

高能透射电子束照射聚合物薄膜的带电效应

霍志胜 蒲红斌 李维勤

Charging effect of polymer thin film under irradiation of high-energy transmission electron beam

Huo Zhi-Sheng Pu Hong-Bin Li Wei-Qin

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 68, 230201 (2019) DOI: 10.7498/aps.68.20191112

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.68.20191112>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

空间电子辐照聚合物的充电特性和微观机理

Charging characteristics and micromechanism of space electrons irradiated polymers

物理学报. 2019, 68(5): 059401 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181925>

二维原子晶体的低电压扫描透射电子显微学研究

Low voltage scanning transmission electron microscopy for two-dimensional materials

物理学报. 2017, 66(21): 217303 <https://doi.org/10.7498/aps.66.217303>

高能重离子辐照的低活化钢硬化效应

Hardening of reduced activation ferritic/martensitic steels under the irradiation of high-energy heavy-ion

物理学报. 2017, 66(11): 112501 <https://doi.org/10.7498/aps.66.112501>

高能透射电子束照射聚合物薄膜的带电效应*

霍志胜¹⁾ 蒲红斌¹⁾ 李维勤^{1)2)†}

1) (西安理工大学自动化与信息工程学院, 西安 710048)

2) (西安交通大学电子科学与技术系, 西安 710049)

(2019年7月18日收到; 2019年9月17日收到修改稿)

高能透射电子束照射下聚合物薄膜的带电效应严重影响其电子显微学检测的可靠性. 采用数值计算方法研究了聚合物薄膜的带电效应. 基于 Monte Carlo 方法模拟了电子的散射过程, 采用有限差分法处理电荷的输运、俘获和复合过程, 获得了净电荷、内建电场、表面出射电流、透射电流等动态分布特性, 分析了薄膜厚度、电子束能量对相关带电特性的影响. 结果表明: 由于近表面电子的出射, 样品内部净电荷、空间电位沿入射方向均呈现先为正、后为负分布特性, 导致部分出射电子返回表面以及内部沉积电子向基底输运形成电子束感生电流; 随着电子束照射, 由于薄膜带电强度较弱, 透射电流随时间保持不变, 实际出射电流及样品电流分别下降和上升至一个稳定值. 薄膜厚度的增加使带电过程的瞬态时间增加, 引起表面电位下降以及实际出射电流、样品电流增大; 电子束能量的升高使透射电流增大, 样品电流减小, 引起表面正电位下降及实际出射电流的减小.

关键词: 带电效应, 数值模拟, 透射电流, 输运

PACS: 02.70.Uu, 79.20.Ap, 72.80.Le

DOI: 10.7498/aps.68.20191112

1 引言

新型材料特别是低维材料的发展推动了微纳器件的发展, 同时对其工艺检测提出了更高要求^[1,2]. 聚合物材料由于其良好的绝缘性能在微电子器件上得到了广泛应用. 扫描电镜、透射电镜是对覆盖聚合物层微电子器件进行检测的常用手段. 由于聚合物较低的电导率, 在高能电子束照射下其表面和内部会沉积电荷, 影响入射电子、出射电子轨迹及透射电子电流, 最终影响电子显微成像的准确性^[3-5]; 虽通过表面涂金可降低其表面带电, 但它的内部电荷依然会影响检测可靠性. 此外, 在空间领域, 聚合物层能起到抗击空间粒子辐照的作用, 但由于电导率较低, 长时间照射下, 聚合物内部会沉积大量

电荷产生明显带电现象, 导致空间器件异常^[6-8]. 为了降低其带电效应, 需要充分了解它的内部电荷分布及电场产生机理.

当高能电子照射薄膜时, 入射电子与样品原子发生碰撞激发出电子空穴对, 激发电荷在样品内部经历复杂的碰撞、输运、复合和俘获过程. 出射和入射电子的不平衡也导致样品内部沉积电荷. 近年来的理论分析、数值计算及实验测量结果均表明, 这种辐照引起的电荷分布及相关的出射电子电流、透射电流等是影响成像质量和检测精度的关键问题^[9-12].

高能透射电子照射聚合物薄膜时, 其电子总产额远小于 1, 经非弹性散射激发的部分次级电子会沉积在样品内部形成空间电荷分布, 产生的静电场也会影响入射电子的运动轨迹、内部电荷的输运以

* 国家自然科学基金 (批准号: 11175140)、陕西省自然科学基金 (批准号: 2019JM-340) 和西安理工大学科研计划 (批准号: 2015CX030) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: wqlee@126.com

及透射电子的方向^[13-15]. 由于样品内空间电荷分布取决于迁移、扩散、俘获、复合等过程, 因而呈现动态变化特性, 实验难以准确测量, 其定量研究比较缺乏^[16]. 更重要的是, 薄膜样品的表面电场还可能影响二次电子的出射及返回特性, 最终影响出射电子电流^[17], 其发展机理尚不明确. 以往研究中, 建立了考虑电子散射、俘获和运输的二维数值模型, 获得了高能电子束照射下电介质厚样品的表面电位和泄漏电流特性^[18-20].

本文以聚甲基丙烯酸甲酯 (PMMA) 为例, 建立了较为完善的数值计算模型, 研究了能量大于 10 keV 的高能透射电子束照射下聚合物薄膜的带电特性. 对于电子的散射过程, 建立了基于 Rutherford 弹性散射和 Penn 介电函数的 Monte Carlo (MC) 模型; 对于样品内部电荷的运动过程, 建立了考虑运输、俘获及复合的有限差分法计算模型. 阐明了聚合物薄膜空间电荷、空间电场以及出射电子电流、样品电流及透射电流的动态演变规律; 揭示了相关的样品及电子束参数对带电特性的影响.

2 模型与方法

高能电子束入射样品后, 与样品材料发生包括散射、运输、复合、俘获等一系列复杂的过程. 对于电子的散射过程, 采用 MC 方法来描述. 电子的运输、复合、俘获过程采用有限差分法来描述.

