CARACTERIZAÇÃO DE CÂMARA PARA PÓS-DESCARGA DE CÁTODO ÔCO À BAIXA PRESSÃO

Edson José da Costa Santos,

Universidade Federal do Rio Grande do Norte, Programa de Pós-Graduação em Engenharia Mecânica, Natal-RN, Brasil.

edjosecosta@hotmail.com

Edalmy Oliveira de Almeida

Universidade do Minho, Portugal, Natal-RN, Brasil.

edalmy@gmail.com

Bruno Felipe Costa da Silva

Universidade Federal do Rio Grande do Norte, Programa de Pós-Graduação em Engenharia Mecânica, Natal-RN, Brasil.

brunofelipe.fisica@hotmail.com

Paulo Victor de Azevedo Guerra

Universidade Federal do Rio Grande do Norte, Departamento de Engenharia Biomédica,

Lagoa Nova, Natal, RN, Brasil. CEP: 59072-970.

paulovictorguerra@gmail.com

Hélio Roberto Hékis

Universidade Federal do Rio Grande do Norte, Departamento de Engenharia de Produção, Campus Universitário, Lagoa Nova, Natal, RN, Brasil. CEP: 59072-970.

hekis1963@gmail.com

Karilany Dantas Coutinho

Universidade Federal do Rio Grande do Norte, Departamento de Engenharia Biomédica, Campus Universitário, Lagoa Nova, Natal, RN, Brasil. CEP: 59072-970.

karilany@ufrnet.br

Clodomiro Alves Junior

Universidade Federal Rural do Semi-Árido, Departamento de Física, Costa e Silva, Mossoró - RN, 59625-900.

clodomiro.jr@gmail.com

Custódio Leopoldino de Brito Guerra Neto

Universidade Federal do Rio Grande do Norte, Departamento de Engenharia Biomédica, Campus Universitário, Lagoa Nova, Natal, RN, Brasil. CEP: 59072-970. custodioguerra@yahoo.com.br

RESUMO

Muitas aplicações de plasma exigem que a descarga seja produzida distante da superfície a ser processada, evitando assim danos causados pelo bombardeamento e/ou radiação do plasma. Nesse regime de pós-descarga várias aplicações em materiais termicamente sensíveis como tecidos vivos e polímeros podem ser utilizadas. O conhecimento das características da descarga elétrica (espécies opticamente ativas e composição química do plasma) é essencial para eficiência e controle do tratamento. Este trabalho é dedicado à caracterização da pós-descarga DC produzida em cátodo oco cilíndrico de titânio usando simultaneamente a espectroscopia de emissão óptica e um espectrômetro de massa quadrupolar. Os parâmetros de corrente elétrica, pressão na câmara e fluxo de argônio na

descarga Ar/N₂ são mantidos constantes em 0,4 A; 0,045 Pa e 6 sccm, respectivamente. A evolução das espécies ativas do plasma foi analisada por espectroscopia de emissão óptica e espectrometria de massa quadrupolar, simultaneamente, quando se variou o fluxo de nitrogênio entre 1 e 6 sccm. Foi observado que adição de nitrogênio e aumento linear da intensidade de emissão óptica dos picos de argônio e aumento linear da intensidade dos picos do primeiro e segundo sistema positivo de N₂. As principais espécies iônicas encontradas por espectrometria de massa quadrupolar foram de Ar⁺ e N₂⁺. Foi possível correlacionar os resultados obtidos por espectroscopia de emissão ótica e espectrometria de massa. A razão das intensidades de emissão ótica de N₂(1 +) mostrou-se diretamente proporcional a pressão parcial de N₂ na pós-descarga de cátodo oco.

PALAVRAS-CHAVE: Pós-descarga, Espectroscopia de emissão óptica, Espectrometria de massa quadrupolar.

