

## MASTER

Een eerste aanzet tot de besturing van statische opladingen van metaaloppervlakken  
een aanzet tot elektrische metingen aan dunne laagjes Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

Schürmann, J.W.

*Award date:*  
1975

[Link to publication](#)

### Disclaimer

This document contains a student thesis (bachelor's or master's), as authored by a student at Eindhoven University of Technology. Student theses are made available in the TU/e repository upon obtaining the required degree. The grade received is not published on the document as presented in the repository. The required complexity or quality of research of student theses may vary by program, and the required minimum study period may vary in duration.

### General rights

Copyright and moral rights for the publications made accessible in the public portal are retained by the authors and/or other copyright owners and it is a condition of accessing publications that users recognise and abide by the legal requirements associated with these rights.

- Users may download and print one copy of any publication from the public portal for the purpose of private study or research.
- You may not further distribute the material or use it for any profit-making activity or commercial gain

### Take down policy

If you believe that this document breaches copyright please contact us providing details, and we will remove access to the work immediately and investigate your claim.

TECHNISCHE HOGESCHOOL EINDHOVEN

maart 1975

EEN EERSTE AANZET TOT DE BESTUDERING VAN  
STATISCHE OPLADINGEN VAN METAALOPPERVLAKKEN  
(een aanzet tot elektrische metingen  
aan dunne laagjes  $Al_2O_3$ )

J.W. Schürmann

Verslag van het afstudeerwerk uitgevoerd in de groep Fysische  
Onderzoek Methoden ( P.O.M. ) van de afdeling der Natuurkunde

Afstudeerhoogleraar : prof.dr.P. van der Leeden  
Afstudeercoach : dr.ir.C.H. Massen

## Inhoud

1. Inleiding	1
1.1. Aanleiding	1
1.2. Uitwerking	1
2. Aard van de problemen bij elektrische metingen aan $Al_2O_3$	3
2.1. Inventarisatie	3
2.2. Het oxidelaagje	3
2.3. De elektrische contacten	4
2.4. Eerste aanzet tot de meting van de elektrische eigenschappen	4
2.5. Begrippenlijst	5
3. Enkele meetmethodes voor de bepaling van de elektrische eigenschappen van $Al_2O_3$	8
3.1. Algemeen overzicht	8
3.2.1. De opstelling en de meetopzet van de I-V-karakteristieken	9
3.2.2. Analyse en toelichting van de resultaten	10
3.2.3. Het interpreteren van de I-V-karakteristieken	14
3.3.1. De opstelling en de meetopzet voor de ontladingskurven	17
3.3.2. Aard en analyse van de ontladingskurven	18
3.3.3. Het interpreteren van de ontladingskurven	25
3.4.1. Metingen met de vector-impedantiemeter	28
3.4.2. Aard en toelichting van de vector-impedantiemetingen	28
3.4.3. De interpretatie van de vector-impedantiemetingen	31
4. De vakuumpopstelling	36
4.1. Inleiding	36
4.2. De opstelling	36
4.3. De mogelijkheid om elektrische opladingen te maken en te meten	38
5. Discussie	45
6. Konklusie	K1
7. Appendices	A1
8. Literatuur	L1

## 1. Inleiding.

### 1.1. Aanleiding.

Elektrische opladingen<sup>\*)</sup> van de wanden van een vacuümruimte, waarin zich geladen deeltjes voortbewegen met een lage energie, kunnen de banen van deze deeltjes zodanig verstoren, dat het opgezette experiment tot mislukken gedoemt is. Dat was het geval in Seibersdorf (Wenen) bij een neutronenexperiment, waarbij protonen met een lage energie nauwkeurig gedetekteerd moesten worden.

Om dit probleem op te lossen was men daar begonnen met een opstelling te bouwen om elektrische opladingen te maken en te meten. In dit stadium van het opladingsonderzoek heb ik er stage gelopen. Dunne oxidelaagjes en/of verontreinigingen van het oppervlak bleken de opladingen te veroorzaken. Teruggekomen in Nederland interesseerde ik mij nog steeds voor het fenomeen opladingen en heb ik van dit onderwerp mijn afstudeerwerk kunnen maken.

### 1.2. Uitwerking.

Om iets over opladingen en ontladingen<sup>\*)</sup> te weten te komen, kunnen er metingen verricht worden om te zien hoe deze afhangen van de verschillende parameters. De temperatuur en de dikte van het dunne oxide laagje, en de oplaadtijd en de oplaadstroom spelen een belangrijke rol. Een oplaadstroomdichtheid van zo'n  $10^{-10}$  A/mm<sup>2</sup> kon op een oxidelaagje van 0,1 m dikte t.g.v. 10 eV-elektronen een oplading van 10 volt veroorzaken.

Dergelijke experimenten behoorden tot mijn stagewerk in Seibersdorf. Om de gegevens nader te interpreteren is het proberen te analyseren van wat er gebeurd in en op het dunne oxidelaagje de gevolgde weg. Om enig inzicht te verkrijgen wat er zoal plaatsvindt in en op een dun oxidelaagje wanneer er lage-energie-elektronen op geschoten worden ben ik aan een literatuuronderzoek begonnen omtrent de elektrische verschijnselen in en op slechte geleiders en isolatoren. Daarnaast ben ik begonnen met metingen om de elektrische eigenschappen van dunne laagjes Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> te bepalen. Om de elektrische verschijnselen te kunnen interpreteren heb ik er de literatuur en mijn modellen omtrent het oxidelaagje op los gelaten. ( Bij de metingen worden

---

\*) Een summiere begrippenlijst is te vinden in paragraaf.(2.5), en in de appendices wordt verder op opladingen ingegaan.

verontreiniging van het oppervlak zo goed als mogelijk voorkomen)  
Ook heb ik een vacuümopstelling met een elektronenbron gebouwd,  
waarmee het mogelijk is opladingen te maken en te meten. Met deze  
opstelling zijn nog geen echte "opladingen" gemeten.

In de discussie worden de resultaten van dit onderzoek geïntegreerd  
besproken en in de konklusie wordt ingegaan op: 1.hoe de metingen  
verder gedaan kunnen worden om nog meer informatie te verkrijgen  
omtrent "opladingen". 2.het eindresultaat van dit onderzoek.

Om enig inzicht te verkrijgen aan welk soort onderzoek ik ben  
begonnen, beschrijf ik in het volgende hoofdstuk de aard van de  
problemen, die ik tegenkom.

## 2. Aard van de problemen bij elektrische metingen aan $Al_2O_3$ .

### 2.1. Inventarisatie.

De metingen aan  $Al_2O_3$  waren voor de groep POM een nieuw onderzoek. Weliswaar komen elektrische opladingen ook voor bij het meten met balansen, maar deze opladingen kunnen ongedaan gemaakt worden door aarding van de bewegende en vaste onderdelen van de balans.

Tevens is het verschijnsel " opladingen " een in de literatuur weinig omschreven geheel. Enkele publikaties zijn er wel, maar deze gaan uit van metingen aan statische elektrische opladingen en van veronderstellingen.

De opdracht, die ik mijzelf stelde, was te beginnen met een theoretisch en experimenteel onderzoek van elektrisch slechte geleiders en isolatoren. De elektrische verschijnselen in slechte geleiders en isolatoren worden in de literatuur niet op een eenvoudige korte manier omschreven. In het kort gezegd komt het er op neer, dat ik met begrippen te maken krijg van goede geleiders, halfgeleiders en gasontladingen.

De technische problemen kunnen als volgt ingedeeld worden;

- I. Het maken van het oxidelaagje.
- II. Het aanbrengen van de elektrische kontakten op het  $Al_2O_3$ -laagje.
- III. Meettechnische problemen.

### 2.2. Het oxidelaagje.

Ik zocht naar een oxidelaagje waaraan ik zo gunstig als mogelijk was kon meten. Mijn gedachten gingen uit naar gelijkstroom- en wisselstroommetingen. Hiervoor is een oxidelaagje nodig waaraan zeer hoge eisen gesteld moesten worden, zoals overal gelijke dikte, een zeer goede isolator in kristallijne vorm en indien mogelijk ook nog homogene eigenschappen. Aan deze eisen voldeed geanodiseerd erfal<sup>\*\*</sup>) aluminium het gunstigst. Bij enkele spanningen tussen de 12 en 24 volt werden plaatjes erfal aluminium 10 minuten geanodiseerd in een  $H_2SO_4$ -bad, zodat er  $Al_2O_3$ -laagjes van verschillende dikte ontstonden. (tussen 4 en 50  $\mu m$ ). Bij dit anodiseren treden problemen op, die erop neerkomen dat  $Al_2O_3$ -laagjes niet reproduceerbaar te anodiseren zijn.

\*\* ) 99% zuiver aluminium.

### 2.3. De elektrische kontakten.

Om elektrische metingen aan het  $Al_2O_3$  te verrichten, moet aan beide kanten van het  $Al_2O_3$ -laagje een elektrisch contact zijn. Aan de aluminiumkant is dit het aluminium, terwijl aan de andere kant van het  $Al_2O_3$ -laagje nog geen contact aanwezig is. De kwikdruppelmethode en de opdampmethode worden in de literatuur vermeld om elektrische kontakten te maken op oppervlakken.

Bij de kwikdruppelmethode wordt op het plaatje met  $Al_2O_3$ -laagje een kwikdruppel door een teflon ring op zijn plaats gehouden. En het  $Al_2O_3$ -laagje kan doorgemeten worden met een elektrisch contact in het aluminium geschroefd en een elektrisch contact in de kwikdruppel. Deze methode had als voordeel, dat er snel mee gemeten kon worden, een temperatuurverandering was echter moeilijk aan te brengen. Bovendien rijst de vraag: in hoeverre reageert het kwik met het  $Al_2O_3$ ? Bij de opgedampte elektrode methode werden gouden elektrodes op het  $Al_2O_3$  opgedampt. Een mechanisch contact drukte dan op de gouden elektrode, waardoor voorzichtig te werk moest worden gegaan om de elektrode niet te beschadigen. Beide methodes heb ik tijdens het onderzoek toegepast.

### 2.4. Eerste aanzet tot de meting van de elektrische eigenschappen.

Wanneer een elektrische spanning over een  $Al_2O_3$ -laagje staat gaat er een stroom lopen. Deze stroom kan afhankelijk zijn van de  $Al_2O_3$ -bulk, de Al- $Al_2O_3$ -overgang en/ of de  $Al_2O_3$ -Au-overgang. De stroom wordt begrensd door dat gedeelte van het Al- $Al_2O_3$ -Au-sandwich (MOM-structuur) welke het minste stroom kan doorlaten bij de betreffende spanning.