图 1 是高能透射电子与聚合物薄膜相互作用示意图. 首先, 电流大小为 I_B 的高能电子束照射聚合物, 少量入射电子直接被样品反射形成背散射电子电流 I_{BE} . 经非弹性散射生成的部分次级电子脱离表面形成二次电子电流 I_{SE} . 对于聚合物薄膜,

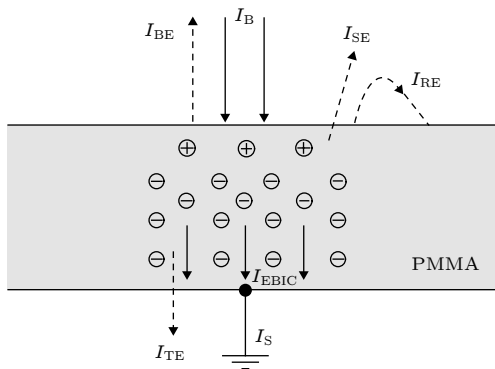


图 1 高能电子与 PMMA 薄膜相互作用示意图

Fig. 1. Interaction between high-energy electrons and PMMA thin film.

部分入射电子会穿透样品形成透射电子电流 I_{TE} . 此外, 样品内部沉积电子经输运可能到达基板形成电子束感生电流 I_{EBIC} ; 在表面电场作用下, 部分出射二次电子可能返回表面形成返回电流 I_{RE} , 最终沿表面输运形成样品电流, 上述 I_{EBIC} 和 I_{RE} 统称为样品电流 I_S .

2.1 电子散射过程

选取高于 10 keV 的电子束, 采用 Rutherford 弹性散射模型描述弹性散射过程, 以 Penn 介电函数模型和快二次电子模型描述非弹性散射过程. 高能电子照射样品后, 与样品原子或分子发生复杂的散射过程. 入射电子与样品原子碰撞时, 或者受原子核库仑电场的作用发生大角度弹性散射, 或与原子的核外电子发生碰撞使原子受到激发发生非弹性散射. 这里, 高能电子与分子、原子的散射实质是电子的近场跳跃, 即电子的非弹性散射主要与价电子激发相关, 与 PMMA 的密度密切相关.

Rutherford 弹性散射模型是研究高能电子束与电介质相互作用的常用方法, 也可用于 PMMA 聚合物的近似计算^[21-24]. 对于入射能量大于 10 keV 的高能电子弹性散射过程, 在 Born 近似下, 可通过求解 Schrodinger 方程得到 Rutherford 弹性散射截面^[25]:

$$\sigma_e = 5.21 \times 10^{-21} \frac{Z^2}{E^2} \frac{4\pi}{\alpha(1+\alpha)} \left(\frac{E+511}{E+1024} \right)^2, \quad (1)$$

其中, α 等于 $3.4 \times 10^{-3} Z^{0.67}/E$, E 为电子能量, Z 是样品原子序数. 弹性散射平均自由程 λ_e 为

$$\lambda_e = \frac{A}{N_A \rho \sigma_e}, \quad (2)$$

这里, N_A 为 Avogadro 常数, ρ 为材料质量密度, A 为原子质量.

非弹性散射使入射电子能量损失, 但角度的变化比弹性散射导致的损失要小. 一个入射电子在整个非弹性散射过程中, 会激发出大量电子空穴对. 当入射电子能量大于 10 keV 时, 采用快二次电子模型来描述, 其微分散射截面为

$$\frac{d\sigma_{in}}{d\Omega} = \frac{\pi e^4}{E^2} \left[\frac{1}{\Omega^2} + \frac{1}{(1-\Omega)^2} \right], \quad (3)$$

这里, e 为单电子电量, Ω 为归一化能量损失系数. 由散射截面可得到非弹性散射平均自由程 λ_{in} 为

$$\lambda_{\text{in}} = \frac{A}{N_A \rho Z \sigma_{\text{in}}}. \quad (4)$$

非弹性散射过程的能量损失采用修正 Bethe 连续能量损失经验公式来描述, 能量为 E 的电子相对于散射步长为 S 的平均能量损失率为^[25]

$$\frac{dE}{dS} = - \frac{7.85 \times 10^4 \rho \bar{Z}}{EA} \ln[1.166(E + 0.85\bar{J})/\bar{J}], \quad (5)$$

其中, \bar{A} , \bar{J} 和 \bar{Z} 分别为样品的平均原子量、平均电离能和平均原子序数. 对于 PMMA 样品有 $\rho = 1.23 \text{ g/cm}^3$, $\bar{A} = 6.67 \text{ g/mole}$, $\bar{J} = 74.0 \text{ eV}$, $\bar{Z} = 3.6$.

当非弹性散射使得入射电子能量小于 3 keV 时, 采用 Penn 介电函数来描述其后续非弹性散射过程^[26,27]. 根据介电函数理论, 其非弹性散射微分平均自由程为

$$\frac{d^2 \lambda_{\text{in}}^{-1}}{dq d\omega} = \frac{\hbar}{\pi a_0 E} \text{Im} \left\{ \frac{-1}{\varepsilon(q, \omega)} \right\} \frac{1}{q}, \quad (6)$$

其中, λ_{in}^{-1} 为非弹性平均自由程, dq 和 $d\omega$ 分别表示电子动量转移和能量损失, a_0 为玻尔半径, \hbar 为普朗克常数; $\text{Im} \{-1/\varepsilon(q, \omega)\}$ 为能量损失函数, 其近似计算公式为

$$\text{Im} \left\{ \frac{-1}{\varepsilon(q, \omega)} \right\} = \frac{\omega_0}{\omega_q} \text{Im} \left\{ \frac{-1}{\varepsilon(\omega_0)} \right\}, \quad (7)$$

其中, ω_0 为 $\omega_q(q, \omega_0) = \omega$ 的解. 非弹性散射平均自由程 λ_{in} 满足

$$\lambda_{\text{in}}^{-1} = \int_0^{E-E_F} d\omega \int_{q^-}^{q^+} dq \frac{d^2 \lambda_{\text{in}}^{-1}}{dq d\omega}, \quad (8)$$

其中, 积分限 $q_{\pm} = \sqrt{2m}(\sqrt{E} \pm \sqrt{E - \hbar\omega})/\hbar$, E_F 为费米能.

2.2 电子俘获和输运

经过散射能量耗尽的电子会被样品的陷阱俘获或者在样品内部输运. 本研究采用基于 Poole-Frenkel 效应的俘获截面模型^[28]. 这里, 电子密度随时间 t 变化的微分形式如下:

$$\frac{dN_{x,y,z}(t)}{dt} = - \left(N_{\text{trap}} - \frac{T_{x,y,z}(t)}{\varepsilon} \right) S_{\text{PF}}, \quad (9)$$

其中, $T_{x,y,z}(t)$ 表示俘获电子密度, ε 是样品介电常数, N_{trap} 表示陷阱密度, S_{PF} 是修正俘获截面.

