

Механизмы зарядки диэлектриков при их облучении электронными пучками средних энергий

© Э.И. Рау, Е.Н. Евстафьева*, М.В. Андрианов

Институт проблем технологии и микроэлектроники и особочистых материалов Российской академии наук, 142432 Черноголовка, Московская обл., Россия

* Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, 119992 Москва, Россия

E-mail: rau@phys.msu.ru

(Поступила в Редакцию 26 апреля 2007 г.

В окончательной редакции 10 сентября 2007 г.)

Качественно и количественно исследованы электронно-эмиссионные и зарядовые характеристики широко класса массивных диэлектриков. Показано, что при облучении диэлектриков непрерывным электронным пучком средних энергий происходит уменьшение значения равновесной энергии падающих электронов (второй критической энергии) по сравнению с их теоретическими значениями. Равновесное состояние зарядки до насыщения наступает за время от единиц до сотен секунд в зависимости от плотности облучающего тока и энергии электронов, а также в зависимости от материала диэлектрика. Механизмы зарядки объяснены на основе модели образования в процессе облучения двойного слоя зарядов: положительного (с толщиной, равной глубине выхода вторичных электронов) и отрицательного (с толщиной, равной глубине пробега первичных электронов).

PACS: 77.22.-d, 77.22.Jp

1. Введение

Исследование процессов зарядки и поляризации диэлектриков и влияние этих эффектов на электрические и структурные свойства материалов имеют большое значение в авионавтике, в электронно-зондовых аналитических методах исследований, микроэлектронике, электронно-лучевой литографии, во многих современных технологиях [1].

Например, в электронно-зондовых исследованиях непроводящих образцов (диэлектрические структуры, полимеры, керамика, биологические препараты) встречаются значительные трудности при обработке и интерпретации результатов. Вследствие зарядки таких мишеней под действием электронного облучения образуются поверхностные потенциалы и сильные электрические поля в зондируемой области диэлектрика. В сканирующей электронной микроскопии это приводит к дефокусировке и сбоям на изображениях, в рентгеновском микроанализе — к сдвигу границы тормозного излучения из-за уменьшения энергии бомбардирующих электронов. Последнее обстоятельство может вызвать потери сравнительно высокоэнергетических характеристических рентгеновских пиков, соответствующих определенным элементам состава вещества. В Оже-спектроскопии сильные подповерхностные электрические поля вызывают электромиграцию ионов, что приводит к ошибке при элементном анализе.

Вместе с тем локальная зарядка диэлектрических сред является положительным фактором в некоторых прикладных технологиях — при создании автоэмиттеров, в запоминающих электронно-лучевых трубках, при разработке элементов памяти и накопителей энергии в

электретах. В связи с этим понятен интерес к изучению фундаментального явления зарядки как с точки зрения физики явления, так и с практической стороны.

В последние годы было предложено несколько моделей процессов зарядки непроводящих сред электронными пучками средних энергий. Все они включают зависимость степени зарядки от коэффициента эмиссии электронов, определяемого как материалом мишени, так и величиной энергии первичных (облучающих) электронов [2,3]. Но учет только эмиссионных характеристик диэлектрика и возможных токов утечки [4–6] не может объяснить всех особенностей процесса зарядки и в большинстве случаев противоречит экспериментальным результатам. В частности, не находит объяснения факт отрицательной зарядки мишени в области энергий облучающих электронов, где коэффициент эмиссии электронов больше единицы, т.е. где предполагалась положительная зарядка.

Указанные противоречия в основном объяснены развитой электростатической моделью генерируемого двойного слоя зарядов при электронном облучении диэлектрика [7,8]. Тонкий, положительно заряженный слой образуется из-за ухода вторичных электронов, а более протяженный отрицательный слой возникает за счет захвата первичных электронов на глубокие центры различных дефектов в диэлектрике. Такой подход подтверждается моделированием процесса взаимодействия электронных пучков с диэлектрической мишенью методом Монте-Карло [9] и расчетами на основе саморегулирующегося баланса всех токов при облучении [10,11].

В настоящей работе приводятся обширные экспериментальные результаты исследования зарядки различных типов диэлектриков при электронном облучении,

рассмотрены основные аспекты механизмов зарядки, что позволяет устранить некоторые противоречия между теорией и экспериментом, внести определенную ясность в дискуссионных вопросах установления динамического равновесия процесса зарядки.

2. Ограничения ранних представлений о зарядке диэлектриков при электронном облучении

В течение долгого времени доминировала картина механизма зарядки диэлектриков при электронном облучении, основанная на зависимости полного коэффициента эмиссии электронов σ от энергии первичного пучка электронов E_0 . Полный коэффициент эмиссии электронов из твердотельной среды равен

$$\sigma = \delta + \eta, \quad (1)$$

где δ — коэффициент эмиссии вторичных электронов (ВЭ), η — коэффициент отраженных электронов (ОЭ), который будем считать постоянной величиной во всем рассматриваемом интервале энергий E_0 . Коэффициент δ может быть выражен в следующей форме [2,12]:

$$\begin{aligned} \delta &= \frac{0.5}{E_i} \int_0^{R_0} \frac{dE}{dx} \exp\left(-\frac{x}{\lambda}\right) \\ &= \frac{0.5E_0\lambda}{E_i R_0} \left[1 - \exp\left(-\frac{R_0}{\lambda}\right) \right], \end{aligned} \quad (2)$$

где λ — средняя длина свободного пробега ВЭ, E_i — энергия генерации ВЭ, а R_0 — глубина пробега первичного электрона, которую можно оценить по формуле

$$R_0 [\text{nm}] = \frac{115}{\rho} E_0^{1.35} [\text{keV}], \quad (3)$$

где ρ — удельная плотность материала мишени [g/cm^3].

Отметим, что средняя длина свободного пробега λ , равная средней глубине выхода ВЭ, приблизительно в 3 раза меньше их максимальной глубины выхода 3λ , а максимальный коэффициент ВЭ δ_m достигается при $E_0 = E_m$, когда $R_0 \approx 3\lambda$. Учитывая зависимость $R_0 = f(E_0)$, можно получить на основе (2) полуэмпирическое выражение для коэффициента δ как функции энергии первичного пучка E_0 . Наиболее точно соответствует экспериментам приближение, данное в [13],

$$\delta = 1.31\delta_m(E_0/E_m)^{-0.8} (1 - \exp[-1.45(E_0/E_m)^{1.8}]). \quad (4)$$

Рассчитанные по этой формуле зависимости $\delta = f(E_0)$ (в сумме с постоянными коэффициентами η , взятыми из [2,4]) для ряда массивных диэлектрических мишеней приводятся на рис. 1. Там же даются экспериментальные значения для некоторых образцов, полученные для незаряженных диэлектриков при импульсном облучении.

