

低能电子束照射电介质样品的二次电子特性

汪春华^{1,2}, 李维勤², 张海波³

(1. 西安航空学院电气工程系, 陕西西安 710077; 2. 西安理工大学自动化与信息工程学院, 陕西西安 710048;
3. 西安交通大学电子科学与技术系, 陕西西安 710049)

摘要: 为阐明低能电子束照射下电介质样品的二次电子电流及产额的动态特性, 将蒙特卡洛法和有限差分法相结合, 建立了较为准确的电子散射、俘获、输运和自洽场等过程的数值计算模型; 采用一个改进二次电子检测实验平台, 准确测量了二次电子电流. 模拟和实验结果表明, 相对于电子束脉冲照射模式, 电子束连续照射会导致二次电子产额明显降低. 在连续照射模式下, 随着电子束照射, 二次电子电流和产额逐渐减小至一个稳定值. 二次电子产额受入射电子束电流的影响较小, 但随样品厚度的增大而增大. 本文结果为提高扫描电镜成像质量、降低带电效应提供了理论指导, 而且提供了依据二次电子特性研究样品参数的新思路.

关键词: 电介质; 电子束照射; 二次电子电流; 二次电子产额

中图分类号: TN407 **文献标识码:** A **文章编号:** 0372-2112 (2014)01-0144-06

电子学报 URL: <http://www.ejournal.org.cn> **DOI:** 10.3969/j.issn.0372-2112.2014.01.023

SE Characteristics of Dielectrics Under Low-Energy Electron Beam Irradiation

WANG Chun-hua^{1,2}, LI Wei-qin², ZHANG Hai-bo³

(1. Department of Electrical Engineering, Xi'an Aeronautical University, Xi'an, Shaanxi 710077, China;

2. School of Automation and Information Engineering, Xi'an University of Technology, Xi'an, Shaanxi 710048, China;

3. Department of Electronic Science and Technology, Xi'an Jiaotong University, Xi'an, Shaanxi 710049, China)

Abstract: To clarify secondary electron (SE) yield and current characteristics of dielectrics due to low-energy electron beam irradiation, we propose an electron scattering, trapping, transport and self-consistent numerical model by combining the Monte Carlo method and the finite difference method. By establishing an improved SE detection platform, we measure the emission SE current of dielectric samples. Results show that, comparing with the impulse electron beam irradiation, the SE yield will decrease evidently under the continuous electron beam irradiation. With irradiation, the SE current and yield reduce to a stable value gradually. Moreover, the SE yield varies slightly with electron beam current, but increases with the increase in the sample thickness. The results provide the theoretical guidance to improve the imaging quality and suppress the charging effect in modern scanning electron microscopy and a new thought for the parameter measurement of dielectrics according to SE characteristics.

Key words: dielectrics; electron beam irradiation; secondary electron current; secondary electron yield

1 引言

低能电子束照射电介质样品的二次电子特性是目前扫描电镜成像和检测、电子探针微分析、微细加工等领域的重要研究课题^[1~5]. 在样品检测和加工过程中, 电子束照射会引起样品表面、近表面电介质(绝缘层和氧化层等)产生明显的带电现象^[6~8]. 一方面, 这种带电现象会改变入射电子和出射二次电子的运动状态, 从而影响扫描成像和加工的精度^[9~12]. 另一方面, 利用电介

质的带电对二次电子发射和电流的影响, 还可实现样品的参数测量和微纳电子器件的埋层信息观测^[13~15].

当电子束照射样品时, 通过散射在电子束照射区域内会产生大量的电子, 这些电子在内部电场下会往下输运或者被样品陷阱俘获^[16,17], 影响了二次电子的出射; 而样品带电产生的空间电场还会影响出射二次电子的轨迹, 导致二次电子电流和产额发生变化. 此外, 相关电子束和样品参数(例如电子束能量、电子束流密度、样品厚度等)也会极大影响样品的带电特性以及二次电子的

发射和收集^[18,19].因此,上述样品的二次电子发射和成像是个复杂的过程.然而,目前为止,样品带电对二次电子发射和成像特性影响的研究还比较缺乏.

