

## 4 Modellbildung

Auf Grundlage der in Kapitel 2 dargestellten Prozeßbedingungen und der in Kapitel 3 beschriebenen Wechselwirkungen eines Nanopartikels mit seiner Umgebung wird in diesem Kapitel das Modell beschrieben, das für die theoretische Untersuchung der Deposition aufgestellt wurde. Es wird ein Lösungsalgorithmus vorgestellt, der die Berechnung der Trajektorien einzelner Partikel in der verwendeten Depositionskammer vom Eintritt in diese bis zur Endposition auf dem Substrat ermöglicht. Aufgrund der zufälligen Verteilung der Partikel in der Gasphase sowie des Einflusses der Brownschen Bewegung ist die Partikeldeposition ein Prozeß, der eine starke stochastische Komponente enthält. Dem ist dahingehend Rechnung zu tragen, daß im allgemeinen eine große Anzahl von Trajektorien ausgewertet werden muß, um eine repräsentative Aussage zu erzielen. Zur Minimierung der Rechenzeiten ist es für die Computersimulation daher von großer Bedeutung, daß nur der Trajektorienabschnitt berechnet wird, der für die jeweilige Problemstellung ausschlaggebend ist. Daraus ergibt sich die Unterteilung der Untersuchung in makroskopische und mikroskopische Aspekte der Deposition. Die makroskopischen Aspekte können im wesentlichen durch die Phase 1 der Deposition, in der, wie in Kapitel 3 gezeigt wurde, Wechselwirkungen mit der Substratoberfläche bzw. bereits deponierten Partikeln vernachlässigbar sind, beschrieben werden. Sie wird durch das Strömungsprofil der Gasphase innerhalb der Depositionskammer maßgeblich charakterisiert. Im Rahmen der Modellbildung wird die Verteilung der Partikel in der Gasphase in Abhängigkeit von der Position über dem Substrat untersucht. Desweiteren wird der Bereich, in dem die Deposition stattfindet, in Abhängigkeit von der Partikelgröße und Ladung sowie der elektrischen Feldstärke in der Depositionskammer beschrieben. Dieser Bereich wird im folgenden als Depositionsbereich bezeichnet. Die Ergebnisse dieser Modellrechnungen liefern die Randbedingungen für die Untersuchung der mikroskopischen Aspekte, also der Phase 2 der Deposition, die im wesentlichen durch die Kräfte mit kurzer Reichweite bestimmt wird. In diesem Fall geht es darum, die theoretischen Hintergründe für die Anordnung von Partikeln auf der Substratoberfläche in Abhängigkeit von der Partikelgröße und Ladung, den Substrateigenschaften sowie der elektrischen Feldstärke in der Depositionskammer zu erörtern. Hierfür muß die Computersimulation die Möglichkeit bieten, den Einfluß dieser Parameter auf die Bewegung des Partikels im Nahbereich der Substratoberfläche zu studieren.

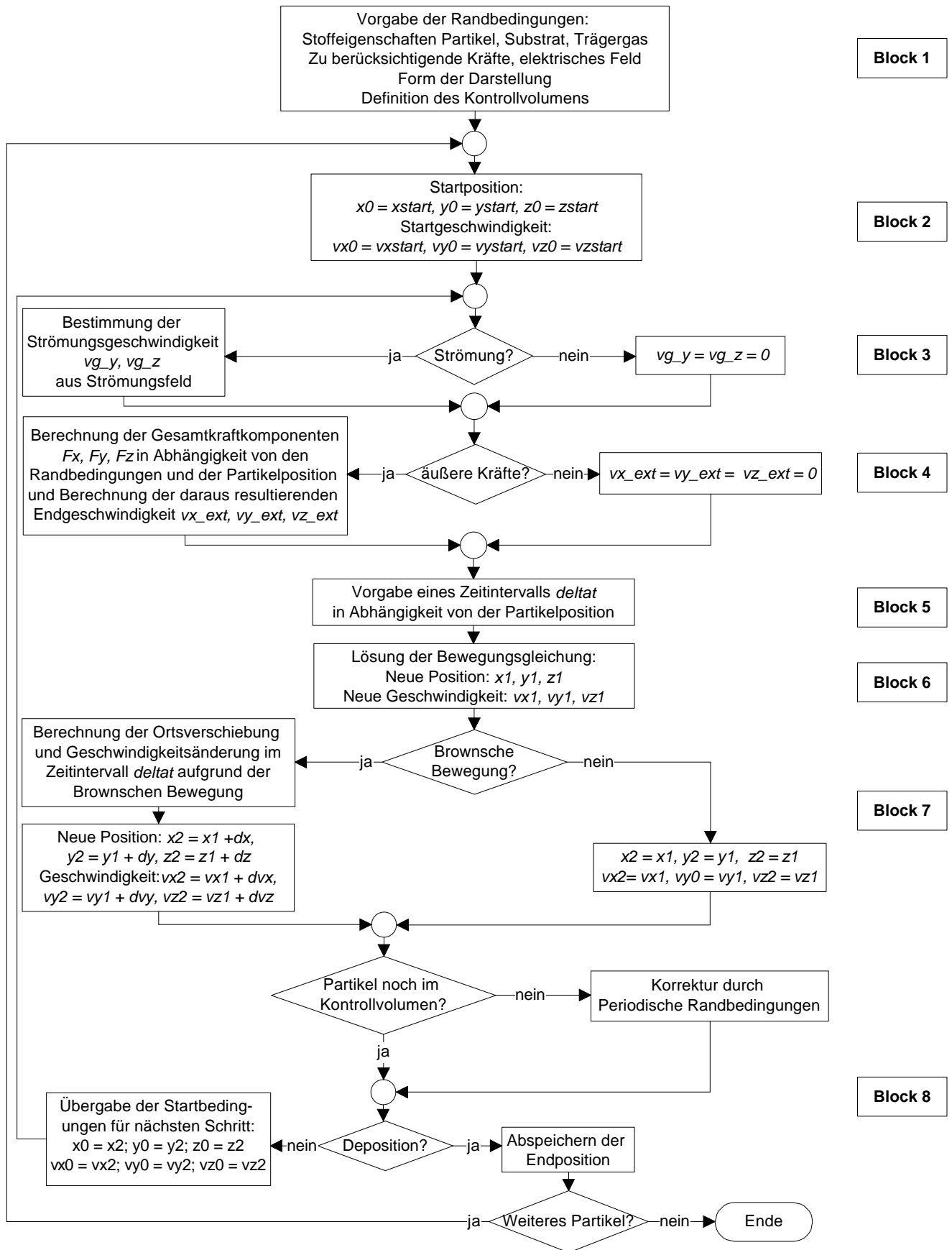


Abbildung 4.1: Struktogramm des Computerprogrammes zur Simulation der Deposition

## 4.1 Aufbau der Computersimulation

Im folgenden wird das Modell und die Funktionsweise des darauf basierenden Computerprogrammes zur Simulation des Depositionsprozesses erörtert. Das in Abbildung 4.1 dargestellte Struktogramm veranschaulicht den Aufbau des Programms. Im folgenden werden die einzelnen Programmelemente (Blöcke) entsprechend dem Programmaufbau erläutert.

### **Block 1:**

Im ersten Block erfolgt die Vorgabe der Randbedingungen, über die die Anpassung des Programms an die zu untersuchende Fragestellung gewährleistet wird. Das Versuchssystem wird dabei zunächst über die Stoffeigenschaften der Partikel, des Substrates und des Trägergases definiert, die einen Einfluß auf die Wechselwirkungen eines Partikels mit seiner Umgebung haben.

### **Partikeleigenschaften**

Bei der Simulation wird zwischen einem gasgetragenen Partikel 1, dessen Trajektorie bestimmt werden soll und bereits deponierten Partikeln 2 unterschieden. Sie werden als Kugeln mit dem Durchmesser  $d_{p1}$  und  $d_{p2}$  betrachtet, wobei jeweils ein beliebiger fester Wert vorgegeben werden kann (für die folgenden Betrachtungen gilt  $d_{p1} = d_{p2}$ ). Eine Größenverteilung wird nicht betrachtet, da die Deposition monodisperser Partikel untersucht werden soll. Eine Erweiterung des Programmes auf polydisperse Größenverteilungen ist jedoch ohne großen Aufwand möglich. Das verwendete Partikelmaterial wird durch die Vorgabe der Dichte definiert. Bei der Simulation wird von leitenden Partikeln ausgegangen. Ladungen werden daher im Kugelzentrum angeordnet. Die Berechnungen sind somit für metallische und halbleitenden Partikel gültig. Im Fall nichtleitender Partikelmaterialien ist davon auszugehen, dass die Ladung an einer bestimmten Stelle auf dem Partikel lokalisiert ist. Dies hat Einfluß auf die Partikel-Partikel-Wechselwirkungen, der im Rahmen dieser Arbeit nicht untersucht wurde. Es wird zwischen der Ladung  $q_1$  des ankommenden Partikels und  $q_2$  von deponierten Partikeln unterschieden. Dadurch kann zum einen im Fall von  $q_2 = q_1$  der Einfluß von geladenen Partikeln auf der Substratoberfläche und zum anderen im Fall von  $q_2 = 0$  der Einfluß von ungeladenen Partikeln auf der Substratoberfläche untersucht werden.

### **Substrateigenschaften**

Das Substrat wird als unendlich ausgedehnte, ideal glatte Oberfläche betrachtet. Kanten- effekte werden nicht berücksichtigt. Die Substrateigenschaften werden über die Vorgabe der Dielektrizitätskonstante und des Brechungsindex definiert, die einen Einfluß auf die Berechnung der van der Waals Kräfte haben.

## **Trägergaseigenschaften**

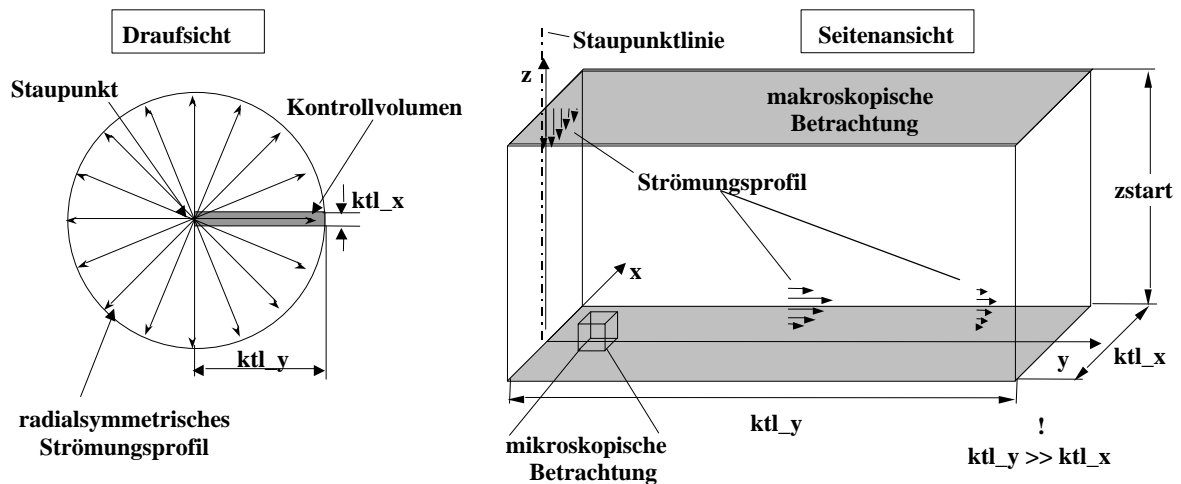
Bei der Modellbildung wurde der Einfluß des Trägergases dahingehend berücksichtigt, daß eine Auswahlmöglichkeit zwischen den Gasen Stickstoff, Wasserstoff und Argon besteht. Es müssen Temperatur und Druck vorgegeben werden, die unter Berücksichtigung der Dichte des gewählten Trägergases für die Bestimmung der freien Weglänge  $l_g$  des Trägergases und seiner dynamische Viskosität  $\eta_g$  benötigt werden. Diese Stoffdaten werden für die Berechnung der Partikelmobilität eingesetzt. Es wurden nur Untersuchungen bei Normalbedingungen und für Stickstoff durchgeführt. Das Programm wurde jedoch für die Berechnung von Partikeltrajektorien in den genannten Trägergasen in einem breiten Temperatur- und Druckspektrum ausgelegt.

