

УДК 519.633

МОДЕЛИРОВАНИЕ РЕЛАКСАЦИИ ЗАРЯДА В ДИЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ МИШЕНИ, ОБЛУЧАЕМОЙ ЭЛЕКТРОННЫМ ПУЧКОМ

Е. А. Грачев, И. В. Митин, Н. Н. Негуляев

(кафедра компьютерных методов физики; кафедра общей физики)

E-mail: mitin@genphys.phys.msu.su; bot@cmp.phys.msu.su

Рассмотрена феноменологическая модель динамики к равновесному состоянию заряда, инжектированного в слой диэлектрика электронным пучком. Для решения системы уравнений, описывающей релаксацию заряда в трехмерном случае, разработан специальный вычислительный алгоритм. Предложена методика определения некоторых связанных с проводимостью параметров диэлектрических материалов.

Введение

Одним из основных аспектов взаимодействия излучения с органическими диэлектриками является способность последних хорошо накапливать заряд, инжектируемый в них электронным облучением. В настоящее время в основе всех моделей радиационной проводимости таких диэлектриков лежит феноменологическая модель полной концентрации (МПК) [1]. Согласно МПК динамика избыточных носителей к равновесному состоянию описывается с помощью следующих пяти релаксационных механизмов: 1) дрейф носителей под действием создаваемого ими электрического поля; 2) диффузия, 3) объемная генерация электронов и дырок, 4) рекомбинация носителей, 5) захват электронов и дырок на ловушки. Учет всех этих механизмов приводит к довольно сложной системе интегро-дифференциальных уравнений, построение аналитического решения которой в общем случае невозможно.

Неоднократно производились попытки упрощения вида уравнений за счет отбрасывания того или иного механизма проводимости. Например, авторами [2, 3] обсуждается простейшая модификация МПК, в которой учитывается только механизм захвата электронов и дырок на ловушки, и считается, что если не происходит локализации носителя на ловушке, то частица мгновенно покидает образец. В этих работах выполнен подробный анализ вида сигнала, снимаемого с облучаемой мишени, в зависимости от характера распределения центров захвата по энергиям. В работе [4] представлена одномерная модель проводимости для случая сильного поля (т. е. такого создаваемого объемным зарядом (ОЗ) поля, напряженность которого превышает 10^5 В/м). В этом случае кроме захвата на ловушки существенна дрейфовая составляющая тока, а диффузионную можно не учитывать. При этом спектр электронных ловушек считают моноэнергетическим, а вкладом дырок пренебрегают. Дальнейшее развитие модель [4] получает в работах [5, 6], авторы которых снимают оба ее ограничения, однако рассматривают только такие

частные случаи, когда феноменологические коэффициенты удовлетворяют строго определенным условиям, таким, что возможно построение аналитического решения. В работе [7] оба ограничения [4] тоже преодолены, однако накладывается новое: отсутствие искажения однородного электрического поля, в которое помещен облученный диэлектрик, полем ОЗ (так называемое малосигнальное приближение). К достоинствам этой работы следует отнести то, что построение решения возможно при любых значениях феноменологических коэффициентов. Учет влияния поля ОЗ произведен и авторами [8], но снова при специальном допущении: рекомбинация электронов на локализованных дырках носит ланжевеновский характер, хотя в общем случае это не так [9]. Поэтому стоит признать, что все описанные модели имеют ограниченную область применимости и носят лишь частный, оценочный характер.

При этом существует целый ряд экспериментальных работ, показывающих, что в процессе проводимости играют важную роль оба типа носителей [10], а спектр ловушек не является моноэнергетическим [1, 10, 11]. В объемных образцах вне приповерхностного слоя наблюдается максвелловская релаксация [10]. Это означает, что нельзя пренебрегать дрейфовым механизмом переноса носителей под действием поля ОЗ. Не менее важна и роль рекомбинации носителей [11]. Для учета всех этих явлений необходима методика подробного и аккуратного моделирования разрядовых процессов в диэлектрических средах.