Wanneer de spanning over het  $Al_2O_3$ -laagje konstant blijft, blijkt dat de stroom niet konstant blijft. Deze kan een faktor 100 of meer afnemen, waarbij tijden van tientallen uren een rol spelen. (graf.1) Welk verschijnsel is hiervan de oorzaak en hoe kan ik meten aan zulke verschijnselen?

Variatie in de dikte van het oxidelaagje kan in beide gevallen misschien informatie geven of er een bulk-effekt of een metaal-metaaloxide-overgang-effekt de oorzaak van deze verschijnselen is. Immers bij dikkere laagjes is een slechtere geleiding te verwachten bij een bulk-effekt en dezelfde geleidbaarheid bij een metaal-metaaloxide-effekt. Dikkere

laagjes  $Al_2O_3$  blijken echter ook beter te kunnen geleiden, hetgeen betekent dat er nog een probleem bijkomt.

Tenslotte kan ompolen geprobeerd worden om meer duidelijkheid omtrent het geleidingsmechanisme te verkrijgen. Bij ompolen blijkt de geleiding in allereerste instantie gelijk te blijven, maar na verloop van tijd verandert de stroom naar de instelwaarde, die bij die stroomrichting en spanning hoort. Deze metingen zijn gedaan in een spanningsgebied van 50-500 volt en wijzen in de richting van een bulkeffect.

Metingen met een vector-impedantiemeter waren stabiel. Maar hoe zijn deze metingen te interpreteren als niet bekend is welke geleidingsmechanismen er zich in en op het  $Al_2O_3$ -laagje afspelen. Enkele meetmethodes voor de elektrische eigenschappen van  $Al_2O_3$  worden in het volgende hoofdstuk doorgelicht. Ook het verschijnsel opladingen blijkt een rol te spelen, waarbij ook hier weer de vraag rijst of het een bulk-effect of een metaal-metaaloxide-overgang-effect is.

## 2.5. Begrippenlijst.

Oplaadstroom =  $-qN_i$  = de elektronenstroom per oppervlakte-eenheid en sec. die op een oppervlakte wordt geschoten. (zie fig. 2)

Oplaadspanning =  $V_{opl} =$  oplading = de spanning die ontstaat t.g.v. de oplaadstroom (vacuum) of opladingsspanning (MOM-structuur) door de lading  $qn_0$  in het oppervlaktelaagje.

Ontlading = het afnemen van de oplading.

Ontlaadstroom = de stroom per oppervlakte-eenheid, die afkomstig is van het oxidelaagje als er geen lading wordt toegevoerd. (=  $-q.N_r - q.N_d$ )

Oppervlaktelaagje = het oxidelaagje en zijn beide oppervlakken

$-q$  = de lading van één elektron

MOM-structuur = metaal-metaaloxide-metaal configuratie.

VOM-structuur = vacuüm-metaaloxide-metaal configuratie.

zie fig. 1 en 2 op bladzijde 6.

Instelwaarde stroom = de konstante stroom die loopt na het bereiken van een evenwichtstoestand in het laagje. (bij  $\Delta V =$  konstant)

Instelspanning = de spanning die gedurende lange tijd (uren) over het oxidelaagje wordt gezet.

$V_{Al} - V_{Au} = \Delta V$  = de potentiaal van de Al-elektrode min de potentiaal van de Au-elektrode.

Oppervlaktelading =  $qn_0$  = lading in het oppervlaktelaagje.



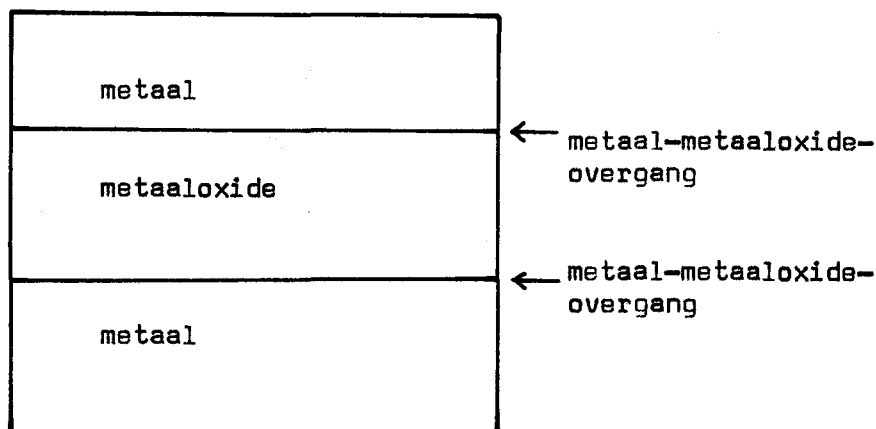
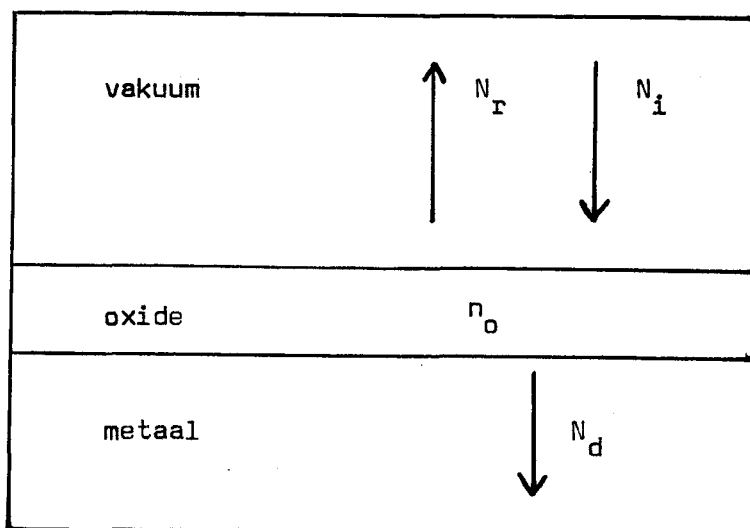


fig. 1  
schema van de MOM-structuur.

fig. 2  
schema van de VOM-structuur, met de bijbehorende stromen en lading.

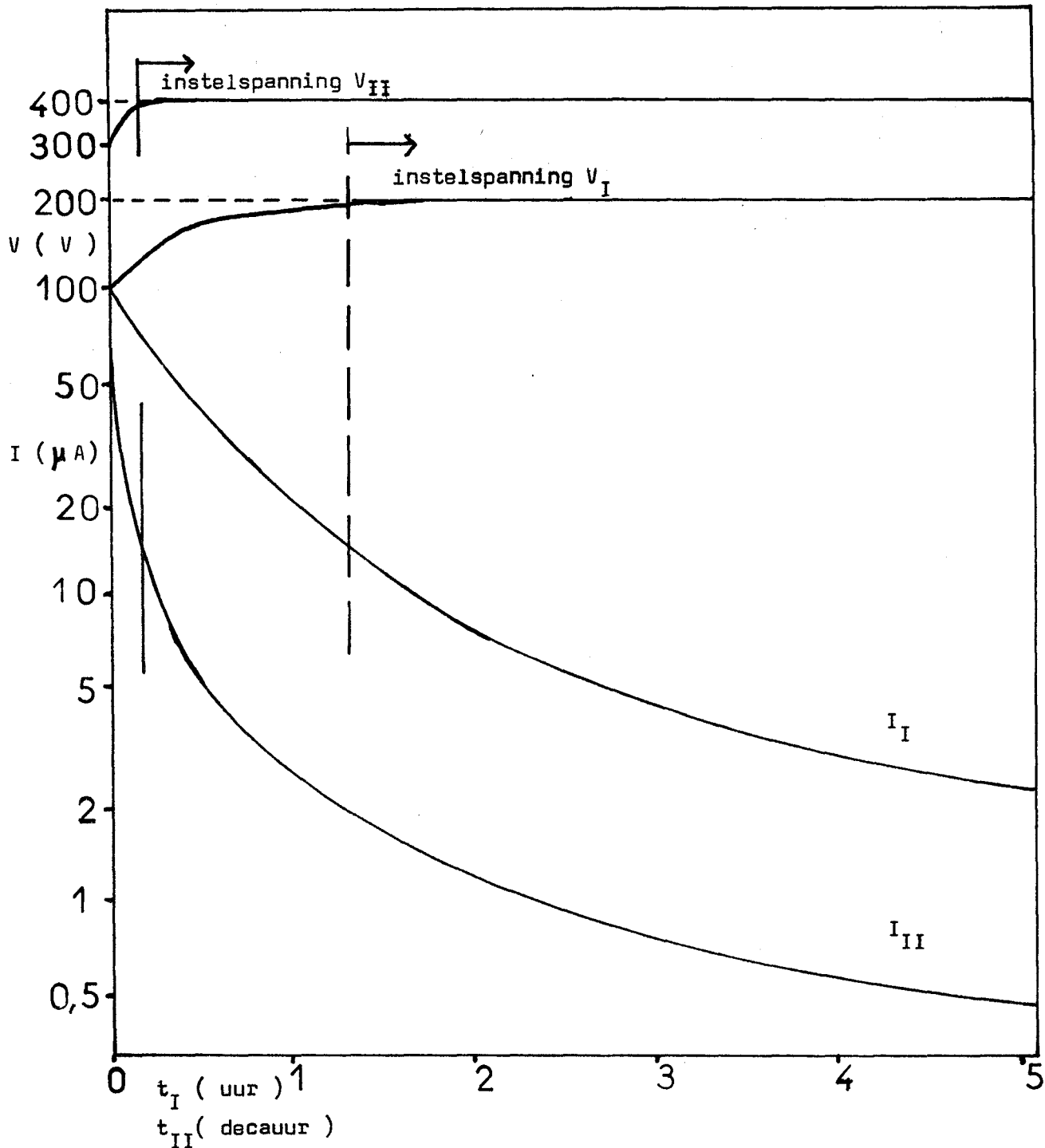


$N_i$  = het aantal elektronen, die vanuit het vakuum, op het oxidelaagje per oppervlakte-eenheid en seconde worden geschoten.

$N_r$  = het aantal elektronen, die teruggekaatst worden door het oxidelaagje of uit het oxidelaagje komen per oppervlakte-eenheid en seconde.

