden Kräfte bei Annäherung eines einfach bzw. vierfach geladenen Partikels an ein entsprechend geladenes Partikel auf einer Substratoberfläche, bei einer elektrischen Feldstärke des homogenen Feldes von 300 kV/m. In dem Diagramm sind wiederum die Beträge der Kräfte aufgetragen. Die van der Waals Kraft zwischen den beiden Partikeln (Kurve 1) nimmt bei Annäherung von $S = 60$ nm auf $S = 3$ nm um fünf Größenordnungen zu und stellen im Fall einfach geladener Partikel bei Abständen unter 20 nm die dominierende Kraft dar. Die beiden Äste der Kurve 2 veranschaulichen die Wirkung der Coulombschen Kraft. Beim linken Ast 2.a) dominiert die abstoßende Wirkung der Partikelladungen, beim rechten Ast 2.b) dagegen die anziehende Kraft aufgrund des elektrischen Feldes. Im Bereich zwischen $S = 50$ nm und 60 nm heben sich beide Kräfte auf. Sind die Partikel dagegen vierfach geladen, ändern sich die Verhältnisse drastisch. Kurve 3 zeigt, daß in diesem Fall die abstoßende Coulombsche Kraft durch die Partikelladungen die dominierende Rolle spielt.

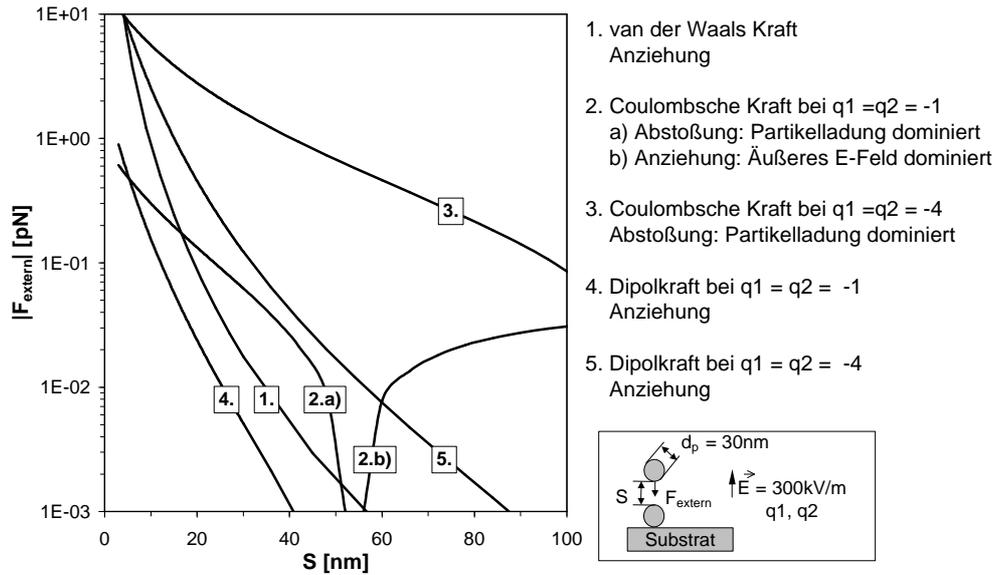


Abbildung 3.9: Kräfte auf ein 30 nm großes Indiumpartikel bei Annäherung an ein deponiertes Partikel

Bei der Untersuchung der Deposition von Nanopartikeln reicht es nicht aus, die deterministischen Kräfte alleine zu betrachten. Die stochastische Komponente durch die Brownsche Bewegung hat einen wesentlichen Einfluß auf die Deposition, der im folgenden näher erläutert wird. Ein wesentlicher Aspekt hierbei ist es darzustellen, unter welchen Bedingungen die zufällig gerichtete Brownsche Bewegung klein wird gegenüber der gerichteten Bewegung aufgrund äußerer Kräfte. Aus diesem Grund wird die Geschwindigkeit c_p , die das Partikel aufgrund der jeweiligen externen Kraft erreicht, auf die mittlere thermische Geschwindigkeit c_{Brown} des Partikels bezogen. Am Quotienten c_p / c_{Brown} läßt sich direkt ablesen, ob die Partikelbewegung durch die Brownsche Bewegung oder die externe Kraft bestimmt wird. Dabei gilt:

