04;05;12 Анизотропия электрического пробоя в кристаллическом кварце

© Р.В. Емлин,¹ С.В. Барахвостов,¹ В.Д. Куликов²

¹ Институт электрофизики УрО РАН,
 620016 Екатеринбург, Россия
 e-mail: Ifd@iep.uran.ru
 ² Томский сельскохозяйственный институт,
 634009 Томск, Россия
 e-mail: vdkulikov@rambler.ru

(Поступило в Редакцию 30 июля 2008 г.)

Рассмотрен частичный пробой кристаллического диоксида кремния в импульсном неоднородном электрическом поле. Каналы электрического пробоя ориентированы в плоскостях расположения ионов кремния параллельных оси **с** кристалла (наблюдается до 6 эквивалентных направлений каналов). Процесс формирования каналов пробоя удовлетворительно описывается в рамках механизма каскадных оже-переходов с учетом кристаллохимической симметрии решетки кварца.

PACS: 52.80.-s, 52.80.Wq

Введение

Значительная часть исследований свойств электрического пробоя кристаллических диэлектриков, в частности электрической прочности кристаллов, кристаллографической направленности путей разряда, зависимости электрической прочности от температуры и длительности приложения поля выполнена с использованием щелочно-галоидных кристаллов [1–4]. Менее изучен электрический пробой в объемных и пленочных кристаллах оксидов с ионно-ковалентным типом связи, например, в диоксиде кремния, оксиде алюминия. Практический интерес к исследованиям пробоя диоксида кремния связан с прогнозированием поведения тонких слоев SiO₂ в микроэлектронике при высокой, близкой к предельной, напряженности электрического поля. Представления о формировании электрического пробоя в оксидах, несомненно, важны для разработки механизма оптического пробоя и повышения предельной мощности лазеров на легированных кристаллах лейкосапфира, а также работоспособности элементов оптических приборов.

Положительным фактором в решении проблемы пробоя являются разработка и использование генераторов наносекундных импульсов высокого напряжения с малой длительностью фронтов, что дает возможность изучать структуру, скорость, электрическую прочность частичного электрического пробоя в объемных образцах диэлектриков сантиметровых размеров без их механического разрушения [4-7]. В частности, был [7] обнаружен факт сильного различия скоростей распространения фронта пробоя в кристаллической и аморфной формах диоксида кремния, которые составляют соответственно $2.7 \cdot 10^8$ и $1.1 \cdot 10^8$ сm/s. В теоретическом плане предложен механизм генерации первичных электронов посредством каскадных оже-переходов в валентной зоне диэлектрика, позволяющий объяснить закономерности пробоя щелочно-галоидных кристаллов: кристаллографическую направленность и анодный характер пробоя, скорость движения фронта канала разряда [8,9].

В настоящей работе дано описание кристаллографической структуры каналов неполного электрического пробоя в монокристаллах диоксида кремния и обсуждается возможный механизм электрического пробоя.

Методика

Образцы для исследований в виде кубиков с размером грани 25 mm вырезались из оптически однородных гексагональных монокристаллов природного кварца. Две грани перпендикулярны оси с кристалла и эквивалентны плоскости (0001), две грани эквивалентны (1010) и третья пара эквивалентна плоскости (2110). Все грани куба полировались до оптического качества.

В экспериментальной установке образец помещался в центр камеры с трансформаторным маслом при комнатной температуре [7]. Игольчатый электрод с радиусом кривизны острия порядка ~ 50 µm соприкасался с поверхностью кристалла, роль катода выполняли стенки камеры диаметром 100 mm. На игольчатый электрод подавался импульс напряжения положительной полярности с выхода генератора типа "Радан-220" в режиме разомкнутой линии. Представленная схема является несогласованной нагрузкой для высоковольтного генератора, поэтому реальный импульс напряжения содержит также несколько отраженных импульсов с затухающей амплитудой. Амплитуда первого импульса в пачке составляла 240 kV, длительность на полувысоте каждого из последовательности затухающих импульсов — 5 ns, число импульсов в этой пачке — порядка шести-семи.