В связи с возросшими вычислительными возможностями стало реальным создание алгоритма, строящего численное решение системы уравнений МПК, взятой в ее максимально полном виде при любых значениях феноменологических коэффициентов. Целью данной работы является: представление модели, краткое описание методики построения решения ее уравнений, а также иллюстрация работы модели путем сравнения получаемых на ее основе результатов с известными экспериментальными данными.

Постановка задачи

Для определенности рассмотрим диэлектрик как пластину, с одной стороны которой находится заземленный слой металла, а с другой — вакуум (рис. 1). Такие структуры очень часто встречаются в технологии электронно-лучевой литографии, где пучок электронов с энергией порядка десятков килоэлектронвольт проникает в тонкий слой радиационно-чувствительного резиста (органического диэлектрика), нанесенного на металлическую пленку. Будем считать, что энергетический спектр центров захвата для электронов состоит из M_n , а для дырок из M_p различных энергетических уровней. Тогда спектр $S(E)$, например, электронных ловушек имеет вид

$$S(E) = \sum_{m=1}^{M_n} N_m \delta(E - E_m),$$

где N_m — пространственная концентрация ловушек с энергией E_m .



Рис. 1. Облучаемый образец

Запишем систему уравнений, описывающую динамику носителей заряда в рассматриваемом диэлектрике [1].

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \left(n_f + \sum_{i=1}^{M_n} n_i \right) &= G - \alpha n_f \left(p_f + \sum_{j=1}^{M_p} p_j \right) - \\ &- \alpha' \left(n_f + \sum_{i=1}^{M_n} n_i \right) p_f + \frac{\mu_n k T}{e} \Delta n_f - \mu_n \nabla (n_f \nabla \varphi), \end{aligned} \quad (1)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \left(p_f + \sum_{j=1}^{M_p} p_j \right) &= G - \alpha n_f \left(p_f + \sum_{j=1}^{M_p} p_j \right) - \\ &- \alpha' \left(n_f + \sum_{i=1}^{M_n} n_i \right) p_f + \frac{\mu_p k T}{e} \Delta p_f + \mu_p \nabla (p_f \nabla \varphi), \end{aligned} \quad (2)$$

$$\frac{\partial n_i}{\partial t} = k_3 n_f (N_i - n_i) - \frac{n_i}{\tau_i} - \alpha' p_f n_i, \quad i = 1, \dots, M_n, \quad (3)$$

$$\frac{\partial p_j}{\partial t} = k'_3 p_f (P_j - p_j) - \frac{p_j}{\nu_j} - \alpha n_f p_j, \quad j = 1, \dots, M_p, \quad (4)$$

$$\Delta \varphi = -\frac{e}{\epsilon \epsilon_0} \left(p_f + \sum_{j=1}^{M_p} p_j - n_f - \sum_{i=1}^{M_n} n_i \right), \quad (5)$$

где n_f, p_f — концентрации свободных электронов и дырок с истинными подвижностями μ_n и μ_p ; G — скорость генерации свободных электронов и дырок; n_i, p_j — концентрации электронов и дырок на ловушках; N_i, P_j — концентрации i -го и j -го уровней захвата для электронов и дырок с временами термического освобождения из них τ_i и ν_j соответственно; α, α' — константы скоростей бимолекулярной рекомбинации носителей; k_3, k'_3 — скорости захвата электронов и дырок на ловушки; φ — электростатический потенциал; ϵ — относительная диэлектрическая проницаемость диэлектрика; ϵ_0 — абсолютная проницаемость вакуума; T — температура диэлектрика; e — заряд электрона; k — постоянная Больцмана; L — толщина слоя диэлектрика.