$\left \frac{c_p}{c_{Brown}} \right \ll 1$	Die Partikelbewegung ist stochastisch.
$\left \frac{c_p}{c_{Brown}} \right \approx 1$	Sowohl stochastische als auch deterministische Komponenten bestimmen die Partikelbewegung.
$\left \frac{c_p}{c_{Brown}} \right \gg 1$	Die Partikelbewegung ist deterministisch.

Für diese Betrachtungen werden die beiden Phasen der Deposition

- Phase 1: Großer Abstand vom Substrat, kein Einfluß der Wechselwirkungen mit der Substratoberfläche
- Phase 2: Kleiner Abstand vom Substrat, kein Einfluß der Gasströmung

getrennt von einander betrachtet:

Phase 1: Das Partikel befindet sich in großer Entfernung vom Substrat. Es wirken zunächst die Auftriebs- und Schwerkraft sowie die stochastische Kraft aufgrund der Kollisionen von Gasmolekülen mit dem Partikel. Für den hier betrachteten Fall der Deposition im Elektrostatistischen Präzipitator (vgl. Kapitel 2) wirken zusätzlich Strömungskräfte sowie die Coulombsche Kraft aufgrund eines homogenen elektrischen Feldes. In Abbildung 3.10 sind die Geschwindigkeiten c_p , die ein 30 nm großes Indiumpartikel aufgrund der genannten Kräfte erreicht, bezogen auf die mittlere Brownsche Geschwindigkeit c_{Brown} über dem auf den Partikeldurchmesser bezogenen Abstand $S/30\text{ nm}$ doppellogarithmisch aufgetragen. Der Abstand S wurde hier lediglich der besseren Lesbarkeit der Diagramme auf den Durchmesser bezogen. Oberhalb der waagerechten Linie bei $c_p / c_{Brown} = 1$ befindet sich der Bereich in dem das Partikel im wesentlichen durch eine deterministische Kraft bewegt wird, unterhalb dieser Linie ist die Brownsche Bewegung dominierend. Das Diagramm zeigt, daß für die folgenden Untersuchungen die Auftriebs- und Schwerkraft vernachlässigt werden können, da die Sinkgeschwindigkeit des Partikels mehrere Größenordnungen unter der mittleren thermischen Geschwindigkeit liegt. Die Geschwindigkeit, die ein einfach geladenes 30 nm großes Partikel in einem homogenen elektrischen Feld mit einer Feldstärke von 300 kV/m erreicht ist kleiner als die mittlere Brownsche Geschwindigkeit, liegt aber in der gleichen Größenordnung. Daraus folgt, daß die Bewegung eines Partikel durch das elektrische Feld beeinflusst wird, es wird jedoch ein erheblicher stochastischer Anteil vorhanden sein. Die diagonal verlaufende Linie 2 stellt die Geschwindigkeitskomponente dar, die das Partikel aufgrund der Strömung des Trägergases zum Substrat hin erfährt. Es handelt sich dabei um die Geschwindigkeit eines Partikels auf der Staupunktlinie der Strömung in der verwendeten Depositionskammer. Der dargestellte Bereich entspricht dem Verlauf der Geschwindigkeit in der Grenzschicht. An