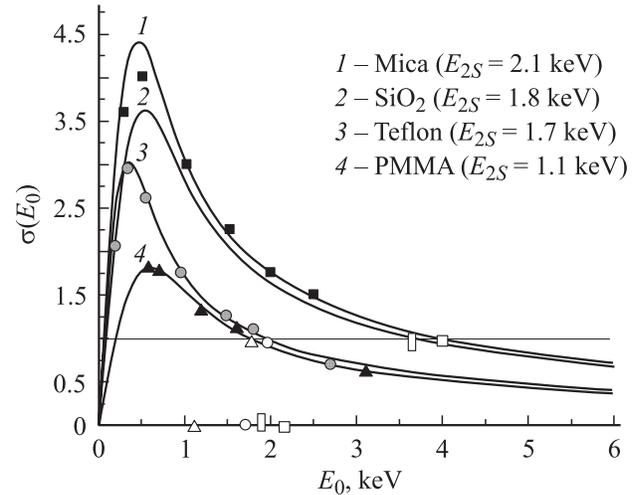


Рис. 1. Вторично-эмиссионные характеристики $\sigma = f(E_0)$ диэлектриков с указанием второй кроссоверной энергии E_{2C} электронов для случая незаряженного диэлектрика (пересечение графиков $\sigma(E_0)$ с прямой $\sigma = 1$) и второй кроссоверной энергии E_{2S} (соответствующие символы указаны на оси энергий E_0).

Приведенные данные взяты из работ [4,5,8]. Из графиков видно, что на зависимостях $\sigma(E_0)$ существует две критические энергии $E_0 = E_1$ и $E_0 = E_2$, называемых кроссоверными, где $\sigma = 1$. Ранее во многих работах было принято считать, что при выборе энергий E_0 , больших или меньших соответствующих критических значений $E_0 = E_1$ и $E_0 = E_2$, образец должен заряжаться отрицательно, так как в этих диапазонах энергий $\sigma < 1$. При $E_1 < E_0 < E_2$ образец должен заряжаться положительно ($\sigma > 1$), а при $E_0 = E_1$ и $E_0 = E_2$ зарядки не происходит, так как $\sigma = 1$. В работах [5,6,13] показано, что при отсутствии утечки зарядов потенциал поверхности достигает при равновесном состоянии величины $V_S = E_0 - E_2$, а при конечном сопротивлении утечки R значение V_S несколько меньше:

$$V_S(t) = \frac{(E_0 - E_2)I_0R(1 - \sigma_{E_0})}{(E_0 - E_2) + I_0R(1 - \sigma_{E_0})}, \quad (5)$$

где I_0 — ток первичного пучка электронов, σ_{E_0} — значение полного коэффициента эмиссии при энергии первичных электронов E_0 . Из соотношения (5) можно легко определить значение второй кроссоверной энергии $E_2 = E_{2S}$ заряженного до равновесного состояния образца, даже не зная заранее параметров E_2 , R , σ_{E_0} . Действительно, если при двух заданных энергиях облучающих электронов E_{01} и E_{02} измерить соответствующие потенциалы насыщения V_{S1} и V_{S2} , то несложные преобразования в (5) дают

$$E_{2S} = \frac{V_{S1}E_{02} - V_{S2}E_{01}}{V_{S1} - V_{S2}}. \quad (6)$$

В общем случае наличие токов утечки сдвигает значение кроссоверной энергии E_{2S} в сторону больших энергий,

уменьшая пропорционально величину V_S . Выражение (5) дает значение потенциала в равновесном состоянии, когда величина зарядов во времени больше не меняется.

Описанная здесь картина зарядки поверхности диэлектрической мишени под воздействием электронного пучка с энергиями в единицы и десятки keV, господствовавшая в течение долгого времени, в последнее десятилетие подвергается существенной ревизии. Причиной пересмотра теории является очевидное противоречие экспериментальным результатам. Основное различие отмечается в несоответствии теории зарядки на основе коэффициента эмиссии σ как функции энергии облучающих электронов E_0 . Из теории следует, что мишень не заряжается, т.е. $V_S = 0$, если выбрать исходную энергию облучающих электронов $E_0 = E_2$, при которой $\sigma = 1$. На деле же все эксперименты показывают, что при непрерывном облучении электронами с энергией $E_0 = E_2$ диэлектрики заряжаются до относительно высокого отрицательного потенциала. Далее, при $E_0 > E_2$, квазистатическое равновесие наступает не в точке E_2 , а при меньших значениях энергии падающих электронов $E_L > E_2$, т.е. $V_S \neq E_0 - E_2$, а равно большей величине $V_S = E_0 - E_L$, где E_L есть новое значение критической равновесной энергии E_2 .

Вторым существенным несоответствием является определение временной константы зарядки τ_0 по принятому соотношению [6]

$$\tau_0 = \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_r R a^2}{(1 + k I_0 R) h}, \quad (7)$$

где $k = \frac{1 - \sigma_{E_0}}{E_0 - E_2}$, h — толщина образца, ε_0 , ε_r — диэлектрические константы вакуума и материала образца соответственно, a^2 — площадь облучения электронами. Действительно, подставив характерные значения в выражение (7), получим значения τ_0 в интервале времени в единицы и десятки миллисекунд, в то время как при принятых параметрах эксперименты дают время зарядки в единицы, десятки, а для некоторых образцов сотни секунд. Частично проблема определения τ_0 решается учетом влияния радиационно-стимулированной проводимости g_i [14,15], что приводит к следующему выражению:

$$\frac{1}{\tau_0} = \frac{g_i}{\varepsilon_0 \varepsilon_r} + \frac{I_0 k}{\pi \varepsilon_0 \varepsilon_r R_0}. \quad (8)$$

Но данное соотношение, выведенное для сферического объема облучаемого диэлектрика, не учитывает параметра h , не обходит трудности в определении величины g_i , которая к тому же берется в неопределенной области образца. Однако эту проводимость следует строго различать для облучаемой и не облучаемой электронами областей [14].