Каналы пробоя возникали на игольчатом электроде. При малой длительности имульса напряжения и удаленном катоде предотвращается сквозной пробой образца, что позволяет избежать механического разрушения кристалла, вызванного протеканием сквозного тока пробоя.

Результаты и их обсуждение

Характерный вид структуры каналов электрического пробоя с положительного острия вблизи различных граней образца кристаллического кварца изображен на рис. 1. Каналы пробоя имеют вид тонких прямолинейных лучей длиной ~ 5-10 mm и диаметром от единиц до нескольких десятков микрон. Каналы на различных гранях формируют фигуры, состоящие из системы ориентированных каналов. С плоскостей, эквивалентных (1010), в глубь кристалла развивается 4 канала пробоя (рис. 1), с плоскостей, эквивалентных (2110), в объем направлено 6 каналов пробоя (рис. 1, a). С поверхности (0001) формируется до 6 каналов пробоя (рис. 1, a). В образце можно выделить три плоскости параллельные оси с, включающие по два канала пробоя. Угол между каналами в плоскости пробоя составляет ~ 90°, угол между плоскостями — ~ 60°. Следует отметить, что на всех гранях отсутствуют каналы пробоя, ориентированные нормально к поверхности образца.

Фигуры пробоев сопоставлялись с картиной кристаллохимического строения диоксида кремния. Кристаллическая структура β -кварца в проекции вдоль оси с на плоскость (0001) приведена на рис. 2, *a* [10]. Размеры элементарной ячейки составляют: *a* = 5.01,



Рис. 1. Фотографии каналов пробоя вблизи различных граней образца монокристаллического кварца.



Рис. 2. Кристаллохимическое строение диоксида кремния: a — кристаллическая структура β -кварца в проекции вдоль оси с на плоскость (0001), b — расположение ионов кремния и кислорода в плоскости (1100), c — экспериментальная (пунктир) и расчетная плотность электронных состояний в α -кварце.

c = 5.47 Å [11]. Ячейка содержит три атома кремния, каждый из которых окружен четырьмя атомами кислорода. В каждом тетраэдре SiO₄ два кислородных иона располагаются несколько выше, а другие два — несколько ниже, чем ион кремния. Цифры означают относительную высоту ионов над плоскостью чертежа [10]. В плоскости структуры (рис. 2, *a*) имеется три эквивалентные цепочки ионов кремния, соединяющиеся между собой под углом 60°. Расположение ионов кремния и кислорода в плоскости (1100), параллельной оси **с** кристалла, показано на рис. 2, *b*.

Анализ экспериментальных данных пробоя и кристаллохимического строения диоксида кремния позволяет связать положение каналов разрядов с плоскостями расположения ионов кремния. Образование кристаллографически ориентированных каналов разрда в диоксиде кремния указывает на наличие определенного механизма электрического пробоя. Представляет интерес обсудить физическую природу механизма электрического пробоя с учетом данных кристаллохимического и энергетического строения кристалла и имеющихся теоретических моделей.

Экспериментальная и расчетная плотность электронных состояний в α-кварце приведена на рис. 2, с [11]. Две модификации кварца (низкотемпературная а-и высокотемпературная β -) незначительно отличаются по своей кристаллической структуре. При полиморфном превращении высокотемпературной модификации в низкотемпературную происходит небольшое смещение центров кремнекислородных тетраэдров, в результате чего имеет место уплотнение решетки и понижение ее симметрии [10]. Согласно [11–13], верхняя валентная зона имеет 2*p*-характер, а соответствующая ей электронная плотность локализована на атомах кислорода. Следующая валентная зона имеет электронную плотность, сосредоточенную между кремнием и кислородом, и состоит из 2*p*-орбиталей кислорода и 3*p*-орбиталей кремния. Несколько ниже, но в той же группе зон лежат 3s-состояния кремния. Отдельную глубокую зону образуют 2s-состояния кислорода. Нижняя зона проводимости имеет значительный вклад 3s- и 3p-состояний кремния, но есть и примесь 2*p*-состояний кислорода. Для α- и β-кварца ширина запрещенной зоны составляет соответственно ~ 8.8 и $8.82 \, \text{eV}$, нижней зоны проводимости — ~ 9 и 11 eV [11].