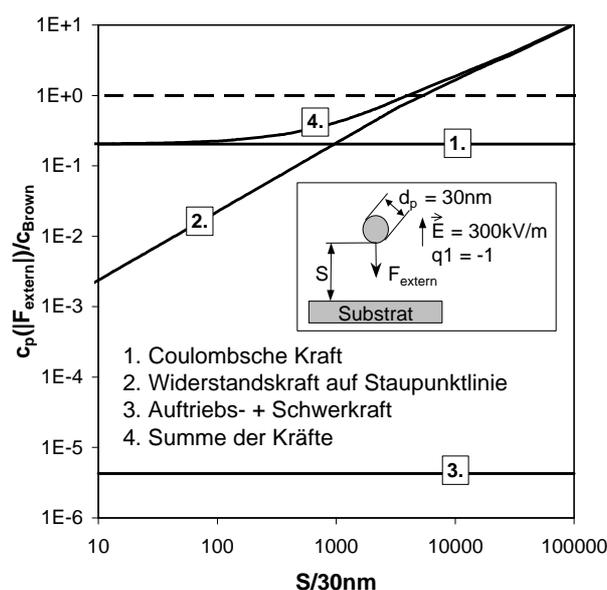


Abbildung 3.10: Abhängigkeit von c_p/c_{Brown} von den Einzelkräften in großer Entfernung vom Substrat

dieser Stelle soll nur gezeigt werden, daß die Strömungsgeschwindigkeit in großem Abstand vom Substrat die Partikelbewegung dominiert. Oberhalb von $S/30 \text{ nm} = 100000$, das entspricht 3 mm, liegt die Strömungsgeschwindigkeit ca. eine Größenordnung über der mittleren Brownschen Bewegung. Im Nahbereich des Substrates ist die Strömungsgeschwindigkeit vernachlässigbar. Linie 4 stellte die Summe der in der ersten Phase der Deposition am Partikel angreifenden Kräfte dar. Der Verlauf verdeutlicht, daß Auftriebs- und Schwerkraft vernachlässigbar sind und die gerichteten Kräfte, die Einfluß auf die Partikelbewegung haben, zunächst durch die Strömungskräfte und unterhalb von $S/30 \text{ nm} = 100$ (also $3 \mu\text{m}$) durch die Coulombsche Kraft bestimmt werden.

Phase 2: Wechselwirkungen zwischen Partikel und Substrat: Im Nahbereich einer glatten Substratoberfläche wirken neben der Coulombschen Kraft aufgrund des homogenen elektrischen Feldes zusätzlich die Bildkraft und die van der Waals Kraft zwischen Partikel und Substrat. In Abbildung 3.11 ist wieder die auf die mittlere Brownsche Geschwindigkeit bezogene Geschwindigkeit aufgrund der jeweiligen Kraft über dem auf den Partikeldurchmesser bezogenen Abstand vom Substrat aufgetragen. Das Diagramm beschreibt wieder den Geschwindigkeitsverlauf eines einfach geladenen 30 nm großen Indiumpartikels. Aus dem Diagramm geht hervor, daß für Abstände größer als ca. $S/30 \text{ nm} = 2$, also 60 nm, die Coulombsche Kraft dominiert. Mit kleiner werdendem Abstand gewinnt die van der Waals Kraft zunehmend an Bedeutung. Unterhalb von $S/30 \text{ nm} = 0,8$, also 24 nm, ist die Partikelbewegung in Richtung des Substrates stärker als die Brownsche Bewegung. Aus dem Diagramm geht weiterhin hervor, daß die Bildkraft bei Abständen $S/30 \text{ nm} > 1$ gegenüber der Coulombschen Kraft vernachlässigt werden kann. Bei kleineren Abständen dominiert die van der Waals Kraft.

