

低能电子束照射接地绝缘薄膜的负带电过程^{*}

李维勤 张海波[†]

(西安交通大学电子科学与技术系教育部电子物理与器件重点实验室, 西安 710049)

(2007 年 9 月 18 日收到, 2007 年 10 月 17 日收到修改稿)

为揭示低能电子束照射接地绝缘薄膜的负带电过程及其机理, 建立了同时考虑电子散射与电子输运的计算模型, 综合 Monte Carlo 方法和有限差分法进行了数值模拟, 获得了内部空间电荷、泄漏电流和表面电位随电子束照射的演化规律. 结果表明, 入射电子因迁移、扩散效应会超越通常的散射区域产生负空间电荷分布, 并经过一定的渡越时间后到达接地基板, 形成泄漏电流, 负带电暂态过程则随着泄漏电流的增加而趋于平衡. 在平衡状态下, 泄漏电流随电子束能量和电流而增大, 薄膜净负电荷量和表面电位随膜厚而增加、随电子迁移率的增大而降低, 随着电子束能量的变化均会出现最大值.

关键词: 绝缘薄膜, 电子束照射, 带电效应, 数值模拟

PACC: 7360H, 6180F, 7220D, 7115Q

1. 引 言

电子束与样品相互作用是目前扫描电镜成像与检测、电子束探针微分析以及电子束曝光技术中的一个重要研究课题^[1-10]. 其中, 起因于电子束照射的绝缘样品带电效应会改变从样品表面出射的二次电子和入射电子的运动状态^[11-13], 从而影响成像、检测和微细加工的精度^[14-16]. 虽然这种带电效应在能量低于 5 keV 的低能电子束装置中可得到抑制^[17, 18], 但无法被彻底消除. 另一方面, 电子束照射的带电效应又具有可利用的前景, 比如通过扫描电镜已观测到带电绝缘样品的埋层微结构^[19-23]与深层陷阱^[24], 尝试了对半导体样品的参数测量^[25]和成像^[26].

电子束照射绝缘样品的带电效应是由入射样品的电子束电流和离开样品的二次电子电流(包含本征二次电子与背散射电子)与泄漏电流之间的不平衡所致. 其带电过程同时受到样品条件和入射电子束条件的影响, 是一个很复杂的过程^[1, 2]. 对于体绝缘样品或者非导电衬底绝缘样品, 其泄漏电流近似为零, 所以带电状况主要由入射电子束的条件所决

定. 当电子束能量大于使二次电子产额等于 1 的第二临界能量的时候, 电子束电流会大于从样品表面出射的二次电子电流, 样品因此负带电^[18].

对于上述可忽略泄漏电流的厚绝缘样品的负带电过程, 近年来理论分析^[27, 28]、Monte Carlo 模拟^[29, 30]和实验测量^[31, 32]的结果均表明, 样品内部积累的电子随电子束照射而增加, 表面电位因此降低, 而表面电位的大幅度下落又会降低电子束到达样品时的有效能量, 从而增加二次电子产额和二次电子电流, 使带电过程趋向稳定, 达到平衡. 然而, 接地绝缘样品表面平衡电位的实测值却因泄漏电流的作用而急剧上升^[33]. 扫描电镜的实验结果也显示, 低能电子束照射接地绝缘样品时, 其负带电效应会比较容易地达到平衡^[21]. 这些实验结果说明, 泄漏电流对绝缘样品的负带电过程有很大的影响, 而泄漏电流又取决于样品特性及其对地电导和入射电子束能量与电流条件.

具有导电性接地衬底的数百纳米厚的绝缘薄膜在各种微电子器件、纳米器件、单电子器件和射频集成器件中得到广泛的应用. 这里, 能量小于 5 keV 的低能电子仅通过散射一般不能穿透这类绝缘薄膜^[2]. 尽管如此, 如果视薄膜的接地衬底为零电位,

^{*} 国家自然科学基金(批准号: 60476018)资助的课题.

[†] E-mail: hbzhang@mail.xjtu.edu.cn

那么负带电时表面附近的电子便会朝衬底向下运动形成泄漏电流,又称电子束感生电流(electron beam induced current)^[34-36],从而影响带电过程.但是,在绝缘薄膜样品为数很少的 Monte Carlo 模拟结果中,负带电过程未能达到平衡^[37].这显然与实验结果^[21,33]不一致,其主要原因是没考虑实验样品通常经衬底接地的特点.所以,绝缘薄膜内部的电子散射和电荷输运过程在定量处理、分析方面仍然比较复杂,至今未见在考虑泄漏电流条件下研究低能电子束照射绝缘薄膜负带电过程的系统报道.

本文涉及 5 keV 以下的低能电子束照射具有底部接地结构的厚度为 200—500 nm 的绝缘薄膜的负带电过程及其机理的数值模拟研究.我们建立同时考虑绝缘薄膜内部电子散射和输运过程的计算模型,将 Monte Carlo 方法与有限差分法相结合,模拟不同入射电子束条件和薄膜参数时的薄膜内部电荷分布和泄漏电流、净空间电荷量、表面电位及其时变特性,分析负带电形成和演化的过程以及相关的影响因素.其中,相关的绝缘薄膜参数是以 SiO₂ 薄膜为例来选取的.

2. 模型与方法

2.1. 电子散射

入射电子与样品原子间的散射可分为与带正电的原子核间的弹性散射和使原子激发的非弹性散射.弹性散射仅改变电子运动方向,非弹性散射使电子损失能量.作为电子散射的结果,少量电子从样品表面逸出成为背散射电子,大部分电子因能量逐渐减小到零而沉积在样品内部.本文忽略样品材料缺陷对具有一定能量的电子的俘获作用.此外,如果入射电子在相邻两次散射之间损失的能量大于样品材料的禁带宽度(对 SiO₂ 为 9 eV),则有二次电子产生,同时形成空穴.一个具有一定能量的入射电子在其能量耗尽之前的全部散射过程中,因非弹性散射通常会产生大量的这种电子空穴对.二次电子在处理上类似于入射电子,可进行进一步的散射.然而,样品浅表层的能量较高的二次电子会从表面出射,而大部分二次电子因能量较低而迅速沉积在样品内部^[38].