## **Zu berücksichtigende Kräfte**

In Abhängigkeit von der zu untersuchenden Fragestellung müssen die zu berücksichtigenden Kräfte vorgegeben werden. Die in Kapitel 2 beschriebenen Kräfte sind einzeln zuschaltbar, um ihren Einfluß unabhängig voneinander beurteilen zu können. Dies gilt auch für die Strömungskräfte basierend auf dem Strömungsprofil der verwendeten Depositionskammer sowie die Brownsche Bewegung. Sollen Coulombsche Kräfte aufgrund eines äußeren elektrischen Feldes berücksichtigt werden, muß die elektrische Feldstärke des homogenen Feldes im ESP vorgegeben werden, dessen Feldlinien senkrecht zur Substratoberfläche verlaufen. Da die Analyse der Kräfte in Kapitel 2 gezeigt hat, daß die Bildkraft zwischen den Partikeln sowie die Dipolkraft für alle betrachteten Fälle von untergeordneter Bedeutung sind, wurden sie in der Simulation nicht berücksichtigt.

## **Definition des Kontrollvolumens**

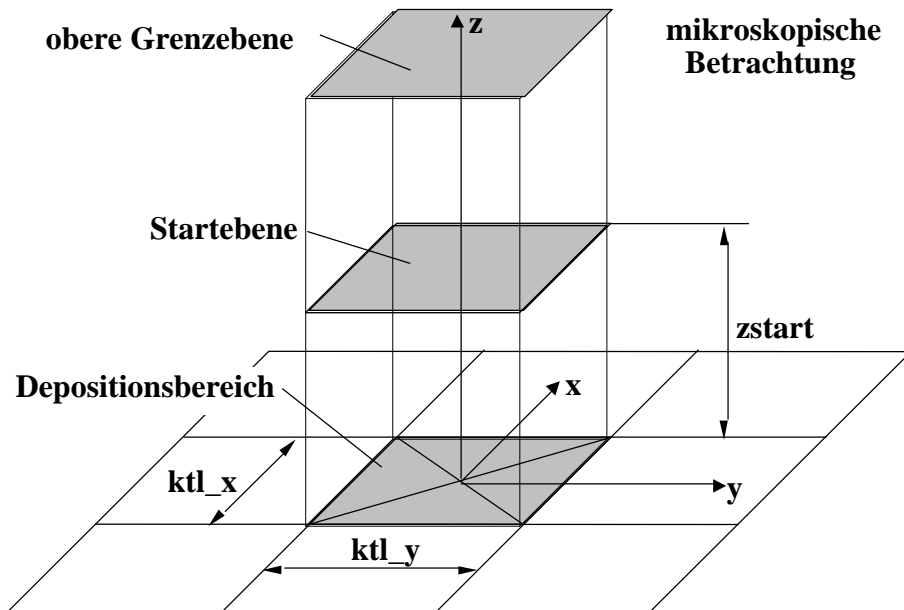
Das Kontrollvolumen ist der Bereich, in dem der Depositionsvorgang betrachtet wird. Da der Computersimulation ein kartesisches Koordinatensystem zugrunde liegt, erfolgt die Definition des Kontrollvolumens über die Vorgabe der Kantenlängen in x-, y- und z-Richtung. Dabei ist zwischen makroskopischen und mikroskopischen Aspekten zu unterscheiden. Im Falle makroskopischer Untersuchungen, in denen das Strömungsprofil eine entscheidende Rolle spielt, wurde zugunsten einer kürzeren Rechenzeit eine zweidimensionale Betrachtung gewählt. Die Abbildung 4.2 veranschaulicht schematisch den Aufbau des Kontrollvolumens. Das Strömungsprofil ist radialsymmetrisch zur Staupunktlinie und liegt in der Computersimulation in Form einer zweidimensionalen Geschwindigkeitsverteilung, die in der y-z-Ebene liegt, vor. Die Lage und Ausdehnung des Kontrollvolumens ist auf der y-Achse zwischen  $y = 0$  (Staupunktlinie) und  $y = 20$  mm (bis hier wurde das Strömungsfeld berechnet) frei wählbar. In z-Richtung wird der Bereich zwischen  $z = 0$  (Partikel ist deponiert) und  $z = 19$  mm (obere Grenze des Geschwindigkeitsprofils / Aerosoleinlaß des ESP) abgedeckt. Die Breite des Kontrollvolumens in x-Richtung spielt bei dieser Betrachtungsweise eine un



**Abbildung 4.2: Schematische Darstellung des Kontrollvolumens für die Betrachtung makroskopischer Aspekte der Deposition**

tergeordnete Rolle, wird aber durch Vorgabe einer Kantenlänge in  $x$ -Richtung berücksichtigt, die klein ist gegenüber der Ausdehnung in  $y$ -Richtung. Dadurch wird eine quasi dreidimensionale Betrachtung des Depositionsprozesses in einem Bereich möglich, in dem näherungsweise von parallel in  $x$ -Richtung verlaufenden Stromlinien ausgegangen werden kann.

Im Falle mikroskopischer Betrachtungen, bei denen z.B. die Anordnung von Partikeln auf der Substratoberfläche eine entscheidende Rolle spielt, erfolgt die Berechnung der Trajektorien dreidimensional. Bei dieser Betrachtungsweise wurden zwei Annahmen gemacht. Zum einen ist die Strömungsgeschwindigkeit der Gasphase vernachlässigbar. Dies ist, wie in Kapitel 3 gezeigt, für  $z$ -Werte unterhalb von ca.  $5 \mu\text{m}$  der Fall. Daraus folgt, daß die Partikel keine bevorzugte Geschwindigkeit parallel zur Substratoberfläche aufweisen. Zum anderen wird davon ausgegangen, daß die Partikel in dieser Höhe homogen über dem Substrat verteilt sind. Diese Annahme wird durch experimentelle Ergebnisse (vgl. Kapitel 2) bestätigt. Aus Abbildung 4.3 geht der Aufbau des Kontrollvolumens hervor. Es stellt einen im Vergleich zum gesamten Depositionsbereich kleinen Ausschnitt dar. Die Kantenlänge ist in den drei Raumrichtungen frei wählbar. Der Ursprung des Koordinatensystems liegt auf der Substratoberfläche. Da der Bezugspunkt zur Berechnung der Partikeltrajektorie der Partikelmittelpunkt ist, folgt daraus, daß bei  $z = r_p$  das Substrat erreicht wurde. Desweiteren ist das Kontrollvolumen in der  $x$ - $y$ -Ebene symmetrisch zum Ursprung. Der Startpunkt der Trajektorie liegt in der Startebene. Zur Vermeidung unnötig langer Rechenzeiten wird eine Kontrollebene eingeführt, die sich in der Höhe  $z = 2 \cdot z_{\text{start}}$  über dem Substrat befindet. Partikel, die diese Ebene aufgrund der Brownschen Bewegung oder repulsiver Kräfte erreichen, werden zur Vermeidung unnötig langer Rechenzeiten verworfen.



**Abbildung 4.3: Schematische Darstellung des Kontrollvolumens für die Betrachtung mikroskopischer Aspekte der Deposition**

### **Form der Darstellung**

Das Programm bietet die Möglichkeit zwischen zwei Darstellungsformen der Ergebnisse zu wählen. Die erste Form dient der Visualisierung der Partikeltrajektorien, die eine erste Analyse der Wechselwirkungen erlaubt. In diesem Fall werden einzelne Trajektorien von frei wählbaren Startpunkten im Kontrollvolumen bis zum Endpunkt auf der Substratoberfläche oder auf den Grenzflächen des Kontrollvolumens aufgezeichnet. Die zweite Form ist für die statistische Auswertung der Verteilung der Endpositionen der Partikel auf dem Substrat ausgelegt. In diesem Fall wird eine ausreichend hohe Anzahl Trajektorien berechnet, übliche Werte liegen zwischen 100 und 10000, wobei jeweils nur die Endposition des Partikels auf dem Substrat abgespeichert wird.

### **Block 2:**

Im zweiten Block erfolgt auf der Basis der vorgewählten Randbedingungen die Berechnung der Startkoordinaten eines Partikels sowie der Komponenten der Startgeschwindigkeit in  $x$ -,  $y$ - und  $z$ -Richtung. Für die Bestimmung der Startkoordinaten stehen zwei Varianten zur Verfügung:

1. *Vorgabe einer Startkoordinate für jede Trajektorie, die berechnet werden soll*

Die Vorgabe fester Startkoordinaten wird für die Darstellung bestimmter Trajektorien benötigt, zum Beispiel bei der Untersuchung makroskopischer Effekte wie der Beschreibung des Depositionsbereiches im ESP in Abhängigkeit von der elektrischen Feldstärke. Weiterhin ist es bei der Untersuchung der Wirkungsweise einzelner Kräfte sinnvoll einen festen Startpunkt vorzugeben, da damit eine Vergleichbarkeit der resultierenden Trajektorien erreicht wird.

## 2. Gleichverteilte Startkoordinaten in der x-y-Ebene bei fest vorgegebener z-Koordinate

Gleichverteilte Startkoordinaten in der x-y-Ebene werden benötigt, um den Depositionsprozess im Nahbereich der Substratoberfläche (Phase 2 der Deposition) zu beschreiben. Aus experimentellen Ergebnissen folgt, daß die Depositionswahrscheinlichkeit im ESP bei Anwesenheit eines elektrischen Feldes in einem scharf abgegrenzten Bereich auf der Elektrode konstant ist. Dies rechtfertigt die Annahme, daß eine Ebene dicht über dem Substrat existiert, in der eine Gleichverteilung der Partikel vorliegt. In der Computersimulation erfolgt die Modellierung in der Form, daß über die Kantenlänge des Kontrollvolumens in x- und y-Richtung eine Startebene definiert wird, aus der die Partikel zufällig verteilt starten. Die Berechnung der Startkoordinaten erfolgt nach der Gleichung

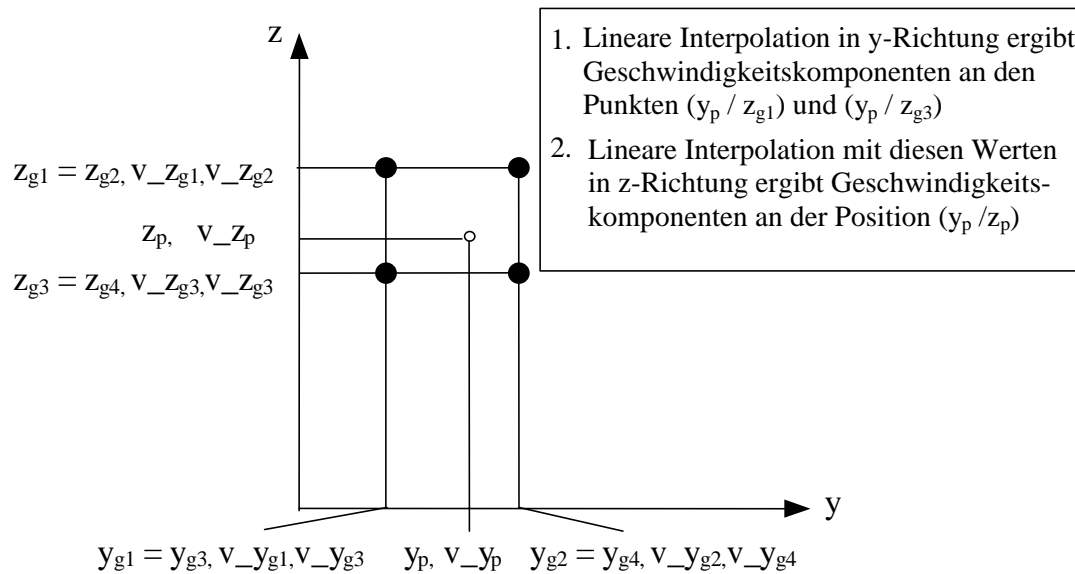
$$xstart = ktl\_x \cdot (0,5 - random) \quad (4.1)$$

mit:  $xstart$ : Startordinate in x-Richtung  
 $ktl\_x$ : Kantenlänge des Kontrollvolumens in x-Richtung  
 $random$ : Gleichverteilte Zufallszahl zwischen 0 und 1

Die Berechnung der Startordinate in y-Richtung erfolgt analog. Die Starthöhe  $zstart$  wird zunächst fest vorgegeben, wird jedoch im Fall, daß ein Partikel nicht auf dem Substrat sondern auf einem bereits deponierten Partikel landet, um den Betrag des Abstandes in z-Richtung zwischen den beiden Partikelmittelpunkten erhöht. Dadurch bleibt der Abstand zwischen der Starthöhe jedes Partikels und der höchsten Erhebung über dem Substrat immer der gleiche. Dies gewährleistet, daß Wechselwirkungen mit bereits deponierten Partikeln in der Startebene grundsätzlich vernachlässigbar sind.