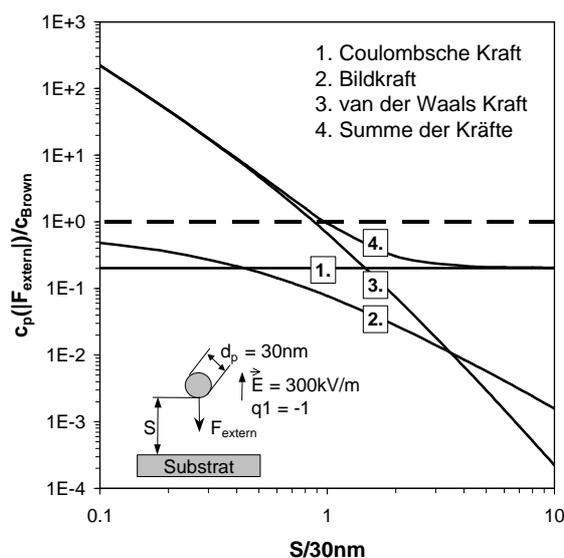


Abbildung 3.11: Abhängigkeit von c_p/c_{Brown} bei Wechselwirkung eines einfach geladenen 30 nm großen Partikels mit dem Substrat

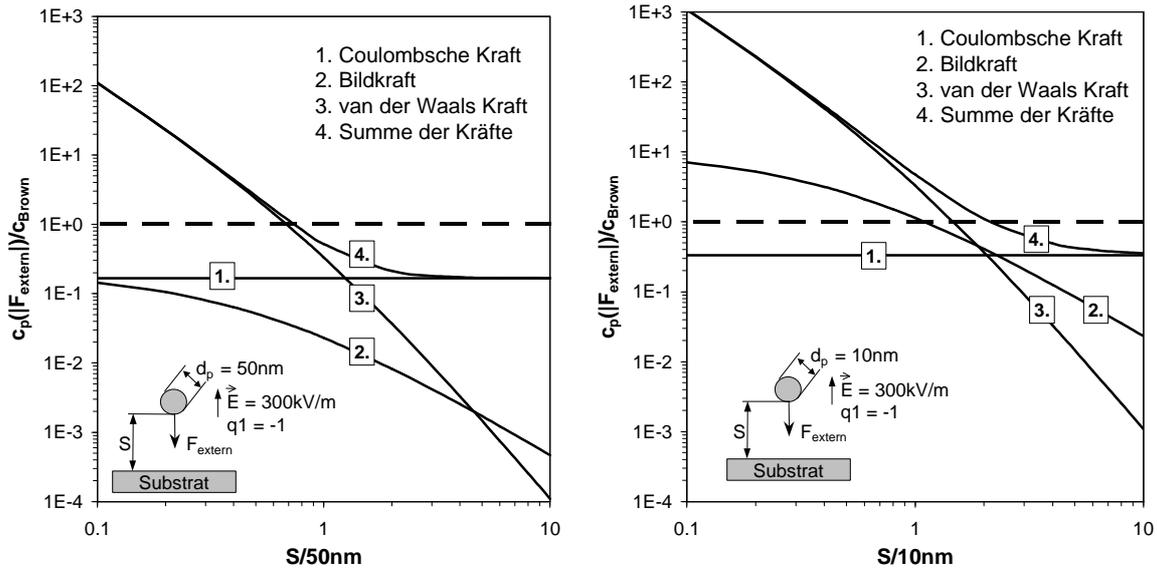


Abbildung 3.12: Abhängigkeit von c_p/c_{Brown} bei Wechselwirkung eines einfach geladenen 50 nm großen Partikels (links) bzw. 10 nm großen Partikels (rechts) mit dem Substrat