$N_d$  = het aantal elektronen, die uit het oxidelaagje komen in het metaal per oppervlakte-eenheid en seconde.

$n_o$  = het aantal elektronen per oppervlakte-eenheid in het opp.-laagje.



grafiek 1. (De stroom en de spanning zijn logaritmische uitgezet.)  
de stroom als functie van de tijd bij ( vrijwel ) konstante spanning.

meting I; Al-plaatje 10, 16 mm  $\phi$  gouden elektrode.

meting II; Al-plaatje 8, 16 mm  $\phi$  gouden elektrode.

(beide metingen hebben de Al-kant van het  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -laagje als positieve elektrode.)

### 3. Enkele meetmethodes voor de bepaling van de elektrische eigenschappen van $Al_2O_3$ .

#### 3.1. Algemeen overzicht.

Drie verschillende methodes worden gebruikt om aan het  $Al_2O_3$ -laagje te meten in de MOM-structuur. In deze paragraaf wordt een overzicht gegeven van deze drie methodes. In dit hoofdstuk wordt in elke paragraaf één van deze meetmethodes afzonderlijk toegelicht in subparagrafen voor respectievelijk; 1. de opstelling en de meetopzet, een presentatie van enkele meetseries, 3. de interpretatie. Een vierde manier van meten aan het  $Al_2O_3$ -laagje is in de VOM-structuur, welke in hoofdstuk 4 uitgebreid wordt behandeld.

In hoofdstuk 5 worden de combinaties van deze vier meetmethodes besproken en in hoofdstuk 6 de daaruit volgende conclusies.

#### I. I-V-metingen.

Een spanning wordt over het laagje  $Al_2O_3$  gezet en de stroom wordt gemeten. De temperatuur en de instelspanning spelen bij deze metingen een belangrijke rol.

#### II. Ontladingsmetingen.

Een spanning wordt enige tijd over het  $Al_2O_3$ -laagje gezet. Na het verbreken van de contacten met de spanningsbron treedt ontlading op. Deze ontlading werd geregistreerd, waarbij de oplaadtijd en de spanning waarbij werd opgeladen, als parameter zijn gebruikt.

#### III. Vector-impedantie-metingen.

Met een vector-impedantiemeter (hp 4800A) is aan het laagje gemeten bij  $\omega$ 's van  $40 - 3 \cdot 10^6$  rad/sec en een amplitudo van 0,3 volt. Dikte en de oppervlakte van het laagje en de temperatuur spelen een belangrijke rol.

### 3.2.1. De opstelling en de meetopzet van de I-V-karakteristieken.

In een kring zijn een  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -laagje ( MOM-structuur ), een voltmeter met bekende inwendige weerstand en een voeding in serie geschakeld. De voltmeter dient om zowel de stroom door als de spanning over het  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -laagje te bepalen als functie van de voedingsspanning.

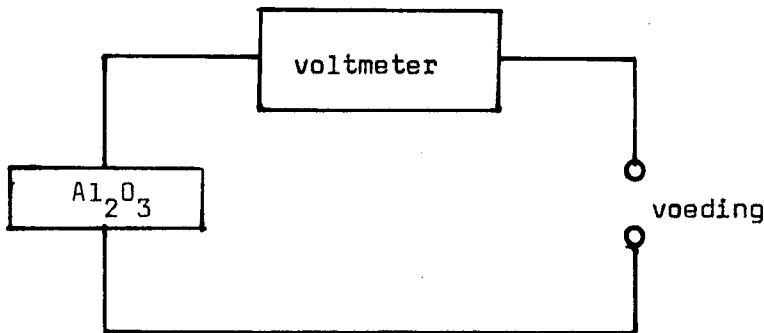


fig. 3  
schema van de opstelling.

De metingen worden als volgt opgezet:

- I. Een I-V-karakteristiek wordt bepaald. Hiertoe is een voedingsspanning gekozen tussen 100 en 500 volt, terwijl de spanning  $V$  over het laagje volgt uit  $V_{\text{voeding}} - V_{\text{voltmeter}} = V$  en de stroom door het laagje volgt uit  $V_{\text{voltmeter}} / R_{\text{voltmeter}} = I_{\text{Al}_2\text{O}_3}$ . Een I-V-karakteristiek wordt bepaald door binnen ongeveer één minuut de voedingsspanning van 500 naar 100 volt te veranderen tijdens de meting (van meetpunt naar meetpunt)\*.)
- II. Er wordt een instelspanning over het  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -laagje gezet en er wordt met intervallen van 15-60 minuten een I-V-karakteristiek gemeten.\*.)
- III. Meetopzet II met de temperatuur als parameter.
- IV. Meetopzet II met ompolen als verschijnsel erbij genomen.

\*.) wordt er een konstante spanning (een instelspanning) over het  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -laagje gezet, dan blijkt de stroom door het laagje te veranderen als functie van de tijd. Om toch een I-V-karakteristiek te kunnen meten voor de toestand waarin het laagje zich dan bevindt, moet er afgeschat worden welke fouten er gemaakt kunnen worden. Daartoe is het verloop van de stroom bij konstante voedingsspanning gemeten. Uit grafiek 1 is af te lezen dat dit verloop in het eerste uur een faktor 10 kan zijn, dus wanneer er in één minuut een I-V-karakteristiek wordt gemeten, dan kunnen er fouten van 20% optreden. Het blijkt dat deze relatieve fouten ook optreden als de stroom zijn instelwaarde benaderd en er weer in ongeveer één minuut een I-V-karakteristiek wordt bepaald.

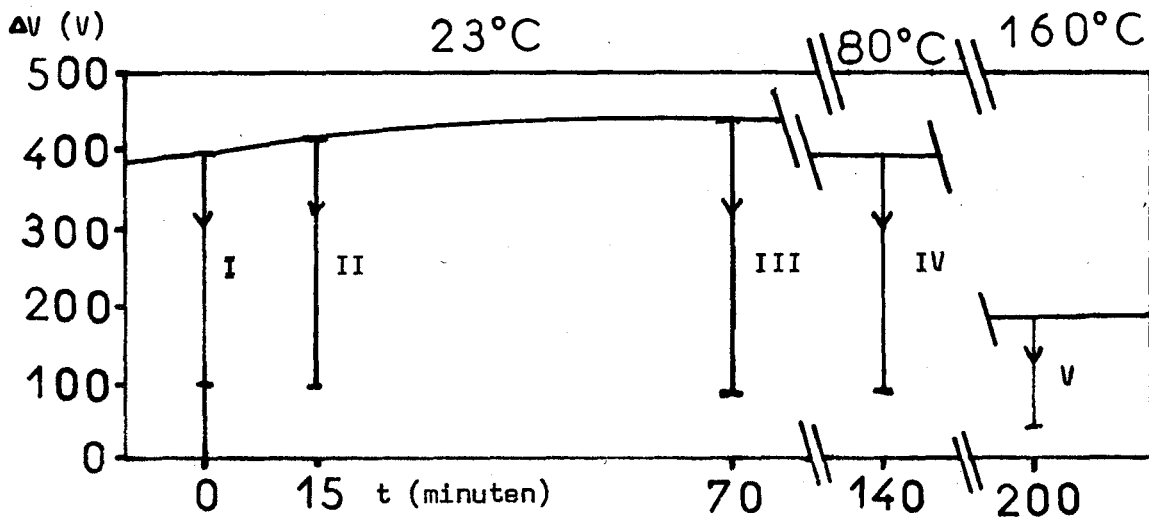
In de volgende paragraaf wordt met een analyse van de I-V-karakteristieken begonnen, deze worden vervolgens aan de hand van twee meetseries toegelicht.

### 3.2.2. Analyse en toelichting van de resultaten.

Bij het bepalen van de I-V-karakteristieken zijn kurven gevonden die voldoen aan de relatie:

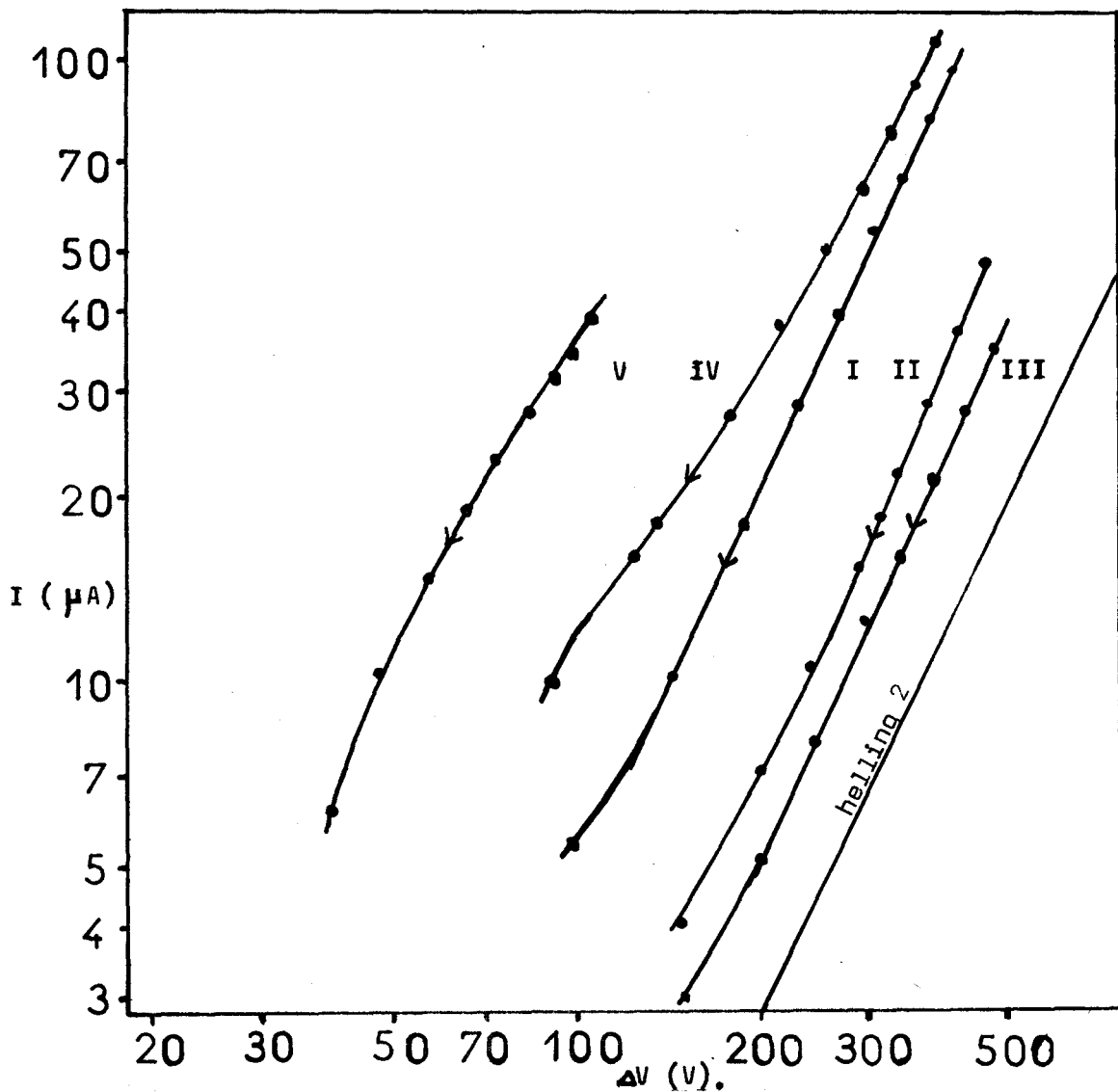
$$I = a \cdot |\Delta V|^x \quad \text{-----} \quad (1)$$