CAMERA CHARACTERISTICS FOR HOLLOW CATHODE OF POST DISCHARGE TO LOW PRESSURE

ABSTRACT

Many applications require that the plasma discharge is produced apart from the surface to be processed, thus preventing damage caused by bombardment and/or plasma radiation. In the post-discharge regime in various applications thermally sensitive materials can be used. Thus, knowledge of the characteristics of electrical discharge (optically active species and chemical composition of the plasma) is essential for efficiency and control treatment. The aim of this study was to characterize the hollow cathode discharge and post-DC glow discharge to evaluate the production of active species plasma. The discharge was produced using argon and nitrogen gases at pressure of 0.05 Pa, the gas flow range varying from 1 to 6 cm³/min and electric current between 150 to 600 mA. Measurements of optical emission spectroscopy and mass spectrometry were made to characterize some species of the discharge. The results showed that the density of ions inside the hollow cathode, with 2 mm diameter ranged between 7.71 and 14.1 x 10^{15} cm⁻³. It was observed that the gas flow and the electric current changes the emission intensity of Ar and N₂ species. The major ionic species detected by quadrupole mass spectrometry were Ar^+ and N_2^+ . The ratio of optical emission intensities of N₂ (1 +)/Ar (811 nm) was related to the partial pressure of N₂ after the hollow cathode discharge at low pressure.

KEYWORDS: optical emission spectroscopy, mass spectrometry, post-discharge hollow cathode.

CARACTERIZAÇÃO DE CÂMARA PARA PÓS-DESCARGA DE CÁTODO ÔCO À BAIXA PRESSÃO

INTRODUÇÃO

No plasma remoto apenas as espécies estáveis e metaestáveis estão ativamente presentes. Estas espécies podem interagir fisicamente ou quimicamente com a superfície do substrato a uma profundidade de poucos décimos de nanômetros, ocorrendo à baixa temperatura e na ausência de bombardeio de íons na superfície do substrato, como acontece quando a superfície é exposta diretamente à descarga.^{1,2}

Por isso os processos de plasma remoto, ou seja, que utilizam a descarga em regime de pós-descarga tem despertado muito interesse em aplicações de materiais termicamente sensíveis como tecidos vivos, polímeros, entre outros. Na área biomédica, pós-descarga de Ar gerada por micro-ondas com potência de 100 W foi utilizada para inativação parcial de Esporo de Bacillus Subtilis pela ação de fótons emitidos no intervalo de 105 a 107 nm correspondentes a colisões de átomos de argônio no estado fundamental com os átomos de argônio metaestável.³ Plasma remoto se mostrou importante também para limpeza de superfícies de compostos orgânicos antes do revestimento ou pintura de um substrato metálico, sem bombardeio iônico que produzem danos na superfície.¹ Uma afterglow Lewis-Rayleigh em mistura de Ar-5%N₂ com potência de micro-ondas de 130 W, pressão de 500 Pa e fluxo total de 1050 sccm foi empregada para realizar um estudo sobre os mecanismo de limpeza de chapa de ferro (15 x 15 mm²). Usando a espectroscopia de emissão óptica (OES) para monitoramento da evolução da composição gasosa e analisando a superfície do ferro por espectroscopia de fotoelétrons de raio -X (XPS) ele comprovou a eficácia da técnica. Foi observado, por OES, um crescimento inicial das espécies de carbono seguido de um decréscimo após 4 minutos. Esse efeito foi atribuído à eliminação do carbono presente nos materiais graxos da superfície do ferro e depois confirmado por XPS. ⁴ Belmonte *et al* ⁵ empregou uma pós-descarga de Ar - 1 % N₂, com uma potência de micro-ondas de 35 W para verificar o papel de espécies ativas na limpeza de folhas de ferro. Os resultados mostraram que foi possível limpar a superfície do ferro, onde a presença do nitrogênio teve papel fundamental na redução do carbono, através dos radicais N-C e N-C-O.

A pós-descarga Ar – N₂ obtida por micro-ondas é bem consolidada devido à alta densidade de espécies ativas, da ordem de 10^{15} cm⁻³ ^{6,7} na região de pós-descarga, que torna esse tipo de fonte importante nas aplicações de pós-descarga. Uma fonte de plasma promissora de pós-descarga e que concorre com o micro-ondas é o cátodo oco. Devido a sua simplicidade de design, operação, controle dos parâmetros, baixo custo e valores de densidade de espécies próximas da pós-descarga de micro-ondas, muitas pesquisas estão sendo desenvolvidas no sentido de ampliar seu uso.⁸ Dessa forma, o presente trabalho têm por objetivo relatar os resultados obtidos em pós-descarga de cátodo oco em mistura gasosa Ar – xN_2 , em que x é o fluxo de N₂.