Наиболее существенным вкладом в понимание механизмов зарядки диэлектриков явилась разработка двух-

слойной модели зарядов [7,8]. По этой электростатической модели ВЭ, покидая образец, образуют тонкий приповерхностный слой положительного заряда толщиной 3λ . Одновременно часть первичных электронов оседает на центрах захвата, образуя относительно толстый слой отрицательного заряда толщиной R_0 . В итоге суммарный заряд ΔQ (алгебраическая сумма положительного Q_+ и отрицательного Q_- зарядов) создает поверхностный потенциал

$$V_S = \frac{\Delta Q h}{\varepsilon_0 \varepsilon_r a^2} + \frac{Q_+ s + Q_- R_0}{2 \varepsilon_0 \varepsilon_r a^2}. \quad (9)$$

Соотношение (9) справедливо при условии равномерного по глубине распределения зарядов, а также в приближении, что емкость заряженного слоя диэлектрика эквивалентна емкости плоского конденсатора $C = \varepsilon_0 \varepsilon_r a^2 / h$. Эта модель была расширена в [16], где учтены токи утечки и электронно-индуцированные токи, но некоторые противоречия с экспериментальными результатами [17] все еще оставались. В частности, не согласовывались значения временных констант зарядки, величина равновесного потенциала V_S по (10) оказывалась значительно завышенной, а значение второй кроссоверной энергии заряженного образца E_{2S} было занижено.

Лучшему пониманию сложной картины зарядки диэлектриков служит модель самосогласующихся токов, рассчитанная на основе результирующего движения всех зарядов вблизи поверхности облучаемого образца [10,11]. В рассматриваемой теории учитывается пространственная генерация электронов и дырок, их частичная рекомбинация и захват на глубокие уровни в запрещенной зоне, их дрейф и диффузия, а также зависящая от поверхностного потенциала вторичная электронная эмиссия. Основными недостатками упомянутого теоретического рассмотрения является его громоздкость, необходимость априорного знания многих кинетических параметров исследуемого диэлектрика (сечения захвата носителей, концентрации дефектных центров, подвижности носителей заряда и т.п.), а также несоответствие с экспериментами как в величине поверхностного потенциала, так и во временах наступления равновесного состояния зарядки.

Далее приводится экспериментальный материал по электронно-лучевой зарядке различных диэлектрических мишеней, где определены параметры эмиссии ВЭ, поверхностные потенциалы V_S в зависимости от энергии облучающих первичных электронов E_0 , значения аккумуляруемых зарядов Q , временные константы зарядки. Даются объяснения многим наблюдаемым эффектам, обсуждаются спорные вопросы, требующие дальнейших уточнений.

3. Экспериментальные результаты исследований зарядки диэлектриков в растровом электронном микроскопе

Исследования проводились в растровом электронном микроскопе (РЭМ) при вакууме 10^{-5} Торр. РЭМ позволяет, с одной стороны, проводить локальное облучение мишени с контролируемой плотностью тока и фиксированной энергией первичного пучка электронов в широком диапазоне и, с другой стороны, количественно определять параметры зарядки.

Для правильной интерпретации всех механизмов зарядки диэлектрических мишеней необходимо измерять независимо ряд характеристик, сопутствующих временным процессам изменений величины вторично-эмиссионного тока, аккумулируемого заряда, возникающего потенциала на облучаемой поверхности, тока утечки зарядов. Нами, вероятно, впервые реализованы такие комплексные измерения, результаты которых взаимно дополняют друг друга и позволяют более корректно объяснить феномен зарядки.

Измерения поверхностного потенциала V_S заряженного диэлектрика в зависимости от энергии облучающих электронов, тока электронного пучка, дозы имплантированных электронов (времени и площади облучения) и времени зарядки проводились в РЭМ с помощью тороидального спектрометра электронов [18]. Схема таких экспериментов представлена на рис. 2. Пучок электронов e^- с энергией E_0 облучает массивную диэлектрическую мишень I , помещенную на металлическую подложку 2 . Система образец–подложка с помощью тefлонового кольца 3 электрически изолирована от экранирующей металлической коробки 4 . На корпусе коробки помещен цилиндр Фарадея 5 , измеряющий ток первичного пучка электронов I_0 с помощью наноамперметра 6 .

При обеспечении омического контакта поверхности мишени I с крышкой корпуса коробки 4 с помощью проводящего кольца 14 можно при надобности контролировать ток утечки по поверхности образца I_L с помощью того же наноамперметра 6 . Так называемый ток поляризации диэлектрика (или, что то же самое, ток смещения I_d) детектируется с помощью электрометра 7 . В ряде случаев удобнее регистрировать непосредственно накапливаемый заряд через Q -вход электрометра 7 (Q -метр). Данные с измерительных приборов 6 и 7 , а также результаты измерений V_S со спектрометра 10 одновременно поступают на три входных канала регистрации персонального компьютера РС 8 , соединенного через интерфейс 9 с РЭМ. Интерфейсное устройство обеспечивает также пилообразное напряжение питания на тороидальные дефлекторные электроды 11 спектрометра 10 и оцифровку сигнала с его полупроводникового кольцевого детектора 12 . Для уменьшения вклада третичных и переотраженных от поверхности спектрометра

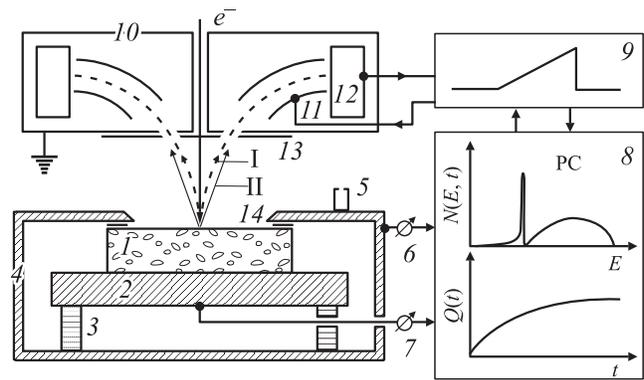


Рис. 2. Экспериментальная установка для измерения поверхностных высоковольтных потенциалов V_S , тока смещения I_d (аккумулируемого заряда Q) и тока утечки по поверхности I_L .