Граничные условия для системы (1)–(5) имеют вид (система координат показана на рис. 1):

$$\left. \begin{aligned} \varphi|_{z=0} &= 0, \quad \epsilon \partial \varphi / \partial z|_{z=L-0} = \partial \varphi / \partial z|_{z=L+0}, \\ \partial \varphi / \partial x|_{x=\pm\infty} &= \partial \varphi / \partial y|_{y=\pm\infty} = \partial \varphi / \partial z|_{z=\pm\infty} = 0, \end{aligned} \right\} \quad (6)$$

$$\left. \begin{aligned} n_f|_{x,y=\pm\infty} &= n_{f0}, \quad \left(\frac{\partial n_f}{\partial z} - \frac{e}{kT} n_f \frac{\partial \varphi}{\partial z} \right) \Big|_{z=L-0} = 0, \\ p_f|_{x,y=\pm\infty} &= p_{f0}, \quad \left(\frac{\partial p_f}{\partial z} + \frac{e}{kT} p_f \frac{\partial \varphi}{\partial z} \right) \Big|_{z=L-0} = 0, \end{aligned} \right\} \quad (7)$$

где n_{f0}, p_{f0} — равновесные концентрации свободных электронов и дырок.

Начальные условия:

$$\left. \begin{aligned} n_f|_{t=0} &= n_{f0} + g_n(x, y, z), \\ n_i|_{t=0} &= n_{i0}, \quad i = 1, \dots, M_n, \\ p_f|_{t=0} &= p_{f0} + g_p(x, y, z), \\ p_j|_{t=0} &= p_{j0}, \quad j = 1, \dots, M_p, \end{aligned} \right\} \quad (8)$$

где n_{i0}, p_{j0} — концентрации электронов на ловушках i -го уровня и дырок на ловушках j -го уровня в равновесном состоянии; $g_n(\mathbf{r}), g_p(\mathbf{r})$ — избыточные концентрации носителей в начальный момент времени.

Метод решения

Опишем кратко метод, который использован для решения системы (1)–(5) с граничными (6), (7) и начальными (8) условиями. Покрываем область, в которой строится решение, сеткой, равномерной по каждой из пространственных осей. Так как величина временного шага Δt_m , обеспечивающая устойчивость явной схемы, на много порядков меньше характерного времени развития процесса, необходимо обязательно использовать неявную разностную схему. Для численного интегрирования (1)–(5) применяется локально-одномерный метод [12]. В начале каждого временного шага с помощью хорошо известного метода отражений прежде всего строится

решение уравнения Пуассона (5). Далее из условия устойчивости выбранной разностной схемы определяется величина Δt_m и временной промежуток $[t_m, t_m + \Delta t_m]$ разбивается на три равные части. Линеаризация уравнений (1)–(4) и переход к их разностным аналогам при этом происходят по стандартной схеме [12]. В первой трети промежутка в линеаризованных разностных аналогах соотношений (1)–(4) совершается проход вдоль оси X , во второй трети — вдоль Y , в третьей — вдоль Z . На этом выполнение одного временного шага заканчивается.

Метод определения феноменологических коэффициентов модели

Феноменологический подход к описанию проводимости часто критикуют из-за того, что числовые значения многих коэффициентов, входящих в модель, определены неточно или не могут быть определены в принципе. Основываясь на разработанном алгоритме, путем сравнения результатов прямого счета с данными эксперимента можно оценивать числовые значения неизвестных феноменологических параметров. Проиллюстрируем это утверждение на примере резиста SAL-601, органического диэлектрика, часто применяющегося в процессах электронно-лучевой обработки. Рассмотрим, значения каких коэффициентов этого материала можно оценить по виду измеряемого выходного сигнала, которым обычно является зависимость потенциала электрического поля на поверхности облученного образца от времени $V(t)$. С этой целью воспользуемся экспериментальными зависимостями потенциала поверхности облученного трехслойного образца SAL-601/Cr/SiO₂ (рис. 1) от времени, приведенными в работах [13, 14].