电荷在材料中的输运特性是微纳电子器件研究的重要方面^[29]. 本研究中的输运特性基于内部电场下的迁移和密度梯度作用的扩散模型. 对于三

维直角坐标系, 电荷的输运满足电流连续性方程:

$$\frac{dN_{x,y,z}(t)}{dt} = \nabla \mathbf{J}_{x,y,z}(t)/e, \quad (10)$$

$$\mathbf{J}_{x,y,z}(t) = -e\mu N_{x,y,z}(t) \nabla V_{x,y,z}(t) + eD \nabla N_{x,y,z}(t), \quad (11)$$

其中, $\mathbf{J}_{x,y,z}(t)$ 代表电子电流密度; μ 和 D 分别是电子迁移率和扩散系数, 二者之间满足 Nernst-Einstein 方程. 空间电位 $V_{x,y,z}(t)$ 满足泊松方程:

$$\nabla^2 V_{x,y,z}(t) = - [P_{x,y,z}(t) - N_{x,y,z}(t) - T_{x,y,z}(t)]e/\varepsilon, \quad (12)$$

这里 $P_{x,y,z}(t)$ 表示空穴密度.

由于空穴迁移率远小于电子迁移率, 因此假定空穴保持静止. 自由电子与空穴有可能复合, 直接复合是由电子在导带和价带之间的直接跃迁形成的, 计算式为

$$\frac{\partial P_{x,y,z}(t)}{\partial t} = -RP_{x,y,z}(t)N_{x,y,z}(t), \quad (13)$$

式中 R 代表电子空穴复合率.

对微分方程组 (9)—(13) 式采用有限差分法求解. 在有限差分法计算中, 电子束照射前, 空间电位、电荷密度的初始赋值均为零. 差分网格的大小尽管对最终结果影响不大, 但会影响计算速度. 为了兼顾计算速度和准确性, 差分网格大小取 5 nm .

2.3 出射电子电流计算模型

在计算二次电子电流和背散射电子电流时, 由于表面电场的影响, 部分能量较低の出射电子可能会返回表面并形成样品电流. 根据表面上方空间电场, 可计算得到出射电子电流. 对于三维坐标系 (x, y, z) , z 方向为入射方向, 在 (12) 式的空间电位得到空间电场 F_x , F_y 和 F_z 分量的基础上, 出射电子的运动方程为

$$m\ddot{x} = -eF_x, \quad m\ddot{y} = -eF_y, \quad m\ddot{z} = -eF_z. \quad (14)$$

假设二次电子的出射能量为 E_{SE} , 出射位置坐标为 $(x_0, y_0, 0)$; 其与 x , y 和 z 轴的夹角分别为 α , β , γ , 则初始出射条件为

$$\begin{aligned} \dot{x}|_{t=0} &= \sqrt{2E_{\text{SE}}/m} \cos \alpha, \\ \dot{y}|_{t=0} &= \sqrt{2E_{\text{SE}}/m} \cos \beta, \\ \dot{z}|_{t=0} &= \sqrt{2E_{\text{SE}}/m} \cos \gamma. \end{aligned} \quad (15)$$

经过两次四阶龙格-库塔法求解, 可得到

$$\begin{aligned} \nu_x(t+1) &= \nu_x(t) + (k_1 + k_2 + k_3 + k_4)/6, \\ \nu_y(t+1) &= \nu_y(t) + (l_1 + l_2 + l_3 + l_4)/6, \\ \nu_z(t+1) &= \nu_z(t) + (m_1 + m_2 + m_3 + m_4)/6, \\ x(t+1) &= x(t) + (n_1 + n_2 + n_3 + n_4)/6, \\ y(t+1) &= y(t) + (p_1 + p_2 + p_3 + p_4)/6, \\ z(t+1) &= z(t) + (q_1 + q_2 + q_3 + q_4)/6, \end{aligned} \quad (16)$$

式中, $\nu_x(t+1)$ 和 $x(t+1)$ 分布表示 $t+1$ 时刻 x 分量的速度和位置, 其他分量与此类似; $k_i, l_i, m_i, i=1, 2, 3, 4$ 和 $n_i, p_i, q_i, i=1, 2, 3, 4$ 分别表示 x, y, z 方向的位置和速度系数. 其中 x 方向的参数 k_i 和 n_i 如下:

$$\begin{aligned} k_1 &= h \cdot F_x(x_t, y_t, z_t), \\ k_2 &= h \cdot F_x(x_t + n_1/2, y_t + p_1/2, z_t + q_1/2), \\ k_3 &= h \cdot F_x(x_t + n_2/2, y_t + p_2/2, z_t + q_2/2), \\ k_4 &= h \cdot F_x(x_t + n_3, y_t + p_3, z_t + q_3); \end{aligned} \quad (17)$$

$$\begin{aligned} n_1 &= h \cdot \nu_x(t), \\ n_2 &= h \cdot (\nu_x(t) + k_1/2), \\ n_3 &= h \cdot (\nu_x(t) + k_2/2), \\ n_4 &= h \cdot (\nu_x(t) + k_3). \end{aligned} \quad (18)$$

其他方向参数计算与此类似.

2.4 数值计算流程

高能透射电子束照射下诱导产生的带电效应及流出电流是一个动态变化过程. 图2给出了在 高能电子束持续照射下带电效应的模拟流程, 具体如下.

1) 初始化. 把样品内部的空间电荷密度、空间电位初始化为零.

2) 计算单电子散射过程. 模拟一个电子的弹性散射和非弹性散射过程, 获得样品内部沉积电子、空穴、空间电位的初始分布以及出射电子的位置、能量和角度等信息.

3) 计算电荷的输运和俘获过程. 根据空间电荷、空间电位的初始分布计算电子在样品内部的迁移、扩散及俘获; 计算电子束感生电流.

4) 计算出射电子电流. 由空间电位分布计算空间电场分布, 计算出射背散射电子和二次电子的出射轨迹, 获得出射电子电流和返回电子电流.

5) 计算透射电子电流. 由入射电子的散射过程, 获得透射电子电流.

6) 在前一个入射电子的空间电荷、空间电位的基础上, 计算下一个入射电子的整个入射过程, 最后直至所有的入射电子计算完毕.