электронов эта поверхность покрыта антидинаatronной сажей 13 .

Измерения потенциалов V_S проводятся следующим образом. Часть вторичных и отраженных электронов (I и II на рис. 2) попадает через входную кольцевую щель в энергетический электронный спектрометр, на входе которого детектируются (с помощью РС) полные спектры вторичных и отраженных электронов. В процессе зарядки диэлектрика его поверхность приобретает отрицательный потенциал $-V_S$, который уменьшает энергию падающих первичных электронов от исходной величины E_0 до текущего значения $E_L(t) = E_0 - eV_S(t)$. В то же время одновременно действует обратный эффект — эмитированные ВЭ и ОЭ попадают в это, теперь уже действующее как ускоряющее, поле заряженной поверхности и ускоряются им на величину энергии eV_S . В результате истинный полный спектр эмитированных электронов претерпевает следующую цепь трансформаций: от исходного ($t = 0$), простирающегося в диапазоне энергий $0-E_0$ ($0-50$ eV для ВЭ и $0-E_0$ для ОЭ), спектр вначале сжимается до интервала $0-E_L$ (выход из поверхности), затем в ускоряющем поле этот спектр деформируется и переносится в интервал энергий E_L-E_0 , где и регистрируется спектрометром. В итоге медленные ВЭ, выходящие из поверхности со средней кинетической энергией в единицы eV, приобретают большую дополнительную энергию eV_S . Поэтому пик ВЭ расположен на энергетической оси в точке $E_{SE} = -eV_S$, что хорошо фиксируется на спектре с погрешностью не более 5%.

В настоящей работе для исследований были выбраны диэлектрики различного типа, отличающиеся по своим физическим характеристикам и структуре: полимерные (тефлон, PMMA), щелочно-галоидные (NaCl), оксиды (MgO, SiO₂, Al₂O₃), стекло, слюда. В табл. 1 приводятся их основные параметры: удельный вес ρ_0 , относительная диэлектрическая проницаемость ϵ_r , удельная проводимость β [$\Omega^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$], а также σ_m — максимальное значение коэффициента полной электронной эмиссии — и глубина пробега первичных электронов R_M при со-

Таблица 1. Параметры исследованных диэлектриков

Образец	$\rho_0, \text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$	ϵ_r	$\beta, \Omega^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$	σ_m	E_m, keV	R_M, nm
PMMA	1.20	2.60	10^{-15}	1.8	0.6	48
SiO ₂	2.20	3.90	10^{-12}	3.6	0.55	23.5
Al ₂ O ₃	3.90	10.0	10^{-14}	6.20	0.65	22.00
NaCl	2.17	5.25	—	12.0	0.90	46
Кварцевое стекло	2.60	4.50	10^{-9}	3.2	0.50	17.4
Природный алмаз	3.45	5.75	10^{-16}	3.5–10	0.75–0.9	25
MgO	3.65	9.8	10^{-15}	12–24	0.6–1.6	32
Слюда	2.65	6.0	10^{-12}	3.0	0.45	15
Тефлон	2.2	2.0	10^{-16}	2.4	0.4	15

ответствующей энергии первичных электронов E_m . Значения E_m взяты из графиков рис. 1, а соответствующие значения R_M рассчитаны по формуле (3). Образцы имели размер $10 \times 10 \times 1 \text{ mm}$, их облучение осуществлялось на площади $0.1 \times 0.1 \text{ mm}$ в телевизионном стандарте сканирования РЭМ (40 ms на 1 кадр) или же в режиме неподвижного пятна при расфокусированном зонде диаметром порядка $10 \mu\text{m}$. Ток электронного зонда обычно составлял $I_0 = 1 \text{ nA}$, что соответствует плотности тока облучения $J_0 = 10^{-5} \text{ A/cm}^2$ или же плотности инжектируемого заряда $\sigma_i = 10^4 \text{ (nC/cm}^2\text{)/s}$.

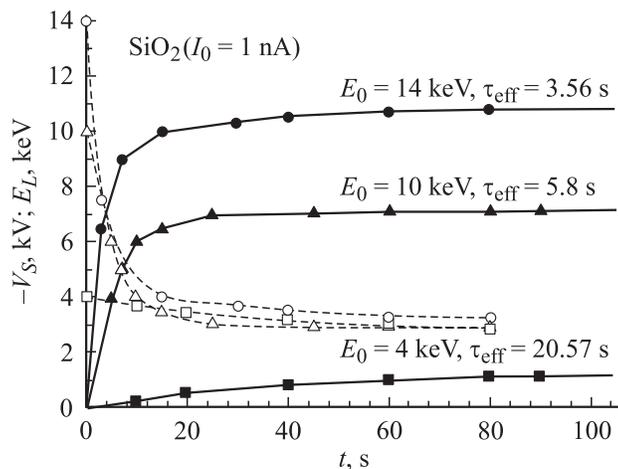


Рис. 3. Зависимость потенциала $-V_S$ поверхности (сплошные кривые) и текущей энергии первичных электронов E_L (штриховые кривые) от времени облучения для кристалла SiO₂.

Результаты измерения потенциала $-V_S$ поверхности SiO₂ при токе электронного зонда $I_0 = 1 \text{ nA}$ и трех выбранных энергиях облучения $E_0 = 4, 10$ и 14 keV в зависимости от времени t представлены на рис. 3. Штриховыми кривыми показаны временные зависимости реальной энергии бомбардирующих электронов E_L , которая уменьшается в тормозящем поле отрицательно заряжающейся поверхности от исходного значения E_0 до равновесного значения $E_{LS} = E_0 - eV_{SS}$. При энергиях облучения $E_0 = 4, 10$ и 14 keV значения E_{LS} составляют

2.8, 2.9 и 3.2 eV соответственно. Константа времени зарядки τ_{eff} , указанная при соответствующих графиках, определялась методом подгонки экспериментальных временных характеристик

$$V_S(t) = V_{SS}(1 - \exp(-t/\tau_{\text{eff}})), \quad (10)$$

где V_{SS} — установившееся равновесное значение потенциала.

Следует отметить две очевидные закономерности, характерные и для всех других исследованных диэлектриков. Первая — временные константы зарядки обратно пропорциональны ускоряющему напряжению РЭМ, т. е. начальной энергии первичного пучка электронов. Вторая — равновесное конечное значение энергии падающих электронов E_{LS} не достигает одной общей величины E_{2S} , а для более высоких стартовых энергий E_0 соответствующие значения E_{LS} , как правило, возрастают.