Anhand der Abbildung 3.12 soll der Einfluß des Partikeldurchmessers auf das Bewegungsverhalten diskutiert werden. Das linke Diagramm beschreibt das Bewegungsverhalten von 50 nm großen Partikeln, das rechte Diagramm bezieht sich auf 10 nm große Partikel. Beim Vergleich der beiden Diagramme mit Abbildung 3.11 fällt auf, daß der Einfluß der Bildkraft mit abnehmendem Partikeldurchmesser zunimmt. Das ist darauf zurückzuführen, daß die Bildkraft quadratisch vom Abstand zwischen Partikelmittelpunkt zur Substratoberfläche abhängt, jedoch vom Partikeldurchmesser unabhängig ist. Daraus folgt, daß ein einfach geladenes 10 nm großes Partikel, das sich in einem Abstand von einem Partikeldurchmesser vom Substrat befindet, eine um den Faktor 13,4 höhere Anziehung in Richtung des Substrates erfährt als ein einfachgeladenes 50 nm großes Partikel. Ein weiterer Aspekt ist, daß die Endgeschwindigkeit eines 10 nm großen Partikels bei gleicher Kraft, aufgrund der höheren elektrischen Mobilität ($B_{50\text{ nm}} = 5,5 \cdot 10^{11} \text{ skg}^{-1}$, $B_{30\text{ nm}} = 1,2 \cdot 10^{13} \text{ skg}^{-1}$) um den Faktor 21,8 größer ist. Dies steht einem Verhältnis der mittleren thermischen Geschwindigkeiten ($c_{Brown_50\text{ nm}} = 0,56 \text{ ms}^{-1}$, $c_{Brown_10\text{ nm}} = 1,78 \text{ ms}^{-1}$) von 3,2 gegenüber. Daraus folgt, daß die Partikel mit abnehmendem Partikeldurchmesser empfindlicher auf äußere Kräfte reagieren und dieser Effekt die Zunahme der Brownschen Bewegung überdeckt. Dies wird anhand von Abbildung 3.13 veranschaulicht, in der beispielhaft für eine externe Kraft von $2 \cdot 10^{-13} \text{ N}$ (dies entspricht etwa der Kraft zwischen zwei einfach geladenen 30 nm großen Partikeln bei einem Abstand von 20 nm), das Verhältnis zwischen der Geschwindigkeit eines Partikels aufgrund dieser Kraft, zur mittleren Brownschen Geschwindigkeit über dem Partikeldurchmesser aufgetragen ist. Aus der Darstellung folgt, daß bei gleicher Kraft auf das Partikel im gewählten Fall die Bewegung bei Partikeln kleiner als 20 nm durch die externe Kraft bestimmt wird, bei Partikeln größer als 20 nm durch die Brownsche Bewegung.

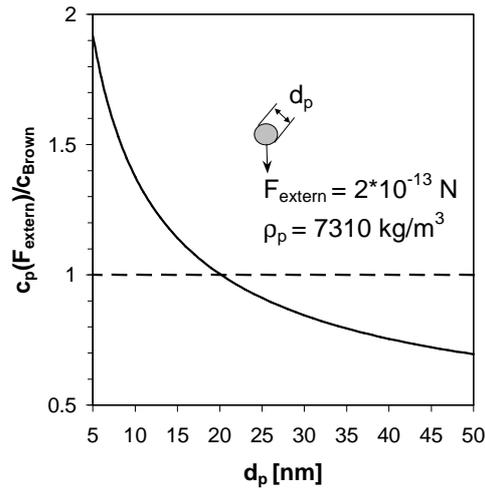


Abbildung 3.13: Abhängigkeit von c_p/c_{Brown} vom Partikeldurchmesser bei konstanter Kraftwirkung

Phase 2: Wechselwirkungen zwischen ankommendem und deponiertem Partikel: Nähert sich ein ankommendes Partikel einem bereits deponierten Partikel, kommt es zu einer Wechselwirkung zwischen beiden Partikeln. Da es bei der Wechselwirkung zwischen Partikeln sowohl anziehende als auch abstoßende Kräfte gibt, unterscheiden sich die folgenden Diagramme von den vorhergehenden dahingehend, daß die Ordinaten sowohl einen negativen als auch einen positiven Bereich aufweisen. Allgemein gilt, daß negative Kräfte anziehend wirken und positive Kräfte abstoßend. Der Bereich, in dem die Brownsche Bewegung dominiert, liegt in diesem Fall zwischen plus und minus eins und ist durch die waagerechten gestrichelten Linien begrenzt. Abbildung 3.14 veranschaulicht die Geschwindigkeit eines einfach gela