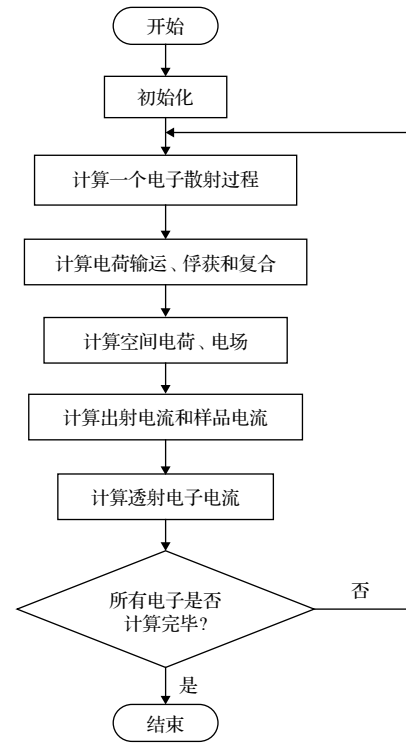


图2 计算流程示意图

Fig. 2. Flow diagram of the charging process.

3 结果及分析

数值模型中的电子束照射方向为 z 方向, 默认的模拟参数如表1所示. 假设电子束照射的区域大小为 $10 \mu\text{m} \times 10 \mu\text{m}$, 样品大小为 $1 \text{cm} \times 10 \text{cm}$. 这里需要指出的是, 不同于微电子器件具有较高迁移率的石墨烯、氧化锌样品^[30,31], 作为绝缘层的PMMA等其他聚合物样品的电子迁移率通常较低^[32-34]. 此外, 本文数值计算中, 电子在样品内部

表1 参数默认取值
Table 1. Default values of parameters.

参数	取值	单位
电子束能量 E_B	10	keV
束流	0.16	pA
样品厚度 H	2	μm
复合率	10^{-14}	$\text{cm}^{-3}\cdot\text{s}^{-1}$
电子迁移率 μ	10^{-10}	$\text{cm}^2\cdot\text{V}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$
陷阱体密度 N_{trap}	10^{17}	cm^{-3}

的运输主要是是经过散射激发的电子在样品内自建电场作用下的迁移过程, 其散射过程和电子迁移率既受 PMMA 样品的密度影响, 也受样品的缺陷等的影响 [35]. 为了简化计算, 本研究中 PMMA 样品的电子迁移率取固定值 $10^{-10} \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$.

3.1 空间电荷及电场分布

衡量样品带电强弱的一个重要指标是电子产额, 其定义为从表面出射电子个数与入射电子个数之比. 图 3 是模拟得到的电子总产额 σ (二次电子产额和背散射系数之和) 的结果以及相关的测量结果, 其中线条是模拟结果, 方块为测量结果 [32]. 模拟结果与实验结果较为接近. 从图 3 可以看出, 当入射能量大于 10 keV 时, 出射电子个数小于入射电子个数.

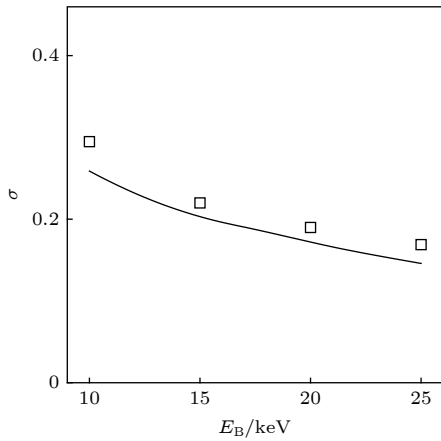


图 3 电子总产额的模拟 (线条) 和测量 (方块) 结果
Fig. 3. Simulated (lines) and experimental (squares) electron total yields.

对于本文研究的薄膜样品, 影响其内部电荷沉积的还包括透射电子的数目. 影响透射电子数目的主要因素是电子束的入射深度 λ , 它主要取决于电子束能量和样品材料密度, 其经验公式为 [25]

$$\lambda = \frac{700E_B^{1.66}}{\rho}. \quad (19)$$

根据 (19) 式, 当入射电子束能量为 10 keV 时, PMMA 样品的电子入射深度约为 $2.601 \mu\text{m}$, 大于样品厚度, 因此有透射电子电流产生.

高能电子束照射下, 样品内部电荷的分布是一个动态变化过程. 图 4 是不同照射时刻, 样品中心自由电子密度 $N_{0,0,z}(t)$ 和净电荷密度 $C_{0,0,z}(t)$ 沿入射方向 (z 方向) 的分布. 这里净电荷密度是一个网

格点空穴密度与电子密度之差. 首先, 由于近表面附近经非弹性散射激发的次级电子从样品出射, 因而近表面附近自由电子密度较低; 而在样品靠近基底区域 ($z = 2 \mu\text{m}$), 一方面非弹性碰撞激发的次级电子数目减少, 且由于电子的输运导致该区域自由电子密度也较低. 随着电子束的照射, 这样的分布形态更加明显. 如图 4(b) 所示, 净电荷密度在深度小于 $0.1 \mu\text{m}$ 区域内为正, 而在下方为负. 其原因主要是近表面二次电子的出射. 此外, 随着电子束照射, 样品内沉积更多电荷, 净电荷密度将逐渐升高. 但在长时间照射下, 沉积电子在内建电场的作用下向表面输运, 反而降低了表面净电荷密度, 因此净电荷密度将趋于一个稳定值.

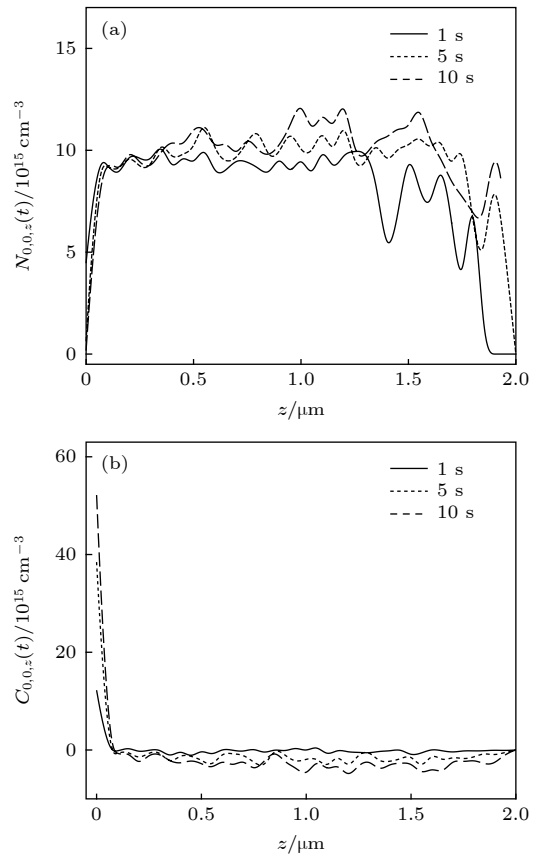


图 4 样品内部入射方向电荷分布 (a) 电子密度; (b) 净电荷密度

Fig. 4. Charges distribution along the incident direction: (a) Electron density; (b) net charge density.