На рис. 4 приводятся аналогичные зависимости для образца Al₂O₃ (сапфир), а на рис. 5 — для монокристалла NaCl. На рис. 6 представлены итоговые зависимости потенциала заряженной поверхности $-V_S$ и соответствующей фактической энергии первичных облучающих электронов E_L , измеренные после наступления

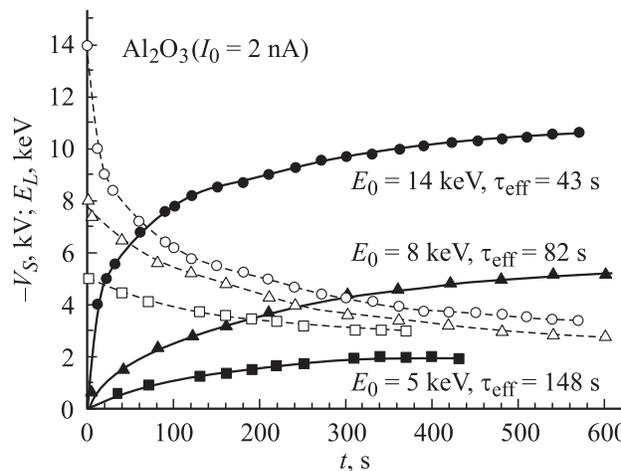


Рис. 4. Зависимости потенциала $-V_S$ (сплошные кривые) и текущей энергии облучающих электронов E_L (штриховые кривые) от времени облучения для диэлектрика Al₂O₃.

Таблица 2. Характеристики исследованных диэлектриков

Образец	R_{2C} , nm	R_{2S} , nm	E_{2C} , keV	E_{2S} , keV	V_S , kV ($E_0 = 10$ keV)	Q_S , nC ($E_0 = 10$ keV)	τ_{eff} , s ($E_0 = 10$ keV, $J = 10^{-5}$ A/cm ²)
PMMA	212	122	1.8	1.2	8.0	0.38	0.4
SiO ₂	340	107	4.0	1.7	7.3	0.45	6.0
Al ₂ O ₃	844	80	12.00	2.1	7.0	1.15	180.0
NaCl	1870	135	14.0	2.0	6.8	0.9	15
Кварцевое стекло	268	76	3.8	1.7	6.0	1.8	3.8
Природный алмаз	333	42	5.5	1.2	6.9	0.26	2.2
MgO	268	76	3.8	1.8	6.0	2.9	3.8
Слюда	282	142	4.0	2.1	7.5	0.85	28.0
Тефлон	151	103	2.2	1.7	7.2	0.65	3.2

равновесного состояния процесса зарядки для четырех типичных диэлектриков. Экстраполяция линейных графиков $-V_S = f(E_0)$ до их пересечения с горизонтальной осью энергий E_0 дает значения $E_0 = E_{2S}$, при которых $V_S = 0$, т.е. образец не заряжается. Эти кроссоверные точки энергии $E_0 = E_{2S}$ для диэлектриков, облучаемых непрерывным электронным пучком, имеют в несколько раз меньшие значения, чем величины E_{2C} для незаряженных диэлектрических материалов. Значения второй критической энергии E_{2C} для незаряженных диэлектриков, определяемые по графикам рис. 1 (в кроссоверной точке $\sigma = 1$), а также равновесные энергии заряженных диэлектриков E_{2S} , определяемые по графикам рис. 6, представлены в табл. 2. Там же приводятся соответствующие глубины пробегов R_{2C} и R_{2S} , рассчитанные по соотношению (3).

Как видно из представленных результатов, различия в этих параметрах очень значительны, результаты могут различаться в несколько раз. В табл. 2 указаны также равновесные потенциалы зарядки $-V_S$ и соответствующие значения аккумулярованных зарядов Q_S , определенные при выбранной энергии $E_0 = 10$ keV. В последнем

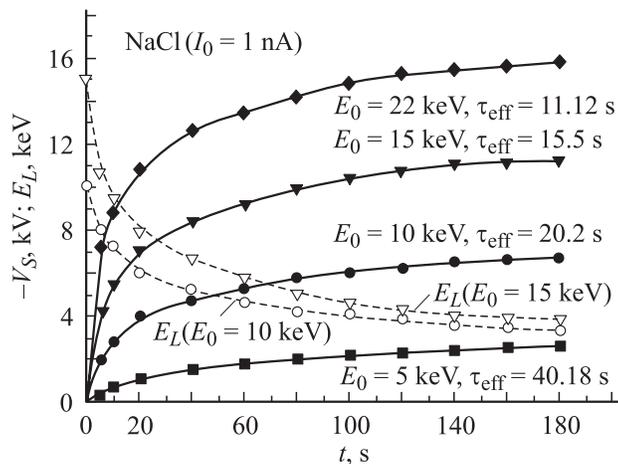


Рис. 5. Зависимости потенциала $-V_S$ (сплошные кривые) и текущей энергии облучающих электронов E_L (штриховые кривые) от времени облучения для монокристалла NaCl.

столбце приведены значения константы времени зарядки исследованных образцов τ_{eff} , определенные экспериментально при $E_0 = 10$ keV и плотности тока облучающего пучка электронов $J = 10^{-5}$ A · cm⁻².

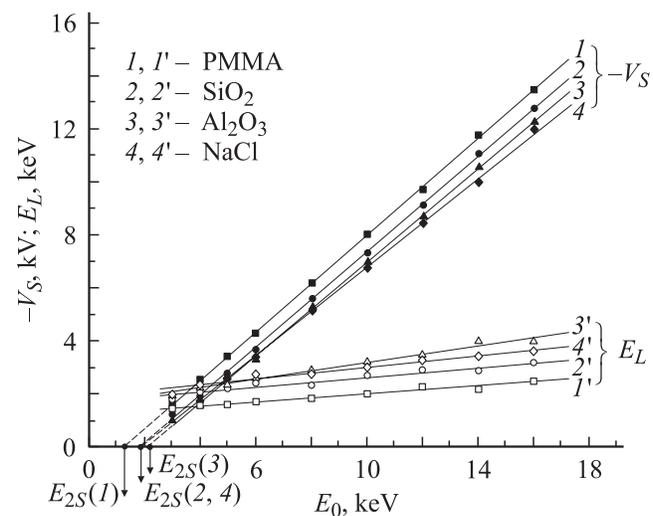


Рис. 6. Значения равновесных потенциалов $-V_S$ и достигаемой в равновесии (при полной зарядке мишени) фактической эффективной энергии первичных электронов E_L от исходной энергии E_0 для четырех типичных диэлектриков. Стрелками на оси энергий указаны значения второй кроссоверной равновесной энергии облучающих электронов E_{2S} .