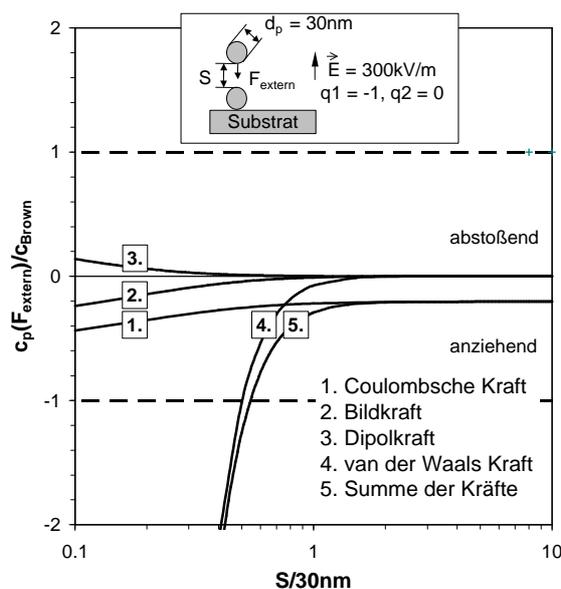


Abbildung 3.14: Abhängigkeit von c_p/c_{Brown} bei Wechselwirkung eines einfach geladenen 30 nm großen Partikels mit einem deponierten ungeladenen Partikel

denen 30 nm großen Partikels in Bezug auf die mittlere Brownsche Geschwindigkeit in Abhängigkeit von der Coulombschen Kraft, der Bildkraft, der Dipolkraft sowie der van der Waals Kraft aufgrund eines ungeladenen 30 nm großen Partikels auf der Substratoberfläche. Der relative Abstand $S/30$ nm ist in diesem Fall der minimale Abstand zwischen den beiden Partikeln. Aus dem Diagramm ist zu erkennen, daß die Partikelgeschwindigkeit aufgrund der Coulombschen Kraft bei Anwesenheit eines ansonsten homogenen elektrischen Feldes von 300 kV m^{-1} im Nahbereich des deponierten Partikels für $S/30 \text{ nm} < 1$ zunimmt. Dieser Einfluß ist jedoch gegenüber dem Einfluß der van der Waals Kraft zwischen den beiden Partikeln vernachlässigbar. Dasselbe gilt für den Einfluß der Bildkraft sowie der Dipolkraft, die in diesem Fall aufgrund der Polarisierung der Partikel im gegebenen elektrischen Feld abstoßend wirkt. Aus der Summe der Kräfte läßt sich ableiten, daß für Abstände $S/30 \text{ nm} > 1$ die Coulombsche Kraft aufgrund des homogenen elektrischen Feldes die bestimmende gerichtete Kraft ist. Bei kleineren Abständen nimmt die van der Waals Kraft sehr stark zu, so daß bei Abständen $S/30 \text{ nm} < 0,5$ die Geschwindigkeit des Partikels aufgrund der gerichteten Kraft die mittlere Brownsche Bewegung übersteigt. Für das Bewegungsverhalten des Partikels läßt sich aus dem Diagramm entnehmen, daß bei Abständen von $S/30 \text{ nm} > 1$ die Partikelbewegung im wesentlichen durch die Brownsche Bewegung bestimmt ist. Nähert sich ein Partikel nun zufällig einem bereits deponierten Partikel auf einen Abstand von $S/30 \text{ nm} < 1$, ist die Bewegung zwar immer noch stochastischer Natur, es besteht jedoch eine Kraftkomponente in Richtung des bereits deponierten Partikels. Daraus folgt, daß die Wahrscheinlichkeit einer Agglomeration größer ist als es eine zufällige Verteilung der Partikel auf dem Substrat vorhersagt.