图 5 是不同照射时间空间下电位 $V_{0,0,z}(t)$ 和电场强度 $E_{0,0,z}(t)$ 沿入射方向的分布. 从图 5(a) 可知, 在样品近表面, 空间电位为正, 然后沿入射方向下降至一个极小值, 最后逐渐上升趋近于零. 这里, 虽然整体上样品带负电, 但由于净电荷密度

在近表面为正, 所以样品近表面空间电位为正. 此外, 随着电子束照射, 近表面正电位持续升高, 同时空间电位极小值也持续下降, 这主要是随着照射, 净静电荷密度持续升高所致 (图 4(b)). 最后, 如图 4(b) 所示, 空间电场的分布形态决定了样品内部电荷的输运方向. 一方面, 在样品内部 $1 \mu\text{m}$ 上方电场强度为负, 吸引电子向表面输运, 减缓了表面正电位的升高趋势; 而在 $1 \mu\text{m}$ 下方电场强度为正, 推动电子向基底输运, 形成电子束感生电流及样品电流.

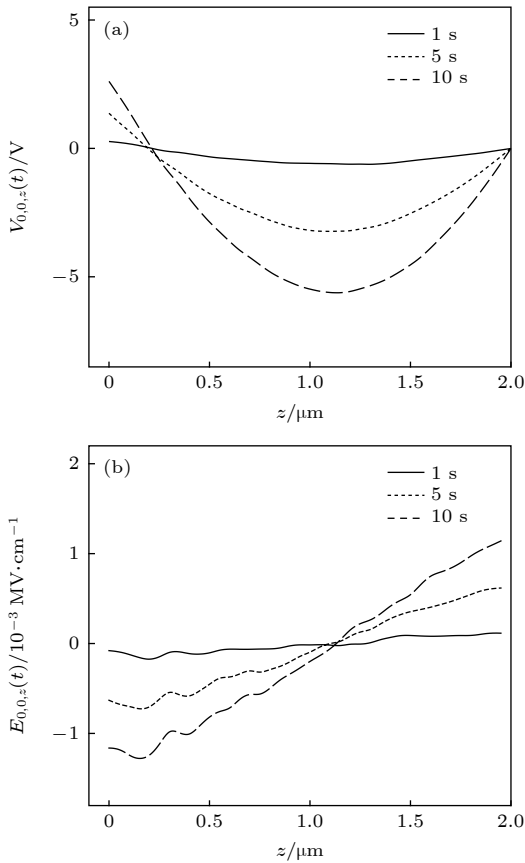


图 5 (a) 空间电位; (b) 电场强度沿入射方向分布
Fig. 5. (a) Space potential and (b) electric field along the incident direction.

3.2 出射及透射电子电流

从图 4 可知, 由于高能电子束可穿透聚合物薄膜, 尽管电子产额远小于 1, 但其带电强度较弱. 图 5 所示的表面正电位还会吸引一些出射二次电子返回表面, 从而降低了实际的出射电子电流.

图 6 是表面电位 V_S 和出射电子电流 I_σ 的时变特性模拟结果. 首先, 随着电子束照射, 表面正电位持续升高并趋于稳定值. 这是表面正空间电荷

持续升高所致. 此外, 随着电子束照射, I_σ 逐渐下降. 事实上, 随着表面电位的升高, 会引起更多的二次电子返回表面, 导致实际的出射电子电流降低.

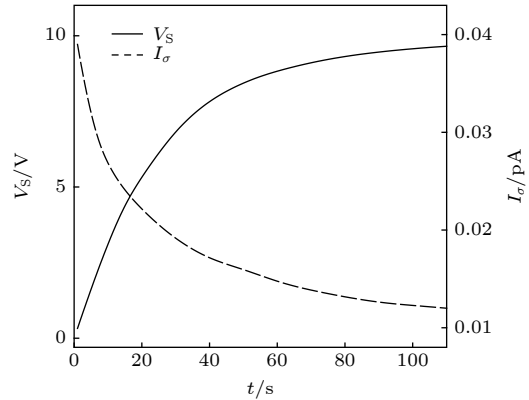


图 6 表面电位 V_S 和出射电子电流 I_σ 时变特性
Fig. 6. The surface potential V_S and emission current I_σ as function of time.

图 7 是透射电流 I_{TE} 和样品电流 I_S 的时变特性. 从图 7 可以看出, 透射电流基本上保持恒定. 事实上, 对于聚合物薄膜, 由于样品表面和内部电场强度均较弱, 入射电子在散射过程中的运动方向及能量衰减受其影响较小, 因而透射电流的变化较小. 此外, 就样品电流 I_S 而言, 一方面随着电子束照射, 电子束感生电流逐渐增大; 同时由于表面正电位的升高, 更多二次电子返回表面流经基底形成样品电流. 因此总体上样品电流增大.

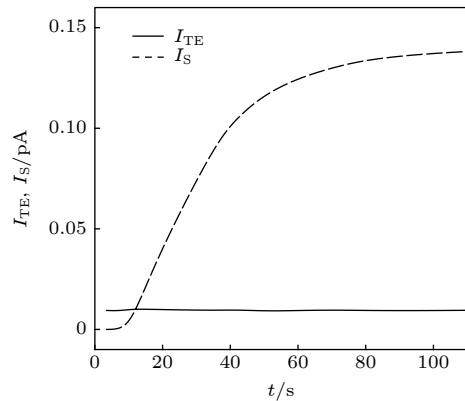


图 7 透射电流 I_{TE} 和样品电流 I_S 时变特性
Fig. 7. The transmission current I_{TE} and the sample current I_S as function of time.