本文涉及低能电子束照射电介质样品的二次电子发射和成像特性数值模拟和实验研究.通过建立电子散射、俘获、输运等因素的自洽场数值计算模型,模拟二次电子发射和成像特性;采用一个改进的二次电子检测设备,测量二次电子电流;分析相关样品和电子束参数对二次电子特性的影响规律.

2 数值模型

由于电子束照射下电介质样品的带电和二次电子成像较为复杂,实验方法难以在形成机理、成像特性等方面提供有价值结果.数值模拟方法能够考虑电子在样品散射、输运、俘获等过程,并能动态跟踪二次电子的发射和成像特性,是目前研究样品二次电子成像比较有效的方法.我们采用蒙特卡洛方法模拟电子在样品内部的散射过程,采用数值计算方法模拟电荷在样品内部的俘获、输运以及二次电子的发射.

2.1 电子散射过程和二次电子的产生

电子入射样品后,会与样品内的原子或分子发生散射.弹性散射仅仅改变电子的运动方向;而非弹性散射则使电子的损失能量.本研究采用单电子散射的蒙特卡洛模型.当一个电子入射样品后要发生多次散射,电子与样品原子间不断的发生碰撞,直到能量耗尽并沉积于样品内部或者从样品表面逸出.

低能电子的弹性散射过程采用 Mott 弹性散射微分截面来描述^[20,21]:

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

其中, σ 是散射截面,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.其弹性散射总截面可写成:

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

非弹性散射对角度的改变较小,但使电子损失能量.我们采用 Moller 散射微分截面来描述:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{\pi e^4}{E^2} \left(\frac{1}{\Omega^2} + \frac{1}{(1-\Omega)^2} + \frac{1}{\Omega(1-\Omega)} \right) \quad (3)$$

这里, E 表示入射电子能量, Ω 表示生成二次电子的能量.对于电子与内壳层碰撞过程采用 Vriens 散射截面来描述^[20].

通过采用改进的 Beth 连续能量损失经验公式,可得到能量为 E 的电子相对于步长 S 的平均能量损失率为^[20]:

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

其中, ρ 、 \bar{A} 、 \bar{J} 和 \bar{Z} 分别表示样品的密度、平均原子量、平均电离能和平均原子序数, k 为修正系数.

我们采用蒙特卡洛方法模拟电子的上述散射过程.电子散射时,其运动方向的改变和能量损失可以用随机数来表示.一个电子在两次散射之间的步长 S 和散射角 θ 分别用下式来表示:

$$S = -\frac{A}{N_a \rho \sigma_T} \ln(R_1), R_2 = \frac{1}{\sigma_T} \int_0^\theta \frac{d\sigma}{d\Omega} \sin\theta d\theta \quad (5)$$

其中, N_a 为阿伏伽德罗常数, R_1 、 R_2 为区间 $[0,1]$ 上服从均匀分布的随机数.

电子散射的方位角满足 $\phi = 2\pi R_3$,其能量损失满足:

$$\Delta E = S dE/dS \quad (6)$$

其中, R_3 为区间 $[0,1]$ 上服从均匀分布的随机数.通过上述蒙特卡洛过程,可得到一个电子在样品内部的散射过程.

入射电子与固体原子发生非弹性散射后,会激发出二次电子.每次非弹性散射将产生一个二次电子,并在碰撞位置留下一个空穴.当电子能量接近或等于零时不需要再追踪这个电子.一个入射电子在其能量耗尽之前的全部散射过程中,会产生大量的二次电子.位于样品浅表层能量较高的二次电子会从表面出射,形成出射二次电子.其余电子沉积在样品内部.