Согласно обсуждаемой модели оба типа носителей в облученном резисте делятся на две группы: свободные и захваченные на ловушки. Хорошо известны три следующих экспериментальных факта: 1) SAL-601 имеет электронный характер проводимости [13]; 2) поверхностный потенциал при фиксированной энергии пучка не зависит от дозы падающего излучения [14–16]; 3) величина поверхностного потенциала находится в квадратичной зависимости от значения толщины слоя L [14–16]. Существующие отклонения от этой зависимости хорошо объясняются эмиссией электронов с приповерхностного слоя (толщиной приблизительно 20 нм) диэлектрика в вакуум [14, 16]. Оценим время t_0 , которое требуется свободному носителю, чтобы под действием электрического поля покинуть слой резиста и уйти в металл. Для этого воспользуемся следующими очевидными соотношениями:

$$v = \mu_n E, \quad L = vt_0, \quad V_0 = EL,$$

где E — среднее значение напряженности электрического поля ОЗ в резисте в начальный момент времени в направлении, перпендикулярном границе

раздела диэлектрик–металл, μ_n — подвижность, v — скорость электрона, V_0 — потенциал поверхности в начальный момент времени. Тогда

$$t_0 = L^2 / (\mu_n V_0).$$

Выбирая значения величин L и V_0 такими же, как в работе [14] ($L \approx 1.6$ мкм, $V \approx 9.0$ В), и полагая $\mu_n = 2.0 \cdot 10^{-14}$ м²/(В · с) (минимальная из всех экспериментально наблюдаемых подвижностей для органических диэлектриков [8]), получаем, что $t_0 \approx 10$ с. Сравнивая t_0 с промежутком времени, по истечении которого производится измерение потенциала (по данным работ [14, 15] он составляет десятки секунд), заключаем, что к моменту времени, с которого начинается измерение потенциала поверхности облученного образца, свободных электронов в слое резиста не остается, а присутствуют только электроны, локализованные на центрах захвата.

Тогда становится понятным тот факт, что потенциал не зависит от дозы. По мере облучения электроны захватываются в ловушки до полного их заполнения. Все остальные электроны остаются свободными и за время меньше 10 с под действием электрического поля ОЗ покидают диэлектрик, участвуя при этом в диффузионных и рекомбинационных процессах (вместе с образующимися в результате ионизационных процессов дырками). Из-за того что измерение потенциала производится через время, большее 10 с, по величине потенциала поверхности можно определить полную концентрацию центров захвата для электронов N_t в резисте.

Уравнение Пуассона (5) в присутствии только полностью заполненных электронных ловушек выглядит следующим образом:

$$\Delta \varphi = e N_t(x, y, z) / (\epsilon \epsilon_0). \quad (9)$$

Значение N_t постоянно во всем объеме диэлектрика. По данным работы [14], поперечный размер облучаемой области составляет 2 см, т. е. во много раз превосходит толщину диэлектрика (1.6 мкм), следовательно, уравнение (9) и граничные условия (6) можно переписать в виде

$$\varphi_{zz} = e N_t / (\epsilon \epsilon_0), \quad (10)$$

$$\varphi|_{z=0} = 0, \quad \partial \varphi / \partial z|_{z=L} = 0. \quad (11)$$

Двукратное интегрирование (10) с учетом условий (11) дает $N_t = -(2\epsilon \epsilon_0 V) / (e L^2)$. Для SAL-601 значение величины N_t равно $1.1 \cdot 10^{21}$ м⁻³.

Оценим значения остальных параметров для данного диэлектрика. Поскольку проводимость SAL-601 носит электронный характер [13], то $M_p = 0$, $\alpha' = 0$ [8]. Полагаем, что число энергетических уровней для электронных ловушек $M_n = 2$, а значение $\alpha = 10^{21}$ м³/с. Рассчитаем зависимость потенциала поверхности от времени при различных значениях скорости захвата носителей на ловушки k_3 , подвижности электронов μ_n , концентраций первого и второго уровней захвата N_1, N_2 , времен терми-