能量低于 10 keV 的低能非极化电子的弹性散射过程可采用 Mott 弹性散射微分截面来描述^[39-41],

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = |f(\theta)|^2 + |g(\theta)|^2, \quad (1)$$

其中, σ 是散射截面, Ω 表示立体角, 散射角 θ 为电子两次散射之间运动方向的夹角, $f(\theta)$ 和 $g(\theta)$ 是分波散射振幅.进一步, Mott 弹性散射总截面 σ_T 可写成

$$\sigma_T = 2\pi \int_0^\pi \frac{d\sigma}{d\Omega} \sin\theta d\theta. \quad (2)$$

对于低能电子非弹性散射过程,采用改进的 Bethe 连续能量损失经验公式,可得到能量为 E 的电子相对于散射步长 S 的平均能量损失率^[42]

$$\frac{dE}{dS} = - \frac{7.85 \times 10^4 \rho \bar{Z}}{EA} \ln[1.16(E + k\bar{J})\bar{J}] \quad (3)$$

其中, ρ , \bar{A} , \bar{J} 和 \bar{Z} 分别表示样品材料的密度、平均原子量、平均电离能和平均原子序数, k 为修正系数.对 SiO₂ 有 $\rho = 2.26 \text{ g/cm}^3$, $\bar{A} = 20 \text{ g/mol}$, $\bar{J} = 0.139 \text{ keV}$, $\bar{Z} = 10$, $k = 0.85$.

2.2. Monte Carlo 模拟

电子散射时运动方向的角度变化和能量损失可以用随机数来表示^[42].电子在第 n 次散射和第 $n+1$ 次散射之间的步长 S 、散射角 θ 、散射方位角 ψ 和能量损失 ΔE 分别满足

$$\begin{aligned} S &= - \frac{A}{N_a \rho \sigma_T} \ln(R_1), \\ R_2 &= \frac{1}{\sigma_T} \int_0^\theta \frac{d\sigma}{d\Omega} \sin\alpha d\alpha, \\ \psi &= 2\pi R_3, \\ \Delta E &= S \frac{dE}{dS}, \end{aligned} \quad (4)$$

其中, A 是碰撞原子的原子量, N_a 为阿伏伽德罗常数, R_1, R_2, R_3 是 $[0, 1]$ 上均匀分布的随机数.这样,在电子第 n 次散射后的方位坐标、方位角余弦、能量 E_n 的基础上,第 $n+1$ 次散射后的方位坐标和方位角余弦便可以通过(4)式定义的 S, θ 和 ψ 来确定.电子能量满足 $E_{n+1} = E_n + \Delta E$.此外,在本研究中(4)式涉及的 Mott 弹性散射微分截面是以近似计算公式得到的不同能量和散射角时的微分截面数据^[40]为基础,采用查表和插值相结合的方法求得.

对于由多种元素组成的样品,电子与其中第 i 种元素的原子的碰撞概率为

$$P_i = C_i \sigma_i / \sum_{i=1}^m C_i \sigma_i, \quad (5)$$

其中, C_i 和 σ_i 分别表示第 i 种元素的原子百分比和

Mott 弹性散射总截面, m 表示样品的元素种类数. 如果在 $[0, 1]$ 上均匀分布的随机数 R_4 满足

$$\sum_{j=1}^{i-1} p_j < R_4 < \sum_{j=1}^i p_j, \quad (6)$$

其中 $j=0$ 时 $p_0=0$, 则电子与样品中第 i 种元素的原子碰撞.

2.3. 电子输运

经过上述散射过程沉积在绝缘样品内部的作为载流子的电子和空穴在内部电场和载流子密度梯度的作用下会进行包括迁移和扩散在内的电荷输运. 为简化计算, 本文仅考虑电子的迁移和扩散, 并忽略电子空穴间的复合效应.

图 1 给出了作为本文研究对象的 SiO_2 绝缘薄膜样品的简化模型以及相关电流的示意图. 这里, 假设薄膜为圆柱体(厚度 H , 半径 R_0), 薄膜下方为接地金属基板. 入射电子束设为半径 50 nm 的圆形均匀理想分布. 取薄膜上表面电子束照射中心为圆柱坐标系的原点, 薄膜的半径方向为 r 轴, 电子束入射方向为 z 轴, 整个系统相对于 z 轴对称. I_{PE} , I_{S} 和 I_{E} 分别表示入射电子束电流、出射二次电子电流和经基板的泄漏电子电流(以下简称泄漏电流). 为方便处理, 本文涉及从样品表面出射的二次电子及其相关概念与计算的时候, 均包括本征二次电子和背散射电子.

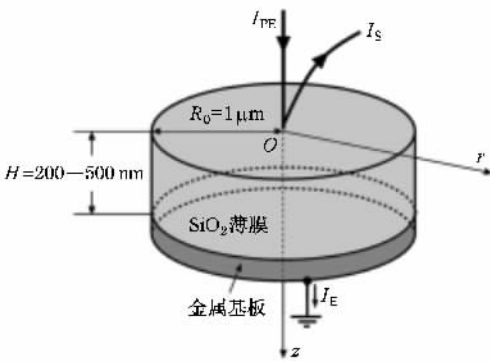


图 1 电子束照射接地绝缘薄膜的简化计算模型和流入、流出薄膜的电子电流的示意图

薄膜内电子密度 $n(r, z, t)$, 空穴密度 $h(r, z, t)$ 和电流密度 $\mathcal{J}(r, z, t)$ 以及薄膜内外的空间电位分布 $V(r, z, t)$ 满足由电流连续性方程、电子输运方程和泊松方程组成的联立方程:

$$\frac{\partial n(r, z, t)}{\partial t} = \frac{1}{q} \nabla \cdot \mathcal{J}(r, z, t), \quad (7)$$

$$\mathcal{J}(r, z, t) = -q\mu n(r, z, t) \nabla V(r, z, t) + qD \nabla n(r, z, t), \quad (8)$$

$$\nabla^2 V(r, z, t) = -q [h(r, z, t) - n(r, z, t)] / \epsilon. \quad (9)$$

这里, q 代表电子电量的绝对值, ϵ 是介电常数, μ 和 D 表示电子的迁移率和扩散系数, 服从 Nernst-Einstein 方程 $D = \mu k_{\text{B}} T / q$, 其中 k_{B} 代表玻尔兹曼常数, T 为温度, 在本文中取 $T = 300 \text{ K}$. 由此, 一旦迁移率给定, 则扩散系数也随之确定, 所以在下文中就以迁移来代表迁移与扩散的共同作用.

本文对微分方程组(7)–(9)采用有限差分法求解. 初始条件设为 $V(r, z, 0)$, $n(r, z, 0)$ 和 $h(r, z, 0)$ 均等于零, 边界条件取接地金属基板的电位为零. 在求解绝缘薄膜表面电位分布时要考虑镜像电荷, 以满足薄膜与真空界面的边界条件. 另外, 设定 $\Delta t = q / I_{\text{PE}}$ 时间内有一个电子入射样品并完成所有散射, 那么全部散射在样品内产生的包括二次电子或自身在内的电子密度 $g(r, z, \Delta t)$ 须计入总电子密度 $n(r, z, t_n + \Delta t)$.