2.2 电子的俘获和输运过程

沉积在样品内部的部分电子会被陷阱俘获.陷阱对电子的俘获是一个复杂的过程.本研究我们采用较为准确的考虑 Poole-Frenkel 效应的捕获、去捕获截面模型^[22].这里,电子密度 N 随时间 t 变化(被捕获)的微分形式如下:

$$\frac{dN}{dt} = -Nv_d \cdot C_s \left(N_i - \frac{Q}{\epsilon} \right) + \frac{Q}{\epsilon} f \exp\left(-\frac{E_T - \Delta E_{PF}}{kT} \right) \quad (7)$$

其中, $v_d \cdot S$ 表示捕获率, ϵ 是样品介电常数, C_s 是相对于电荷 Q/ϵ 的捕获截面, N_i 表示缺陷密度, f 是逃逸频率因子, E_T 是依赖于电场 ΔE_{PF} 的热激活能, T 表示温度.相关变量的获得可通过蒙特卡罗模拟来得到.

未被俘获的电子在内部电场和密度梯度作用下会进行电荷的输运,形成电子束感生电流.电荷的输运满足电流连续性方程:

$$\frac{dN}{dt} = \nabla \cdot \mathbf{J} / e \quad (8)$$

$$\mathbf{J} = -e\mu N \nabla V + eD \nabla N \quad (9)$$

其中, \mathbf{J} 表示电子电流密度, e 表示电子电量的绝对值, μ 和 D 分别表示电子迁移率和扩散系数.

空间电位 V 满足泊松方程:

$$\nabla^2 V = -[P - N - Q]e/\epsilon \quad (10)$$

这里, P 表示空穴密度.

本文对微分方程式(7)~(10)采用有限差分法求解.为了降低计算复杂度和提高计算精度,在差分法求解上述方程时,采用变差分网格.电荷密度较高时选取的网格尺寸较小,而电荷密度较低或为零时选取的网格尺寸较大.初始条件设空间电位为零.

2.3 二次电子产额和电流

样品表面和上方的空间电场可以影响从样品表面出射的二次电子运动轨迹,从而影响成像二次电子电流.通过计算表面局部电场下二次电子的轨迹,可得到二次电子电流 I_S .

对于一个给定的三维坐标系 (x, y, z) ,从样品表面出射的二次电子在空间电场 E_x 、 E_y 和 E_z 分量作用下的运动方程为:

$$m\ddot{x} = -eE_x, m\ddot{y} = -eE_y, m\ddot{z} = -eE_z \quad (11)$$

上式中空间电场强度是通过对空间电位求数值微分来得到的,我们采用四阶龙格-库塔法来求解.

二次电子产额 δ 等于二次电子电流 I_S 与入射电子电流值 I_B 之比.即:

$$\delta = I_S / I_B \quad (12)$$

这里需要指出的是,在空间电场作用下,部分出射二次电子会返回表面,这些电子不能被收集器收集形成二次电子电流.因此,模拟得到的二次电子电流 I_S 表示脱离表面电场束缚实际出射的二次电子电流,等同于实验中测量的二次电子电流.

3 扫描电镜实验

我们选取的样品为厚度 $10\mu\text{m}$ 的热生长二氧化硅(thermal SiO_2)薄片,其长宽均为 1mm .该二氧化硅薄片具有一定厚度的硅衬底.平整的样品表面是准确测量样品二次电子发射的必要条件.为了观测样品的表面结构,我们采用 JEOL 公司的 JSM-6700F 扫描电镜对样品进行观测,电子束为垂直照射,加速电压取 5kV .图 1 是获取的二氧化硅样品的扫描电镜局部图像.可以看出,样品表面比较平整.

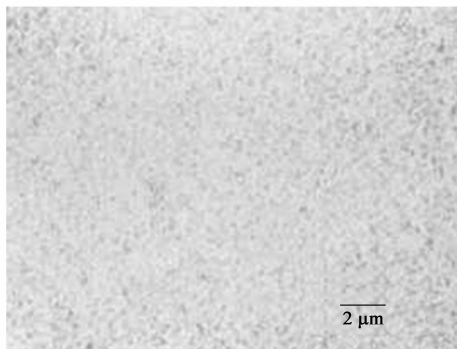


图1 二氧化硅样品的扫描电镜图像

为了定量研究样品带电状态下的二次电子的相关特性,我们建立如图 2 所示的二次电子检测实验平台.为了降低由于电子束照射产生的样品表面电位对出射二次电子的轨迹的扭曲,样品放置在一个接地的圆柱形金属台架上.为了准确测量样品的二次电子电流,我们在样品室上方添加一个金属二次电子收集器,并附加一个高灵敏度的电流计.