下面分析上述流出薄膜的电流稳态特性. 在电子束照射下, 随表面电位升高, 返回样品表面的电子电流逐渐增大, 但返回表面的电子会降低表面正

电位. 此外, 随内部电场的增强, 电子束感生电流增大; 但电子束感生电流的增大, 反过来又会减弱内部电场强度. 最终流入流出样品的电流达到稳定, 也就是

$$I_B = I_\sigma + I_S + I_{TE}, \quad (20)$$

这里 I_σ 表示实际出射的电子电流, 即

$$I_\sigma = I_{SE} + I_{BE} - I_{RE}, \quad (21)$$

其中 I_{RE} 表示返回样品表面的电子电流.

3.3 参数的影响

3.3.1 薄膜厚度

薄膜厚度的增加使得样品内的沉积电荷量增加. 图 8 是不同厚度下表面电位和电流的时间特性. 如图 8(a) 所示, 随样品厚度的增加, 更多的电荷将沉积在样品内部, 因此表面电位将下降, 带电过程的瞬态时间也 longer. 同时, 表面电位的下降使得更少的二次电子返回表面, 实际出射的电子电流 I_σ 将增大 (图 8(b)). 此外, 随着样品厚度的增加,

样品内的沉积电荷量增加, 使得电子向基底运输的电场强度增大, 电子束感生电流增大, 因而样品电流总体上增大 (图 8(c)). 最后, 随着样品厚度的增加, 透射电子电流将减小; 由于样品表面及内部电场强度较小, 透射电子电流随时间保持不变 (图 8(d)).

需要指出的是, 对于聚合物样品或电子束非穿透厚样品, 在 高能电子束照射下, 由于没有透射电流且内部电子难以通过基底泄放, 其内部将沉积大量负电荷, 因而其表面电位往往可低至负千伏量级, 严重时可导致样品被击穿^[36]. 表面负电位可使入射电子着陆能量大幅下降, 其二次电子电流明显升高, 而样品电流及透射电流几乎为零. 这与本文研究的薄膜样品相关结论有本质不同.

3.3.2 入射能量

下面分析电子束入射能量对带电过程及相关电流的影响. 图 9 给出了不同能量下表面电位及各类电流的时变特性. 事实上, 入射能量的升高使电子束的入射深度更大, 从而电子产额下降. 首先, 由于电子散射范围的增大, 沉积电子分布在更广泛

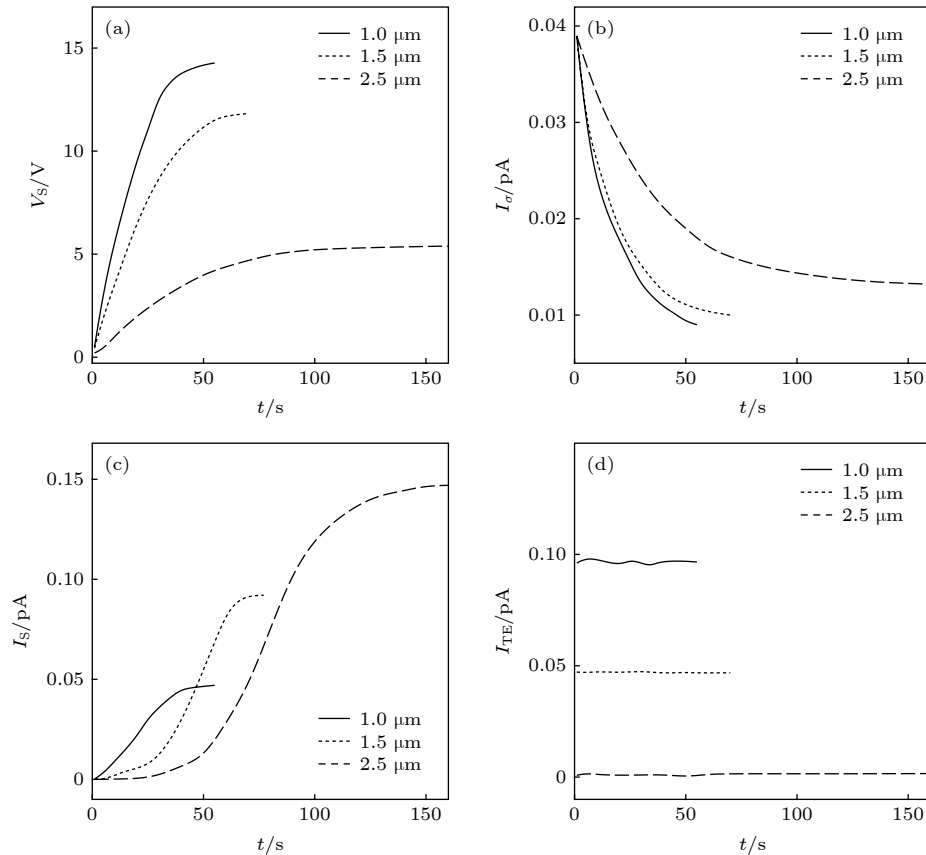


图 8 不同厚度下的带电特性 (a) 表面电位; (b) 表面出射电流; (c) 样品电流; (d) 透射电流

Fig. 8. Charging characteristics under different thicknesses: (a) Surface potential; (b) surface emission current; (c) sample current; (d) transmission current.