Образование каналов электрического пробоя в диоксиде кремния можно рассматривать с позиции модели ударной ионизации валентной зоны высокоэнергичными неравновесными электронами [2,3]. Модель реализуется при условии, что ширина нижней зоны проводимости превышает запрещенную зону диэлектрика, и в этом случае электроны разгоняются до необходимой энергии ионизации. Способность к ионизации имеют электроны, формирующие высокоэнергетический хвост функции распределения. Лавинообразное размножение носителей заряда позволяет обеспечить значительную плотность предпробойного тока до ~ 10^4 A/cm² [3]. К сожалению, модель ионизации валентных оболочек электронным ударом не отражает кристаллографической направленности каналов пробоя.

Зарождение и рост фигур пробоя можно связать с моделью, основанной на механизме генерации первичных электронов посредством каскадных оже-переходов в валентной зоне диэлектрика [8,9]. Начало формирования канала пробоя в кристалле определяют процессы на границе металл–диэлектрик [9]. При напряженности поля в диэлектрике $\sim 10^6$ V/cm реальная напряженность вблизи микроострий электрода может быть более $\sim 10^8$ V/cm [14,15]. Схема энергетических зон в металле и диэлектрике в сильном электрическом поле с уче-



Рис. 3. Схема каскадных оже-переходов в кристалле SiO₂ в сильном электрическом поле. W_c , W_v , W_F — уровни энергии: дна зоны проводимости, потолка валентной зоны кристалла и ферми-металла.

том структурного и энергетического строения диоксида кремния приведена на рис. 3.

В приповерхностной области диэлектрика за счет туннельного перехода электронов в металл идет образование ионов О⁰ с двумя дырками на 2*p*-уровне. Движение канала разряда связано с релаксацией этих дырок и генерацией электронов в зону проводимости.

Наиболее вероятно, что в процессе рекомбинации дырки участвует соседний ион кислорода (рис. 3) путем межатомного оже-перехода с переносом электрона на O^0 с 2p-уровня иона O^{2-} и последующей генерацией ожеэлектрона в зону проводимости.

Возможно, что рекомбинация 2p-дырки на ионе кислорода связана с резонансным переходом электрона с более низкой валентной O2p, Si3p, 3s-зоны, образованной 3p, 3s-уровнями кремния и 2p-уровнями кислорода (см. рис. 3). Последующий распад дырки в O2p, Si3p, 3sзоне происходит в результате переноса электрона с 2p-уровня O^{2-} в O2p, Si3p, 3s-зону и последующей генерации оже-электрона в зону проводимости.

Вероятность перехода оже-электрона в зону проводимости становится отличной от нуля при условии, что минимальный зазор энергии между 2*p*-уровнями соседних ионов кислорода, а во втором случае — между серединами валентных O2*p*- и O2*p*, Si3*p*, 3*s*-зон (рис. 3) не меньше ширины запрещенной зоны кристалла.

В щелочно-галоидных кристаллах необходимые изгибы зон для оже-переходов дает электрическое поле слоя двукратно заряженных ионов галоида. Направленное движение заряженных ионов галоида нейтрального кристалла реализуется при условии, что за слоем двукратно заряженных ионов галоида имеются положительно заряженные слои. Это возможно, если внешнее поле вытягивает электроны из области положительного объемного заряда, чтобы исключить процесс рекомбинации [9]. Вероятно, процесс образования канала прибоя в диоксиде кремния формируется подобным образом. На это указывает анодный характер пробоя, характерное значение скорости движения канала пробоя ~ 10⁸ cm/s. Относительно различия скорости распространения фронта пробоя в аморфном и кристаллическом диоксиде кремния [7] можно предположить, что в предлагаемой модели результирующая скорость движения канала пробоя определяется скоростью передачи ожевозбуждения v и скоростью вытягивания электронов из области объемного заряда v_1 . Учитывая, что в каскадном оже-процессе передача электронов идет от атома к атому, а время оже-перехода составляет $\tau \approx 10^{-14} - 10^{-15}$ s [9] $v = 1 \text{ сm}/N\tau$, где N — число ионов на длине 1 сm, получаем $v \approx 10^7 - 10^8$ cm/s. Видимо, лимитировать процесс движения канала пробоя будет скорость $v_1 = \mu E$ за счет низкой подвижности электронов μ .