waarbij  $x$  ongeveer 2 is en  $a$  sterk varieert van meting tot meting. Om de resultaten te illustreren worden nu twee meetseries toegelicht. Grafiek 2 geeft de aangelegde spanningen als functie van de tijd en de temperatuur. Grafiek 3 geeft I-V-karakteristieken bij verschillende temperaturen (zie grafiek 2), waarbij een instelspanning enige tijd over het laagje stond. Hier was  $\Delta V$  positief ( $V_{Al} > V_{Au}$ ) en het blijkt dat  $a$  afneemt, naarmate de instelspanning langer over het laagje staat. De waarde van  $x$  verandert daarbij vrijwel niet. (grafiek 3, meting I, II en III) Bij hogere temperatuur neemt  $a$  toe. (grafiek 3, meting IV en V) Grafiek 4 en 5 geven dergelijke krommes waarbij ompolingen plaats hebben gevonden en laten zien dat er afwijkingen van vergelijking (1) bij lagere spanningen optreden. (lager dan 50 volt) Na ompoling van negatieve  $\Delta V$  ( $V_{Al} < V_{Au}$ ) naar positieve  $\Delta V$  blijkt voor  $\Delta V$  tussen 40 en 150 volt dezelfde I-V-karakteristiek gemeten te worden. (zie grafiek 5, meting I en III) Maar na enige tijd, bij hogere instelspanning, verandert zowel  $x$  als  $a$ :  $a$  wordt kleiner en  $x$  wordt groter. (grafiek 5, meting IV) Vervolgens wordt  $x$  vrijwel konstant terwijl  $a$  nog steeds afneemt en zelfs weer toe kan nemen afhankelijk van de voorafgaande  $\Delta V$ , die over het laagje heeft gestaan. (grafiek 5, meting V en VI) Na weer ompolen is gebleken, uit vergelijkbare meetseries, dat dezelfde kurve ontstaat als VI, mits binnen korte tijd gemeten (binnen één minuut) en voor  $\Delta V$  tussen 50 en 250 volt. Dit verloop vindt echter in veel kortere tijd plaats als bv. van I naar III. (zie grafiek 5, meting VI en VII) Na enige tijd (ongeveer 10 minuten), blijkt  $x$  weer de oorspronkelijke waarde te hebben, terwijl  $a$  de oorspronkelijke waarde gaat benaderen. (grafiek 5, meting VII en I)



grafiek 2.

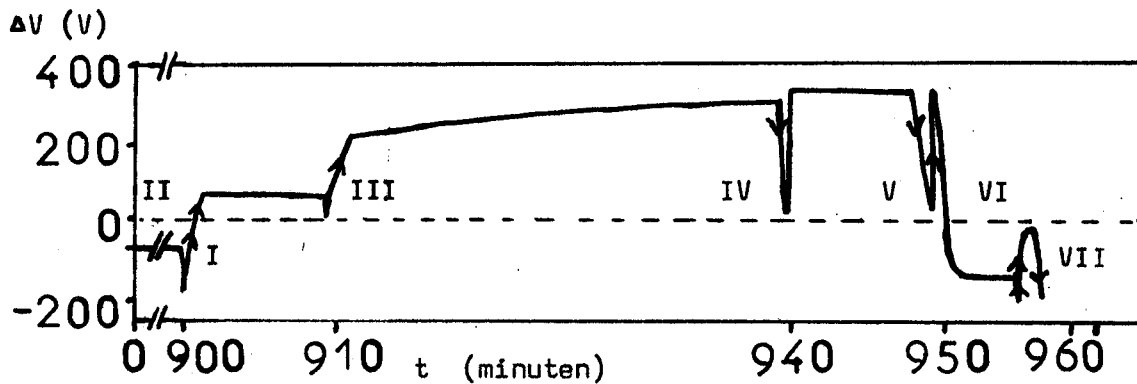
grafiek van de metingen voor de metingen van grafiek 3.



grafiek 3.

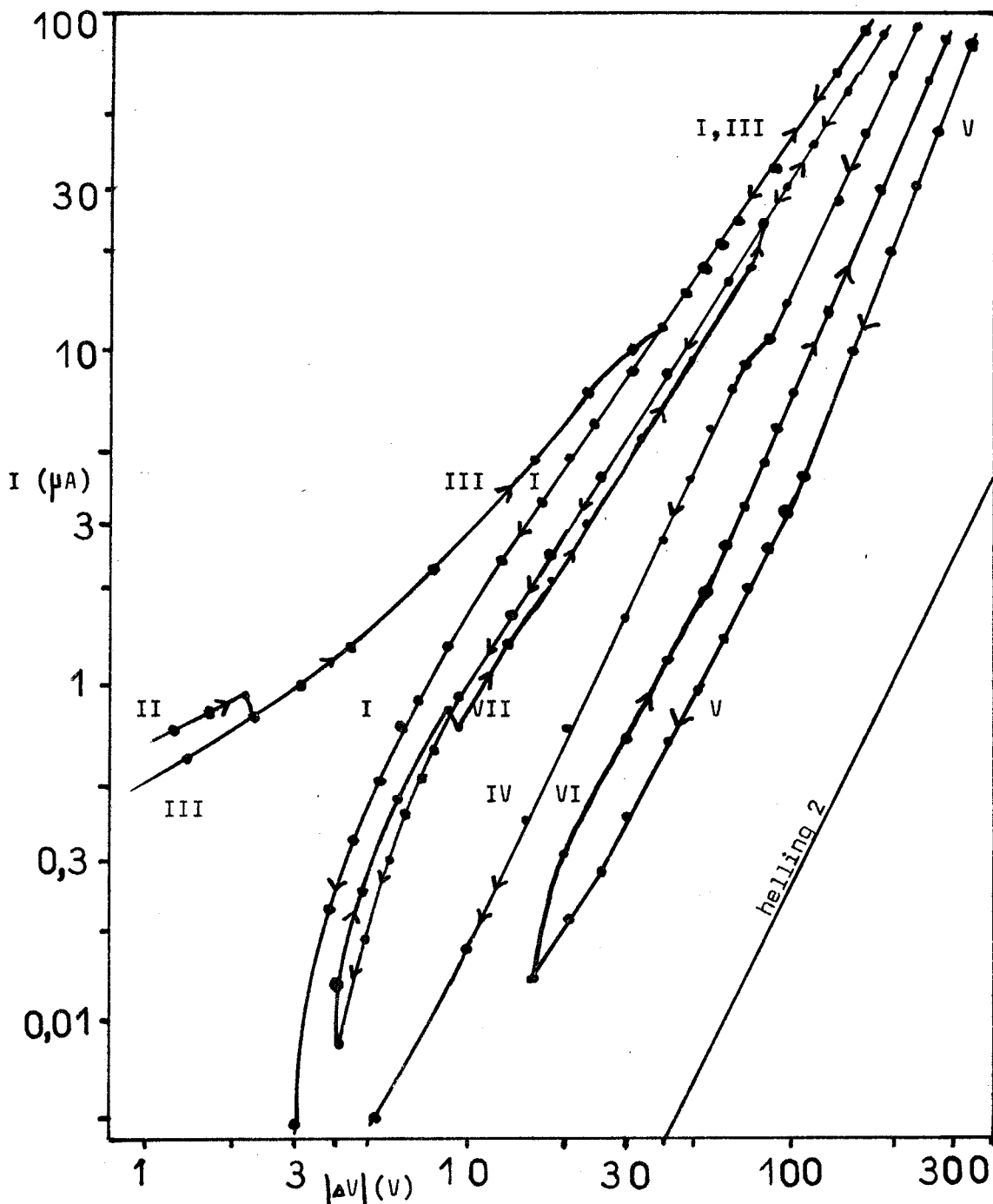
$$V_{Al} - V_{Au} = \Delta V.$$

log I-log $\Delta V$ -karakteristieken van Al-plaatje 3, 30 mm  $\phi$  gouden elektrode.



grafiek 4.

grafiek van de metingen voor de metingen van grafiek 5.



grafiek 5.

log I-log  $|\Delta V|$ -karakteristieken van Al-plaatje 10, 16 mm  $\phi$  gouden elektrode.

Verdere opmerkingen over de diverse meetseries zijn:

Op korte termijn ( $\approx 1$  minuut) zijn de I-V-karakteristieken onafhankelijk van de stroomrichting,  $Al_2O_3$ -laagjes hebben, bij iedere  $|\Delta V|$  tussen 50 en 500 volt instelspanning (als doorslag dan nog niet is opgetreden) gedurende enkele uren over het laagje heeft gestaan, een reproduceerbare I-V-karakteristiek. Doorslag treedt bij positieve  $\Delta V$  op bij hogere spanningen als bij negatieve  $\Delta V$ . Bij hoge negatieve  $\Delta V$  (boven 200 volt) laat na enkele uren de gouden elektrode los. Onder de microscoop blijkt dan dat het  $Al_2O_3$ -laagje aluminium is geworden.\* Bij negatieve  $\Delta V$  is de instelwaarde van de stroom eerder bereikt als bij positieve  $\Delta V$ . Bij hogere temperatuur (tot  $160^\circ C$  gemeten) wordt de instelwaarde van de stroom, die bij gegeven temperatuur en  $\Delta V$  hoort, eerder benaderd dan bij kamertemperatuur. De fout zoals eerder aangegeven in par. 3.2.1. blijkt in de praktijk minder groot te zijn.