MATERIAIS E MÉTODOS

A figura 1 mostra uma representação esquemática do arranjo experimental. O sistema para estudo de pós-descarga consiste de câmara de processo (figura 1) em aço inoxidável com 300 mm de diâmetro interno e 600 mm de altura, fechado hermetricamente. O flange inferior possui entrada de gás, sensor de pressão e conexão o

para o sistema de vácuo. O sistema de vácuo é composto por uma bomba mecânica (5,6 m³/h) e difusora (6 m³/h) permitindo atingir pressão de fundo de 3,0 x 10^{-3} Pa.



Figura 1 - Aparato experimental para estudo da pós-descarga produzida por cátodo oco. 1- câmara de processo; 2-fonte da descarga por cátodo oco; 3 – sistema de refrigeração do cátodo oco; 4 – admissão de gás; 5 – espectrômetro de massa quadrupolar, 6 – fibra óptica; 7 – tubo de borosilicato; 8 – Espectrômetro de emissão óptica

A descarga é produzida num cátodo oco que consiste num tubo cilíndrico de titânio, com diâmetro interno de 2 mm e comprimento de 40 mm. Uma camisa também cilíndrica de 50 mm de diâmetro é colocada em torno do mesmo para refrigeração com água. O gás da descarga é inserido no interior do cátodo oco ⁹. O cátodo oco é isolado eletricamente do flange por uma bucha de teflon. No interior da câmara uma blindagem elétrica é feita para evitar arcos elétricos entre o flange e a parede do cátodo ôco. O cátodo é conectado a uma fonte de corrente contínua e tensão máximas de 2,0 A e 1200 V, respectivamente. Os flanges e paredes da câmara estão aterrados, constituindo o ânodo. Uma vez produzida a descarga de cátodo oco, o plasma flui até um tubo de borosilicato (7) com diâmetro e comprimento de 180 mm onde é realizado o estudo de pós-descarga em mistura gasosa de argônio e nitrogênio em pressão de 4,5 x 10⁻² Pa. O tubo de borossilicato no interior da câmara foi utilizado como recurso para aumentar o sinal óptico para o OES através de reflexões múltiplas das paredes. A presença do tubo também não alterou os resultados da espectrometria de massa, conforme observado na figura 2. Medidas comparativas com e sem a presença do tubo de borosilicato na pós descarga numa descarga de cátodo oco, mostraram resultados similares para as intensidades do gás residual.



Figura 2 - Espectros de massa obtidos em descarga de cátodo oco de Ti, numa corrente elétrica de 0,4 A, para um fluxo de 6 sccm de Ar e 4 sccm de N₂ na presença e ausência do tubo de borosilicato na câmara de processo (mesma escala no eixo y).

A admissão de gases foi monitorada por meio do controlador de fluxo de massa da MKS Instruments Inc em série com fluximetros digitais 1179A, de modo independentemente para argônio e nitrogênio.

Para identificar as espécies opticamente ativas, acompanhar e explicar o comportamento das mesmas durante a pós-descarga de cátodo oco numa mistura gasosa de Ar - N₂, medidas de espectroscopia de emissão óptica foram realizadas por um sistema composto por um espectrômetro de emissão óptica (8) UV-VIS OCEAN OPTICS USB4000 com resolução de 1,5 mm, operando na faixa do ultravioleta e do visível. Esse espectrômetro é conectado a uma fibra óptica (6) que capta a radiação até uma rede de difração que separa a luz em diferentes comprimentos de onda. O espectro obtido pode ser analisado através do programa *Spectra Sence*, que permite determinar o tempo de integração (tempo de captação de radiação para obtenção de um espectro) e ilustra na tela do computador. A fibra óptica é inserida dentro da câmara de processamento utilizando um tubo de aço inoxidável confeccionado com. janela de vidro na extremidade interna do tubo (dentro da câmara), conforme mostra a figura 1.

Para caracterizar a composição química das espécies residuais presente na câmara em vácuo durante as descargas de cátodo oco e correlacionar com as medidas de emissão óptica foi utilizado o espectrometro de massa quadrupolar modelo RGA-200 (Stanford Research Systems). As medidas realizadas com o RGA foram realizadas simultaneamente com as medidas de emissão óptica. Elas foram obtidas através de um orifício de 1 mm e comprimento de 10 mm, colocado a uma distância de 19 cm do cátodo oco, conforme mostrado em 5 (figura 1). As dimensões empregadas nesse orifício poderão garantir uma diferença de pressão entre a câmara de processo e o espectrômetro de massa suficiente para que às espécies que não foram excitadas e permaneceram da câmara, fazendo parte do gás residual, fossem detectadas pelo espectrômetro de massa. A pressão de 10^{-4} Pa na câmara do espectrômetro de massa é obtida por meio de um sistema de vácuo secundário composto por uma bomba mecânica (4,5 m³h⁻¹) em série com uma turbo molecular (4,5 m³h⁻¹ – N₂). Os espectrogramas de massa foram obtidos numa faixa entre 1 e 50 u.m.a (Unidade de Massa Atômica).