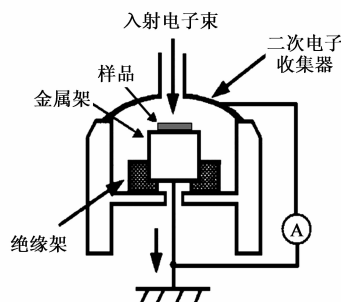


图2 二次电子检测平台示意图

4 模拟及实验结果

样品和电子束参数会影响样品的带电和二次电子发射和电流特性.根据热生长二氧化硅的特性,我们取陷阱密度 N_t 为 10^{17}cm^{-3} ,电子迁移率 μ 为 $1\text{cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$.入射电子束电流 I_B 取 16nA .本文后面部分还将分析相关参数对二次电子产额和电流的影响.

4.1 非带电条件下二次电子产额

为了阐明样品带电对二次电子产额的影响,我们首先采用脉冲电子束照射方式,来测量二次电子电流,并计算二次电子产额.这里,在脉冲电子束照射下,样品的带电非常微弱,因而可以认为样品不带电^[23].低能入射电子束能量取 $0.3\text{keV} \sim 10\text{keV}$.图 3 是测量得到的不同入射电子束能量 E_B 下的二次电子产额 δ .可以发现,使得二次电子产额为 1 的第二临界能量约为 2.5keV .

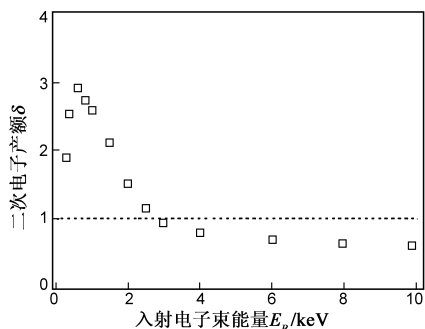


图3 脉冲电子束照射下的二次电子产额

4.2 带电条件下二次电子特性

接下来我们采用电子束连续照射方式,来模拟和测量二次电子电流和产额.在这种情况下,样品会产生

明显的带电现象.一般认为,当入射电子束能量大于第二临界能量时,二次电子产额小于 1,出射电子数目小于入射电子数目,样品因此负带电.

为了直观反映样品的带电对二次电子电流和产额的影响.我们分别测量和计算不同电子束照射时间下的二次电子电流值.图 4 是入射电子束能量 E_B 为 5keV 时,二次电子电流 I_S 的模拟和实验测量结果.图中实线是模拟结果,方框表示测量结果.从图中可以看出,二者结果基本一致.此外,二次电子电流随着照射从初始值逐渐降低,并趋于一个稳定值.因此,相应的二次电子产额也将逐渐降低.

下面我们分析二次电子电流随电子束照射降低的原因.在连续电子束照射下,样品的带电对二次电子电流有以下几个方面的影响.首先,由于电子在内部电场作用下向衬底输运,形成电子束感生电流,从而降低出射二次电子电流.此外,样品表面正电场会引起部分出射二次电子返回表面,从而降低二次电子电流^[24,25].同时,随着电子束的照射,样品内部激发的二次电子会被更多的陷阱俘获,也会导致二次电子产额降低.相反地,随着电子束的照射,样品内部沉积的电子数目会逐渐增大,表面电位 V_S 逐渐降低,这种表面负电位的排斥作用会引起入射电子束着陆能量 $(E_B - |eV_S|)$ 的降低,如图 3 所示,从而反过来增加二次电子产额以及二次电子电流.虽然表面电位的降低会增加二次电子电流,但由于热生长二氧化硅的电子迁移率较高,因而表面电位对二次电子电流的影响较小.因此,以上这几个因素的综合作用使得二次电子电流和二次电子产额总体上降低.而对于电子迁移率较低的样品(例如聚合物),随着电子束照射,其表面电位明显降低,可低至负数千伏数量级,其二次电子电流和产额反而会明显升高^[26].