I-V-karakteristieken als functie van de dikte van het  $Al_2O_3$ -laagje lopen kris-kras doorelkaar heen. Een overzicht van de geanodiseerde-Al-plaatjes is in onderstaande tabel gegeven.

Al-plaatje	anodiseerspanning (volt)	anodiseertijd (minuten)	dikte $Al_2O_3$ -laagje (micrometer)
4	14	10	4- 5
1	18	10	24-25
2	18	20	18-19
3	18	10	14-15
7	20	10	40-50
8	24	10	0-20
10	18	10	10-11
6	16	10	8- 9

tabel 1.

Deze tabel laat zien, dat er geen duidelijk verband bestaat tussen de  $Al_2O_3$ -laagdikte en de anodiseervariabelen tijd en spanning. Een spanning van 24 volt anodiseert in 10 minuten een zeer onregelmatig laagje  $Al_2O_3$ , terwijl anodiseerspanningen van 18 en 20 volt regelmatige vlakke  $Al_2O_3$ -laagjes maken. Met een microscoop is de dikte van de  $Al_2O_3$ -laagjes gemeten, hiertoe zijn van de Al-plaatjes schliffs gemaakt.

\* ) hierop wordt bij de interpretatie van de I-V-karakteristieken ingehaakt.



### 3.2.3. Het interpreteren van de I-V-karakteristieken.

Geleidingsmechanismen van dunne oxide-laagjes kunnen met behulp van hun I-V-karakteristieken worden bestudeerd. Zo zijn ohmse geleiding en ruimteladingsbegrensd geleiding beide het gevolg van bulk-geleidingsmechanismen. Ook kan de geleiding volledig bepaald worden door het type metaal-metaaloxide-overgang.

Een blokschema van de geleidingsmechanismen in de Al-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Au-\*) sandwich (fig. 1) wordt in fig. 4 weergegeven.

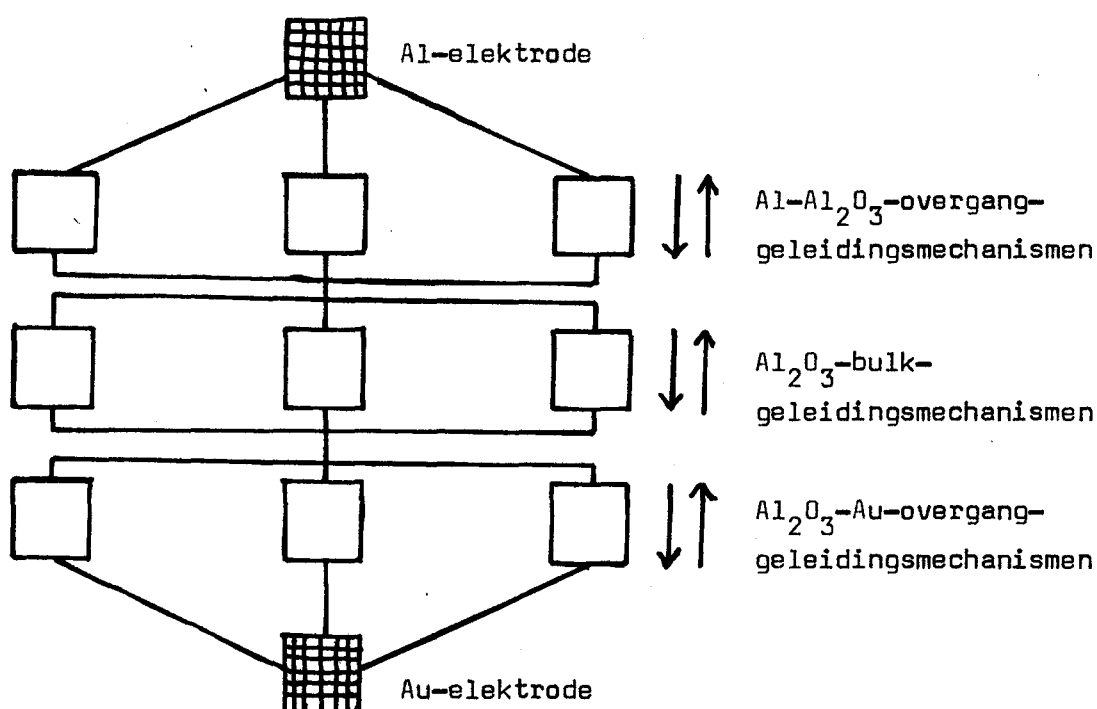


fig. 4 (de pijltjes geven de stroomrichting aan)  
schema van de geleidingsmechanismen in een Al-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Au-sandwich.

Dit schema laat drie groepen van geleidingsmechanismen zien, die elk op zich als stroombegrenzer van de sandwich kunnen optreden. het overheersende geleidingsmechanisme van die geleidingsgroep treedt als stroombegrenzer op en is uit de I-V-karakteristiek af te leiden.\*\*)

De grafieken 3 en 5 geven kurven die voldoen aan relatie (1).

In de literatuur<sup>3</sup> wordt een dergelijke relatie afgeleid uit de theorie van de ruimteladingsbegrensd stroom. Deze relatie heeft de volgende gedaante.

\*\*)bij betreffende  $\Delta V$  en temperatuur.

\*) i.p.v. Au-elektrode kan ook een Hg-elektrode.

$$I = \frac{9 \cdot \mu \cdot \epsilon_r \cdot \epsilon_0 \cdot A \cdot \Delta V^2}{8 \cdot s^3} \quad \text{--- (2)}$$

waarbij;  $\mu$  = beweeglijkheid van de elektronen,  
 $\epsilon_r \cdot \epsilon_0$  = dielektrische konstante van  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  
 $A$  = oppervlakte van het  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -laagje en  
 $s$  = dikte van het  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -laagje.

Het feit dat de gedaante van de I-V-karakteristieken afhankelijk is van de voorgeschiedenis is met relatie (2) nog niet te verklaren. Er treedt bij ruimteladingsbegrensde stroom echter trapping op, waardoor de beweeglijkheid  $\mu$  sterk wordt verkleind. Deze beweeglijkheid  $\mu$  uit relatie (2) wordt nu vervangen door de schijnbare beweeglijkheid  $\theta\mu$  van de elektronen, waarin het geval van ondiepe traps met allen hetzelfde energieniveau  $\theta$  voldoet aan;

$$\theta = \frac{N_c}{g \cdot N_t} \cdot \exp\left(\frac{E_t - E_c}{k \cdot T}\right) \approx \frac{n}{n_t + n} \quad \text{--- (3)}$$

hierin is;  $n$  = aantal vrije elektronen / volume-eenheid,  
 $n_t$  = aantal bezette traps / volume-eenheid,  
 $N_c$  = effectieve toestandsdichtheid in de geleidingsband,  
 $g \cdot N_t$  = effectieve trapdichtheid,  
 $E_t$  = energie van het trapniveau en  
 $E_c$  = energie van de geleidingsband.

Het veranderen van de I-V-karakteristieken als functie van de tijd zou te verklaren zijn door aan te nemen, dat bij iedere instelspanning de trapdichtheid ( $g \cdot N_t$ ) zich opnieuw in moet stellen. Bij  $\Delta V$  is positief kan een ruimteladingsbegrensde stroom verondersteld worden, omdat in de  $\log I - \log |\Delta V|$ -grafieken 3 en 5 voor positieve  $\Delta V$  de helling ongeveer 2 is. De literatuur vermeldt voor  $\theta$  waarden van de orde  $10^{-6}$  voor zeer goede isolatoren. Veronderstel ik ruimteladingsbegrensde stroom in het  $\text{Al}_2\text{O}_3$  dan vind ik voor  $\theta$  waarden in de orde van  $10^{-9}$  -  $10^{-11}$ , hetgeen neerkomt op waarden van  $\theta$  van  $10^{-6}$  -  $10^{-8}$ . Relatie (3) laat zien, dat bij hogere temperatuur betere geleiding optreedt. ( $\theta$  wordt groter)

Wordt  $\Delta V$  negatief (grafiek 5, meting VII na VI), dan neemt de geleidbaarheid toe, hetgeen volgens het bolkschema 1 wijst op een ander geleidingsmechanisme. Wordt in grafiek 5 het ompolen van  $\Delta V$  is negatief naar  $\Delta V$  is positief beschouwd, (meting I en III) dan blijkt voor  $\Delta V$  tussen de 40 en 150 volt de I-V-karakteristiek niet te veranderen, hetgeen kan wijzen op een bulk-geleidingsmechanisme. Dit bulkgeleidingsmechanisme blijkt echter dan na verloop van tijd te verdwijnen. Wordt dan ook nog in beschouwing genomen, dat bij negatieve  $\Delta V$  het  $Al_2O_3$  weer Al kan worden, dan kan O-ionen-geleiding worden verondersteld. Wanneer direkt na het ompolen in beide richtingen dezelfde I-V-karakteristiek ontstaat kan of ionen-geleiding of ruimteladingsbegrensdde stroom het geleidingsmechanisme zijn. De helling van de I-V-karakteristiek kan hierbij uitkomst brengen. Bij helling 2 is sprake van ruimteladingsbegrensdde stroom, terwijl bij kleinere hellingen sprake kan zijn van beide geleidingsmechanismen. Doorslag treedt bij het ionengeleidingsmechanisme eerder op als  $\Delta V$  negatief dan wanneer  $\Delta V$  positief is, hetgeen verondersteld kan worden als de ionen als lawine alleen naar de gouden elektrode kunnen gaan. (waarschijnlijk brengen elektronen en ionen de lawine samen op gang) Doorslag in de andere richting kan alleen door een elektronenlawine plaats vinden. Bij lagere  $\Delta V$  treden afwijkingen op van de I-V-karakteristieken, zoals die besproken zijn in deze paragraaf. De hoofdoorzaak hiervan moet gezocht worden in opladingsverschijnselen van het  $Al_2O_3$ -laagje. De resultaten, besproken in paragraaf 3.2.2. en niet besproken in deze paragraaf, zijn niet in tegenspraak met de interpretaties van de I-V-karakteristieken.