Para caracterizar a câmara de pós-descarga de cátodo oco de Ti em baixa pressão por emissão óptica e espectrometria de massa, os parametros da descarga forma fixados em uma corrente de 400 mA, pressão de 45 mPa e um fluxo de 6 sccm de Ar adicionado pelo flange superior na descarga. Enquanto isso, variou-se o fluxo de nitrogênio entre 1 e 6 sccm na câmara de vácuo inserido pelo flange inferior. Dessa forma, identificamos as espécies opticamente ativas na pós-descarga e como variam em sua intensidade relativa em relação a composição gasosa da câmara.

RESULTADOS E DISCUSSÕES

Para misturas Ar/N_2 é bem conhecido que os parâmetros do plasma são influenciados por fatores tais como a pressão do gás, corrente elétrica e fluxo de gás. Além disso, sabe-se que a presença de argônio em descarga de nitrogênio resulta no aumento significativo da intensidade de emissão e concentração de espécies ativas pela participação de estados metaestáveis de argônio Ar* a partir do efeito *Penning*.¹⁰

$$N_2(X'\Sigma_g^+) + Ar_m^*({}^3P_2, {}^3P_o) \rightarrow N_2(C^3\Pi_u) + Ar(\varepsilon > 11, 1eV)$$

O decaimento radioativo posterior conduz à emissão de fótons da banda (0,0) do segundo sistema positivo de $N_2 - 337,1$ nm proporcional à densidade de população do estado $N_2(C^3\Pi_u)$.^{11,12}

A Figura 03 mostra o espectro de emissão óptica para os fluxos de N₂ iguais a 2, 4 e 6 sccm na pós-descarga de cátodo oco da mistura gasosa Ar - N₂. É possível identificar as emissões de séries da banda do primeiro N_2 (1 +) e segundo N_2 (2 +) sistema positivo que corresponde à transição eletrônica $N_2(B) \rightarrow N_2(A) \in N_2(C) \rightarrow N_2(B)$, respectivamente.¹³ As linhas de emissão de Ar são identificadas no infravermelho próximo pela transição $3p^{5}4p \rightarrow 3p^{5}4s$.¹⁴ A emissão óptica de átomos de nitrogênio excitado e nitrogênio ionizado na pós-descarga não foram observadas devido à baixa densidade dessas espécies. Mesmo assim, a presenca de átomo no estado fundamental de N(⁴S) não pode ser excluída. As intensidades das linhas de emissão do segundo e do primeiro sistema positivo aumentam linearmente com adição de N2 na descarga Ar - N2. Esse aumento nas intensidades de emissão é mais acentuado para o N₂ (2+). Enquanto que, as intensidades de emissão de Ar - 750 nm apresentam um decréscimo também linear, mas de maneira menos acentuada que o nitrogênio. O fato do aumento da população de estado radioativo de N₂ (2+) pode ser explicado tanto pelo aumento do fluxo de N₂ como pelo aumento do número de átomos de argônio metaestáveis (Ar*) na descarga. Uma vez que o limiar de energia de excitação do estado radioativo N₂ (2+) – 11,1 eV – é ligeiramente mais baixa do que as dos átomos do argônio metaestável: ${}^{3}P_{2}$ (11,55 eV) e ${}^{3}P_{0}$ (11,72 eV). Já a emissão óptica dessa espécie de Ar é resultante da excitação direta por colisões de elétrons (e) na descarga, ¹⁵ a sua diminuição pode estar ligada ao fato de que o aumento da concentração de nitrogênio acarreta na redução das colisões entre elétrons e átomos de argônio, resultando na diminuição da intensidade de emissão da espécie Ar (750 nm).



Figura 3 - Espectro de emissão óptica de pós-descarga Ar - N₂ para os fluxos de 2, 4 e 6 sccm de N₂.