### **Block 3:**

Im dritten Block erfolgt unter der Voraussetzung, daß die Geschwindigkeit der Gasphase berücksichtigt werden soll, die Bestimmung der Komponenten der Strömungsgeschwindigkeit in y- und z-Richtung in Abhängigkeit von der aktuellen Partikelposition. Das Strömungsfeld liegt in Form eines Datensatzes vor, der die Strömungsgeschwindigkeiten in y-Richtung und z-Richtung für diskrete Positionen enthält. Vor der Berechnung jedes Schrittes der Trajektorie erfolgt die Bestimmung der vier Punkte des Strömungsfeldes, die der aktuellen Partikelposition am nächsten liegen. Diese Punkte sind in Abbildung 4.4 schwarz dargestellt. Durch zwei lineare Interpolationen in y-Richtung und eine lineare Interpolation in z-Richtung werden die Geschwindigkeitskomponenten der Gasphase an der aktuellen Partikelposition bestimmt.



**Abbildung 4.4: Bestimmung der Strömungsgeschwindigkeit in y- und z-Richtung durch lineare Interpolation aus dem Datensatz der Geschwindigkeitskomponenten des Strömungsfeldes**

#### **Block 4:**

Im vierten Block erfolgt für den aktuellen Schritt auf der Trajektorie die Berechnung der Komponenten der äußeren Kräfte auf das Partikel in den drei Raumrichtungen in Abhängigkeit von der aktuellen Partikelposition. Durch Addition der Einzelkräfte ergeben sich Komponenten der Gesamtkraft in x-, y- und z- Richtung. Auf der Grundlage der Analyse der Einzelkräfte in Kapitel 3 werden die in Tabelle 4.1 aufgeführten äußeren Kräfte in der Computersimulation berücksichtigt und können einzeln „eingeschaltet“ werden. Die in der Tabelle aufgeführte charakteristische Distanz entspricht der für die Berechnung der Kraft benötigten Entfernung des Partikels von der Substratoberfläche bzw. einem bereits deponierten Partikel. Wird die Wechselwirkung eines ankommenden Partikels mit mehreren bereits deponierten Partikel untersucht, ist die resultierende Gesamtkraft der Partikel-Partikel-Wechselwirkungen die Summe der Einzelkräfte. Sind z.B. bereits drei Partikel auf dem Substrat angekommen und soll der Einfluß der van der Waals Wechselwirkungen auf das nachfolgende Partikeln untersucht werden, so sind für jeden Schritt erst die Abstände des betrachteten Partikels zu allen bereits deponierten Partikeln zu berechnen, um anschließend die Einzelkräfte berechnen zu können. Da für jede Wechselwirkung sechs Größen bestimmt werden müssen (die Abstände in x-, y- und z-Richtung und die daraus resultierenden Kraftkomponenten) folgt daraus, daß mit zunehmender Belegungsichte der Rechenaufwand drastisch ansteigt.



**Tabelle 4.1: In der Computersimulation berücksichtigte Kräfte**

Kraft	charakteristische Distanz
<u>Entweder</u> : Nur Coulombsche Kraft aufgrund des homogenen elektrischen Feldes	unabhängig von der Position des Partikels
<u>Oder</u> : Coulombsche Kraft unter Berücksichtigung bereits deponierter Partikel	Abstand zwischen Partikelmittelpunkten des ankommenden und des jeweiligen deponierten Partikels: $S = f_1(x, y, z, d_{p1}, d_{p2})$
Bildkraft zwischen Partikel und Substrat	Abstand zwischen Partikelmittelpunkt und Substrat – entspricht z-Koordinate
van der Waals Kraft zwischen Partikel und Substrat	minimaler Abstand zwischen Partikel und Substrat – entspricht $z - r_p$
van der Waals Kraft zwischen zwei Partikeln	minimaler Abstand zwischen ankommendem und dem jeweiligen deponierten Partikel $S = f_2(x, y, z, d_{p1}, d_{p2})$

**Block 5:**

Im fünften Block erfolgt die Schrittweitensteuerung des Programms über die Vorgabe des Zeitintervalls *deltat*, das die „Flugdauer“ im aktuellen Schritt bestimmt. *deltat* wird sowohl für die Berechnung der deterministischen Bewegung des Partikels aufgrund der äußeren Kräfte als auch für die Berechnung der Brownschen Bewegung benötigt. Bei der Wahl der Schrittweite sind zwei Aspekte von Bedeutung: Eine zu kleine Schrittweite erhöht die Rechenzeit und eine zu große führt zu ungenauen Ergebnissen. Dies läßt sich an zwei Beispielen veranschaulichen: Bei der Untersuchung makroskopischer Aspekte wird das gesamte Strömungsfeld im ESP berücksichtigt, was dazu führt, das die Kantenlänge des Kontrollraumes im Millimeterbereich liegt. In diesem Fall ist die Kraft auf das Partikel über weite Strecken (> 100 µm) nahezu konstant. Das Partikel bewegt sich auf einer geraden Linie, die nur durch die Brownsche Bewegung beeinflusst wird. Im Gegensatz dazu steht die Untersuchung der Partikeltrajektorie im Nahbereich der Substratoberfläche bzw. bereits deponierter Partikel. Hier ändert sich die Kraft auf das Partikel drastisch innerhalb weniger Nanometer. Diese großen Unterschiede führen zu der Notwendigkeit die Schrittweite in Abhängigkeit von der Partikelposition über dem Substrat zu variieren. Im Zuge der Programmentwicklung wurde daher eine Liste von Schrittweiten in das Programm implementiert, die an die Versuchsbedingungen angepaßt ist und durch die eine Einstellung der Schrittweite in Abhängigkeit von der z-Koordinate des Partikels erfolgt. Die Werte sind in Tabelle 4.2 dargestellt. Sie wurden so gewählt, daß für die untersuchten Partikelgrößen zwischen 10 nm und 80 nm die für die Gültigkeit des Modells notwendige Bedingung erfüllt ist, daß die Kraftwirkung auf das Partikel während eines Schrittes annähernd konstant bleibt. Eine Schrittweitenüberprüfung hat ergeben, daß sich die berechneten Trajektorien bei einer Verkleinerung des Schrittweite nicht ändern.

**Tabelle 4.2: Abhängigkeit der Schrittweite  $\delta z$  von der Höhe  $z$  über dem Substrat**

$z$ -Position	$\delta z$ [nm]	maßgebliche Geschwindigkeit	$v_p$ [m/s]	Strecke
$z \geq 200 \mu\text{m}$	300	Strömungsgeschwindigkeit	ca. 3	0,9 $\mu\text{m}$
		zum Vergleich: mittlere Brownsche Geschwindigkeit von Indiumpartikeln		
		$d_p = 10 \text{ nm}$	ca. 1,7	0,51 $\mu\text{m}$
		$d_p = 30 \text{ nm}$	ca. 0,3	0,09 $\mu\text{m}$
		$d_p = 50 \text{ nm}$	ca. 0,16	0,048 $\mu\text{m}$
$200 > z \geq 100 \mu\text{m}$	200	Strömungsgeschwindigkeit	ca. 3	0,6 $\mu\text{m}$
$100 > z \geq 10 \mu\text{m}$	100	Brownsche Geschw. $d_p = 10 \text{ nm}$	ca. 1,7	0,17 $\mu\text{m}$
$1 > z \geq 10 \mu\text{m}$	50			0,085 $\mu\text{m}$
$1 > z \geq 0,5 \mu\text{m}$	10			0,017 $\mu\text{m}$
$z < 500 \text{ nm}$	1			1,7 nm

**Block 6:**

Im sechsten Block erfolgt die Lösung der deterministischen Bewegungsgleichung

$$m_p \cdot \frac{d\mathbf{v}}{dt} + \frac{1}{B} \cdot (\mathbf{v}_p - \mathbf{v}_g) = \mathbf{F}_{\text{extern}} \quad , \quad (4.2)$$

die zur Vermeidung numerischer Probleme durch zu kleine Zahlen in eine dimensionslose Form überführt wurde. Dies geschieht, indem alle Längen, Geschwindigkeiten und Zeiten auf für das System charakteristische Werte bezogen werden. Als charakteristische Länge wurde  $r_a = 1000 \text{ nm}$  gewählt und für die Geschwindigkeiten  $v_a = 1 \text{ m/s}$ . Daraus folgt

$$\mathbf{v}_p^* = \frac{1}{v_a} \cdot \mathbf{v}_p \quad \text{bzw.} \quad \mathbf{v}_g^* = \frac{1}{v_a} \cdot \mathbf{v}_g \quad (4.3)$$

für die dimensionslosen Geschwindigkeiten und

$$t^* = \frac{v_a}{r_a} \cdot t \quad (4.4)$$

für die dimensionslose Zeit. Es folgt daraus nach Zusammenfassung der Konstanten die dimensionslose Form der Bewegungsgleichung zu

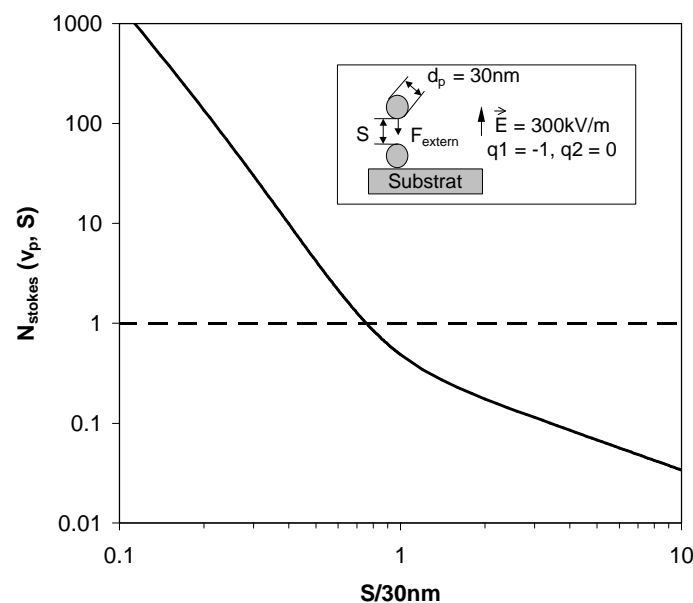
$$N_{st} \cdot \frac{d\mathbf{v}}{dt^*} + \mathbf{v}_g - \mathbf{v}_p = \frac{B}{v_a} \mathbf{F}_{\text{extern}} \quad . \quad (4.5)$$

Dabei ist

$$N_{st} = \frac{m_p \cdot B \cdot v_a}{r_a} \quad (4.6)$$

die Stokes-Zahl, deren Größe eine Aussage über den Einfluß der Trägheitskraft auf die Partikelbewegung im Verhältnis zur Schleppkraft erlaubt. Dabei gilt, daß mit zunehmender Stokes-Zahl der Einfluß der Massenträgheit zunimmt. Abbildung 4.5 veranschaulicht für ein einfach geladenes 30 nm großes Indiumpartikel die drastische Änderung der Stokes-Zahl bei der Annäherung an ein bereits deponiertes Partikel. Für  $v_a$  wurde dabei die Endgeschwindigkeit des Partikels aufgrund der Summe der wirkenden Kräfte (vgl. Abbildung 3.14) und für  $r_a$  der Abstand  $S$  zwischen den beiden Partikeln eingesetzt. Aus dem Diagramm folgt, daß die Trägheitskraft bei dieser Konfiguration vernachlässigbar ist, solange das Partikel weiter als einen Partikeldurchmesser vom bereits deponierten Partikel entfernt ist. Bei kleineren Entfernungen nimmt die Partikelgeschwindigkeit jedoch so schnell zu, daß die Trägheitskräfte gegenüber den Schleppkräften dominieren. Daraus folgt, daß das Partikel nicht die Endgeschwindigkeit aufgrund der äußeren Kraft erreicht.