Согласно схеме (рис. 3), движение канала в общем случае связано с переносом положительного заряда последовательно по ближайшим ионам кислорода и генерацией оже-электронов в зону проводимости. Таким образом, как видно из схемы кристаллического строения кристалла (рис. 2, *a*, *b*) в каждой из трех плоскостей, содержащих ионы кремния и расположенной параллельно оси **с**, формируются два направления каналов пробоя по атомам кислорода (показанные стрелками): влево в глубь и вправо в глубь образца. В этом случае при пробое с плоскостей (0001) и ($\overline{2}110$) формируется 6 каналов пробоев, с плоскости ($10\overline{10}$) будет развиваться 4 канала пробоя, что подтверждается экспериментальными данными.

Заключение

Каналы электрического пробоя кристаллического SiO_2 имеют направленный характер с ориентацией вдоль плоскостей расположения ионов кремния параллельных оси с кристалла. Картина структуры пробоев удовлетворительно описывается в рамках механизма генерации первичных электронов посредством каскадных ожепереходов с учетом кристаллохимического строения кварца. Существенно, что данный механизм пробоя имеет общий характер для кристаллов с ионным и ионноковалентным типами связи.

Работа выполнена при поддержке гранта РФФИ № 06-08-00124-а.

Список литературы

- [1] Gaspari M.E. // Phys. Rev. 1955. Vol. 98. N 9. P. 1679-1691.
- [2] Сканави Г.И. Физика диэлектриков (Область сильных полей). М.: Физикатгиз, 1958. 907 с.
- [3] Воробьев А.А., Воробьев Г.А. Электрический пробой и разрушение твердых диэлектриков. М.: Высш. шк., 1966. 234 с.
- [4] Вершинин Ю.Н. Электронно-тепловые и детонационные процессы при электрическом пробое твердых диэлектриков. Екатеринбург: Изд-во УрО РАН, 2000. 258 с.

- [5] Vershinin Yu.N., Barakhvostov S.V. // Conf. on "Technical and Physical Problems in Power Engineering". Ankara, 2006. P. 624.
- [6] Емлин Р.В., Вершинин Ю.Н., Белоглазов В.А. // Мат. IX Симп. по сильноточной электронике. 1992. С. 299.
- [7] *Емлин Р.В., Гилёв А.С. //* ЖТФ. 2009. Т. 79. Вып. 1. С. 140–143.
- [8] *Куликов В.Д.* // Письма в ЖТФ. 2000. Т. 26. Вып. 4. С. 77–82.
- [9] Куликов В.Д. // ЖТФ. 2009. Т. 79. Вып. 1. С. 60-65.
- [10] Бетехтин А.Г. Курс минералогии. М.: КДУ, 2008. 736 с.
- [11] Li Y.P., Ching W.Y. // Phys. Rev. B. 1985. Vol. 31. N 4. P. 2172–2179.
- [12] Chelikowsky J.R., Schluter M. // Phys. Rev. B. 1977. Vol. 15. N 8. P. 4020–4029.
- [13] Calabrese E., Fowler W.B. // Phys. Rev. B. 1978. Vol. 18. N 6.
 P. 2888–2896.
- [14] Little R.P., Whitney W.F. // J. Appl. Phys. 1963. Vol. 34. N 8. P. 2430–2436.
- [15] Месяц Г.А., Проскуровский Д.И. Импульсный электрический разряд в вакууме. Новосибирск: Наука, 1984. 256 с.