A razão das intensidades $N_2 (1 +)/Ar$ (811 nm), como mostrado na fig. 04, é um indicador válido da concentração de N_2 no plasma Ar/N_2 . Os dados indicam que a razão das intensidades da molécula de N_2 aumenta com o fluxo de N_2 na descarga e isso pode estar ligado ao aumento da pressão parcial de nitrogênio da mistura gasosa.



Figura 4 - Razão das intensidades de emissão de $N_2(1 +)/Ar$ (811 nm) versus o fluxo de nitrogênio em medida de espectroscopia de emissão óptica.

A figura 05 (a) mostra um espectro de massa das espécies neutras presentes na câmara de processo sem a admissão de gases. Esse espectro foi obtido à pressão de 3 x 10^{-3} Pa. Observou-se alguns picos dominantes, para a maior taxa de compressão do sistema de bombeamento da câmara, de espécies neutras comuns a todos os sistemas de vácuo. Um

espectro de massa de íons positivos típico de plasma Ar - N₂ com energia de impacto de elétrons de 70 eV é mostrado na figura 05 (b). Os picos dominantes no espectro de massa estão relacionados aos gases do processo, indicando a presença de átomos de Ar e da molécula de N₂. A presença de íon N⁺ no espectro pode ser atribuída à presença de moléculas de N₂ e átomos de N no plasma, resultante da dissociação ou ionização direta por impacto de elétrons na fonte de íons do plasma. O pico de 18 u.m.a revela a presença de água na câmara que surge da dessorção de água da parede da câmara. A pressão parcial do pico de água foi reduzida pela descarga de cátodo oco cilíndrico de Ar - N₂ em relação à pressão parcial do sistema sem admissão de gases (fig. 05 (a e b)). A redução da pressão parcial desta espécie contaminante também pode ser obtida pelo aquecimento externo das paredes da câmara. ¹⁶



Figura 5 - Espectro de massa (a) das espécies residuais no interior da câmara sem admissão de gases e (b) para pós-descarga de cátodo oco para mistura para 6 sccm de Ar e 4 N₂ e corrente de 400 mA.

A Figura 06 mostra a variação da pressão parcial das espécies resultante da descarga de Ar e N₂ em função do fluxo de nitrogênio na câmara por medidas de espectrometria de massa. A pressão parcial de N₂ aumenta com a adição do fluxo de nitrogênio na câmara, enquanto que a pressão parcial de Ar diminui. Um comportamento semelhante é observado nas medidas de emissão ótica com o fluxo de N₂ (Fig. 04). A relação N₂ (1 +)/Ar (811 nm) será diretamente proporcional à pressão parcial de N₂, se o mecanismo de excitação primária para o estado N₂ (B) é a interação do estado fundamental N₂ com elétrons de plasma.¹⁷



Figura 6 - Variação da intensidade picos relacionados a Ar e N₂ com o fluxo de N₂ em pós-descarga Ar - N₂ em pressão de 0,045 Pa em medida de espectrometria de massa quadrupolar.

A correlação linear foi encontrada entre a relação N₂ (1 +)/Ar (811 nm) e a pressão parcial N₂ no espectrômetro de massa quadrupolar. Ou seja, a razão das intensidades de emissão ótica de N₂(1 +)/Ar (811 nm) foi diretamente proporcional a pressão parcial de N₂ na pós-descarga de cátodo oco.

CONCLUSÕES

Baseado no que foi exposto podemos concluir que, as Medidas simultâneas de espectroscopia de emissão óptica e de espectrometria de massa quadrupolar foram apresentadas para caracterização de câmara para pós-descarga em cátodo oco em mistura de Ar - N₂ à baixa pressão. A adição de nitrogênio produziu um aumento linear na intensidade das espécies de N₂ (2+) e N₂(1+) e um decréscimo também linear das espécies Ar. Entretanto verificou-se que taxa de crescimento do N₂ foi superior ao Ar. A explicação para esse fato está no aumento de átomos de Ar metaestáveis provocando o aumento da intensidade dos picos do primeiro e segundo sistema positivo de N₂. As principais espécies iônicas encontradas por espectrometria de massa quadrupolar foram de Ar⁺ e N₂⁺. A pressão parcial de nitrogênio aumenta com a adição de nitrogênio na câmara e a pressão de argônio diminui. Um comportamento semelhante foi verificado por medidas de espectroscopia de emissão óptica e espectrometria de massa. Dessa forma, foi possível correlacionar os resultados obtidos pelas duas técnicas.