在 t 时刻的绝缘薄膜泄漏电流 I_{E} 可表达为

$$I_{\text{E}} = - \int_0^{R_0} 2\pi r \mathcal{J}(r, H, t) \cdot z \, dr, \quad (10)$$

而薄膜内部因带电产生的负电荷量 Q_n 可由流入薄膜的净电子电流对时间的积分来确定:

$$Q_n = \int_0^t (I_{\text{PE}} - I_{\text{S}} - I_{\text{E}}) \, dt. \quad (11)$$

2.4. 数值模拟流程

综上, 同时考虑电子散射和电子输运过程, 采用 Monte Carlo 方法和有限差分法进行电子束照射绝缘薄膜负带电过程数值模拟的流程如下:

- 1) 在 t_n 时刻, 根据载流子密度 $n(r, z, t_n)$ 和 $h(r, z, t_n)$, 用差分法计算电位 $V(r, z, t_n)$;
- 2) 由 $n(r, z, t_n)$ 和 $V(r, z, t_n)$, 用差分法计算 $t_n + \Delta t$ 时刻的电子密度 $n(r, z, t_n + \Delta t)$;
- 3) 采用 Monte Carlo 方法模拟 Δt 时间内一个入射电子在薄膜内部的全部散射过程, 得到 Δt 时间内沉积的电子密度 $g(r, z, \Delta t)$ 和 $t_n + \Delta t$ 时间内累计空穴密度 $h(r, z, t_n + \Delta t)$;
- 4) 将散射沉积的电子计入电子密度, 赋值: $n(r, z, t_n + \Delta t) = n(r, z, t_n) + g(r, z, \Delta t)$;
- 5) 赋值 $t_n = t_n + \Delta t$ 后转到 1), 直至所有的入射电子.

3. 数值模拟结果及其分析

基于上述模型、方法和流程,我们编制了模拟低能电子束照射绝缘薄膜带电过程的 C^{++} 程序.关于模拟参数,以下无特殊注明时,电子束能量为 2 keV,电子束电流为 16 pA,膜厚为 500 nm,电子迁移率为 $10^{-5} \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$.其中,电子迁移率与材料、工艺条件和工作条件有很大关系.为了兼顾绝缘材料的高阻特性,本文选用了相对比较低的电子迁移率^[43].另外,所开发的程序在空间差分网格 10 nm、电子束照射 100 μs 、时间步长 $\Delta t = 10 \text{ ns}$,Intel 酷睿 1.86 GHz 双核微机的条件下,一次完整的计算大致需要 10 h.

3.1. 二次电子产额

如前所述,电子束照射绝缘样品时,二次电子产额是影响样品带电状态的一个重要因素.这里的二次电子产额指的是总产额,即从样品表面出射的包括本征二次电子和背散射电子在内的总电子流与入射电子束电流之比.图 2 是利用上述电子散射模型,经 Monte Carlo 模拟得到的 SiO_2 二次电子产额 δ 与入射电子束能量的关系.这与文献^[30]中的实验结果和 Monte Carlo 模拟结果基本相符.从图 2 还可看到,使 $\delta = 1$ 的第二临界能量约为 1.5 keV.所以, SiO_2 体绝缘样品在电子束能量大于 1.5 keV 时会负带电, SiO_2 薄膜样品的带电状态也可参考此条件来大致地判断.但是,二次电子产额及其第二临界能量往往与样品的特性和表面的状态有很大关系,它们的数值会因条件不同而有所变化,一般可认为电子束照射 SiO_2 的第二临界能量为 1—1.5 keV^[30, 38, 44].

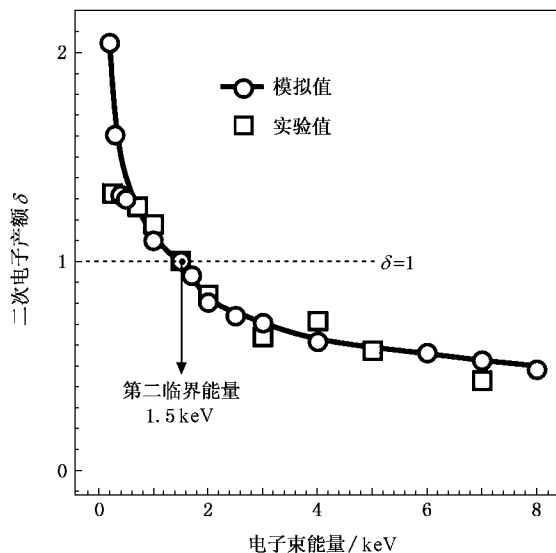


图 2 SiO_2 二次电子产额与入射电子束能量关系的模拟结果和实验结果^[30]

3.2. 电子散射、迁移与空间电荷分布

图 3 是用 Monte Carlo 方法模拟得到的仅考虑电子散射时不同电子束照射时间条件下的空穴密度、电子密度以及净电荷密度的分布.在本文中,净电荷密度等于空穴电荷密度与电子电荷密度之差.从中不难看出,空穴、电子和净电荷集中分布在 $z < 150 \text{ nm}$ 的散射区域内,在该区域外载流子和净电荷基本为零.这种电子散射区域的范围会随入射电子能量而增大,随样品材料平均原子量的增大而减小^[2].另外,从图 3(a)和(b)的模拟结果看,电子束照射时间变化时,载流子分布基本不改变.从图 3(c)还可知在薄膜浅表层 ($z < 10 \text{ nm}$) 净电荷密度为正,说明在电子散射过程中二次电子从表面出射使得该逸出深

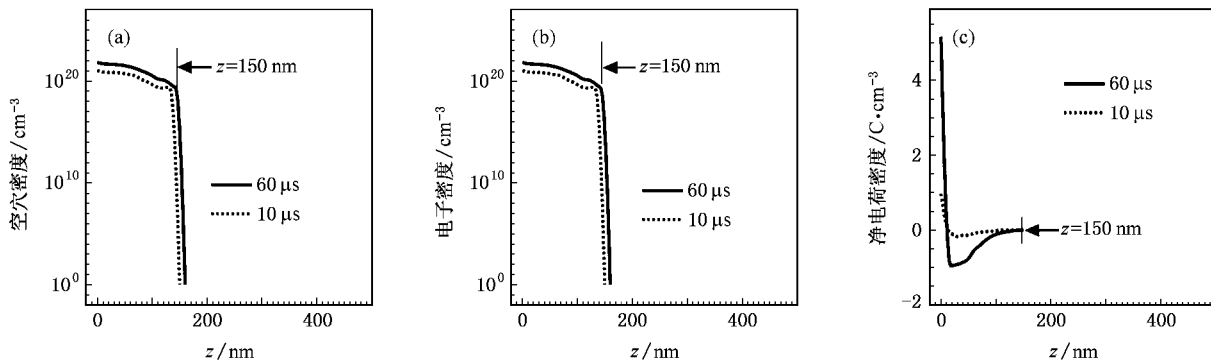


图 3 电子束照射时间分别为 10 μs 和 60 μs 时,仅散射导致的(a)空穴密度、(b)电子密度和(c)净电荷密度沿照射中心方向的深度分布

度内空穴居多.值得注意的是,这种仅考虑散射的 Monte Carlo 模拟对了解入射电子能量损失和二次电子发射具有较高的参考价值,但是由于它忽略了载流子形成的电场对自身的作用,所以并不是一种自洽的计算,得到的电子分布会偏离真实状况.