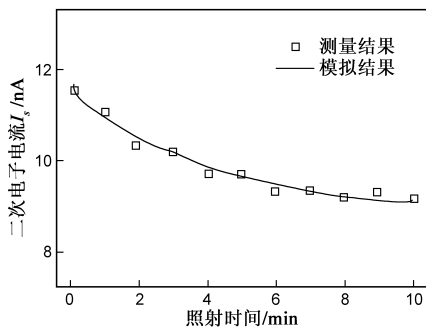


图4 二次电子电流随电子束照射变化特性

接下来,我们分别针对不同的入射电子束能量,来测量和模拟二次电子产额.图 5 分别是电子束较长照射时间下,实验测量和数值计算得到的二次电子产额与入射电子束能量之间的关系,图中实线是模拟结果,方

框表示测量结果.从图中可以看出,二者结果基本一致.更重要的是,通过比较图 2 和图 5,我们发现,样品带电条件下二次电子产额明显低于非带电条件的测量值,这也从一个侧面反映了图 4 结果的正确性.这种二次电子产额降低的结果与文献[23]中的电介质体样品的结论基本一致.此外,图 5 中的第二临界能量约为 2keV,明显低于图 2 的 2.5keV.

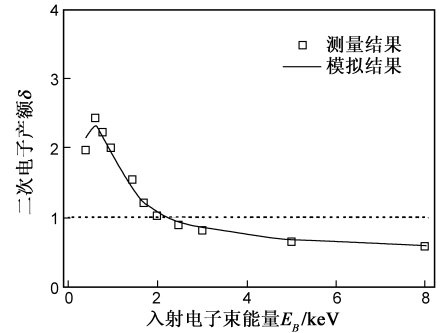


图5 样品带电条件下的二次电子产额

4.3 电子束和样品参数对二次电子产额的影响

为了分析入射电子束和样品参数对二次电子特性的影响,我们分别模拟和测量相关参数对二次电子特性的影响.

入射电子束电流 I_B 是低压扫描电镜、探针分析检测中经常需要改变的参数.为此,我们分别取不同的入射电子束电流,模拟和测量二次电子产额.图 6 是模拟和测量结果.其中,入射电子束能量为 5keV,其他参数的选取和前文一致.由图可知,二次电子产额的模拟和测量结果基本一致.此外,二次电子产额随入射电子束电流的变化基本保持不变.这是因为,一方面,随着入射电子束电流的增加,单位时间内样品内部沉积的电荷会增加,导致表面电位降低,从而使入射电子束能量降低,提高了二次电子的出射比率;另一方面,入射电子束电流的增加会使表面局部电场增强,使得更多的二次电子返回表面,降低了二次电子的出射率.这两个相反因素的作用使得二次电子产额基本上保持不变.

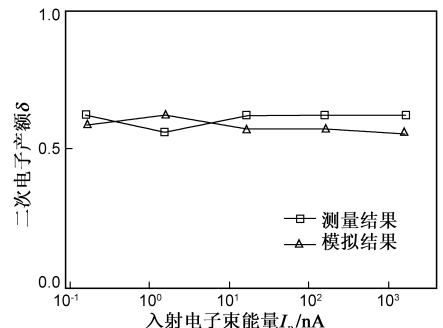


图6 入射电子束电流对二次电子产额的影响

样品厚度对二次电子特性的影响,也是一个值得

研究的问题. 图 7 给出了不同样品厚度 H 下, 二次电子产额随样品厚度变化的模拟和测量结果. 由图可知, 二次电子产额的模拟和测量结果基本一致. 如图所示, 当样品厚度较小时, 二次电子产额随样品厚度仅有细微的变化; 而随着样品厚度的增加, 二次电子产额会有所升高. 这里, 一方面, 样品厚度的增加会导致表面局部电场增强, 更多的二次电子返回表面, 因而二次电子电流和二次电子产额均降低. 另一方面, 随着样品厚度的增加, 样品内部沉积的电子数目会增加, 导致表面电位降低, 因而二次电子产额增大. 但是, 当样品厚度有较大增加时, 后一个因素起更大作用, 因而总体上二次电子产额增大. 特别的, 当样品厚度达到毫米量级时, 表面电位可以达到负千伏数量级, 入射电子的着陆能量接近于第二临界能量, 因而二次电子产额接近于 1^[26].