Из приведенных результатов можно сделать вывод, что только при выборе начальной энергии облучения $E_0 = E_{2S}$, в частности $E_0 = 1.2$ keV для PMMA, 1.7 keV для SiO₂, 2.0 keV для NaCl, 2.1 keV для Al₂O₃, 1.8 keV для стекла, $V_S = 0$ и указанные диэлектрические мишени не заряжаются. При больших ускоряющих напряжениях, т.е. при $E_0 > E_{2S}$ все диэлектрики заряжаются: теоретически до величины $-V_S = E_0 - E_{2S}$, но практически это значение равно $-V_S = E_0 - E_{LS}$. Некоторое уменьшение потенциала V_S , приводящее к росту значения равновесной энергии падающих электронов $E_{LS} > E_{2S}$, связано с компенсирующими токами утечки I_L и радиационно-

стимулированным током I_{RIC} в области облучения. Более детально эти вопросы будут обсуждаться в следующем разделе работы.

4. Качественное рассмотрение процессов зарядки диэлектриков при электронном облучении

Приведенные выше экспериментальные результаты довольно хорошо согласуются с теоретическими моделями зарядки диэлектриков, разработанными на основе образования двойного слоя зарядов [7,8] и самосогласующихся токов [10].

Полную картину процессов зарядки продемонстрируем с помощью схематических представлений на рис. 7 и 8. При облучении площадки поверхности диэлектрика размером $a \times a$ током электронного зонда I_0 часть первичных электронов отражается с глубины от $R_0/2$ до поверхности. Этот ток равен $I_0\eta$, следовательно, в образце остается отрицательный заряд величиной $I_0(1 - \eta)t$, где t — время облучения. Одновременно из относительно тонкого приповерхностного слоя толщиной 3λ , где λ — средняя длина пробега ВЭ, эмитируются ВЭ, величина тока которых равна $I_0\delta$. Уходящие ВЭ оставляют эквивалентный положительный заряд $I_0\delta t$. В общий баланс зарядов, естественно, не включаются генерационно-рекомбинационные электроны и дырки, не нарушающие суммарного заряда образца, но между образующимися положительным и отрицательным слоями зарядов генерируется электрическое поле F_{in} , которое разделяет неравновесные носители в этой области, образуя биполярный радиационно-стимулированный ток I_{RIC} . Дополнительно существуют токи утечки носителей I_L по поверхности и через объем образца к заземленной подложке. Из облучаемой области носители

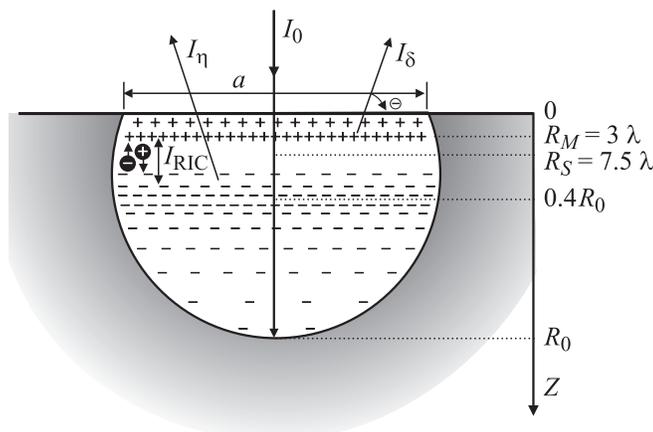


Рис. 7. Схема образования двухслойного заряда. I_0 — ток первичного пучка электронов, I_η — ток отраженных электронов, I_δ — ток вторичных электронов, a — размер облучаемой области, I_{RIC} — радиационно-стимулированный ток, R_0 — полная глубина пробега первичных электронов с исходной энергией E_0 , величины R_M и R_S пояснены в тексте.

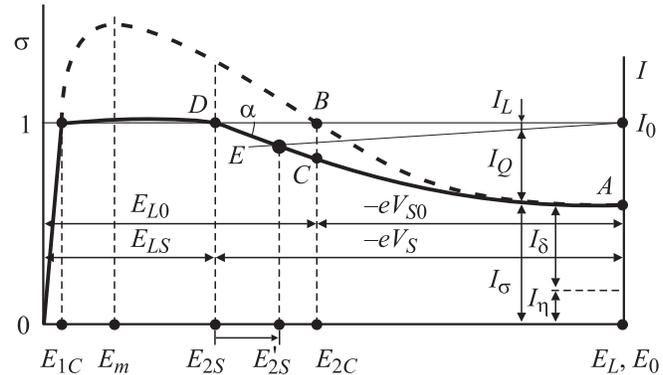


Рис. 8. Характеристики полного коэффициента электронной эмиссии σ и потенциала поверхности V_S в зависимости от энергии облучающих электронов E_0 (и фактической энергии облучения E_L) для незаряженного диэлектрика (штриховая кривая) и при его зарядке (сплошная кривая). Показаны условные значения полного тока электронов I : тока вторичной эмиссии $I_\sigma = I_\eta + I_\delta$, тока зарядки I_Q и тока утечки I_L .

частично дрейфуют и диффундируют в необлучаемую область, отмеченную в виде облачного ореола на рис. 7. Существенно, что в процессе отрицательной зарядки диэлектрика начальная энергия первичных электронов $E_0 = E_{L0}$ уменьшается со временем в тормозящем поле над permanently заряжающейся поверхностью, в результате чего диапазону изменения фактической энергии падающих электронов от $E_L = E_0$ до $E_L = E_{2S}$ соответствует изменение размеров глубины пробега первичных электронов от R_0 до R_M . Важным моментом является то обстоятельство, что указанные трансформации практически не меняют коэффициент отражения η . В то же время коэффициент δ ВЭ является четко выраженной функцией от $E_0 = E_L$, изменяясь со временем облучения, согласно поведению $E_L(V_S, t)$, что выражено формулами (2) и (4) и отражено на рис. 1, а также на рис. 8.