图 4 给出了综合考虑电子散射、迁移时不同电子束照射时间条件下的载流子密度和净空间电荷密度沿绝缘薄膜深度方向分布的模拟结果.首先,由图 4(a)和(c)可以看到,在薄膜深度 $z < 150$ nm 的散射区域内部,空穴和电子的密度都比较高,但净电荷密度基本为零,所以是一种满足准电中性条件的等离子体状态,而在散射区域两端密度较高的负电荷分布构成了等离子体鞘层.这种分布特点应该源于该区域内电子非弹性散射产生的大量电子空穴对和浅表层的二次电子出射.其次,由于空穴的迁移率远远低于电子迁移率而在本文中被认为是零,所以图 4(a)显示出空穴密度在 $z > 150$ nm 的散射区外均为零.但更为重要的是,图 4(b)表明经一定时间的电子束照射,在散射区外至薄膜深处会出现电子分布.与仅考虑电子散射时的情况不同,这里的入射电子

因迁移作用会超越通常的散射区域,绝缘薄膜负带电主要由这种在散射区外的负空间电荷所致.再者,如图 4(c)放大的线性坐标系下的结果所示,由电子决定的净电荷密度(负空间电荷密度)在散射区右侧边缘处最大,然后沿深度方向逐渐减小而趋向零.这种分布形态是因电子迁移造成的,同时又提供了电子迁移(含扩散)所需的由基板指向散射区的电场以及电子密度梯度场.这里,入射电子从散射区边缘漂移至基板需要一定的渡越时间,所以不同的电子束照射时间会导致不同的电荷分布,这也说明电子迁移相对电子散射是比较慢的过程.进一步,如图 4(c)所示,经 $60 \mu\text{s}$ 较长时间的电子束照射后,在 500 nm 厚的薄膜的底部有电子产生的净负电荷分布,这说明入射电子已抵达接地基板而形成泄漏电流.最后一点,如图 4(c)所示,在电子束照射时间 $10 \mu\text{s}$ 时,净电荷密度先在 $z = 140$ nm 附近出现极大值,然后在 $z = 150$ nm 附近又呈现极小值.产生这种现象的原因是,在 $z = 140$ nm 的散射区边缘附近,电子密度由于迁移效应先于空穴密度减小,但在 $z = 150$ nm 附近空穴密度会急剧降为零而电子密度缓慢降低.

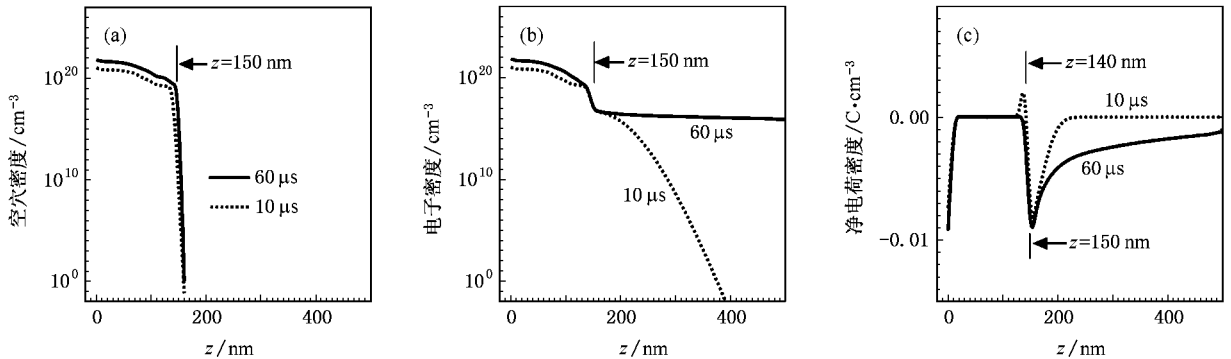


图 4 电子束照射时间分别为 $10 \mu\text{s}$ 和 $60 \mu\text{s}$ 时,电子散射和迁移共同形成的(a)空穴密度、(b)电子密度和(c)净电荷密度沿照射中心方向的深度分布

图 5 为载流子密度和净空间电荷密度在薄膜表面沿径向 r 方向分布的模拟结果.从中可以看出,在 r 方向的电子散射区域约为 180 nm.这是因为入射电子束半径会使得 r 方向散射区域略大于 z 方向的散射区域.此外,在半径 $r < 180$ nm 的散射区域内空穴和电子的密度比较高,在 $r > 180$ nm 的区域,空穴密度为零,电子密度不为零,同样存在由电子形成的负空间电荷分布;净电荷密度在 $z = 180$ nm 时有极小值.形成这些载流子和电荷密度分布的原因都可以用图 4 相关结果的分析来解释.这里,电子分布在 z, r 两个方向上相似的结果也表明,入射电子在样

品内部呈近似半球形分布.但是,由于薄膜 z 方向的尺度一般都远小于 r 方向的尺度,所以在散射区域一定的情况下,电子在 z 方向的迁移特性对绝缘薄膜负带电过程起着更重要的作用.

入射电子因迁移形成的在散射区外至基板间的负空间电荷分布是低能电子束照射接地绝缘薄膜带电效应的一个关键环节.图 6 给出了在电子束长时间照射条件下电子束能量与电流以及电子迁移率对深度 z 方向上净电荷密度分布的影响规律.由图 6(a)可知,随着电子束能量的提高,电子的散射区域会变大,薄膜内部的负空间电荷密度会降低.图 6

(b) 的模拟结果表明, 电子束电流虽然不同, 但最终的负空间电荷分布几乎一样, 即由(11)式决定的绝缘薄膜净负电荷量(以下统称负空间电荷量)相等. 图(c)则表明, 电子迁移率越高, 薄膜内部负空间

电荷越少, 负带程度会降低. 这时, 电子迁移率增高会直接导致电子的平均漂移速度增大, 并产生更强的泄漏电流, 但入射电子束电流一定, 所以薄膜内部留下的负空间电荷会减少.