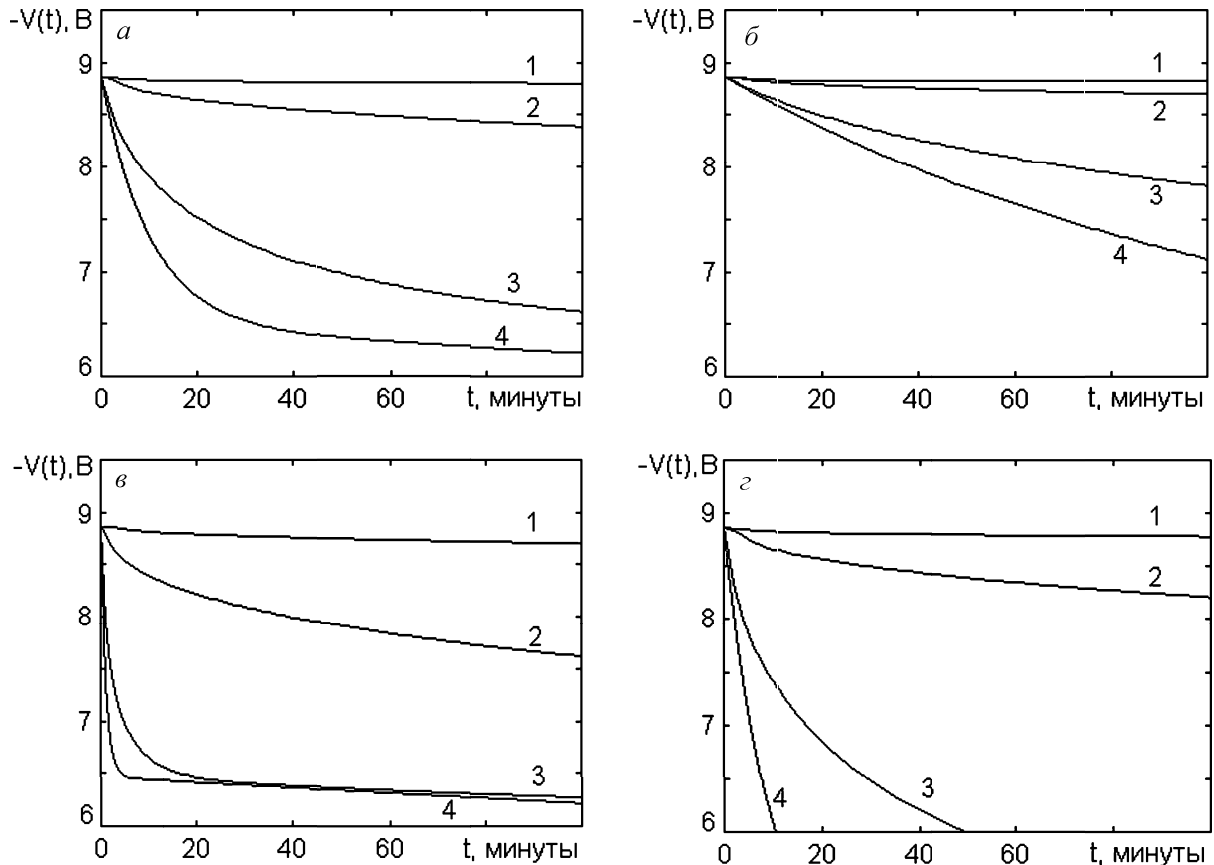


Рис. 2. Зависимость поверхностного потенциала от времени $V(t)$. $N_1 = 3.2 \cdot 10^{20}$ (а, б, в) и $5.5 \cdot 10^{20} \text{ м}^{-3}$ (г); $N_2 = 7.8 \cdot 10^{20}$ (а, б, в) и $5.5 \cdot 10^{20} \text{ м}^{-3}$ (г); $\tau_1 = 10$ (а), 100 (б), 1 (в) и 10 (г) мин; $\tau_2 = 2500$ мин; $\gamma = \mu_n/k_3 = 10^3$ (1), 10^5 (2), 10^7 (3) и $10^9 \text{ (В} \cdot \text{м)}^{-1}$ (4).