### 3.3.1. De opstelling en de meetopzet voor de ontladingskurven.

Over een  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -laagje (MOM-structuur) staat enige tijd (oplaadtijd) een opladingsspanning  $\Delta V$ . Na het openen van de schakelaar kan de oplading van het laagje verdwijnen via de stroom door een weerstand en een schrijver enerzijds en / of door  $\text{Al}_2\text{O}_3$  anderzijds. Een voeding wordt voor het aanleggen van  $\Delta V$  gebruikt en een schrijver registreert de spanningen over het  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -laagje als functie van de tijd.

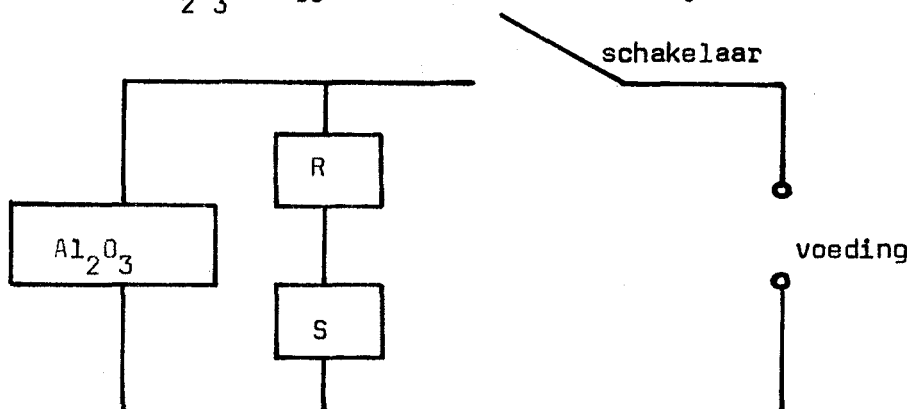


fig. 5

schema van de opstelling.  $R =$  weerstand van  $100 \text{ M} \Omega$ .

$S =$  inwendige weerstand v.d. schrijver  $= 1 \text{ M} \Omega$ .

$R+S =$  ontladingsweerstand. (hier  $101 \text{ M} \Omega$ )

De metingen worden als volgt opgezet:

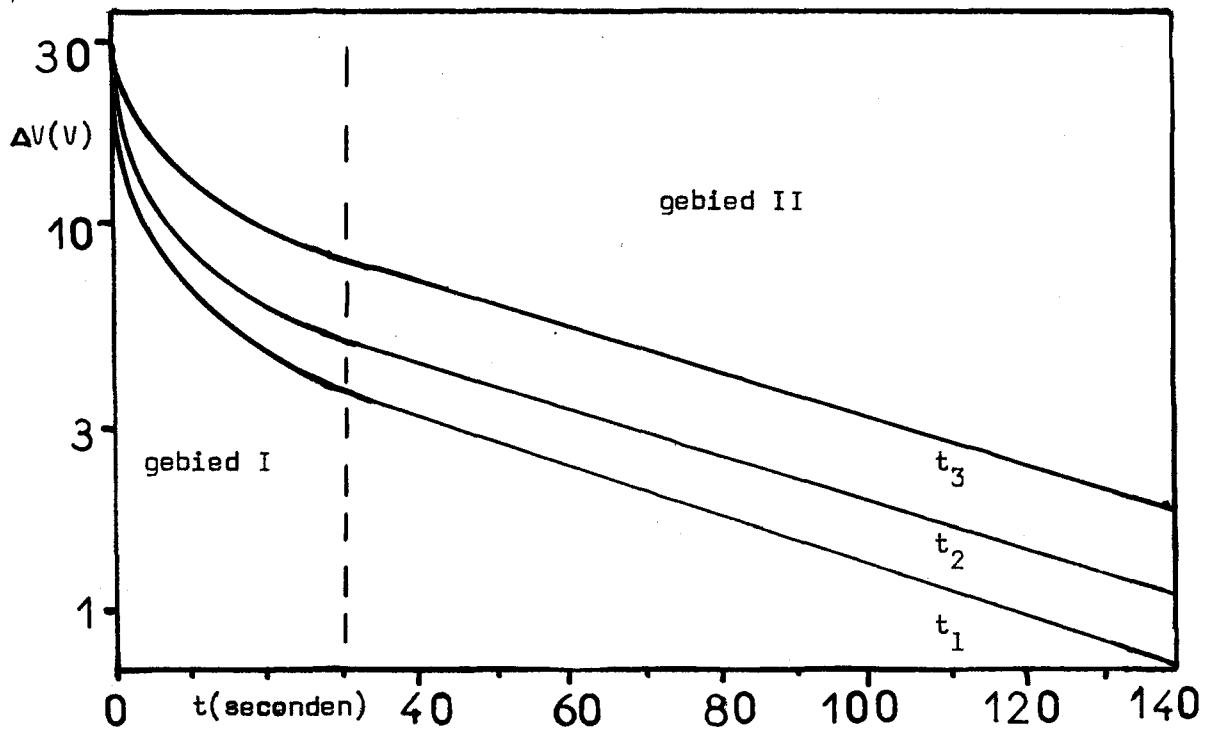
- I. Als boven beschreven worden ontladingsspanningen als functie van de tijd gemeten. Dergelijke metingen geven ontladingskurven met o.a. de oplaadtijd en de opladingsspanning als parameters.
- II. Een meetserie van ontladingskurven, die bij dezelfde opladingsspanning horen, begint met een korte oplaadtijd, die na iedere ontlading een stapje langer wordt. Deze procedure gaat door totdat de maximale oplading bij gegeven opladingsspanning wordt benaderd.
- III. Bij een grotere meetserie aan een  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -laagje worden eerst ontladingskurven, zoals in II beschreven gemeten bij een lage opladingsspanning en vervolgens wordt de opladingsspanning een stapje hoger genomen, enz..
- IV. In plaats van de opladingsspanning wordt de temperatuur als parameter gebruikt.
- V. De ontladingsweerstand wordt als parameter gebruikt.

Tijdens de verschillende meetseries wordt niet omgepoold.

Alvorens met de meetresultaten te beginnen wordt in de volgende paragraaf eerst een inleiding gegeven over de aard van de ontladingskurven. (gemeten zoals in punt II van deze paragraaf is vermeld)

### 3.3.2. Aard en analyse van de ontladingskurven.

Ontladingskurven van een  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -laagje zijn over het algemeen genomen in twee gebieden te verdelen. Namelijk het gebied I in de eerste seconden van de ontlading, waarin de ontlading sterk afhankelijk is van de oplaadtijd en de helling sterk verandert als functie van de ontladingstijd, en een gebied II, waarin de ontladingskurven een vrijwel konstante helling\*) hebben, die nauwelijks afhankelijk is van de oplaadtijd.

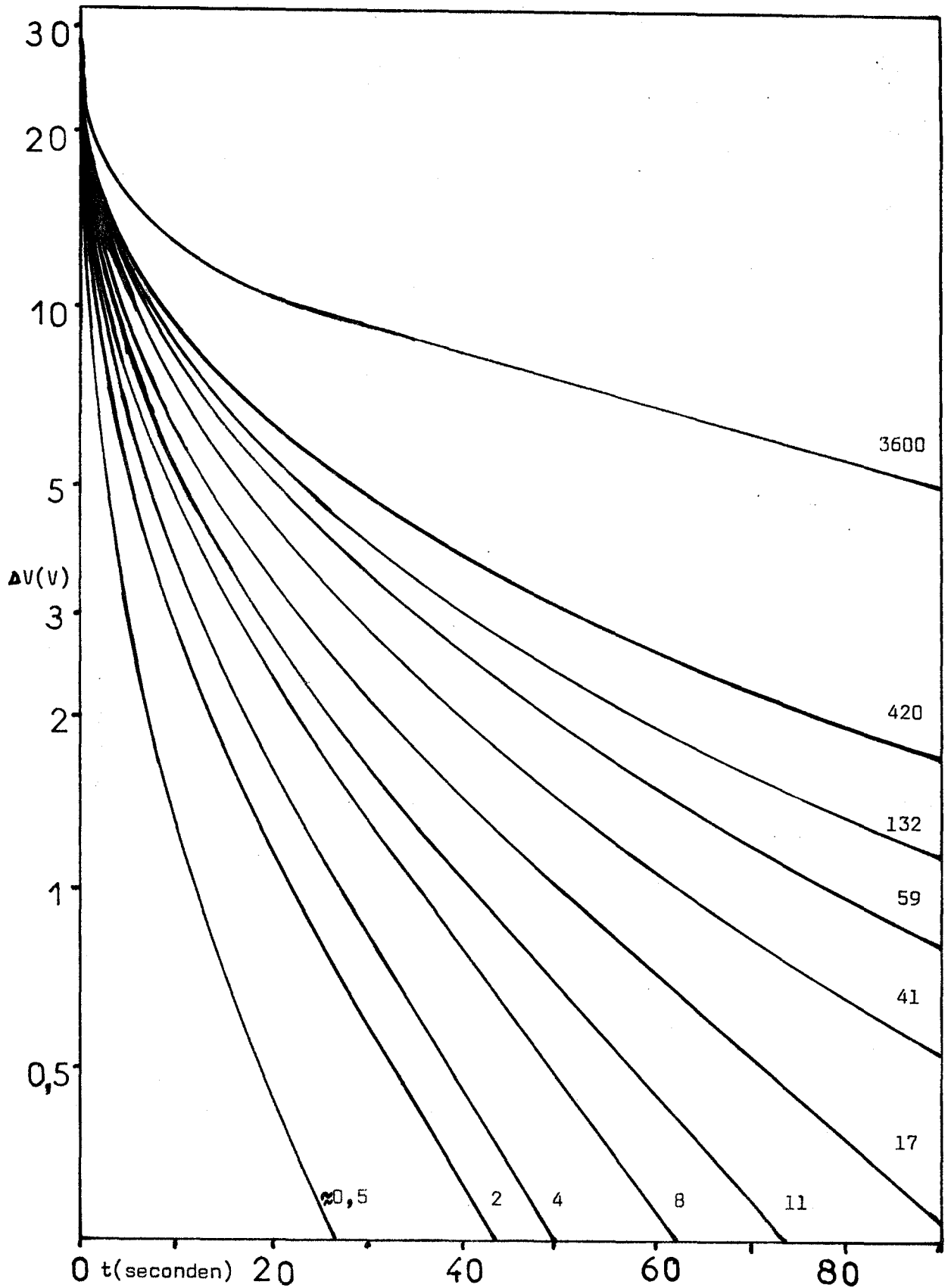


grafiek 6.

schematisch overzicht van ontladingskurven met hun oplaadtijden

$t_1 < t_2 < t_3$ , en een opladingsspanning van 30 volt.