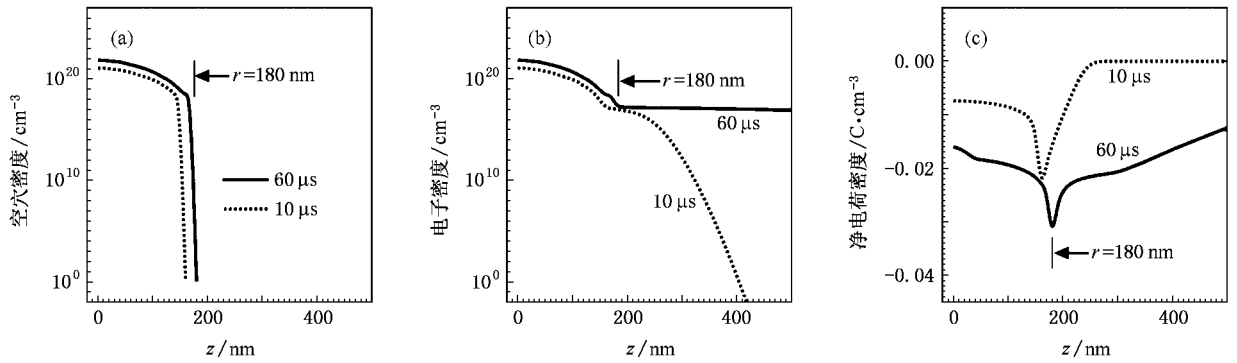


图5 电子束照射时间分别为 $10 \mu\text{s}$ 和 $60 \mu\text{s}$ 时, 由电子散射和迁移共同形成的在表面附近的(a)空穴密度、(b)电子密度和(c)净电荷密度的径向分布

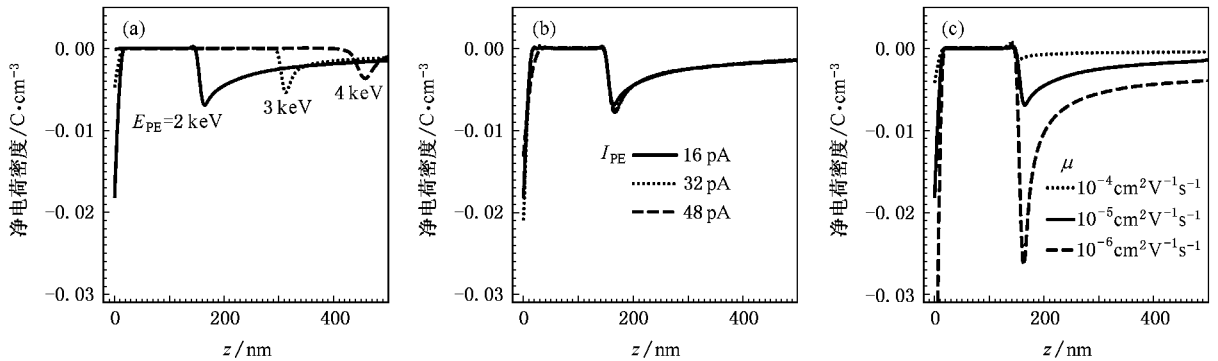


图6 在电子束照射时间 $100 \mu\text{s}$ 的条件下 (a)不同入射电子束能量 E_{PE} (b)不同电子束电流 I_{PE} 和 (c)不同电子迁移率 μ 时的净电荷密度沿照射中心方向的深度分布

3.3. 负带电过程及其平衡机理

从上述结果及其分析可知, 泄漏电流的产生和变化直接影响薄膜负带电进程和负空间电荷量. 下面介绍负带电过程中泄漏电流、负空间电荷量和电子束照射中心点表面电位(以下简称表面电位)随电子束照射而演化的模拟结果.

图7给出不同薄膜厚度条件下的泄漏电流、负空间电荷量及表面电位的时变特性. 首先可以看到, 带电过程中的泄漏电流和负空间电荷量随电子束照射而增大, 而表面电位随照射时间而下降, 都呈现从暂态到稳态而达到平衡的现象. 由图7(a), 薄膜越厚, 泄漏电流的延迟时间就越长, 从泄漏电流出现至平衡态所需的过渡时间也越长. 这是因为薄膜越厚,

电子从散射区边缘漂移到基板形成泄漏电流的渡越时间越长, 而且如图7(b)所示的那样, 内部的负空间电荷量会越多, 过渡时间也就越长. 这里, 本文经模拟得到的负带电暂态效应及其平衡过程和泄漏电流的延迟效应, 可以解释最近绝缘薄膜样品内负带电微结构的扫描电镜图像随电子束照射所呈现的类似现象^[21-23].

在负带电的暂态过程趋于稳定后, 如图7(a)所示, 薄膜厚度不同时其泄漏电流平衡值是相同的. 对此, 可以从流入和流出薄膜的电流平衡条件来解释. 由于离开样品的电子电流 I_S 与入射电子束电流 I_{PE} 满足 $I_S = \delta I_{PE}$, 所以薄膜净电流为零的条件变成

$$I_E = I_{PE}(1 - \delta). \quad (12)$$

这里, 使负带电停止的泄漏电流 I_E 的平衡值仅与

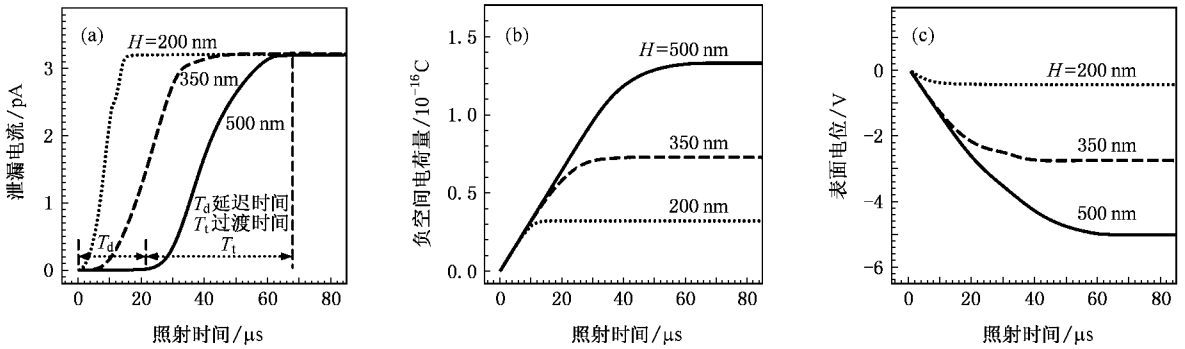


图7 不同绝缘薄膜厚度 H 时 (a) 泄漏电流、(b) 负空间电荷量和 (c) 电子束照射中心点表面电位随电子束照射的时变特性

J_{PE} 和二次电子产额 δ 有关, 因此, 在电子束电流固定的情况下, 电子束能量一定, δ 也就一定, 泄漏电流平衡值不变. 但在另一方面, 厚薄膜对应的泄漏电流延迟时间较长, 达到稳态的过渡时间也较长, 这时会有更多的电子注入薄膜. 其结果如图 7 (b) 和 (c) 所示, 负空间电荷增多, 薄膜表面电位下降. 而在泄漏电流产生后, 在薄膜内电子散射区边缘附近聚集的部分电子通过迁移流入基板而损失掉, 表面电位才会趋向稳定. 所以, 最终的负空间电荷量和表面平衡电位绝对值会随着膜厚的增大而增加.