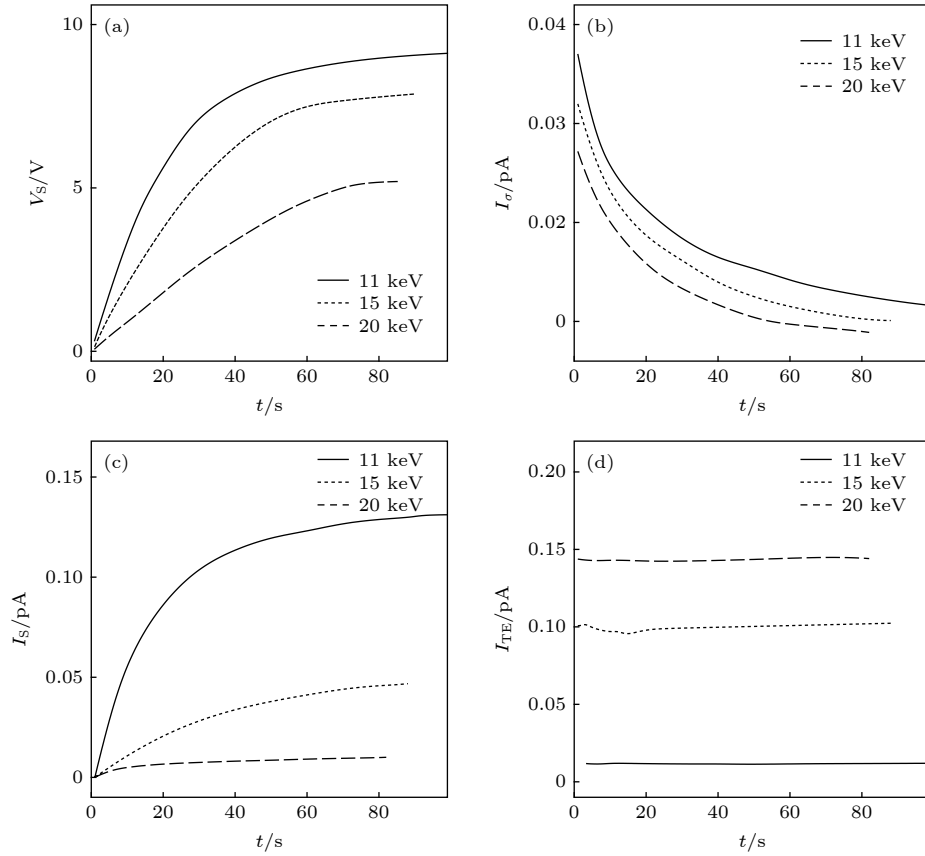


图 9 不同入射能量下带电特性 (a) 表面电位; (b) 表面出射电流; (c) 样品电流; (d) 透射电流

Fig. 9. Charging characteristics under different beam energies: (a) Surface potential; (b) surface emission current; (c) sample current; (d) transmission current.

的区域, 样品内部的负带电强度减弱, 使得表面电位下降, 但较小的运输距离使电子运输到基地的瞬态时间减小 (图 9(a)). 表面电位的下降使得返回表面的二次电子数目减小, 实际的出射电子电流减小 (图 9(b)). 此外, 由于样品内部的负带电强度较弱, 因而电子束感生电流及样品电流随入射能量的升高而减小 (图 9(c)). 最后, 入射能量的升高使透射电流明显升高; 由于样品带电强度较弱, 透射电流不随时间发生明显变化 (图 9(d)).

4 讨 论

以 PMMA 为例研究微米级厚度聚合物薄膜的带电和相应的流出电流特性, 下面讨论样品的特性参数对带电特性的影响.

聚合物样品的电子迁移率往往非常低, 导致样品近表面电位为正, 而内部电位为负. 相反, 对于电子迁移率较高的半导体样品及电介质样品, 虽然入射电子束能量较高, 但较高的电子迁移率使得次

级电子较易运输到基底形成样品电流, 因而样品内部带电强度非常弱, 故其出射电子电流、样品电流的时间特性应该与本文结果有较大区别.

样品的陷阱密度也会影响相关的带电及流出电流特性. 陷阱密度越大, 单位时间样品内可自由流动的自由电子数量越小, 使得电子运输到基底的时间变长, 因而带电瞬态时间变长, 相应的表面电位下降. 但陷阱密度的变化不改变样品内部带电及流出样品电流产生的物理机理, 因而其随时间变化的趋势并不会发生改变.

5 结 论

建立了可穿透高能电子束照射聚合物薄膜的带电效应的数值计算模型, 揭示了透射电子束照射下厚度为微米级聚合物薄膜带电过程中的空间电荷、电场及各类流出电流的动态特性, 得到以下主要结果.

1) 在 高能 电子 束 的 照 射 下, 由于 表面 及 近 表

面电子的出射,净电荷呈现为表面正,内部为负分布特性,因而空间电位呈现出在表面、近表面为正,内部为负分布特性;这种形态决定了部分出射二次电子可返回表面,而内部沉积电子向基底输运形成电子束感生电流的现象。

2) 随着电子束照射,样品表面正电位逐渐上升并趋于一个稳定值,而实际的表面出射电流逐渐下降至一个稳定值,样品电流逐渐升高至一个稳定值;由于薄膜带电强度整体较弱,透射电流不随时间变化。

3) 薄膜厚度的增加使带电过程的瞬态时间增长,样品内部带电强度增大,因而表面电位逐渐下降,实际出射电子电流增加;内部电场强度的增大导致样品电流增大。

4) 电子束能量的升高降低了电子产额,导致表面正电位下降,从而实际出射电子电流减小。透射电流随电子束能量的升高而增大,又因样品带电强度的减弱,样品电流减小。

本文以 PMMA 薄膜为对象研究了单层聚合物薄膜的带电效应,但得到的相关结论同样适用于其他低迁移率的聚合物样品。此外,实际中的样品可能会包含有内部结构,其内部电荷积累、输运及俘获过程更为复杂,因而有必要进一步开展相关的工作。