Dieses Ergebnis ist die Begründung dafür, daß für die Berechnung der einzelnen Teilabschnitte der Trajektorie die Massenträgheit des Partikels berücksichtigt werden muß und damit die Trajektorie über die Integration der Bewegungsgleichung berechnet werden muß. Die im Block 4 bestimmte Gesamtkraft entspricht  $\mathbf{F}_{\text{extern}}$  in Gleichung (4.5). Durch die Integration der Bewegungsgleichung im Zeitintervall  $\Delta t$  mit einem Runge Kutta Verfahren erster



**Abbildung 4.5: Abhängigkeit der Stokes-Zahl eines 30 nm großen Partikels vom Abstand bei der Annäherung an ein deponiertes Partikel**

Ordnung wird der Geschwindigkeitsvektor ( $v_{x-1}/v_{y-1}/v_{z-1}$ ) des Partikels nach dem Zeitintervall  $\Delta t$  berechnet. Durch eine weitere Integration ergibt sich dann der neue Ortsvektor ( $x_1/y_1/z_1$ ).

### **Block 7:**

Im siebten Block erfolgt die Berechnung der Ortsverschiebung und der Geschwindigkeitsänderung während des Zeitschrittes  $\Delta t$  aufgrund der Brownschen Bewegung. Wie in Kapitel 2 gezeigt wurde, ist die Brownsche Bewegung für die Beschreibung des Depositionsprozesses von Nanopartikeln von großer Bedeutung. Der einfachste Weg ist die Beschreibung dieser Bewegung über die Berechnung der Ortsverschiebung mit Hilfe der Einsteinschen Verteilung über den Diffusionskoeffizienten  $D$ :

$$P(x, t) = \frac{1}{(2 \cdot \mathbf{p} \cdot D \cdot t)^{1/2}} \exp\left[\frac{-(x - x_0)^2}{2 \cdot D \cdot t}\right] \quad (4.7)$$

Diese Verteilung führt jedoch bei der gegebenen Problemstellung zu falschen Ergebnissen, da sie nur für Zeitschritte gilt, die groß sind gegenüber der Relaxationszeit des Partikels. An einem Beispiel läßt sich die Problematik veranschaulichen: Die Relaxationszeit eines 30 nm großen Partikels beträgt 146,3 ns. Die Einsteinsche Gleichung liefert für Zeitschritte, die deutlich größer sind ( $>1 \mu\text{s}$ ), richtige Werte. Wie Kapitel 2 gezeigt hat, liegt die Reichweite der Wechselwirkungen, die zu einer spezifischen Anordnung der Partikel auf dem Substrat führen, bei 30 nm großen Partikeln deutlich unter 200 nm. Es werden also Trajektorien mit Schritten in der Größenordnung von 1 nm benötigt um die Partikelbewegung sauber darzustellen. Die Endgeschwindigkeit des Partikels, wenn es einfach geladen ist, in einem elektrischen Feld mit einer Feldstärke von 300 kV/m beträgt 0,272 m/s. Das bedeutet, daß das Partikel in 1  $\mu\text{s}$  eine Strecke von 272 nm alleine aufgrund der deterministischen Kraft zurücklegt. Es wird also ein Algorithmus benötigt, der für Schrittweiten in der Größenordnung zwischen 0,1 ns und 100 ns richtige Werte liefert.

Der verwendete Algorithmus wird von mehreren Gruppen zur Berechnung der Brownschen Bewegung bei der Simulation von Partikeltrajektorien in Filtern verwendet [40], [41], [42]. Er basiert auf den Verteilungsfunktionen für die Geschwindigkeitsänderung und die Ortsverschiebung eines Partikels aufgrund seiner Wechselwirkungen mit dem umgebenden Medium, die 1943 durch Chandrasekhar [43] hergeleitet wurden. Für Zeitschritte, die groß gegenüber der Relaxationszeit des Partikels sind, geht die Verteilung der Ortsverschiebung in die Einsteinsche Verteilung und die Geschwindigkeitsverteilung in die Maxwellverteilung über.

Der Ansatz für die Beschreibung der stochastischen Partikelbewegung liegt in der Lösung der allgemeinen Form der Langevin-Gleichung

$$m_p \frac{d\mathbf{v}_p}{dt} = \mathbf{F}_W + \mathbf{F}_{\text{extern}} + \mathbf{F}_{\text{Brown}} \quad , \quad (4.8)$$

in der  $\mathbf{v}_p$  der Vektor der Partikelgeschwindigkeit,  $m_p$  die Partikelmasse und  $t$  die Zeit sind. Neben der Widerstandskraft, die das Partikel aufgrund einer gerichteten Relativbewegung zum umgebenden Fluid erfährt (vgl. Gleichung (3.1)), und externen deterministischen Kräften  $\mathbf{F}_{\text{extern}}$ , wirkt die stochastische Kraft  $\mathbf{F}_{\text{Brown}}$ . Diese Kraft wird durch eine große Anzahl von Kollisionen von Molekülen des umgebenden Fluides mit dem Partikel hervorgerufen, die zur ungerichteten Brownschen Bewegung führt. Für die Richtigkeit der folgenden Betrachtungen muß gewährleistet sein, daß die Schrittweite  $\text{deltat}$  so groß gewählt wird, daß diese Annahme erfüllt bleibt.

Die stochastische Kraft  $\mathbf{F}_{\text{Brown}}$  kann auch als das Produkt aus der Partikelmasse  $m_p$  und einer zufälligen Brownschen Beschleunigung  $\mathbf{A}(t)$  ausgedrückt werden. Dabei gilt, daß

- $\mathbf{A}(t)$  unabhängig von der Partikelgeschwindigkeit ist und
- $\mathbf{A}(t)$  sich sehr viel schneller ändert als  $\mathbf{v}_p(t)$ .

Aus der zweiten Bedingung folgt, daß die Kraft, die auf das Partikel während eines Zeitschrittes wirkt, möglichst konstant sein muß. Daraus folgt, daß  $\text{deltat}$  möglichst klein gewählt werden muß, da sich die Kraft im Nahbereich der Substratoberfläche innerhalb weniger Nanometer ändert.

Mit

$$\mathbf{b} = \frac{m_p}{B} \quad (4.9)$$

(vgl. Gleichung (3.4)) kann die Langevin-Gleichung (4.8) wie folgt umgeformt werden:

$$\frac{d\mathbf{v}}{dt} = \mathbf{b} \cdot (\mathbf{v}_g - \mathbf{v}_p) + \frac{\mathbf{F}_{\text{extern}}}{m_p} + \mathbf{A}(t) \quad (4.10)$$

Die Lösung dieser Gleichung kann für den hier betrachteten Fall konstanter Strömungsgeschwindigkeit  $\mathbf{v}_g$  und konstantem  $\mathbf{b}$  direkt angegeben werden /40/, /43/. Für ein Partikel mit der Ausgangsgeschwindigkeit  $\mathbf{v}_0$  zum Zeitpunkt  $t = 0$  ergibt die Integration von Gleichung (4.10)

$$\mathbf{v} = \mathbf{v}_0 \cdot e^{-\mathbf{b}t} + \mathbf{v}_p \cdot (1 - e^{-\mathbf{b}t}) + \frac{\mathbf{F}_{\text{extern}}}{m_p} \cdot (1 - e^{-\mathbf{b}t}) + \mathbf{R}_v(t) \quad , \quad (4.11)$$

mit

$$\mathbf{R}_v(t) = \int_0^t e^{b(z-t)} \cdot \mathbf{A}(z) dz \quad . \quad (4.12)$$

Durch Substitution von  $d\mathbf{r}/dt$  in Gleichung (4.11), mit der Anfangsbedingung von  $\mathbf{r} = \mathbf{r}_0$  zum Zeitpunkt  $t = 0$  ergibt sich

$$\begin{aligned} \mathbf{r} = \mathbf{r}_0 + \frac{\mathbf{v}_0}{\mathbf{b}} \cdot (1 - e^{-b \cdot t}) + \mathbf{u} \cdot \left[ t - \frac{1}{\mathbf{b}} \cdot (1 - e^{-b \cdot t}) \right] \\ + \frac{\mathbf{F}_{\text{extern}}}{m_p} \cdot \left[ t - \frac{1}{\mathbf{b}} \cdot (1 - e^{-b \cdot t}) \right] + \mathbf{R}_r(t) \end{aligned} \quad , \quad (4.13)$$

mit

$$\mathbf{R}_r(t) = \int_0^t \left[ \int_0^n e^{b(z-t)} \cdot \mathbf{A}(z) dz \right] \cdot e^{-b \cdot n} dn \quad . \quad (4.14)$$

$\mathbf{R}_v$  und  $\mathbf{R}_r$  entsprechen der stochastischen Geschwindigkeitsänderung bzw. Ortsverschiebung im aktuellen Zeitintervall  $deltat$ . Es sind beides zweidimensionale, gaußverteilte Zufallszahlen, deren Komponenten wie folgt berechnet werden:

$$\begin{vmatrix} R_{vi} \\ R_{ri} \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} \mathbf{s}_{vi} & 0 \\ \mathbf{s}_{vri} / \mathbf{s}_{vi} & (\mathbf{s}_{ri}^2 - \mathbf{s}_{vri}^2)^{1/2} \end{vmatrix} \begin{vmatrix} n_i \\ m_i \end{vmatrix} \quad (4.15)$$

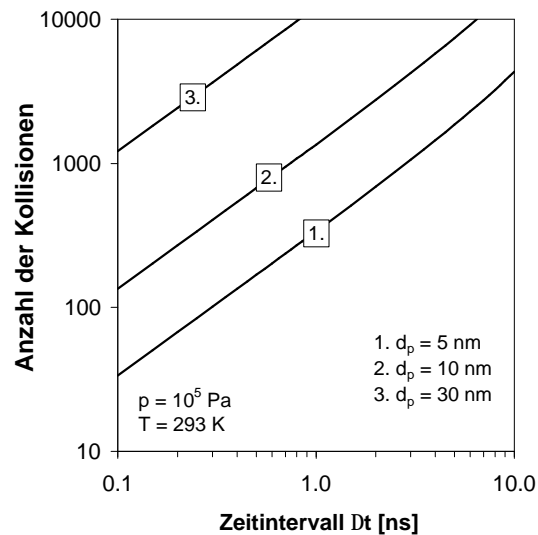
$$\mathbf{s}_{vi} = \frac{kT}{m_p} \cdot (1 - e^{(-2 \cdot \mathbf{b} \cdot t)}) \quad (4.16)$$

$$\mathbf{s}_{ri} = \frac{kT}{m_p \cdot \mathbf{b}^2} \cdot (2 \cdot \mathbf{b} \cdot t - 3 + 4 \cdot e^{(-\mathbf{b} \cdot t)} - e^{(-2 \cdot \mathbf{b} \cdot t)}) \quad (4.17)$$

$$\mathbf{s}_{vri} = \frac{kT}{m_p \cdot \mathbf{b}} \cdot (1 - e^{(-\mathbf{b} \cdot t)})^2 \quad . \quad (4.18)$$

$\mathbf{R}_v$  und  $\mathbf{R}_r$  werden für jedes Zeitintervall  $deltat$  neu berechnet, indem die Matrix (4.15) mit den beiden unabhängigen gaußverteilten Zufallszahlen  $n_i$  und  $m_i$  ausgewertet wird. Die Zufallszahlen werden dabei über einen Zufallszahlengenerator aus den Numerical Recipes /44/ erzeugt. Das Ergebnis dieser Operation sind die Ortsverschiebung sowie die Geschwindigkeitsänderung in den drei Raumrichtungen im Zeitintervall  $deltat$ . Durch Addition dieser beiden Vektoren zum Ortsvektor ( $x_1 / y_1 / z_1$ ) bzw. Geschwindigkeitsvektor ( $v_{x_1} / v_{y_1} / v_{z_1}$ ), der aus sich aus der Auswertung der Bewegungsgleichung der gerichteten Bewegung in Block 6 ergeben hat, resultieren die Endposition ( $x_2 / y_2 / z_2$ ) und Endgeschwindigkeit ( $v_{x_2} / v_{y_2} / v_{z_2}$ ) im aktuellen Schritt.