ческого освобождения локализованных электронов с этих уровней τ_1, τ_2 . Результаты счета представлены на рис. 2, а-г. Начальное распределение заряда в образце моделируется методом Монте-Карло [17]. В процессе счета установлено, что при фиксированных значениях N_1, N_2, τ_1 и τ_2 потенциал поверхности зависит не отдельно от μ_n и отдельно от k_3 , а от их отношения μ_n/k_3 (т.е. $V(t, k_3, \mu_n) \equiv V(t, \mu_n/k_3)$) по крайней мере для значений $\mu_n \leq 10^{-6} \text{ м}^2/(\text{В} \cdot \text{с})$. Отметим, что это правило справедливо всегда, когда проводимость носит монополярный характер. Сравнение рис. 2, а-г с экспериментальными данными [14] демонстрирует, что лучше всего им удовлетворяет зависимость 4 на рис. 2, а. Более детальный расчет показывает, что $\tau_1 = 12$ мин, $\tau_2 = 2580$ мин, $N_1 = 3.2 \cdot 10^{20} \text{ м}^{-3}$, $N_2 = 7.8 \cdot 10^{20} \text{ м}^{-3}$, $\mu_n/k_3 \geq 10^9 \text{ (В} \cdot \text{м)}^{-1}$.

Помимо этого оказывается возможным оценить и значение параметра α . Путем расчетов установлено, что существует некоторое критическое значение параметра α_c , которое выделяет два существенно различных режима релаксации заряда. При $\alpha < \alpha_c$ интенсивность рекомбинации относительно «невелика», и свободные электроны, доходя до металла за время t_0 , не успевают прорекомбинировать с дырками, оставляя при этом суммарный заряд слоя равным нулю. При $\alpha > \alpha_c$ рекомбинация свободных электро-

нов по пути в металл с дырками успевают произойти, в результате чего к моменту времени t_0 остаются только электроны, локализованные на ловушках. Зависимость потенциала поверхности от времени в том и в другом случае схематически приведена на рис. 3, а, б соответственно. Это совпадает с данными работы [1], где утверждается, что для большинства диэлектриков временные зависимости потенциала описываются одной из двух указанных кривых. В SAL-601 наблюдается второй режим релаксации

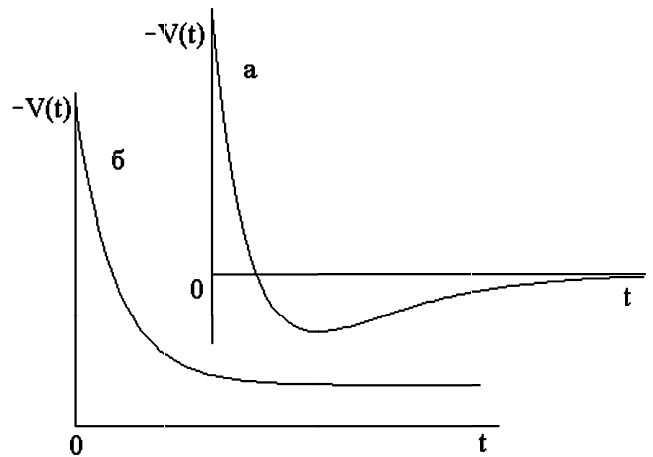


Рис. 3. Зависимости $V(t)$ в облученных диэлектриках при различных значениях параметра α : а) $\alpha < \alpha_c$, б) $\alpha > \alpha_c$

(рис. 3, б). Расчет показывает, что для этого диэлектрика $\alpha_c \approx 10^{20}$ м³/с, поэтому $\alpha > 10^{20}$ м³/с.

Заключение

В работе предложен алгоритм, который позволяет находить все характеристики, связанные с зарядом, растекающимся в объеме диэлектрика для любого момента времени: плотность распределения носителей обоих знаков, ток утечки, величину создаваемого электрического поля как внутри слоя, так и в окружающем пространстве. Метод расчета универсален; он не накладывает никаких ограничений ни на значения феноменологических коэффициентов, ни на количество и свойства релаксационных механизмов, которые могут быть включены в модель в случае необходимости. Таким механизмом может являться, например, термоэлектретный эффект, на важность роли которого в процессах электропереноса в органических диэлектриках обращают внимание некоторые авторы [18, 19].