参考文献

- [1] Zhang M, Wang X X, Cao W Q, Yuan J, Cao M S 2019 *Adv. Optical Mater.* **6** 1900689
- [2] Cao M S, Wang X X, Zhang M, Shu J C, Cao W Q, Yang H J, Fang X Y, Yuan J 2019 *Adv. Funct. Mater.* **29** 1807398
- [3] Reimer L 1993 *Image Formation in Low Voltage Scanning Electron Microscopy* (Bellingham: SPIE Optical Engineering Press) p71
- [4] Fakhfakh S, Jbara O, Rondot S, Hadjadj A, Fakhfakh Z 2012 *J. Non-Cryst. Solids* **358** 1157
- [5] Jbara O, Fakhfakh S, Belhaj M, Rondot S, Hadjadj A, Patat J M 2008 *J. Phys. D* **41** 245504
- [6] Belhaj M, Paulmier T, Hanna R, Arnaout M, Balcon N, Payan D, Puech J 2014 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Rec., Sect. B* **320** 46
- [7] Paulmier T, Dirassen B, Payan D, Eesbeek M V 2009 *IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.* **16** 682
- [8] Huang J G, Han J W 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 2907 (in Chinese) [黄建国, 韩建伟 2010 *物理学报* **59** 2907]
- [9] Ben Ammar L, Fakhfakh S, Jbara O, Rondot S 2017 *J. Microsc.* **265** 322
- [10] Cazaux J 2010 *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **176** 58
- [11] Cornet N, Goeuriot D, Guerret-Piécourt C, Juvé D, Tréheux D, Touzin M, Fitting H J 2008 *J. Appl. Phys.* **103** 064110
- [12] Rau E I, Fakhfakh S, Andrianov M V, Evstafeva E N, Jbara O, Rondot S, Mouze Z 2008 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B* **266** 719
- [13] Cazaux J 2012 *J. Electron Microsc.* **61** 261
- [14] Rau E I, Tatarintsev A A 2012 *J. Surf. Invest.* **6** 911
- [15] Feng G B, Wang F, Hu T C, Cao M 2015 *Chinese Phys. B* **24** 117901
- [16] Pan S M, Min D M, Wang X P, Hou X B, Wang L, Li S T 2019 *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **66** 549
- [17] Li W Q, Zhang H B 2010 *Appl. Surf. Sci.* **256** 3482
- [18] Li W Q, Mu K, Xia R H 2011 *Micron* **42** 443
- [19] Li W Q, Liu D, Zhang H B 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 227303 (in Chinese) [李维勤, 刘丁, 张海波 2014 *物理学报* **63** 227303]
- [20] Li W Q, Hao J, Zhang H B 2015 *Acta Phys. Sin.* **64** 086801 (in Chinese) [李维勤, 郝杰, 张海波 2015 *物理学报* **64** 086801]
- [21] Saloum S, Akel M, Alkhaled B 2009 *J. Phys. D* **42** 085201
- [22] Barman P, Singh M S, Maibam J, Brojen R K, Sharma B I 2010 *Ind. J. Phys.* **84** 711
- [23] Weng M, Hu T C, Cao M, Xu W J 2015 *Acta Phys. Sin.* **64** 157901 (in Chinese) [翁明, 胡天存, 曹猛, 徐伟军 2015 *物理学报* **64** 157901]
- [24] Feng G B, Cao M, Cui W Z, Li J, Liu C L, Wang F 2017 *Acta Phys. Sin.* **66** 067901 (in Chinese) [封国宝, 曹猛, 崔万照, 李军, 刘纯亮, 王芳 2017 *物理学报* **66** 067901]
- [25] Joy D C 1995 *Monte Carlo Modeling for Electron Microscopy and Microanalysis* (New York: Oxford University Press) p27
- [26] You D S, Li H M, Ding Z J 2018 *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **222** 156
- [27] Da B, Mao S F, Zhang G H, Ding Z J 2012 *J. Appl. Phys.* **112** 034310
- [28] Touzin M, Goeuriot D, Guerret-Piécourt C, Juvé D, Tréheux D, Fitting H J 2006 *J. Appl. Phys.* **99** 114110
- [29] Cao M S, Shu J C, Wang X X, Wang X, Zhang M, Yang H J, Fang X, Yuan J 2019 *Annalen Der Physik* **531** 1800390
- [30] Fang X Y, Yu X X, Zheng H M, Jin H B, Wang L, Cao M S 2015 *Phys. Lett. A* **379** 2245
- [31] Li S L, Yu X X, Li Y L, Jia Y H, Fang X Y, Cao M S 2019 *Eur. Phys. J. B* **92** 155
- [32] Song Z G, Ong C K, Gong H 1997 *Appl. Surf. Sci.* **119** 169
- [33] Sessler G M 1992 *IEEE T. Electr. Insul.* **27** 961
- [34] Sessler G M, Figueiredo M T, Ferreria G F L 2004 *IEEE T. Dielect. El. Inl.* **11** 192
- [35] Li Y J, Li S L, Gong P, Li Y L, Fang X Y, Jia Y H, Cao M S 2018 *Physica E* **104** 247
- [36] Rau E I 2008 *Appl. Surf. Sci.* **254** 2110

Charging effect of polymer thin film under irradiation of high-energy transmission electron beam*

Huo Zhi-Sheng¹⁾ Pu Hong-Bin¹⁾ Li Wei-Qin^{1)2)†}

1) (*School of Automation and Information Engineering, Xi'an University of Technology, Xi'an 710048, China*)

2) (*Department of Electronic Science and Technology, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China*)

(Received 18 July 2019; revised manuscript received 17 September 2019)

Abstract

The serious charging effect of polymer film with a thickness of the order of microns under the radiation of high-energy transmission electron beam, on the reliability of the micro-nano electronic device in electron microscopy detection is investigated. The charging effect of the polymer film is numerically calculated in this paper. The scattering process is simulated by the Monte Carlo method. The elastic scattering is calculated with the Rutherford scattering model. The inelastic scattering is simulated with the fast secondary electron (SE) model and the Penn model. The transport, the capture, and the recombination process of the charges are treated with the finite difference method. The fourth-order Runge-Kutta method is used to solve the trajectory of the emitted SEs. The dynamic distributions of the net charge, the built-in electric field, the surface emission current, and the transmission current are investigated, and the influence of the film thickness and the beam energy on the charging characteristics are analyzed. The results show that due to the emission of electrons near the sample surface, the distribution of the net charge in the sample is first positive and then negative along the incident direction. In addition, under the irradiation, higher charge quantity is deposited in the sample, and the net charge density increases gradually. However, with long-time irradiation, the deposited electrons transport to the surface under the action of built-in electric field which reduces the surface net charge density. Therefore the net charge density tends to a stable value. The space potential is positive in the surface and negative inside the sample. Therefore some emitted SEs return to the surface, resulting in the electron beam-induced current. With the irradiation, the positive surface potential increases and tends to a stable value. Hence the actual surface emission current decreases to a stable value and the sample current increases to a stable value. The sample current remains unchanged due to the weak charging strength. Increasing the film thickness leads the transient time to increase, which contributes to the decline of the surface potential and the increase of the actual emission current and sample current. The increase of the beam energy causes the transmission current to increase and the sample current to decrease. In addition, it reduces the positive surface potential and the actual surface emission current accordingly. The results conduce to the decrease of the charging effect of the polymer film under the radiation of high-energy electron beam in the electron microscopy.

Keywords: charging effect, numerical simulation, transmission current, transport

PACS: 02.70.Uu, 79.20.Ap, 72.80.Le

DOI: 10.7498/aps.68.20191112

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11175140), the Scientific Research Program Funded by Shanxi Province, China (Grant No. 2019JM-340), and the Scientific Research Program Funded by Xi'an University of Technology, China (Grant No. 2015CX030).

† Corresponding author. E-mail: wqlee@126.com