Die Grenzen dieser Berechnungsmethode liegen in der unteren Grenze des Zeitintervalls  $\Delta t$ , die dann erreicht ist, wenn die Annahme einer großen Anzahl von Kollisionen der Moleküle des umgebenden Fluides mit dem Partikel nicht mehr zutrifft. In Abbildung 4.6 ist die Anzahl der Kollisionen in Abhängigkeit vom Zeitintervall  $\Delta t$  für kugelförmige Partikel mit 5 nm, 10 nm und 30 nm Durchmesser bei Normalbedingungen aufgetragen. Das Diagramm veranschaulicht, daß ein Partikel von  $d_p = 5$  nm in einem Zeitintervall von ca. 0,4 ns mehr als 100 Kollisionen mit Gasmolekülen erfährt. Daraus folgt, daß die durchgeführten Rechnungen mit  $d_p \geq 10$  nm und  $\Delta t \geq 0,5$  ns bei Normalbedingungen im Gültigkeitsbereich des Modells liegen. Bei der Verwendung der Computersimulation für weiterführende Berechnungen von Trajektorien bei reduzierten Drücken oder niedrigen Temperaturen ist die Gültigkeit des Modells jedoch auf größere Partikel bzw. Zeitintervalle beschränkt.

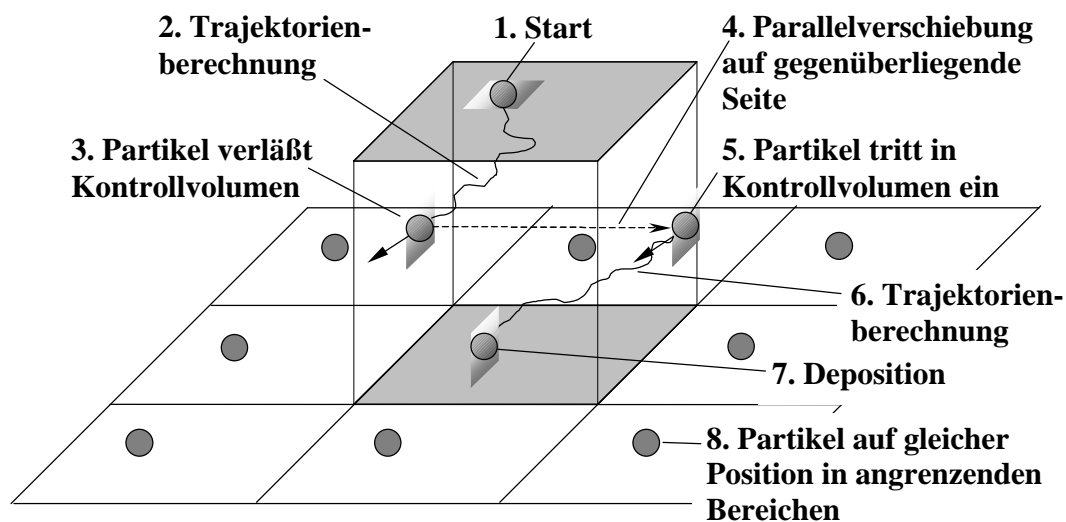


**Abbildung 4.6: Anzahl der Kollisionen von Gasmolekülen pro Zeitintervall mit einem kugelförmigen Partikel für verschiedene Partikeldurchmesser bei Normalbedingungen**

### **Block 8:**

Im achten Block erfolgt die Überprüfung der Partikelposition innerhalb des Kontrollvolumens, die sich aus der Lösung der Bewegungsgleichung der deterministischen Bewegung (Block 6) und der Überlagerung mit der stochastischen Ortsverschiebung aufgrund der Brownschen Bewegung (Block 7) ergeben hat. Im einfachsten Fall wird die Berechnung einer Trajektorie gestoppt, sobald das Partikel die Grenzen des Kontrollvolumens erreicht bzw. überschritten hat, auch wenn es noch nicht deponiert wurde, und es erfolgt die Abspeicherung der Endkoordinaten. Im Gegensatz dazu stehen die Untersuchungen der Wechselwirkungen eines ankommenden Partikels mit bereits deponierten Partikeln. Da die Reichweite der Wechselwirkungen, wie in Kapitel 2 gezeigt wurde, in der Größenordnung unter 200 nm liegt, ist es sinnvoll die Kantenlänge des Kontrollvolumens zu begrenzen, um die Rechenzeit zu

minimieren. Eine Kantenlänge von 1  $\mu\text{m}$  gewährleistet, daß nach verhältnismäßig kurzer Rechenzeit die Belegungsdichte hoch genug ist, so daß ein ankommendes Partikel auch tatsächlich in Wechselwirkung mit bereits deponierten Partikeln tritt. Der Nachteil ist jedoch, daß die Wahrscheinlichkeit, daß ein Partikel die seitlichen Grenzen des Kontrollvolumens erreicht, mit abnehmender Kantenlänge stark ansteigt. Dies kann durch die Einführung von kontinuierlichen Randbedingungen verhindert werden. Die Vorstellung dabei ist folgende: Es wird ein z.B. würfelförmiger Bereich über der Substratoberfläche betrachtet, der klein ist gegenüber dem Gesamtsystem. In diesem Fall sind die Bedingungen innerhalb und außerhalb des Würfels dieselben und ein Partikel „sieht“ keinen Unterschied, ob es sich innerhalb oder außerhalb des Kontrollvolumens aufhält. Mit der gleichen Wahrscheinlichkeit, mit der ein Partikel auf der einen Seite den Würfel verläßt, tritt ein anderes Partikel auf der anderen Seite hinein. Dieser Umstand wird bei der Verwendung kontinuierlicher Randbedingungen ausgenutzt. Überschreitet ein Partikel bei der Trajektorienberechnung die Grenze des Kontrollvolumens, wird es auf die gegenüberliegende Seite verschoben und tritt mit ansonsten ungeänderten Orts- und Geschwindigkeitskomponenten wieder in das Kontrollvolumen ein. Dies wird in Abbildung 4.7 veranschaulicht. Ein weiterer Aspekt der kontinuierlichen Randbedingungen ist, daß die Bedingungen zu jedem Zeitpunkt der Simulation innerhalb und außerhalb des Kontrollvolumens die gleichen sind. Werden nun z.B. geladene Partikel deponiert, entsteht eine nach außen gerichtete Kraft, wenn nicht außerhalb des Volumens die gleiche Ladungsmenge abgeschieden wird. Dies geschieht in der Form, daß um das Kontrollvolumen acht weitere Flächen angeordnet werden. Wird ein Partikel innerhalb des Kontrollvolumens abgeschieden, wird an der gleichen Position in jeder dieser Flächen ebenfalls ein Partikel positioniert. Dies gewährleistet, daß zu jedem Zeitpunkt der Simulation gleiche Bedingungen innerhalb und außerhalb des Kontrollvolumens herrschen. Die Rechnung ist in diesem Fall beendet, wenn auf dem Substrat eine bestimmte Belegungsdichte erreicht wurde bzw. eine vorgegebene Anzahl an Trajektorien berechnet wurde.



**Abbildung 4.7: Funktionsweise der kontinuierlichen Randbedingungen**



## 4.2 Verifikation der Computersimulation

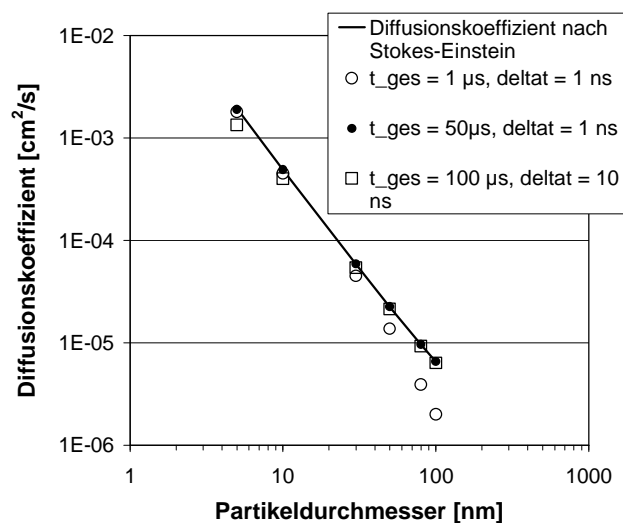
Die Verifikation der Computersimulation wird durch Kontrollrechnungen durchgeführt, die im folgenden kurz beschrieben werden. Hierbei werden Ergebnisse, die mit der Computersimulation gewonnen wurden, mit bekannten analytisch gewonnenen Werten verglichen.

### Überprüfung der Brownschen Bewegung

Ein Weg der Verifikation des Computermodells ist die Überprüfung der Berechnung der Brownschen Bewegung. Hierbei wird der Diffusionskoeffizient für Partikel in der Größe zwischen 5 nm und 100 nm mit der Computersimulation bestimmt, indem für eine große Anzahl von Partikeln (1000), die Trajektorien der Brownschen Bewegung berechnet werden. Der Mittelwert der Verschiebung in den drei Raumrichtungen für das Partikelensemble entspricht dann der root mean square displacement  $x_{rms}$ , die wie folgt mit dem Diffusionskoeffizienten zusammenhängt:

$$D = \frac{x_{rms}}{2 \cdot t} = \frac{\langle (x_0 - x(t))^2 \rangle}{2 \cdot t} \quad (4.19)$$

Die Trajektorienrechnung liefert richtige Ergebnisse, wenn der aus dieser Berechnung folgende Diffusionskoeffizient  $D$  bei großen Zeiten  $t_{ges}$  mit dem Ergebnis aus der Stokes-Einsteinschen Gleichung (3.8) übereinstimmt. Diese Methode wurde ebenfalls in /42/ verwendet. In Abbildung 4.8 sind die Ergebnisse der Rechnungen für unterschiedliche Diffusionszeiten  $t_{ges}$  und Schrittweiten  $deltat$  zusammengefaßt. Die schwarzen Punkte in dem Diagramm zeigen, daß die Berechnung der Brownschen Bewegung richtig erfolgt. Für alle Partikelgrößen



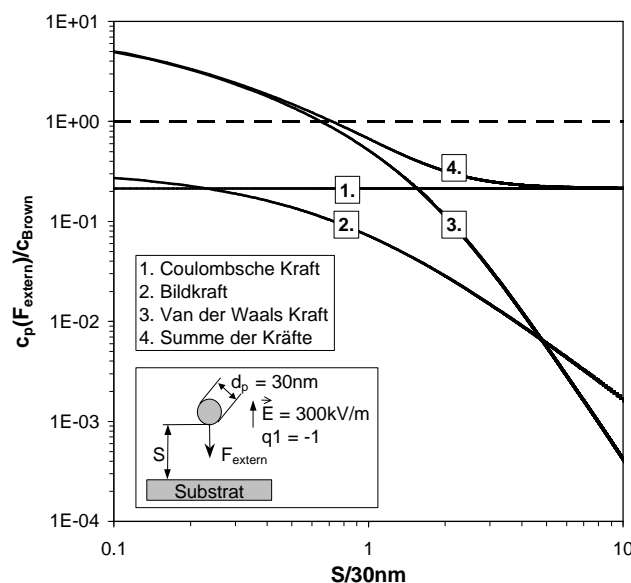
**Abbildung 4.8: Vergleich des mit der Computersimulation berechneten Diffusionskoeffizienten mit dem analytischen Ergebnis aus der Stokes-Einstein-Beziehung in Abhängigkeit vom Partikeldurchmesser**

liegen die Werte auf der analytische Kurve. Die offenen Kreise zeigen für Partikel mit einem Durchmesser größer als 30 nm eine deutliche Abweichung. Das ist darauf zurückzuführen, daß die Diffusionsdauer  $t_{ges}$  noch unterhalb des Gültigkeitsbereiches der Stokes-Einstein Gleichung liegt. Für eine Schrittweite von 10 ns ergeben die Trajektorienrechnungen für Partikel mit  $d_p < 10$  nm etwas zu kleine Werte (ca. 60% im Fall von 5 nm großen Partikeln). Dies ist jedoch für die Untersuchung der Partikelwechselwirkungen vernachlässigbar, da diese Rechnungen bei einer Schrittweite von 1 ns durchgeführt werden.