Abbildung 3.15 veranschaulicht den Fall, daß das deponierte Partikel auf der Substratoberfläche seine Ladung behält. In diesem Fall verändert sich die Coulombsche Kraft auf das ankommende Partikel dahingehend, daß bei einem Abstand von $S/30 \text{ nm} < 2$ die abstoßende Wirkung der negativen Ladung auf den Partikeln dazu führt, daß eine Abstoßung erfolgt, die mit abnehmendem Abstand stark zunimmt. Dieser Effekt wird jedoch durch die van der Waals Kraft, die Bildkraft sowie die in diesem Fall anziehend wirkende Dipolkraft aufgehoben, so daß für Abstände $S/30 \text{ nm} < 0,5$ die Anziehung überwiegt. Da die Geschwindigkeit aufgrund der Abstoßung in dem schmalen Bereich zwischen ca. $S/30 \text{ nm} = 1,1$ und $S/30 \text{ nm} = 0,4$ kleiner ist als die mittlere Brownsche Geschwindigkeit, reicht bei 30 nm großen Partikeln eine einfach Ladung nicht aus, um eine Agglomeration auf der Substratoberfläche zu verhindern. Ein weiterer Aspekt ist, daß die die Bildkraft und die Dipolkraft gegenüber der van der Waals Kraft vernachlässigt werden können.

In Abbildung 3.16 wird der Fall gezeigt, daß beide Partikel vierfach negativ geladen sind. In diesem Fall reicht die abstoßende Wirkung der Ladungen aus, um eine Agglomeration der Partikel zu verhindern. Ab einem Abstand von $S/30 \text{ nm} = 1,2$ ist die Geschwindigkeit auf

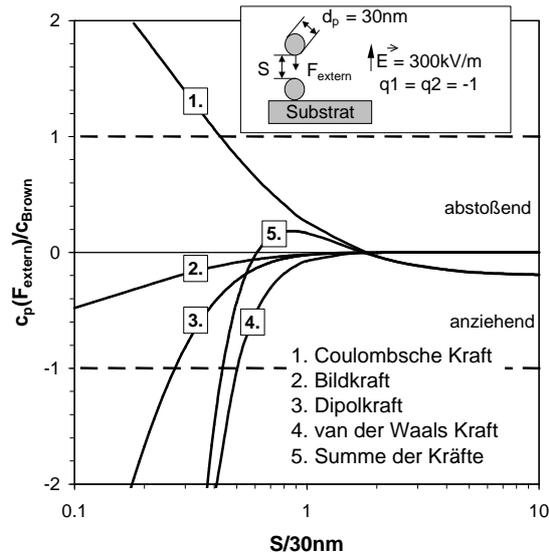


Abbildung 3.15: Abhängigkeit von c_p/c_{Brown} bei Wechselwirkung eines einfach geladenen 30 nm großen Partikels mit einem deponierten einfach geladenen Partikel

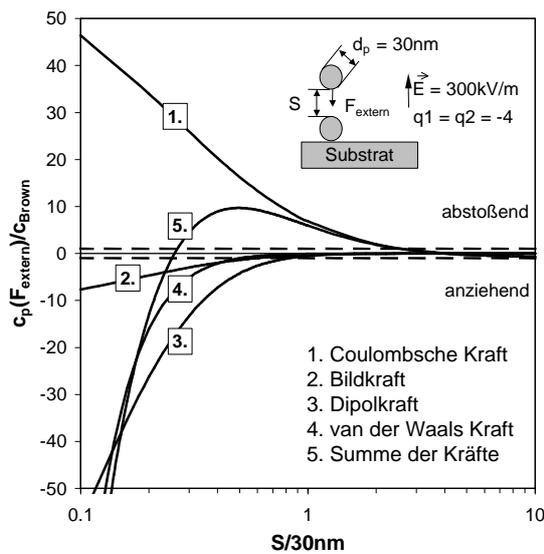


Abbildung 3.16: Abhängigkeit von c_p/c_{Brown} bei Wechselwirkung eines vierfach geladenen 30 nm großen Partikels mit einem deponierten vierfach geladenen Partikel