图 7 的系列结果表明, 泄漏电流及其演化特性是影响负带电过程和强度的重要因素. 当泄漏电流的增加使得流入薄膜的净电流为零的时候, 负带电过程随之停止而达到稳定的平衡状态. 其中, 负带电形成和演化的空间尺度在体绝缘厚样品中仅相当于近表面的区域. 与厚样品的情况不同, 本文中的电子散射区域已经与薄膜厚度可比拟, 所以电子迁移特性会对负带电过程产生较大的影响. 另外, 由图 7 (b) 和 (c) 可知, 此时最大负空间电荷量仅由约 830 个电子所构成, 虽然电子数目不多, 但在电子束能量 2 keV、膜厚 500 nm、电子迁移率 $10^{-5} \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ 的条件下仍可以产生约 -5 V 的表面平衡电位.

模拟结果还表明, 入射电子束电流越强, 泄漏电流、负空间电荷量和表面电位从照射开始至平衡的时间越短. 这是由于电子束电流较强的时候, 在薄膜内聚集的负空间电荷比较多, 由基板指向散射区的电场以及电子密度梯度场比较强, 电子从散射区域边缘漂移至基板的渡越时间和达到平衡的过渡时间会缩短. 但是, 电子束电流不会改变表面平衡电位, 这是因为如图 7 (b) 所示, 经电子束长时间照射达到平衡时, 由 (12) 式知泄漏电流随电子束电流成比例地增大, 所以负空间电荷分布不会改变, 入射电子在

薄膜内产生的负空间电荷量和形成的表面平衡电位也就不变, 即负带电强度不变. 总之, 电子束电流只改变负带电进程的快慢程度, 而不影响负带电结果.

类似地, 绝缘薄膜的电子迁移率越高, 泄漏电流、负空间电荷量和表面电位达到平衡的时间会越短. 这是由于电子迁移率越高, 电子漂移速度和泄漏电流就越大, 泄漏电流延迟时间和泄漏电流达到其平衡值的过渡时间也就越短. 但是, 由 (12) 式, 泄漏电流平衡值与电子迁移率无关. 在另一方面, 如图 6 (c) 所示, 入射电子在薄膜内产生的负空间电荷量随电子迁移率的增大而减少, 对应的表面平衡电位绝对值降低, 负带电强度会变弱. 对于迁移率较高的半导体材料^[45], 虽然表面平衡电位的绝对值比较低, 但因为与样品特性和内部积累的电荷有着直接的关联, 所以仍然可以用于半导体样品的参数测量与成像^[25, 26]. 而对于电子迁移率很低 ($\mu < 10^{-10} \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$) 的高纯绝缘材料和聚合物^[46], 因电子束照射的负带电强度会变得比较大, 而且按图 6 (c) 的变化趋势, 负电荷在浅表层电子散射区域两端的分布密度会比较高.

事实上, 对于本文平行平板状的绝缘薄膜的电子束照射负带电, 通常可以认为稳态时的电流密度满足 Child-Langmuir 定律^[35, 36], 因而有

$$J_D = 9\mu\epsilon V_D^2 (8D^3), \quad (13)$$

其中, J_D 和 V_D 分别是薄膜深处与电子散射区边缘距离为 D ($D > 0$) 处的电流密度和相对于电子散射区的电位差. 也就是说, 在负带电平衡状态下, 薄膜内部的电流是空间电荷限制电流.

3.4. 电子束能量对负带电过程的影响

图 8 给出了不同入射电子束能量条件下泄漏电流随电子束照射的时变特性. 从中可明显看出, 泄漏

电流平衡值随着电子束能量增大而变大,这是因为对应的二次电子产额和二次电子电流下降所致.当电子束能量分别为 2 keV, 3 keV, 4 keV 时,经模拟得到的泄漏电流平衡值分别为 3.21 pA, 4.78 pA, 6.21 pA.而对于上述三种电子束能量,因为图 2 中二次电子产额结果分别为 0.80, 0.70, 0.61, 所以由(12)式算出的泄漏电流平衡值分别为 3.16 pA, 4.74 pA, 6.17 pA, 与模拟结果基本一致.

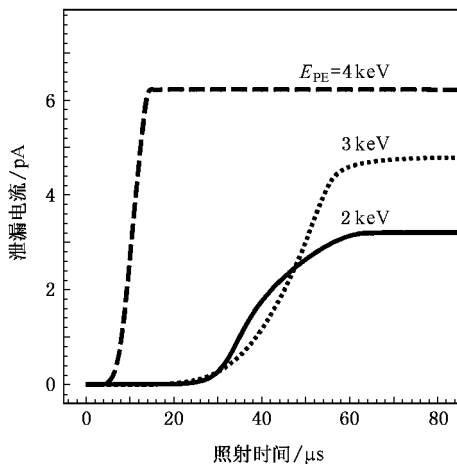


图 8 不同入射电子束能量 E_{PE} 时, 泄漏电流随电子束照射的时间特性

入射电子束能量的变化将影响电子散射区的范围, 会使负带电过程变得更为复杂. 从图 9 的模拟结果就可以看到, 虽然泄漏电流延迟时间基本上是随电子束能量的增大而单调减少, 但泄漏电流的过渡时间出现极小值和极大值, 特别是泄漏电流从照射开始至稳定的平衡值所需的暂态时间在电子束能量 2.2 keV, 3 keV 附近分别呈现极小、极大值. 而图 10 的模拟结果揭示了一个重要现象: 负带电达到平衡时, 薄膜内负空间电荷量和表面电位绝对值分别在电子束能量 3 keV 和 2.2 keV 处出现最大值. 以下将对这种电子束能量变化导致相关量出现极值的问题进行集中的分析.

电子束能量对负带电过程的影响有两个方面的作用. 随着电子束能量的升高, 一方面, 根据图 (a) 和图 8 的结果, 在深度 z 方向的电子散射区域和薄膜泄漏电流会变大, 沿 z 方向的负空间电荷密度会降低, 但另一方面, 电子在薄膜内部不同深度处径向 r 方向的散射区域也会增大, 即负空间电荷分布的区域变大. 在这两个相反因素的共同作用下, 负空间电荷量就会产生最大值. 事实上, 电子束能量处于