Общий баланс токов (следующий из закона сохранения зарядов) в любой момент времени облучения равен (рис. 8)

$$I_0 = I_\sigma + I_Q + I_L = I_0\sigma + dQ/dt + I_L, \quad (11)$$

где $I_\sigma = I_\delta + I_\eta$ есть ток общей эмиссии электронов из поверхности в вакуум, I_L — ток объемной и поверхностной утечки на землю, $dQ/dt = I_Q$ — ток смещения, индуцируемый захваченными на ловушки зарядами.

В общем случае $dQ/dt = (dQ_+ + dQ_-)/dt$, где Q есть алгебраическая сумма аккумулированных в облучаемом объеме диэлектрика положительных Q_+ и отрицательных Q_- зарядов. Во время облучения их значения соответственно равны

$$d(Q_+)/dt = I_0\delta(E_0E_i)N_i^- \omega_i^- 3\lambda - I_{RIC}, \quad (12)$$

$$d(Q_-)/dt = I_0(1 - \eta)(E_0/E_i)N_i^+ \omega_i^+ R_0 - I_{RIC}, \quad (13)$$

где E_i — энергия генерации ВЭ ($\approx 3E_g$; E_g — ширина запрещенной зоны в диэлектрике), N_i^\pm — объемные

плотности центров захвата электронов и дырок соответственно, ω_r^\pm — эффективные сечения захвата.

Электронно-стимулированный ток I_{RIC} возникает между положительно и отрицательно заряженными слоями диэлектрика, причем генерированные электроны под действием внутреннего поля F_{in} движутся к положительному слою, компенсируя определенную часть положительного заряда Q_+ , а дырки частично компенсируют отрицательный заряд Q_- . Это обстоятельство важно в механизме зарядки, так как I_{RIC} не меняет алгебраической суммы зарядов Q , но существенно меняет абсолютную величину отдельных составляющих Q_+ и Q_- , а тем самым и значения потенциалов на поверхности V_S и потенциала отрицательно заряженного слоя ($-V$), условно расположенного в виртуальной плоскости на глубине $0.4R_0$ (рис. 7). Величину этого компенсирующего релаксационного тока можно определить исходя из работ [14,16] как

$$I_{\text{RIC}} = I_0(E_0/E_i)\mu\tau_r\Delta V/R_0^2, \quad (14)$$

где μ — подвижность электронов, τ_r — время жизни электронов в диэлектрике, ΔV — разность потенциалов между заряженными слоями. Величина τ_r включает не только рекомбинационную составляющую, но и время возможного высвобождения электронов из ловушечных уровней при генерации сильных полей F_{in} .

По распределению зарядов можно найти распределение поля и потенциала под и над поверхностью диэлектрика, но так как реально распределение зарядов в пространстве весьма сложно поддается аналитическому описанию, были предложены лишь приближительные решения, одним из которых наиболее адекватно отвечающим экспериментам, воспользуемся далее [7,8]:

$$\begin{aligned} V_S &= \frac{\Delta\sigma \cdot h}{\varepsilon_0\varepsilon_r} + \frac{\sigma_+R_M + \sigma_-R_0}{2\varepsilon_0\varepsilon_r} \\ &= \frac{\Delta Qh}{\varepsilon_0\varepsilon_r a^2} + \frac{Q_+3\lambda + Q_-R_0}{2\varepsilon_0\varepsilon_r a^2}, \end{aligned} \quad (15)$$

где h — толщина образца, ε_0 — абсолютная диэлектрическая проницаемость вакуума ($\varepsilon_0 = 8.8 \cdot 10^{-12}$ F/m), ε_r — относительная диэлектрическая проницаемость диэлектрика ($\varepsilon_r(\text{SiO}_2) = 3.9$).

Проведем анализ процесса зарядки на примере классического диэлектрика — кристалла SiO_2 (размер $10 \times 10 \times 1$ mm). Будем облучать площадку с поверхностью $a \times a = 100 \times 100 \mu\text{m}^2$ при токе зонда $I_0 = 1$ nA, т.е. при плотности облучающего тока $j_0 = 10^{-5}$ A/cm². Это соответствует поверхностной плотности входящего потока $\sigma_\pm = 10^{-5}$ C/cm² $\approx 10^{14}$ (el/cm²)/s. Пусть в начальный момент времени при $E_0 = E_{2C} = 4$ keV (исходная позиция A на рис. 8 совпадает с позицией B) имеем $\eta + \delta_0 = 1$, т.е. $1 - \eta = \delta_0$. Примем для SiO_2 $\eta = 0.2$, тогда $\delta_0 = 0.8$ и соответственно $\sigma_+ = \sigma_- = \sigma_\pm$, т.е. поверхностные плотности положительного и отрицательного зарядов равны по абсолютной величине. В то же

время объемные плотности зарядов сильно различаются, так как положительный заряд сконцентрирован в тонком слое толщиной $R_M = 21$ nm, а отрицательный — в относительно толстом слое толщиной $(R_0 - 0.5R_S) = 95$ nm. В результате $\rho_+ = \sigma_+/R_M = 5$ C/cm³ $= 8 \cdot 10^{19}$ el/cm³, и $\rho_- = \sigma_-/(R_0 - 0.5R_S) = 1$ C/cm³ $= 1.6 \cdot 10^{19}$ el/cm³.

Так как в рассматриваемом случае $E_0 = E_{2C}$, т.е. $\sigma = 1$, согласно обычным представлениям о зарядке диэлектриков, должно быть $V_S = 0$, но этого не происходит, так как образец SiO_2 заряжается до равновесного значения $V_S = -2$ keV. Причина этого явления — образование слоя неподвижных положительных зарядов у поверхности, резко снижающих эффективный выход ВЭ. Вновь генерируемые ВЭ по пути движения к поверхности рекомбинируют на положительно заряженных центрах (атомах), в результате чего σ становится меньше единицы (точка C на рис. 8), и образец начинает заряжаться отрицательно. Зарядка прекращается, когда E_L достигает значения E_{2S} (точка D на рис. 8), при котором вновь наступает равновесие и $\sigma = 1$. При этом состоянии имеем $E_{2S} = 1.7$ keV, $V_S = -2.3$ keV. Даже если разность потенциалов между слоями в рассматриваемом случае составляет $\Delta V = 1$ V, то внутреннее поле у поверхности будет очень большим, а именно $F_{\text{in}} = \Delta V/0.5R_0 \approx 3 \cdot 10^6$ V/cm.