grund der gerichteten Kräfte größer als die mittlere Brownsche Geschwindigkeit. Da sie bei $S/30 \text{ nm} = 0,4$ eine Größenordnung über der mittleren Brownschen Geschwindigkeit liegt ist eine Agglomeration von zwei Partikeln sehr unwahrscheinlich. Ein weiterer Aspekt in diesem Diagramm ist, daß in diesem Fall die Dipolkraft stärker ist als die van der Waals Kraft. Die Bildkraft ist wiederum klein gegenüber den restlichen Kräften. Aus dem Diagramm folgt, dass bei der Betrachtung der Deposition hoch geladener Kräfte die Fernwirkung der Coulombschen Kräfte zwischen Partikeln die dominierende Rolle spielen.

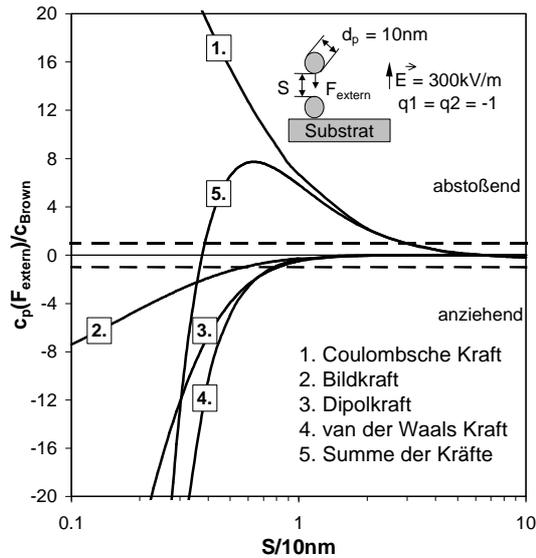


Abbildung 3.17: Abhängigkeit von c_p/c_{Brown} bei Wechselwirkung eines einfach geladenen 10 nm großen Partikels mit einem deponierten einfach geladenen Partikel

Abbildung 3.17 zeigt die Geschwindigkeitsverläufe bei Wechselwirkung zwischen zwei einfach geladenen 10 nm großen Partikeln. In diesem Fall reicht jeweils eine Ladung auf den Partikeln aus, um eine Agglomeration zu verhindern. Für Abstände von ca. $S/10 \text{ nm} < 1,2$ führt die abstoßende Wirkung der Gesamtkraft zu einer Partikelgeschwindigkeit, die größer als die mittlere Brownsche Geschwindigkeit ist.

Aus der Analyse der Geschwindigkeitskomponenten aufgrund der gerichteten Kräfte in den ersten beiden Phasen der Deposition läßt sich folgendes Fazit ziehen: In der ersten Phase der Deposition sind die Strömungskräfte sowie die Coulombsche Kraft auf die Partikel von Bedeutung. In der zweiten Phase ist zusätzlich die Wirkung der van der Waals Kraft zwischen Partikel und Substrat von Bedeutung. Für die Berücksichtigung der Partikel-Partikel-Wechselwirkungen ist die Veränderung des elektrischen Feldes aufgrund eines deponierten Partikels zu berücksichtigen, wenn das Partikel seine Ladung behält. Die van der Waals Kraft zwischen den Partikeln spielt eine große Rolle hinsichtlich der Agglomeration der Partikel auf der Substratoberfläche. Die Dipolkraft gewinnt gegenüber der van der Waals Kraft im Falle hochgeladener Partikel an Bedeutung. In diesem Fall wird die Partikelbewegung jedoch von den Coulombschen Wechselwirkungen bestimmt. Die Bildkraft zwischen den Partikeln ist in allen Fällen vernachlässigbar. Da die Brownsche Bewegung in vielen Fällen einen erheblichen Anteil an der Bewegung des Partikels hat, muß sie bei der Modellierung der Deposition mittels eines Trajektorienmodells berücksichtigt werden.