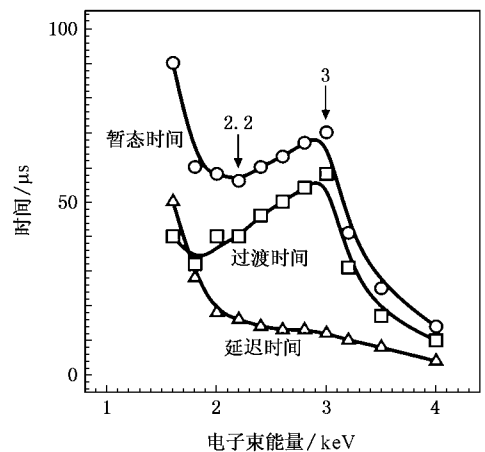


图 9 泄漏电流的延迟时间、过渡时间和达到稳态所需的暂态时间(延迟时间与过渡时间之和)与入射电子束能量的关系

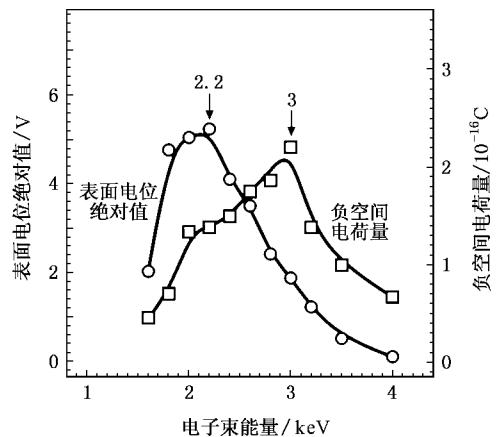


图 10 在平衡状态下, 负空间电荷量和电子束照射中心点表面电位绝对值与入射电子束能量的关系

正、负带电交界的第二临界能量时, 负空间电荷为零. 电子束能量提高后, 负空间电荷量会增加, 但当电子束能量足够高的时候, 电子散射区会充满整个薄膜样品, 使得负空间电荷量又趋近于零. 所以, 负空间电荷量在这两个能量之间必然存在最大值, 而由空间电荷产生的表面平衡电位的绝对值也因此具有最大值. 由于表面电位还受电荷分布区域与表面的间距因素的影响, 所以其最大值会出现在散射区域较小的场合, 即此时的电子束能量应低于使负空间电荷量达到最大值的电子束能量. 在最大值后进一步提高电子束能量会使平衡时的负空间电荷或表面电位绝对值都下降, 即负带电强度变弱. 相比之下, 对于无泄漏电流的体绝缘样品, 入射电子束能量越高, 二次电子产额越低, 集中于样品近表面区域内

的电子就越多,所以负带电越强烈,表面平衡电位可达负的 kV 量级^[31]。另外,关于图 9 中的泄漏电流暂态时间的极值,可以从电子漂移与电场强度的观点来解释。在电子束能量从负带电开始的 1.5 keV 升高至表面平衡电位最大值的阶段,电子散射区域和表面电位绝对值的增大使电子至基板的漂移距离变短、内部电场增强,所以泄漏电流暂态时间会缩短。当表面平衡电位达到最大值之后,内部电场随之减弱,电子漂移速度会下降,从而导致泄漏电流暂态时间在电子束能量 2.2 keV 附近出现极小值后增加。但随着电子束能量的进一步升高,电子漂移至基板的时间缩短因素又成为主导因素,使得泄漏电流暂态时间随负空间电荷量在电子束能量 3 keV 附近出现极大值后迅速减少。

最后值得一提的是,在利用扫描电镜观测一个厚 600 nm 绝缘样品的埋层微结构的实验中,也发现随着电子束能量的升高,负带电效应会在 2—3 keV 之间出现最大值,然后减弱以至观测图像几乎消失的现象^[20]。这种实验现象实际上是对应于上述电子束能量导致表面平衡电位最大值的特性。

4. 结论与讨论

综上所述,我们建立了相关的计算模型和方法,通过数值模拟揭示了低能电子束照射接地绝缘薄膜的负带电过程及其机理,得到以下主要结果。

1. 入射电子因迁移、扩散向散射区域外运动,其入射深度随着电子束照射可以远大于散射深度。电子会在散射区外至基板间形成负空间电荷分布,并经过一定的渡越时间后产生泄漏电流。这种特性对于散射区域与样品厚度可比拟的绝缘薄膜而言,是决定负带电和影响其过程的关键因素。

2. 负带电过程具有暂态特性,薄膜负空间电荷量和表面电位绝对值随泄漏电流而增加。当泄漏电流达到使得薄膜净电流为零的平衡值时,负带电过程随之停止而达到稳定的平衡状态。

3. 泄漏电流平衡值随电子束能量和电流而增大。泄漏电流从照射开始到其平衡值所需的时间随电子束电流和电子迁移率的增大而减少,随膜厚的增大而增大,但随电子束能量的变化会出现极值现象。

4. 负带电平衡时薄膜内部的负空间电荷量和表面电位绝对值随膜厚的增大而增加,随电子迁移率的增大而下降,随电子束能量均会呈现最大值,之后负带电强度随电子束能量的升高而减弱。

现在就本文的模型、方法与结果进行几点讨论。首先,本文 Monte Carlo 模拟得到的二次电子产额与实验结果一致,而考虑电子输运后经数值模拟得到负带电暂态效应及其平衡过程、泄漏电流的延迟效应以及负带电强度随电子束能量的变化规律可以解释相关的实验现象,从而验证了本文数值模拟方法与结果的合理性。在另一方面,因泄漏电流的作用,本文涉及的非穿透电子束照射绝缘薄膜负带电的强度比较弱,而这类负带电现象恰恰又是实际工作中经常遇到的。

关于在本文模型中忽略空穴的漂移和电子空穴间复合的问题,由于空穴迁移率远低于电子迁移率,电子束照射绝缘物时载流子的漂移主要来源于电子^[47]。电子在低迁移率绝缘材料中的寿命可达秒的量级^[48],这远大于本文负带电现象所经历的数十微秒的时间。所以,本文的简化处理是可行的。此外,我们对电子束照射采用了点照射模型,而电子束成像、检测和微细加工时通常采用扫描方式。这种电子束扫描相对于电子在样品内部的微观运动是一个很慢的过程,因此点照射模型也是合理的。

出于减少计算量的考虑,本文中对绝缘薄膜模型没有选择很大的径向计算范围。这样,计算得到的有关数据会存在一定程度的误差,比如表面电位值略微偏高,但这丝毫不会影响模拟结果所揭示的关于负带电过程的物理本质与规律。

最后一点,本文只研究了单层绝缘薄膜的负带电过程,而实际中一些样品却包含多层绝缘薄膜或埋层微结构^[19—23],情况会更加复杂。例如,两种绝缘薄膜的界面通常会俘获电子而产生附加电场,从而有可能影响电子迁移过程和改变表面电位与二次电子成像信号强度。这对目前利用扫描电镜来检测负带电绝缘样品深层信息的工作又至关重要。所以,有必要采用本文的方法进一步开展相关的研究工作。