В случае исходной энергии облучения $E_0 = E_{2S}$ (точка D на рис. 8) имеем $V_S = 0$, $R_S = 7.5\lambda$, $Q_+ = Q_-$, т.е. $\Delta Q = 0$, $\sigma = 1$, но между одинаково заряженными слоями вновь образуется значительное поле дипольного слоя F_{in} , по порядку величины равное $\approx 10^3$ V/cm. При наличии токов утечки, как отмечалось выше, величина равновесной энергии $E_L = E_{2S}$ смещается до значения E'_{2S} (т.е. из точки D в точку E).

В случае выбора исходной энергии $E_0 = E_m$ ($R_0 = R_M$) имеем положительный потенциал $+V_S$ в единицы вольт, причем $Q_- = 0$, $\Delta Q = Q_+$, поле F_{in} слабое (сотни V/cm), но все-таки образуется. Отсюда следует интересный, но неожиданный вывод: нельзя одновременно добиться условия равенства нулю потенциала V_S и зарядов Q_+ и Q_- . Иначе $V_S = 0$ при наличии некоторого равного количества зарядов $Q_+ = Q_-$, причем в этом случае только $\Delta Q = 0$. И обратно, если $Q_- = 0$, но $Q_+ \neq 0$, то имеем положительный потенциал $+V_S$. Отметим также следующее важное обстоятельство. Даже если $V_S = 0$, но образовались слои с равными величинами зарядов, под поверхностью может существовать очень сильное внутреннее поле F_{in} , генерированное потенциалами $|+V|$ и $|-V|$, равными, допустим, ± 10 V. Но так как расстояние между слоями мало (близко к значению $0.5 \mu\text{m}$), поле достигает величины $F_{\text{in}} = 4 \cdot 10^5$ V/cm. Если исходная энергия $E_0 > E_{2C}$, то всегда $Q_0 > Q_+$, т.е. ΔQ и потенциал V_S отрицательны и пропорциональны E_0 . И наконец, существует лишь единственная энергия $E_0 = E_{01}$ (при $R_0 < 3\lambda$), где $V_S = 0$, $\sigma = 1$, $Q_+ = Q_- = 0$, $F_{\text{in}} = 0$.

5. Заключение

Разработанная комплексная методика измерения основных характеристик зарядки диэлектриков электронными пучками средних энергий позволила экспериментально определить кроссоверные точки второй критической энергии первичных электронов для ряда диэлектриков, при которых мишень либо вообще не заряжается, или же приходит в состояние равновесия, когда $\sigma = 1$. Как правило, эта энергия в разы меньше по величине, чем для случая незаряженной диэлектрической мишени. В электронно-зондовых аналитических методах исследований (например, рентгеновский микроанализ, Оже-спектроскопия) следует учитывать, что существует только одна исходная энергия устойчивого равновесия E_{2S} , когда $\sigma = 1$ и поверхностный потенциал $V_S = 0$, но и при этой энергии образуется сильное внутреннее поле у поверхности диэлектрика, способное вызвать электромиграцию ионов или поляризацию приповерхностного слоя диэлектрика. И только в единственной точке энергий $E_0 = E_{01}$ достигается состояние, когда $V_S = 0$, $\sigma = 1$, $Q_+ = Q_- = 0$, $F_{in} = 0$, но при последнем условии возможна только сканирующая электронная микроскопия радиационно-чувствительных объектов. Для аналитических методов (Оже-спектроскопия, рентгеновский микроанализ) эта энергия ($E_{01} = 20-200$ eV) слишком мала при проведении количественных исследований.

Список литературы

- [1] С.Г. Боев, В.Я. Ушаков. Радиационное накопление заряда в твердых диэлектриках и методы его диагностики. Энергоатомиздат, М. (1991). 240 с.
- [2] И.М. Бронштейн, Б.С. Фрайман. Вторичная электронная эмиссия. Наука, М. (1969). 407 с.
- [3] А.Р. Шульман, С.А. Фридрихов. Вторично-эмиссионные методы исследования твердого тела. Наука, М. (1977). 552 с.
- [4] L. Reimer, U. Golla, R. Bongeler, M. Kassens, B. Schindler, R. Senkel. *Optik*. **92**, 14 (1992).
- [5] D. Joy, C. Joy. *Micron*. **27**, 247 (1996).
- [6] V.V. Aristov, L.S. Kokhanchik, K.P. Meyer, H. Blumtritt. *Phys. Stat. Sol. (a)* **78**, 229 (1983).
- [7] J. Cazaux. *J. Appl. Phys.* **85**, 1137 (1999).
- [8] J. Cazaux. *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B* **244**, 307 (2006).
- [9] F. Mady, R. Renoud, J.-P. Ganachaud. *J. Phys.: Cond. Matter* **14**, 231 (2002).
- [10] X. Meyza, D. Goeuriot, D. Treheux, H.-J. Fitting. *J. Appl. Phys.* **94**, 5384 (2003).
- [11] M. Touzin, D. Goeuriot, C. Guerret-Piecourt, D. Treheux, H. J. Fitting. *J. Appl. Phys.* **99**, 114 110.1 (2006).
- [12] H. Seiler. *J. Appl. Phys.* **54**, R 1 (1983).
- [13] L. Reimer. *Image formation in low-voltage scanning electron microscopy*. SPIE Press, Washington (1993). 144 p.
- [14] Nunes de Olivier, B. Gross. *J. Appl. Phys.* **46**, 3132 (1975).
- [15] Z.G. Song, C.K. Ong, H. Gong. *J. Appl. Phys.* **79**, 7123 (1996).
- [16] A. Melchinger, S. Hofmann. *J. Appl. Phys.* **78**, 6224 (1995).
- [17] М.В. Андрианов, В.В. Аристов, А.В. Гостев, Э.И. Рау. *Поверхность* **3**, 40 (2004).
- [18] М.В. Андрианов, А.В. Гостев, Э.И. Рау, Ж. Казо, О. Жбара, М. Белхании. *Поверхность* **12**, 9 (2000).