AGRADECIMENTOS

O apoio financeiro da CAPES, UFRN, LABPLASMA e LAIS (Laboratório de Inovação Tecnológica em Saúde).

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- BELMONTE T, CZERWIEC T, MICHEL H. Fundamentals and applications of late post-discharge processes. *Surface and Coatings Technology*. 2001;142–144(0):306-313.
- [2] MITTAL KL. Adhesion Promotion Techniques: Technological Applications. Ed. Marcel Dekker: New York; 1999.
- [3] MOREAU S, TABRIZIAN M, BARBEAU JB, PELLETIER J, RICARD A, YAHIA LH. Using the flowing afterglow of a plasma to inactivate *Bacillus subtilis* spores: Influence of the operating conditions. Vol 88. Journal of Applied Physics2000.
- [4] MÉZERETTE D, BELMONTE T, HUGON R, HENRION G, CZERWIEC T, MICHEL H. Study of the surface mechanisms in an Ar–N2 post-discharge cleaning process. *Surface and Coatings Technology*. 6/2/2003;169–170(0):181-185.
- [5] MÉZERETTE TBAJMTAD. Role of active species in surface cleaning by an Ar-N 2 atmospheric pressure post-discharge. *Journal of Physics D: Applied Physics*. 2002;35(16):1919.
- [6] RICARD A, CZERWIEC T, BELMONTE T, BOCKEL S, MICHEL H. Detection by emission spectroscopy of active species in plasma–surface processes. *Thin Solid Films*. 1999;341(1–2):1-8.
- [7] RICARD A, DESCHAMPS J, GODARD JL, FALK L, MICHEL H. Nitrogen atoms in Ar □ N2 flowing microwave discharges for steel surface nitriding. *Materials Science* and Engineering: A. 7/1/1991;139(0):9-14.
- [8] BALAN PC, APETREI R, LUCA D, IONITA C, SCHRITTWIESER R, POPA G. Electrical and optical diagnosis of a cavity hollow-cathode post-discharge used as a sputtering source. Vol 7. Journal of Optoelectronics and Advanced Materials2005:2459 - 2464.
- [9] ALMEIDA EO. Desenvolvimento de um sistema a jato de plasma obtido em cátodo oco para deposição defilmes finos: Departamento de física teórica e experimental, Universidade Federal do Rio Grande do Norte; 2003.
- [10] QAYYUM A, ZEB S, NAVEED MA, REHMAN NU, GHAURI SA, ZAKAULLAH M. Optical emission spectroscopy of Ar–N2 mixture plasma. *Journal* of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer. 2007;107(3):361-371.
- [11] POPA SD. Influence of pressure on spectral intensities in a flowing nitrogen glow discharge. *Journal of Physics D: Applied Physics*. 1996;29(2):416.
- [12] BEHRINGER K, FANTZ U. Spectroscopic diagnostics of glow discharge plasmas with non-Maxwellian electron energy distributions. *Journal of Physics D: Applied Physics*. 1994;27(10):2128.
- [13] KENNER RD, Ogryzlo EA. Chemi- and Bioluminescence, edited by J. G. Burr (Marcel Dekker, New York, 1985) 1985.
- [14] GOLEB JA. Flame Emission and Atomic Absorption Spectrometry, edited by J. A. Dean and T. C. Rains (Marcel Dekker, New York, 1975) 1985.
- [15] ANDRE R. Optical spectroscopy on processing plasmas: cathode magnetron sputtering and flowing post-discharges for elastomer activation and medical sterilization. *Thin Solid Films*. 2005;475(1–2):1-5.
- [16] FRITSCHE B, CHEVOLLEAU T, KOURTEV J, KOLITSCH A, MÖLLER W. Plasma diagnostic of an RF magnetron Ar/N2 discharge. *Vacuum*. 2002;69(1–3):139-145.

[17] SMITH BC, KHANDELWAL A, LAMB H. Ar/N₂O remote plasma-assisted oxidation of Si(100): Plasma chemistry, growth kinetics, and interfacial reactions. Vol 18. Journal of Vacuum Science & Technology B: Journal of Vacuum Science & Technology B; 2000.