感谢大阪大学 Katsumi Ura 名誉教授和中国科技大学丁泽军教授对本文工作的建议和支持。

- [1] Postek M T , Vladár A E 2004 *Scanning* **26** 11
- [2] Cazaux J 2005 *J. Microsc.* **217** 16
- [3] Grella L , Lorusso G , Niemi T , Adler D L 2004 *Nucl. Instrum. Meth. A* **519** 242
- [4] Mun L K , Drouin D , Lavallée E , Beauvais J 2004 *Microsc. Microanal.* **10** 804
- [5] Ivin V V , Silakov M V , Babushkin G A , Lu B , Mangat P J , Nordquist K J , Resnick D J 2003 *Microelectron. Eng.* **69** 594
- [6] Ren L M , Chen B Q , Tan Z Y 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 512 (in Chinese)[任黎明、陈宝钦、谭震宇 2002 物理学报 **51** 512]
- [7] Song H Y , Zhang Y L , Wei Q , Kong X D 2005 *High Energy Phys. Nucl. Phys.* **29** 1219 (in Chinese)[宋会英、张玉林、魏强、孔祥东 2005 高能物理与核物理 **29** 1219]
- [8] Sun X , You S F , Xiao P , Ding Z J 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 148 (in Chinese)[孙霞、尤四方、肖沛、丁泽军 2006 物理学报 **55** 148]
- [9] Xiao P , Zhang Z M , Sun X , Ding Z J 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 5803 (in Chinese)[肖沛、张增明、孙霞、丁泽军 2006 物理学报 **55** 5803]
- [10] Liu J B , Wang Y , Zhou Y J 2007 *Chin. Phys.* **16** 72
- [11] Ying M H , Thong J T L 1994 *Meas. Sci. Technol.* **5** 1089
- [12] Davidson M P , Sullivan N T 1997 *Proc. SPIE* **3050** 226
- [13] Zhang H B , Feng R J , Ura K 2003 *Chin. Phys. Lett.* **20** 2011
- [14] Lee Y , Lee W , Chun K 2000 *J. Vac. Sci. Technol. B* **18** 3095
- [15] Postek M T , Vladár A E , Bennett M H 2004 *J. Microlith. Microfab. Microsyst.* **3** 212
- [16] Seeger A , Duci A , Haussecker H 2006 *Scanning* **28** 179
- [17] Pawley J B 1992 *Adv. Electron. Electron Phys.* **83** 203
- [18] Reimer L 1993 *Image Formation in Low Voltage Scanning Electron Microscopy* (Bellingham : SPIE Optical Engineering Press) p71
- [19] Ura K 1998 *J. Electron Microsc.* **47** 143
- [20] Nakasugi T , Ando A , Sugihara K , Yamazaki Y , Miyoshi M , Okumura K 2001 *Proc. SPIE* **4343** 334
- [21] Koike T , Ikeda T , Miyoshi M , Okumura K , Ura K 2002 *Jpn. J. Appl. Phys.* **41** 915
- [22] Zhang H B , Feng R J , Ura K 2004 *Sci. Prog.* **87** 249
- [23] Miyoshi M , Ura K 2005 *J. Vac. Sci. Technol. B* **23** 2763
- [24] Toth M , Knowles W R , Phillips M R 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 72905
- [25] Zhu S Q , Rau E I , Yang F H 2003 *Semicond. Sci. Technol.* **18** 361
- [26] Wong W K , Rau E I , Thong J T L 2004 *Ultramicroscopy* **101** 183
- [27] Cazaux J 2004 *J. Appl. Phys.* **95** 731
- [28] Touzin M , Goerriot D , Guerret-Piécourt C , Juvé D , Tréheux D , Fitting H J 2006 *J. Appl. Phys.* **99** 114110
- [29] Kotera M , Suga H 1988 *J. Appl. Phys.* **63** 261
- [30] Renoud R , Mady F , Attard C , Bigarr J , Ganachaud J P 2004 *Phys. Status Solidi A* **201** 2119
- [31] Belhaj M , Jbara O , Filippov M N , Rau E I , Andrianov M V 2001 *Appl. Surf. Sci.* **177** 58
- [32] Fakhfakh S , Jbara O , Belhaj M , Fakhfakh Z , Kallel A , Rau E I 2003 *Eur. Phys. J. Appl. Phys.* **21** 137
- [33] Mizuhara Y , Kato J , Nagatomi T , Takai Y , Inoue M 2002 *J. Appl. Phys.* **92** 6128
- [34] Nunes de Oliveira L , Gross B 1975 *J. Appl. Phys.* **46** 3132
- [35] Taylor D M , Mehdi Q H 1979 *J. Phys. D* **12** 2253
- [36] Nakamae K , Fujioka H , Ura K 1991 *J. Phys. D* **24** 963
- [37] Kotera M 2001 *J. Vac. Sci. Technol. B* **19** 2516
- [38] Cazaux J 2006 *Nucl. Instrum. Meth. B* **244** 307
- [39] Kotera M , Murata K , Nagami K 1981 *J. Appl. Phys.* **52** 997
- [40] Czyżewski Z , MacCallum D O , Romig A , Joy D C 1990 *J. Appl. Phys.* **68** 306 (Data available at <http://web.utk.edu/~srcutk/Mott/mott.htm>)
- [41] Shimizu R , Ding Z J 1992 *Rep. Prog. Phys.* **55** 487
- [42] Joy D C 1995 *Monte Carlo Modeling for Electron Microscopy and Microanalysis* (New York : Oxford University Press) p27
- [43] Miotello A , Dapor M 1997 *Phys. Rev. B* **56** 2241
- [44] Dionne G F 1975 *J. Appl. Phys.* **46** 3347
- [45] Ferrari G , Walling J R , Roy S , Barker J R , Asenov A 2007 *J. Non-Cryst. Solids* **353** 630
- [46] Sessler G M 1992 *IEEE Trans. Electr. Insul.* **27** 961
- [47] Taylor D M , Al-Jassart A A 1981 *J. Phys. D* **14** 1531
- [48] Hughes R C 1979 *Phys. Rev. B* **19** 5318

Negative charging process of a grounded insulating thin film under low-energy electron beam irradiation^{*}

Li Wei-Qin Zhang Hai-Bo[†]

(*Key Laboratory for Physical Electronics and Devices of the Ministry of Education, Department of Electronic Science and Technology, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China*)

(Received 18 September 2007; revised manuscript received 17 October 2007)

Abstract

The negative charging process and its mechanism caused by low-energy electron beam (e-beam) irradiation have been clarified for an insulating thin film with a grounded conductive substrate. Numerical simulation is performed by considering both electron scattering and electron transport, in combination with the Monte Carlo method and the finite difference method. The internal space charge, leakage current, surface potential and their time-evolution under e-beam irradiation are eventually obtained under different e-beam conditions and for different SiO₂ film parameters. Results show that owing to the drift produced by mobility and diffusion, incident electrons can go beyond the conventional scattering region and arrive at the substrate after a certain transit time, forming negative space charge and leakage current. The transient negative charging process tends to equilibrium as the leakage current increases. In the equilibrium state, the leakage current increases with the energy and intensity of the e-beam. Meanwhile, the amount of net negative charge and the absolute value of surface potential increase with the film thickness, decrease with the increase of electron mobility, and both exhibit a maximum value with variation of the e-beam energy.

Keywords : insulating thin films, electron beam irradiation, charging effects, numerical simulation

PACC : 7360H, 6180F, 7220D, 7115Q

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 60476018).

[†] E-mail : hbzhang@mail.xjtu.edu.cn