Er blijken ontladingskurven te zijn, die overheersend uit één gebied bestaan. (De oorzaak wordt in paragraaf 3.3.3. verder bekeken) Beide gebieden worden nu m.b.v. dergelijke gemeten ontladingskurven afzonderlijk toegelicht. In grafiek 7 treedt gebied I overheersend op en wordt pas na één uur oplaadtijd de maximale oplading benaderd. (bij oplaadingsspanning 30 volt en bij kamertemperatuur gemeten). M.b.v. deze kurven is een afschatting van de lading in en op het  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -laagje gemaakt als \*)ontladingskurven worden uitgezet in een  $t - \log \Delta V$  grafiek.



grafiek 7.  
 ontladingskurven (volgens meetopzet II van paragraaf 3.3.1. bepaald)  
 met hun respektievelijke oplaadtijden (in seconden) als parameter, Al-  
 plaatje 4, 20x20 mm gouden elektrode bij kamertemperatuur. De opla-  
 dingsspanning is 30 volt, de ontladingsweerstand is 103 M $\Omega$ .

funktie van de oplaadtijd. ( zie tabel 2 ).

oplaadtijd (seconden)	0,5	2	4	8	11	17	41	59	132	420	3600
lading $Al_2O_3$ ( $\mu$ coulomb)	0,3	0,8	1,0	1,5	1,6	1,8	2,2	3,2	4,3	5,7	16

tabel 2.

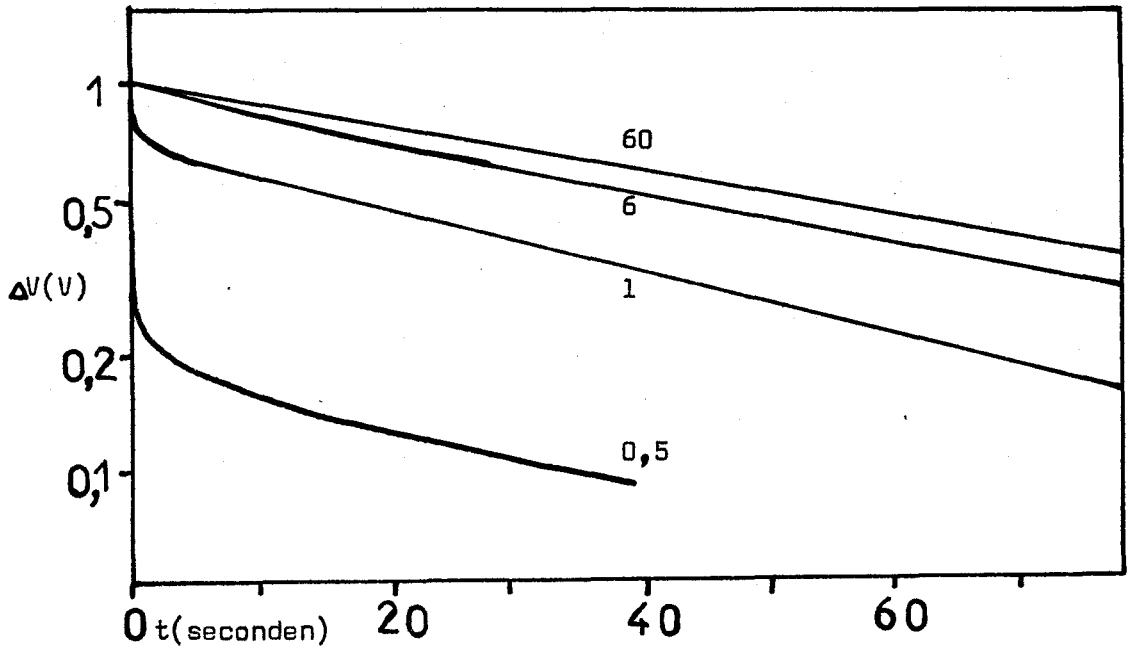
In grafiek 8 treedt gebied II overheersend op en wordt al na één minuut oplaadtijd de maximale oplading benaderd. (bij oplaadingsspanning 1 volt en bij kamertemperatuur gemeten). M.b.v. deze kurven is ook een afschatting van de lading in en op het  $Al_2O_3$ -laagje gemaakt als funktie van de oplaadtijd. ( zie tabel 3 ).

oplaadtijd (seconden)	0,5	1	6	60
lading $Al_2O_3$ ( $\mu$ coulomb)	1,2	4,6	7,0	8,7

tabel 3.

Soortgelijke kurven als in grafiek 8 worden ook verkregen met andere ontladingsweerstand (zie grafiek 9 en 10). De hellingen van de rechte stukken van deze kurven worden gekarakteriseerd door een tijdkonstante  $\tau$ . ( $\tau$  is de tijd waarin de oplaadspanning e-maal kleiner wordt).  $\tau$  blijkt af te nemen bij afnemende ontladingsweerstand. (zie tabel 4).

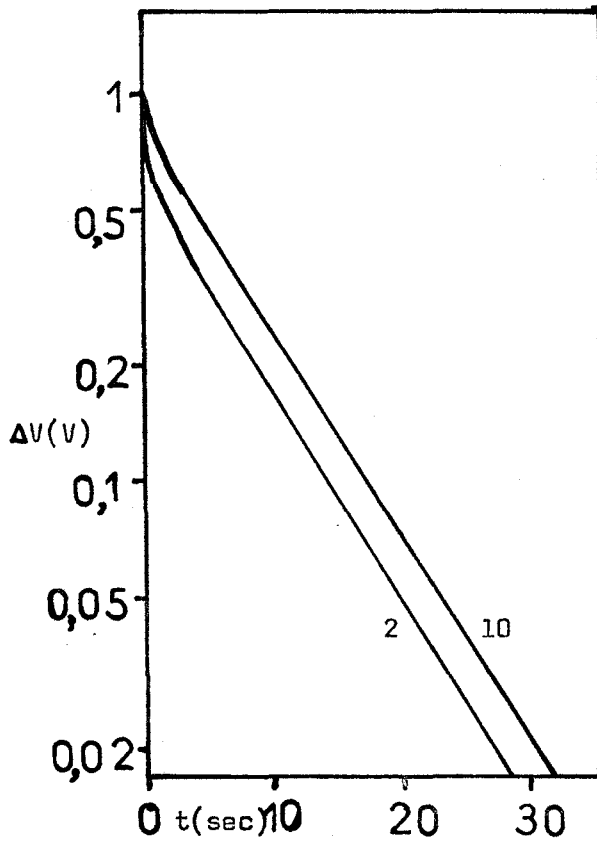
Grafiek 11 is gemeten volgens meetopzet III, maar geeft alleen van elke oplaadingsspanning één ontladingskurve weer, die ontstaan is na enkele minuten oplaadtijd.



grafiek 8.

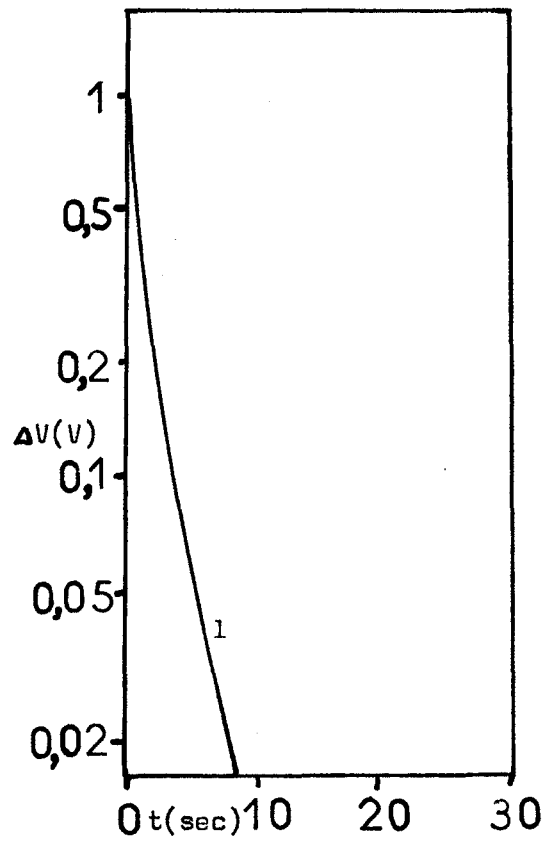
ontladingskurven met ontladingsweerstand  $103 \text{ M}\Omega$  en oplaadings-  
spanning 1 volt.

Grafieken 8, 9 en 10 geven ontladingskurven, met hun oplaadtijden (sec.) als  
parameter, van Al-plaatje  $10, 16 \text{ mm } \phi$  gouden elektrode, bij kamertemperatuur.



grafiek 9.

ontladingswaerstand  $8,5 \text{ M}\Omega$  en  
oplaadingspanning 1 volt.



grafiek 10.

ontladingswaerstand  $1,0 \text{ M}\Omega$   
en oplaadingspanning 1 volt.



Bovendien is in deze grafiek het resultaat weergegeven van een serie metingen, die na de opladingspanning van 500 volt zijn gemaakt met aflopende opladingspanningen. De kurven hiervan blijken een heel ander verloop te hebben dan de oplaadspanning zoals gemeten volgens meetopzet III. Zij blijken een helling te hebben die redelijk overeenkomt met de hellingen van de hogere opladingspanningen (300 - 500 volt).