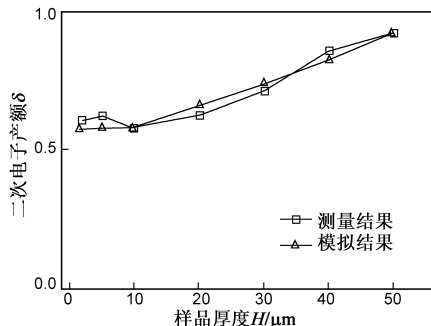


图7 样品厚度对二次电子产额的影响

5 结论

建立了电子散射、输运、俘获等过程的自洽场数值计算模型, 模拟了不同条件下电介质样品的二次电子电流和产额; 并采用一种改进的实验设备测量了不同条件下的二次电子电流. 结果表明, 二次电子产额随着电子束照射会逐渐降低. 相对于非带电情况, 样品带电会使得二次电子产额明显减小, 第二临界能量降低. 入射电子束电流对二次电子产额的影响较小; 而二次电子产额随着样品厚度的增大而增大. 研究结果对于扫描电镜成像、电子器件检测等方面的研究具有一定的理论和现实意义.

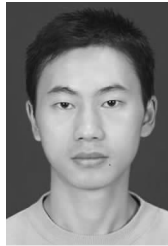
参考文献

[1] Howie A. Static and dynamic charges: changing perspectives and aims in electron microscopy [J]. *Microscopy & Microanalysis*, 2004, 10: 685 – 690.
 [2] Cazaux J. About the mechanisms of charging in EPMA, SEM, and ESEM with their time evolution [J]. *Microscopy & Microanalysis*, 2004, 10(6): 670 – 684.
 [3] Mao S F, Ding Z J. A Monte Carlo simulation study on the image resolution in scanning electron microscopy [J]. *Surface In-*

terface Analysis, 2010, 42(6–7): 1096 – 1099.
 [4] Toth M, Knowles W R, Theil B L. Secondary electron imaging of nonconductors with nanometer resolution [J]. *Applied Physics Letters*, 2006, 88: 023105.
 [5] 宋会英, 杨瑞, 赵真玉. 电子束光刻三维仿真研究 [J]. *电子学报*, 2010, 38(3): 617 – 619.
 Song Hui-ying, Yang Rui, Zhao Zhen-yu. Three-dimensional simulation study on the electron beam lithography [J]. *Acta Electronica Sinica*, 2010, 38(3): 617 – 619. (in Chinese)
 [6] 李维勤, 张海波, 鲁君. 非聚焦电子束照射 SiO_2 薄膜带电效应 [J]. *物理学报*, 2012, 61(027302): 1 – 8.
 Li Wei-qin, Zhang hai-bo, Lu Jun. Charging effects of SiO_2 thin films under defocused electron beam irradiation [J]. *Acta Physics Sinica*, 2012, 61(027302): 1 – 8. (in Chinese)
 [7] Cazaux J. Secondary electron emission and charging mechanisms in Auger electron spectroscopy and related e-beam techniques [J]. *Journal of Electron Spectroscopy Related Phenomena*. 2010, 176: 58 – 79.
 [8] Fitting H J, Touzin M. Secondary electron emission and self-consistent charge transport in semi-insulating samples [J]. *Journal of Applied Physics*, 2011, 110(044111): 1 – 10.
 [9] Fitting H J, Touzin M. Time-dependent start-up and decay of secondary electron emission in dielectrics [J]. *Journal of Applied Physics*, 2010, 108(033711): 1 – 6.
 [10] Cazaux J. Calculated dependence of few-layer graphene on secondary electron emissions from SiC [J]. *Applied Physics Letters*, 2011, 98(013109): 1 – 3.
 [11] Askri B, Raouadi K, Renoud R, et al. Time dependence of secondary electron yield and of surface potential during charging of amorphous silica target [J]. *Journal of Electrostatics*, 2009, 67(4): 695 – 702.
 [12] Da B, Mao S F, Zhang G H, et al. Monte Carlo modeling of surface excitation in reflection electron energy loss spectroscopy spectrum for rough surfaces [J]. *Journal of Applied Physics*, 2012, 112(034310): 1 – 9.
 [13] Zhang H B, Feng R J, Ura K. Analysing imaging signals of negative-charging contrast in scanning electron microscopy [J]. *Chinese Physics Letters*, 2003, 20(11): 2011 – 2014.
 [14] Abe H, Babin S, Borisov S, et al. Contrast reversal effect in scanning electron microscopy due to charging [J]. *Journal of Vacuum Science Technology*, 2009, B27(3): 1039 – 1042.
 [15] Zhang H B, Li W Q, Wu D W. Contrast mechanism due to interface trapped charges for a buried SiO_2 microstructure in scanning electron microscopy [J]. *Journal of Electron Microscopy*, 2009, 58(1): 15 – 19.
 [16] Li W Q, Mu K, Xia R H. Self-consistent charging in dielectric films under defocused electron beam irradiation [J]. *Micron*, 2011, 42(5): 443 – 448.
 [17] Bonnelle C. Charge trapping Dielectrics [J]. *Microscopy &*