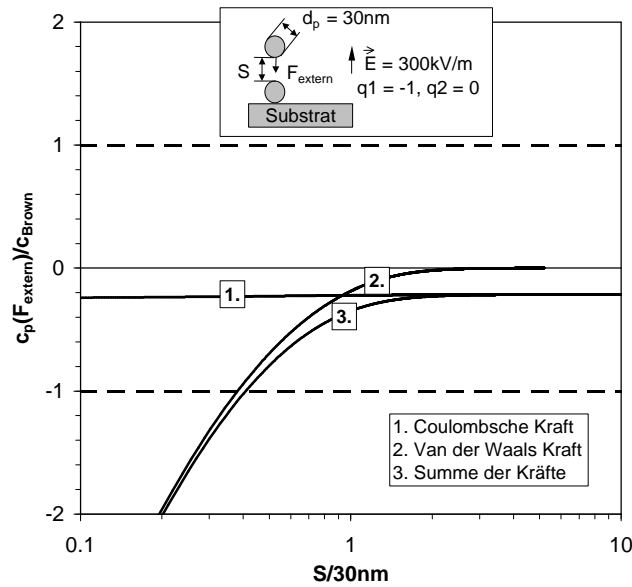
### Überprüfung der deterministischen Bewegung

Die Berechnung der deterministischen Bewegung wird am Beispiel von 30 nm großen Partikeln überprüft, indem die Ergebnisse der Computersimulation mit den analytischen Werten für die Partikelgeschwindigkeit in Kapitel 3 verglichen werden. Die Vorgehensweise ist dabei die, daß die Partikeltrajektorien für ein Partikel im Nahbereich der Substratoberfläche berechnet werden und die Partikelgeschwindigkeit für jeden Schritt der Trajektorie aufgenommen und auf die mittlere Brownsche Bewegung bezogen wird. Diese Werte werden dann analog zur Vorgehensweise in Kapitel 2 über den relativen Abstand zur Substratoberfläche  $S/30$  nm aufgetragen.

Das Beispiel in Abbildung 4.9 entspricht der Konfiguration in Abbildung 3.11. Es wird die Abhängigkeit der Geschwindigkeit eines einfach geladenen 30 nm großen Indiumpartikels von der Coulombschen Kraft bei einer Feldstärke von 300 kV/m, der Bildkraft, der van der Waals Kraft sowie der Summe dieser Kräfte dargestellt. Für die Coulombsche Kraft (Kurve 1) stimmen die Werte exakt überein. Für alle anderen Kurven gilt, daß die Werte in großer Ent



**Abbildung 4.9: Berechnung von  $c_p/c_{\text{Brown}}$  bei Annäherung eines einfach geladenen 30 nm großen Partikels an eine Substratoberfläche mit dem Trajektorienmodell**

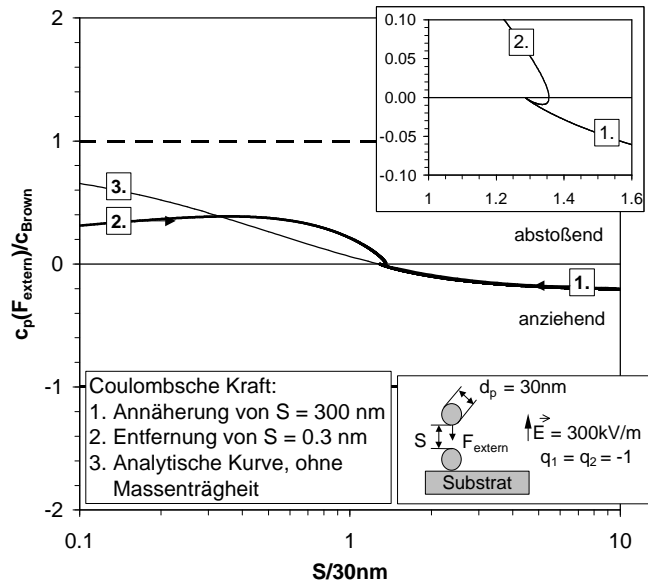


**Abbildung 4.10: Berechnung von  $c_p/c_{\text{Brown}}$  bei Wechselwirkung eines einfach geladenen 30 nm großen Partikels mit einem deponierten ungeladenen Partikel mit dem Trajektorienmodell**

fernung vom Substrat den Werten in Abbildung 3.11 entsprechen. Für Abstände von  $S/30\text{ nm} < 1$  liefert die Computersimulation jedoch wesentlich kleinere Werte. Die Begründung liegt darin, daß in Abbildung 3.11 die Endgeschwindigkeiten dargestellt werden, die das Partikel im Fall  $t \rightarrow \infty$  bei konstanter Kraft erreicht. Wie Abbildung 4.5 gezeigt hat, nimmt der Einfluß der Massenträgheit mit abnehmendem Abstand von der Oberfläche stark zu, so daß die Partikelgeschwindigkeit der sich ändernden Kraft nicht mehr folgen kann. Das führt dazu, daß aufgrund der Massenträgheit die Geschwindigkeit eines 30 nm großen Indiumpartikels beim Erreichen des Substrates um mehr als eine Größenordnung geringer ist, als bei Vernachlässigung der Massenträgheit.

Die Konfiguration in Abbildung 4.10 entspricht der in Abbildung 3.14: Ein einfach geladenes 30 nm großes Indiumpartikel nähert sich in einem elektrischen Feld ( $E_z = 300\text{ kV/m}$ ) einem ungeladenen Partikel auf der Substratoberfläche. Für große Entfernungen entsprechen die Resultate der Computersimulation wieder den Endgeschwindigkeiten, die das Partikel aufgrund der wirkenden Kraft erreicht. Bei Abständen von  $S/30\text{ nm} < 1$  führt die Massenträgheit wieder zu deutlich kleineren Werten. Aus Kurve 1 ist erkennbar, daß das elektrische Feld um das deponierte Partikel bei dieser Konfiguration keinen Einfluß auf die Partikelgeschwindigkeit hat.

In Abbildung 4.11 wird der Verlauf der Geschwindigkeit bei Annäherung eines einfach geladenen Partikels an ein geladenes Partikel auf dem Substrat in Abhängigkeit vom Abstand dar



**Abbildung 4.11: Berechnung von  $c_p/c_{Brown}$  bei Wechselwirkung eines einfach geladenen 30 nm großen Partikels mit einem deponierten einfach geladenen Partikel mit dem Trajektorienmodell**

gestellt. Dieser Fall entspricht Abbildung 3.15. Es wird hier nur die Coulombsche Kraft aufgrund des homogenen elektrischen Feldes und der Partikelladungen betrachtet. Da (ohne Brownsche Bewegung) eine Agglomeration durch die abstoßenden Coulombschen Kräfte verhindert wird, wurden zwei Trajektorien berechnet: Kurve 1 beschreibt die Annäherung des Partikels. Sie liegt für große Entfernungen vom Substrat in Deckung mit Kurve 3, die den analytischen Werten bei Erreichen der Endgeschwindigkeit an der jeweiligen Position entspricht. Mit abnehmendem Abstand bleibt die tatsächliche Geschwindigkeit zunehmend hinter der Endgeschwindigkeit zurück. Kurve 2 beschreibt den theoretischen Fall, daß das Partikel in einem Abstand von  $S/30 \text{ nm} = 0,3$  vom Partikel auf dem Substrat festgehalten wird und dann losgelassen wird. Da alle anderen Kräfte ausgeschaltet sind, wirkt nur die in dieser Entfernung abstoßende Coulombsche Kraft, die zu einer Beschleunigung des Partikel in positiver z-Richtung führt. Mit zunehmendem Abstand zwischen den Partikeln nimmt die abstoßende Wirkung der Partikelladungen ab und das Partikel wird durch die in negativer Richtung wirkende Kraft aufgrund des elektrischen Feldes abgebremst. Das eingesetzte Diagramm (die Achsen entsprechen dem großen Diagramm, wobei die  $S/30 \text{ nm}$ -Achse nicht logarithmisch aufgetragen ist) veranschaulicht, daß die Partikelgeschwindigkeit nicht direkt auf null zurückgeht, sondern leicht überschwingt. Auch hier ist wieder der Einfluß der Massenträgheit zu sehen.

Die Massenträgheit begünstigt die Agglomeratbildung insbesondere bei großen Partikeln aus zwei Gründen: Zum einen ist, wie bereits gezeigt wurde, der Einfluß der Brownschen Bewegung um so größer, je kleiner die Geschwindigkeit der gerichteten Bewegung eines Partikels

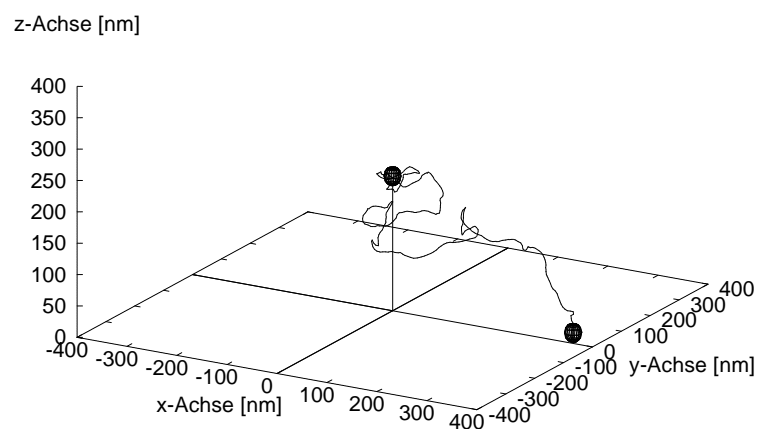
ist. Dadurch erhöht sich die Wahrscheinlichkeit, daß ein Partikel durch die Brownsche Bewegung über die Potentialschwelle gehoben wird, die aufgrund der abstoßenden Coulombschen Kraft zwischen geladenen Partikeln einer Agglomeration entgegenwirkt. Befindet sich ein Partikel jenseits dieser Schwelle findet eine Agglomeration aufgrund der anziehenden van der Waals Kräfte statt. Durch die Massenträgheit ist dort die effektive Partikelgeschwindigkeit deutlich kleiner als die maximal erreichbare Endgeschwindigkeit aufgrund einer gegebenen Kraft. Der zweite Effekt, durch den die Massenträgheit die Agglomeration begünstigt, wird durch Abbildung 4.11 verdeutlicht. Der Übergang von der anziehenden zur abstoßenden Kraftwirkung liegt bei der ohne Massenträgheit gerechneten Kurve 3 bei  $S/30 \text{ nm} \approx 1,8$ . Bei Berücksichtigung der Massenträgheit ist der Übergang bei  $S/30 \text{ nm} \approx 1,2$ . Das bedeutet, daß das Partikel in diesem Beispiel um ca. 18 nm näher an das deponierte Partikel herankommt. Kurve 2 in Abbildung 4.10 beschreibt die Abhängigkeit der Partikelgeschwindigkeit von der van der Waals Kraft zwischen den beiden Partikeln. Der Verlauf der Kurve zeigt, daß die van der Waals Kraft gerade in diesem Abstandsbereich stark an Bedeutung gewinnt. Daraus folgt, daß für eine exakte Beschreibung der Partikelbewegung die Berücksichtigung der Massenträgheit bei den Trajektorienrechnungen von großer Bedeutung ist.