Разработана методика, которая на основании сравнения результатов расчета по модели с экспериментальными данными позволяет находить значения некоторых феноменологических параметров модели. Тем самым преодолевается главное возражение, которое обычно выдвигается против феноменологических моделей проводимости диэлектрических сред, что некоторые коэффициенты, входящие в модель, не подлежат непосредственному экспериментальному измерению. На основании разработанной методики в качестве иллюстрации работы алгоритма рассчитаны некоторые параметры резиста SAL-601.

Литература

1. Боев С.Г., Ушаков В.Я. Радиационное накопление заряда в твердых диэлектриках. М., 1991.
2. Тютнев А.П., Саенко В.С., Мингалеев Г.С. и др. // Хим. выс. эн. 1984. **18**, № 3. С. 219.

3. Mingaleev G.S., Tyutnev A.P., Gerasimov G.P. et al. // Phys. Stat. Sol. 1986. **93**, No. 1. P. 251.
4. Боев С.Г., Сигаев Г.И. // Изв. вузов. Физика. 1980. **23**, № 11. С. 65.
5. Боев С.Г. // Изв. вузов. Физика. 1985. **28**, № 7. С. 107.
6. Борисова М.Э., Койков С.Н., Морозов С.Ф. // Изв. вузов. Физика. 1974. **17**, № 6. С. 104.
7. Архипов В.И., Руденко А.И., Андриеш А.М. и др. Нестационарные инжекционные токи в неупорядоченных твердых телах. Кишинев, 1983.
8. Тютнев А.П., Ванников А.В., Мингалеев Г.С. Радиационная электрофизика органических диэлектриков. М., 1989.
9. Орешкин П.Т. Физика полупроводников и диэлектриков. М., 1977.
10. Бойцов В.Г., Рычков А.А. // ЖТФ. 1985. **55**, № 5. С. 881.
11. Ванников А.В., Матвеев В.К., Сичкарь В.П., Тютнев А.П. Радиационные эффекты в полимерах. М., 1982.
12. Самарский А.А., Гулин А.В. Численные методы, М., 1989.
13. Ingino J., Owen G., Berglund C. et al. // J. Vac. Sci. Technol. B. 1994. **12**, No. 3. P. 1367.
14. Liu W., Ingino J., Pease R. // J. Vac. Sci. Technol. B. 1995. **13**, No. 5. P. 1979.
15. Bai M., Picard D., Tanasa C. et al. // Proc. SPIE. 1998. **3546**, No. 12. P. 383.
16. Bai M., Pease R., Tanasa C. et al. // J. Vac. Sci. Technol. B. 1999. **17**, No. 6. P. 2893.
17. Борисов С.С., Грачев Е.А., Устинин Д.М. и др. // Вестн. Моск. ун-та. Физ. Астрон. 2002. № 3. С. 32 (Moscow University Phys. Bull. 2002. No. 3. P. 48).
18. Борисова М.Э., Галюков О.В., Койков С.Н. // Изв. вузов. Физика. 1994. **37**, № 4. С. 15.
19. Сергеева А.Е., Федосов С.Н., Миракьян А.М. и др. // ФТТ. 1996. **38**, № 9. С. 2887.

Поступила в редакцию
10.06.02

УДК 530.145:517.98

САМОСПРЯЖЕННОСТЬ ОПЕРАТОРА ДВИЖЕНИЯ ДЛЯ БЕЗМАССОВОГО СКАЛЯРНОГО ПОЛЯ В ПРОСТРАНСТВЕ ШВАРЦШИЛЬДА

Х. Афантилис, С. В. Каляшин

(кафедра квантовой теории и физики высоких энергий)

Показано, что в определенном в работе функциональном пространстве радиальный оператор движения скалярного безмассового поля самоспряжен с нулевым дефектом и дважды вырожденным непрерывным спектром во внешней и внутренней областях пространства Шварцшильда.

Введение

В данной работе исследуется безмассовое скалярное поле в пространстве Шварцшильда. Обычно при рассмотрении этой квантовой задачи учитыва-

ется классическое решение для черной дыры, т. е. на сферической поверхности радиуса Шварцшильда $r = 2M$ нет исходящих полей и решение выражается волновой функцией с асимптотикой