- Microanalysis, 2004, 10: 691 – 696.
- [18] Mizuhara Y, Kato J, Nagatomi T, et al. Quantitative measurement of surface potential and amount of charging on insulator surface under electron beam irradiation [J]. Journal of Applied Physics, 2002, 92(10): 6128 – 6133.
- [19] Bai M, Meisburger D W, Pease R F W. Transient measurement of resist charging during electron beam exposure [J]. Journal of Vacuum Science Technology B, 2003, 21(1): 106 – 111.
- [20] Joy D C. Monte-Carlo Modeling for Electron Microscopy and Microanalysis [M]. New York: Oxford University Press, 1995. 25 – 152.
- [21] Ding Z J, Tang X D, Shimizu R. Monte Carlo study of secondary electron emission [J]. Journal of Applied Physics, 2001, 89(1): 718 – 726.
- [22] Touzin M, Goeriot D, Fitting H J, et al. Electron beam charging of insulators: A self-consistent flight-drift model [J]. Journal of Applied Physics, 2006, 99(114110): 1 – 14.
- [23] Rau E I. The effect of contamination of dielectric target surfaces under electron irradiation [J]. Applied Surface Science, 2008, 254: 2110 – 2113.
- [24] Zhang H B, Li W Q, Cao M. Space charge characteristics of an insulating thin film negatively charged by a low-energy electron beam [J]. Journal of Electron Microscopy, 2012, 61(2): 85 – 97.
- [25] Li W Q, Zhang H B. The surface potential of insulating thin films negatively charged by a low-energy focused electron beam [J]. Micron, 2010, 41(5): 416 – 422.
- [26] Meyza X, Goeriot D, Guerret-piécourt C, et al. Secondary electron emission and self-consistent charge transport and storage in bulk insulators: Application to alumina [J]. Journal of Applied Physics, 2003, 94(8): 5384 – 5392.

作者简介



汪春华 男. 1981年11月出生, 四川广元人. 2007年毕业于西安理工大学信息与控制工程系, 获硕士学位. 现为西安航空学院电气工程系讲师. 主要研究方向为电子束技术.

E-mail: chwang@xaau.edu.cn



李维勤 男. 1975年8月出生, 陕西澄城人. 2010年获西安交通大学物理电子学博士学位. 现为西安理工大学自动化学院教师, 主要从事扫描电镜检测、电子物理、电子束技术等方面的研究工作.

E-mail: wqlee@126.com