### 4.3 Darstellung der Partikelbewegung im Nahbereich der Substratoberfläche

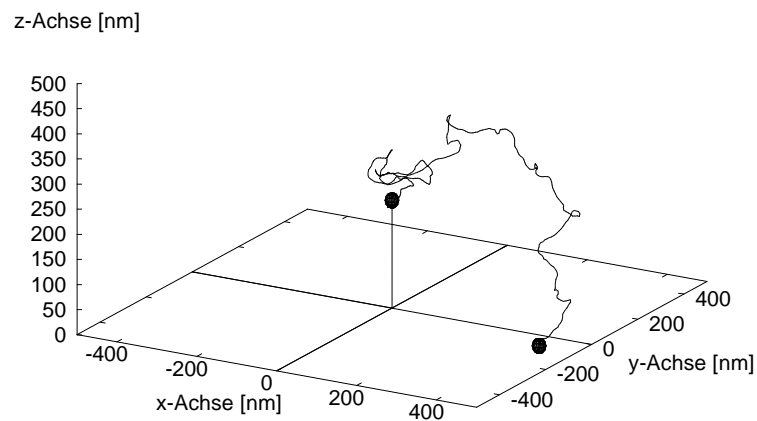
Im folgenden wird die Partikelbewegung im Nahbereich des Substrates anhand einiger Beispiele dargestellt. Abbildung 4.12 bis Abbildung 4.19 zeigen die Trajektorien von Partikeln, die in einer Höhe von  $z_{start} = 200 \text{ nm}$  zum Zeitpunkt  $t = 0$  gestartet wurden. Die Partikel befanden sich jeweils im thermischen Gleichgewicht, hatten also einen zufällig gerichteten Geschwindigkeitsvektor zu dem der Vektor der Endgeschwindigkeit, die das Partikel im angenommenen elektrischen Feld erreicht, addiert wurde. In den Darstellungen ist jeweils die Start- und die Endposition durch ein Partikel mit dem Durchmesser  $d_p$  markiert. Bei allen Rechnungen wurde jeweils die Coulombsche Kraft aufgrund des angelegten elektrischen Feldes ( $0 - 300 \text{ kV/m}$ ), die Bildkraft aufgrund der Partikelladung ( $q_I = -1$  bzw.  $q_I = -4$ ), die van der Waals Kraft sowie die Brownsche Bewegung berücksichtigt. Ähnlichkeiten in den Trajektorien sind darauf zurückzuführen, daß die Brownsche Bewegung jeweils mit dem gleichen Satz an Zufallszahlen berechnet wurde.

Abbildung 4.12 zeigt die Trajektorie eines einfach geladenen 30 nm großen Indiumpartikels über einer Siliziumoxidoberfläche bei einer Feldstärke von 300 kV/m. Die Trajektorie in Abbildung 4.13 wurde mit einer elektrischen Feldstärke von 75 kV/m gerechnet (diese Werte stellen zum einen die maximal erreichbare Feldstärke im verwendeten ESP dar und zum anderen die minimale Feldstärke bei der eine hundertprozentige Abscheidung von 30 nm großen Partikeln erfolgt). Abbildung 4.14 stellt die Trajektorie bei einer elektrischen Feldstärke von 1 kV/m dar und Abbildung 4.15 die Trajektorie ohne elektrisches Feld. Der Vergleich der

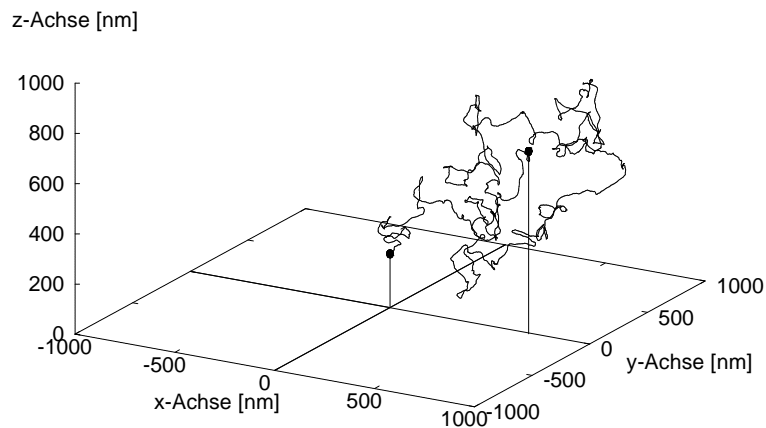
Bilder zeigt deutlich, daß mit abnehmender elektrischer Feldstärke der Einfluß der Brownschen Bewegung zunimmt. Es ist zu beachten, daß die Achsenskalierung, um eine optimale Darstellung der Trajektorien zu gewährleisten, von 400 nm (300 kV/m) auf 10000 nm (0 kV/m) erhöht wurde. Mit abnehmender elektrischer Feldstärke nimmt der Einfluss der Brownschen Bewegung zu und damit die Wahrscheinlichkeit ab, dass ein Partikel aufgrund des elektrischen Feldes abgeschieden wird. Ohne elektrisches Feld reichen die gerichteten Kräfte in z-Richtung auf ein einfach geladenes Partikel nicht aus, um das Partikel gegen die Brownsche Bewegung zur Oberfläche zu bewegen. Die Bewegung ist rein stochastischer Natur.



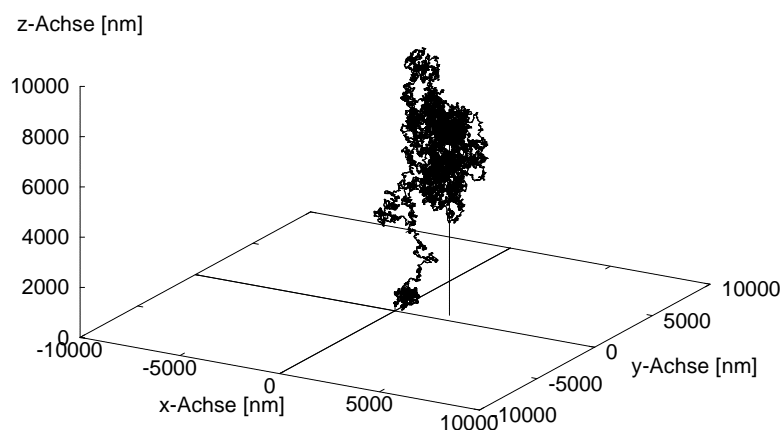
**Abbildung 4.12: Trajektorie eines einfach geladenen 30 nm großen Indiumpartikels bei einer elektrischen Feldstärke von 300 kV/m unter Berücksichtigung der van der Waals Kraft, der Bildkraft und der Brownschen Bewegung**



**Abbildung 4.13: ... bei 75 kV/m**

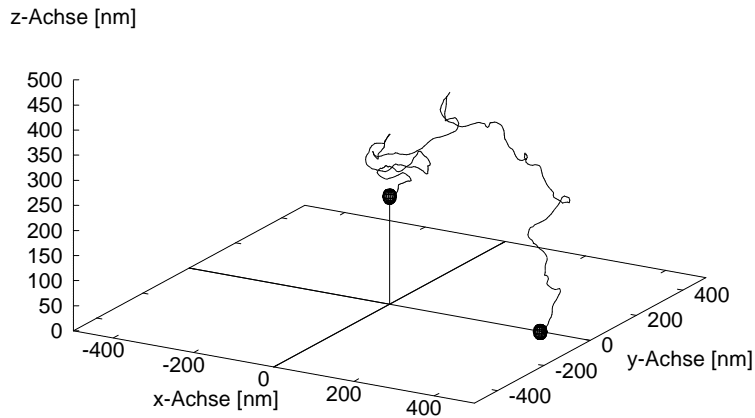


**Abbildung 4.14: ... bei 1 kV/m**

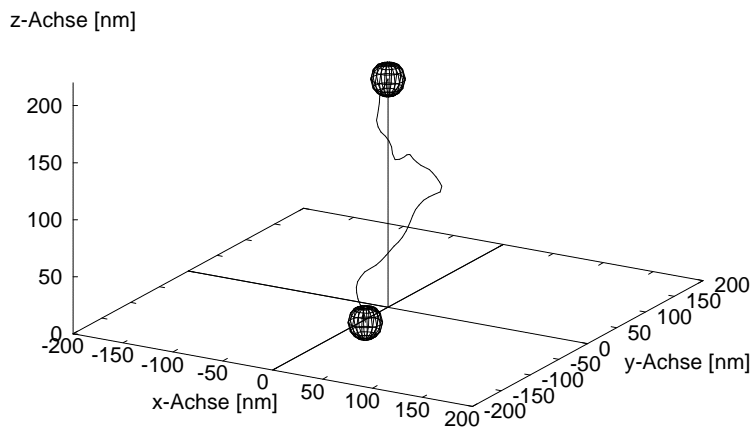


**Abbildung 4.15: ... ohne elektrisches Feld**

Die Situation ändert sich, sobald das Partikel mehrfach aufgeladen ist. Abbildung 4.16 zeigt die Trajektorie eines vierfach geladenen Partikels. In diesem Fall reichen die Bildkräfte aus, um das Partikel gegen die Brownsche Bewegung in Richtung der Substratoberfläche zu bewegen. Die große Ähnlichkeit mit der Trajektorie in Abbildung 4.13 läßt den Schluß zu, daß die Wirkung der Kräfte vergleichbar ist. Wird ein zusätzliches elektrisches Feld von 300 kV/m angelegt (Abbildung 4.17) spielt die Brownsche Bewegung nur noch eine untergeordnete Rolle. Die Bewegung ist über die gesamte Strecke in Richtung des Substrates gerichtet, wobei parallel zum Substrat gerichtete Bewegungskomponenten auftreten.



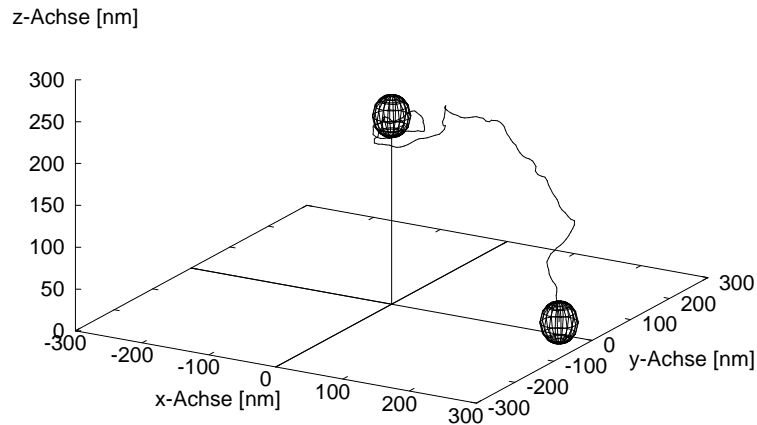
**Abbildung 4.16: Trajektorie eines vierfach geladenen 30 nm großen Indiumpartikels ohne elektrisches Feld unter Berücksichtigung der van der Waals Kraft, der Bildkraft und der Brownschen Bewegung**



**Abbildung 4.17: Trajektorie eines vierfach geladenen 30 nm großen Indiumpartikels bei einer elektrischen Feldstärke von 300 kV/m unter Berücksichtigung der van der Waals Kraft, der Bildkraft und der Brownschen Bewegung**

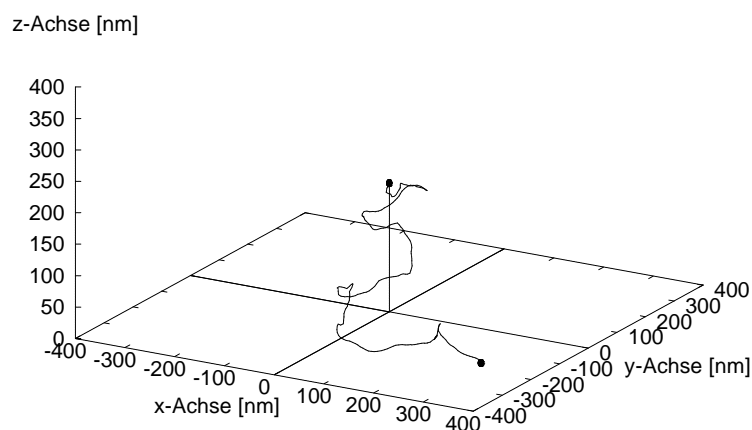
Die Trajektorie eines einfach geladenen 50 nm großen Partikels bei 300 kV/m in Abbildung 4.18 ist dadurch charakterisiert, daß die Ortsverschiebungen durch die Brownsche Verschiebung kleiner sind als bei den 30 nm großen Partikeln. Da die van der Waals Kraft stark mit dem Partikeldurchmesser zunimmt, weist die Trajektorie unterhalb von  $z = 150$  nm kaum noch einen Einfluß der Brownschen Bewegung auf.





**Abbildung 4.18: Trajektorie eines einfach geladenen 50 nm großen Indiumpartikels bei einer elektrischen Feldstärke von 300 kV/m unter Berücksichtigung der van der Waals Kraft, der Bildkraft und der Brownschen Bewegung**

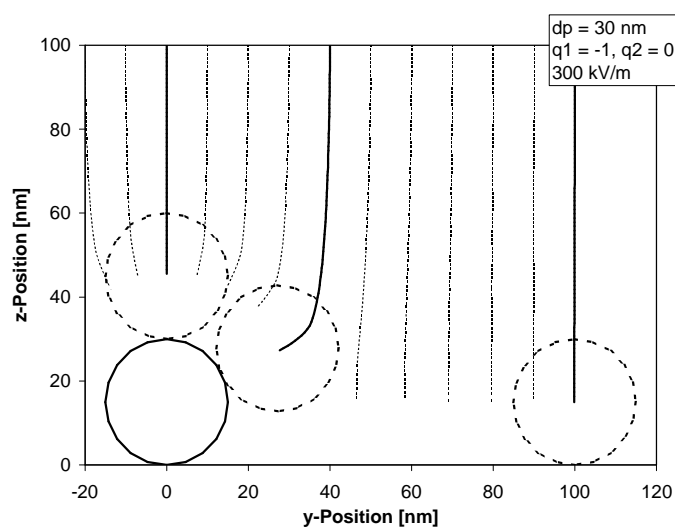
Im Gegensatz dazu treten bei der Trajektorie des 10 nm großen Partikels in Abbildung 4.19, bei sonst gleichen Bedingungen, auch unterhalb von 50 nm noch deutlich parallel zum Substrat ausgerichtete Komponenten auf. Da alle deterministischen Kräfte vertikal zum Substrat ausgerichtet sind, zeigt sich hier der große Einfluß der Brownschen Bewegung auf die Trajektorie.



**Abbildung 4.19: Trajektorie eines einfach geladenen 10 nm großen Indiumpartikels bei einer elektrischen Feldstärke von 300 kV/m unter Berücksichtigung der van der Waals Kraft, der Bildkraft und der Brownschen Bewegung**

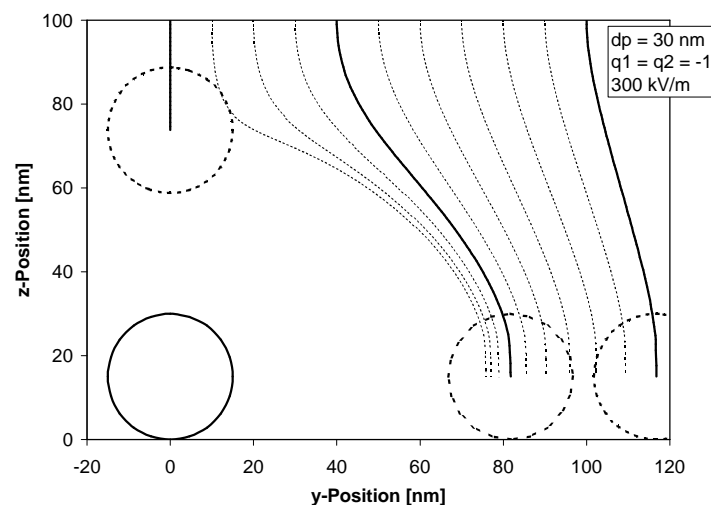
Die folgenden Diagramme zeigen die deterministische Bewegung eines ankommenden einfach bzw. vierfach geladenen 30 nm großen Partikels 1 bei Wechselwirkung mit einem geladenen bzw. ungeladenen Partikel 2 auf einer Siliziumoxidoberfläche. Die angenommene elektrische Feldstärke beträgt 300 kV/m. Die Trajektorien wurden ohne Brownsche Bewegung gerechnet, um allein den Einfluß der Wechselwirkungen in Abhängigkeit von der Partikelladung und dem seitlichen Abstand  $y_{start}$  zweidimensional darstellen zu können. Hierfür wurden die Startwerte in  $y$ -Richtung in 10 nm Schritten von  $y = 0$  (direkt über dem deponierten Partikel) bis  $y = 100$  nm erhöht. In  $z$ -Richtung wurde eine Starthöhe von  $z_{start} = 100$  nm gewählt. Die Startgeschwindigkeit entsprach der Endgeschwindigkeit im elektrischen Feld von 0,068 m/s im Fall des einfach geladenen Partikels und 0,272 m/s im Fall des vierfach geladenen Partikels. In den Diagrammen ist die  $z$ -Position des Partikels über der  $y$ -Position aufgetragen. Die Endpunkte der Trajektorien entsprechen der Endposition des Partikelmittelpunktes. Das Partikel auf dem Substrat ist als durchgezogener Kreis eingezeichnet. Die ankommenden Partikel mit den Startkoordinaten  $y_{start} = 0$  nm, 40 nm und 100 nm sind als gestrichelte Kreise dargestellt.

In Abbildung 4.20 sind die Trajektorien für den Fall dargestellt, daß Partikel 1 einfach und Partikel 2 ungeladen ist. Das Diagramm veranschaulicht, daß die Trajektorie von Partikel 1 bei Startwerten von  $y_{start} > 60$  nm nicht oder nur unwesentlich beeinflusst wird. Für  $y_{start} \leq 40$  nm sind die anziehenden Kräfte in Richtung Partikel 2 so stark, daß eine Agglomeration erfolgt. Daraus folgt, daß ein deponiertes 30 nm großes Einzelpartikel einen „Einzugsbereich“ von etwa 80 nm Durchmesser hat. Da die anziehenden Wechselwirkungen stark mit dem Partikeldurchmesser zunehmen, folgt daraus, daß im Fall ungeladener Partikel auf der Oberfläche von einer deutlich höheren Agglomerationsrate auszugehen ist als im Fall einer zufälligen Verteilung.

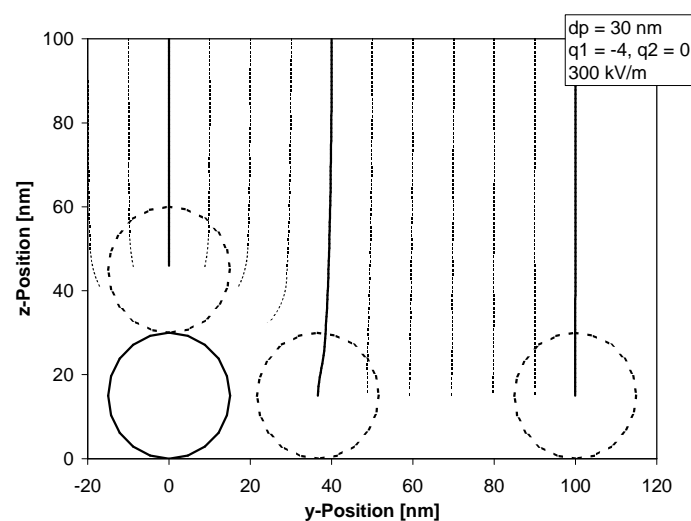


**Abbildung 4.20: Deterministische Bewegung eines einfach geladenen 30 nm großen Indiumpartikels in der Nähe eines ungeladenen Partikels auf einer Siliziumoxidoberfläche**

Abbildung 4.21 zeigt die Trajektorien im Fall eines geladenen Partikels 2 auf dem Substrat. Aus dem Diagramm geht hervor, daß aufgrund der abstoßenden Wirkung der Coulombschen Kraft das ankommende Partikel 1 um Partikel 2 „herumgeleitet“ wird. Dabei werden auch noch die Trajektorien von Partikeln, die bei  $y_{start} = 100$  nm beginnen, beeinflusst. Die seitliche Ablenkung ist um so stärker je kleiner  $y_{start}$  ist. Das führt dazu, daß die Endpositionen der betrachteten Trajektorien alle in einem relativ schmalen Bereich von ca. 40 nm Breite liegen. An der Trajektorie für  $y_{start} = 0$  läßt sich ablesen, daß in diesem Fall die Massenträgheit nur eine untergeordnete Rolle spielt. Der Endpunkt der Trajektorie markiert den Punkt an dem die Kraft auf das Partikel null ist. Er sitzt genau im Mittelpunkt des Partikels und daraus folgt, daß kein Überschwingen stattgefunden hat.



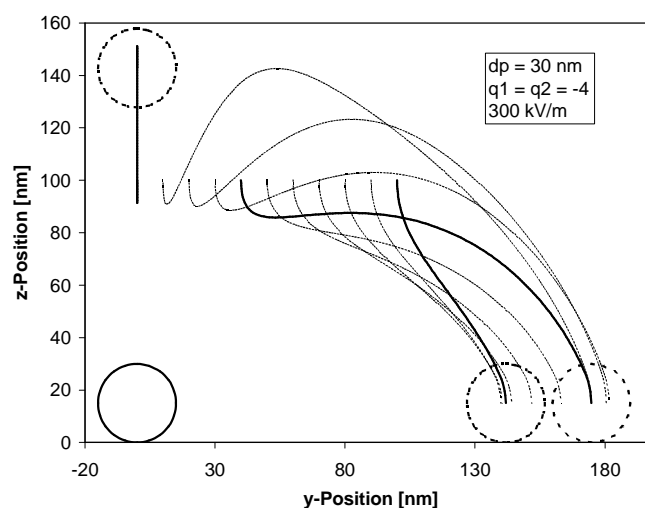
**Abbildung 4.21: Deterministische Bewegung eines einfach geladenen 30 nm großen Indiumpartikels in der Nähe eines einfach geladenen Partikels auf einer Siliziumoxidoberfläche**



**Abbildung 4.22: Deterministische Bewegung eines vierfach geladenen 30 nm großen Indiumpartikels in der Nähe eines ungeladenen Partikels auf einer Siliziumoxidoberfläche**

Aus den Trajektorien im Fall eines vierfach geladenen Partikels in der Nähe eines ungeladenen Partikels in Abbildung 4.22 folgt, daß die vierfach höhere Geschwindigkeit aufgrund der höheren Ladung, die bei Annäherung an das Substrat noch durch die Bildkraft erhöht wird, dazu führt, daß sich der „Einzugsbereich“ des deponierten Partikels 2 verringert. In diesem Fall erfolgt eine Agglomeration bei  $y_{start} \leq 30\text{nm}$ .

Abbildung 4.23 zeigt die Trajektorien von vierfach geladenen Partikeln in der Nähe eines ebenfalls vierfach geladenen Partikels auf dem Substrat. Anhand der Position des Partikelmittelpunktes der Trajektorie für  $y_{start} = 0$  läßt sich ablesen, daß der Punkt an dem sich abstoßende und anziehende Kräfte die Waage halten in einer Höhe von  $z = 142\text{ nm}$  liegt. In diesem Fall hat die Massenträgheit einen Einfluß auf die Trajektorie. Das Partikel startet bei  $y_{start} = 100\text{ nm}$  mit einer Geschwindigkeit von  $0,272\text{ m/s}$  in negativer  $z$ -Richtung. Es wird durch die abstoßende Coulombsche Kraft aufgrund der Ladungen auf einer Strecke von ca.  $10\text{ nm}$  abgestoppt und in positiver  $z$ -Richtung beschleunigt. Mit zunehmender Entfernung zwischen den Partikeln nimmt der Einfluß der Ladung von Partikel 2 ab und die Kraftwirkung aufgrund des homogenen elektrischen Feldes zu. Das Partikel wird wiederum abgebremst, in einer Höhe von ungefähr  $z = 153\text{ nm}$  dreht sich die Bewegungsrichtung erneut um und es kommt schließlich bei  $z = 142\text{ nm}$  zur Ruhe. Für Startwerte von  $y_{start} > 0$  gilt, daß die Partikel deutlich weiter nach außen getragen werden als im äquivalenten Fall mit  $q_1 = q_2 = -1$ . Die Endpositionen der Trajektorien befinden sich in einem etwa  $45\text{ nm}$  breiten Bereich zwischen  $y = 135$  und  $y = 180\text{ nm}$ . Diese Verdichtung der Endpositionen um Partikel 1 deutet darauf hin, daß es im Fall geladener Partikel auf der Substratoberfläche zu bevorzugten Abständen zwischen deponierten Partikeln auf dem Substrat kommt.



**Abbildung 4.23: Deterministische Bewegung eines vierfach geladenen 30 nm großen Indiumpartikels in der Nähe eines vierfach geladenen Partikels auf einer Siliziumoxidoberfläche**