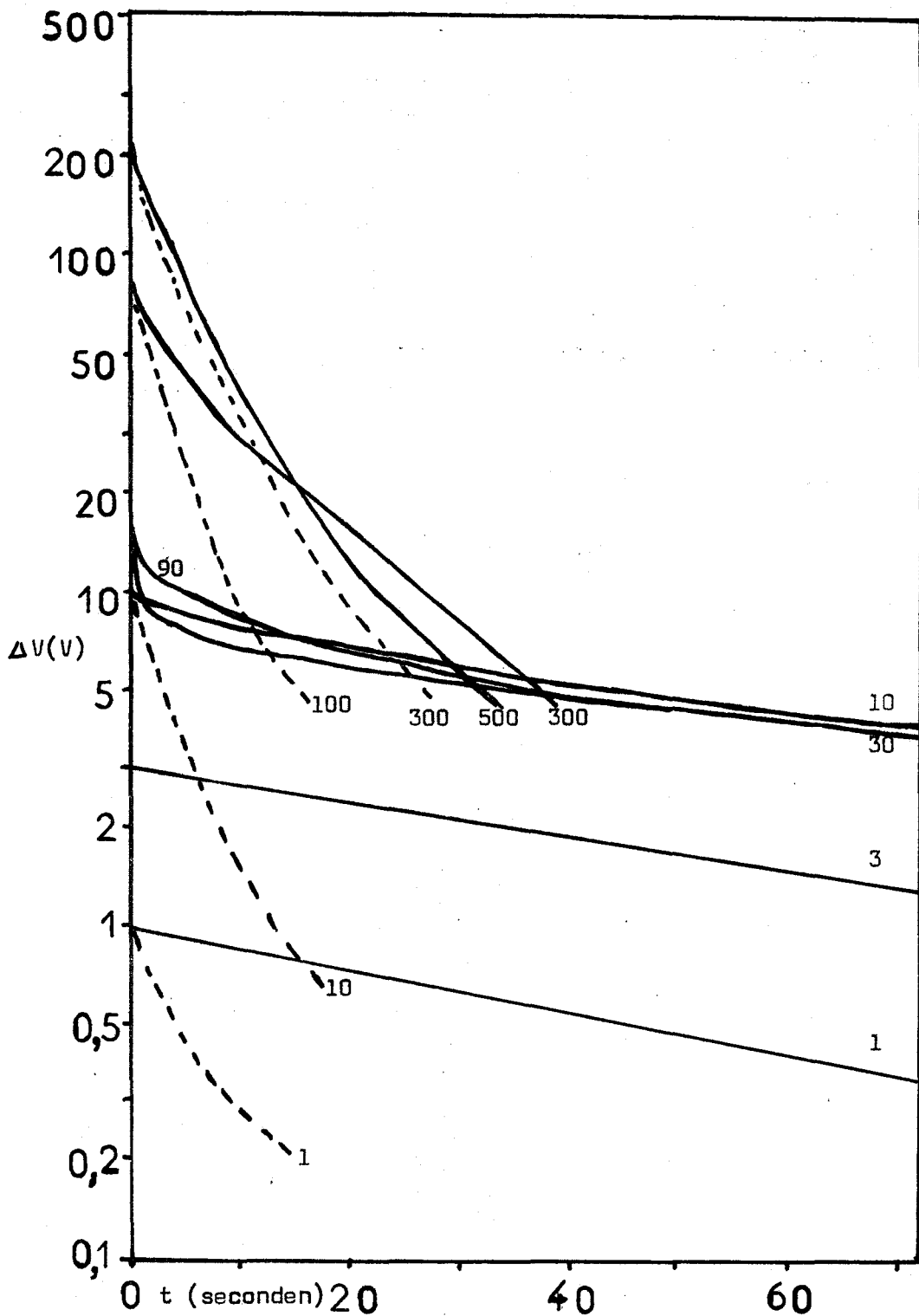
ontladingsweerstand ( $M\Omega$ )	103	103	103	103	8,5	8,5	1
$T$ (seconden)	64	54	68	73	8,6	8,6	2,9
oplaadtijd (seconden)	0,5	1	6	60	2	10	1

tabel 4.

Grafiek 12 is gemeten volgens meetopzet IV. Echter hier geeft de grafiek alleen de kurven, die bij een bepaalde temperatuur de maximale oplading benaderen. Bij deze kurven worden de respektievelijke tijden gegeven die daarvoor nodig zijn. Bij hogere temperatuur (23 - 160 °C) blijkt de lading, die door de ontladingsweerstand loopt, minder te worden.

Twee opmerkingen omtrent de ontladingskurve-metingen kan ik nog vermelden; ten eerste heb ik geen aanduidbaar verschil in een oplading met een negatieve  $V$  en een oplading met een positieve  $V$  als opladingspanningen waargenomen en ten tweede heb ik bij aarding en niet-aarding ook geen verschil in de ontladingskurven kunnen ontdekken.

In paragraaf 3.3.3. worden de kurven van deze paragraaf als volgt geanalyseerd en geïnterpreteerd. Eerst wordt behandeld wat er kan gebeuren met de elektronenstroom wanneer deze door een oxide-laagje loopt. Daarna wordt beschouwd wat er wordt gemeten met de ontladingskurven, en tenslotte volgen enkele interpretaties.



grafiek 11.

ontladingskurven na enkele minuten opladingstijd met hun resp.

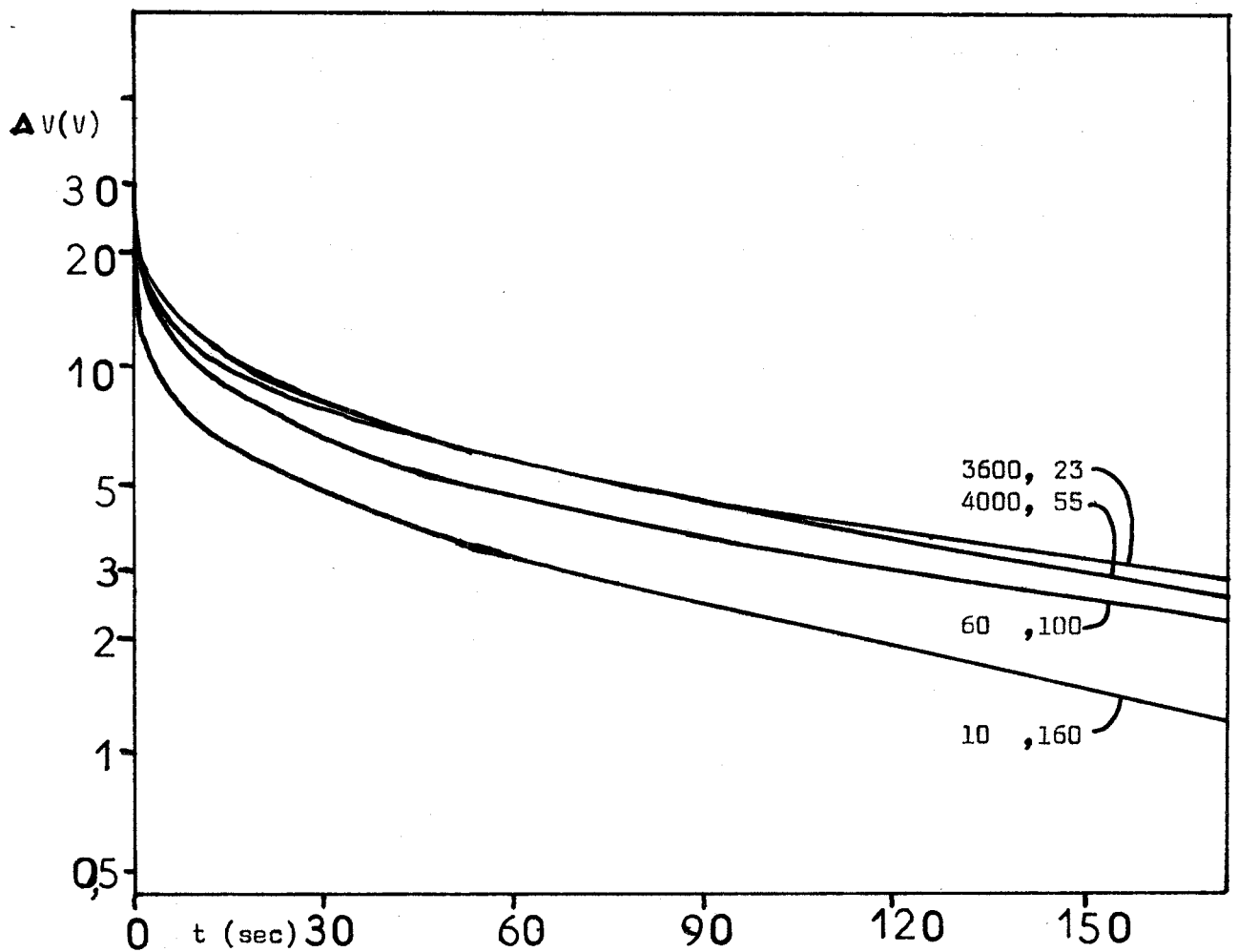
opladingsspanningen als parameter. De vol getrokken kurven

zijn gemeten bij toenemende  $\Delta V$  en de gestreepte daarna bij af-

nemende  $\Delta V$ . (allen voor  $\Delta V$  is positief) Al-plaatje 10, 16mm

gouden elektrode, ontladingsweerstand  $10^3 \text{ M}\Omega$ , bij kamertemperatuur.

(grafiek ter oriëntatie van de ontladingskurven met de opladings-  
spanning als parameter)



grafiek 12.

ontladingskurven met hun respektievelijke oplaadtijden (in seconden) en temperaturen (in °C) van Al-plaatje 4, 20 x 20 mm gouden elektrode. (De opladingsspanning is 30 volt, de ontladingsweerstand is  $10^3 \text{ M}\Omega$ ).

### 3.3.3. Het interpreteren van de ontladingskurven.

Alvorens een ontladingskurve te kunnen meten moet er een oplading tot stand gebracht worden. In de vorige paragraaf zijn dergelijke opladingen verkregen door enige tijd een opladingsspanning  $\Delta V$  over een  $Al_2O_3$ -laagje te zetten. Er zal nu worden ingegaan op de mogelijke gevolgen van zo'n  $\Delta V$ . Tengevolge hiervan zal een elektronenstroom door het laagje gaan lopen. Een deel van deze elektronen zal worden vastgehouden. Voor het geval van een MOM-structuur is in figuur 6 getekend hoe op een bepaald moment de ladingsdichtheid  $qn_0$  (in coulomb/m<sup>2</sup>) zou kunnen verlopen als functie van de plaats in de MOM-sandwich. Ook zijn het daarbijbehorende verloop van de elektrische veldsterkte,  $E_n$ , en van de potentiaal  $V_n$  in figuur 6 globaal weergegeven. De lading in het gebied 0 wordt toegeschreven aan ruimteladingselektronen. De ladingen op de twee overgangen  $MOO_1$  en  $MOO_2$  worden opgevat als een oppervlaktelading. Er wordt hierbij zowel in 0 als bij  $MOO_1$  en  $MOO_2$  gedacht aan het optreden van trapping.

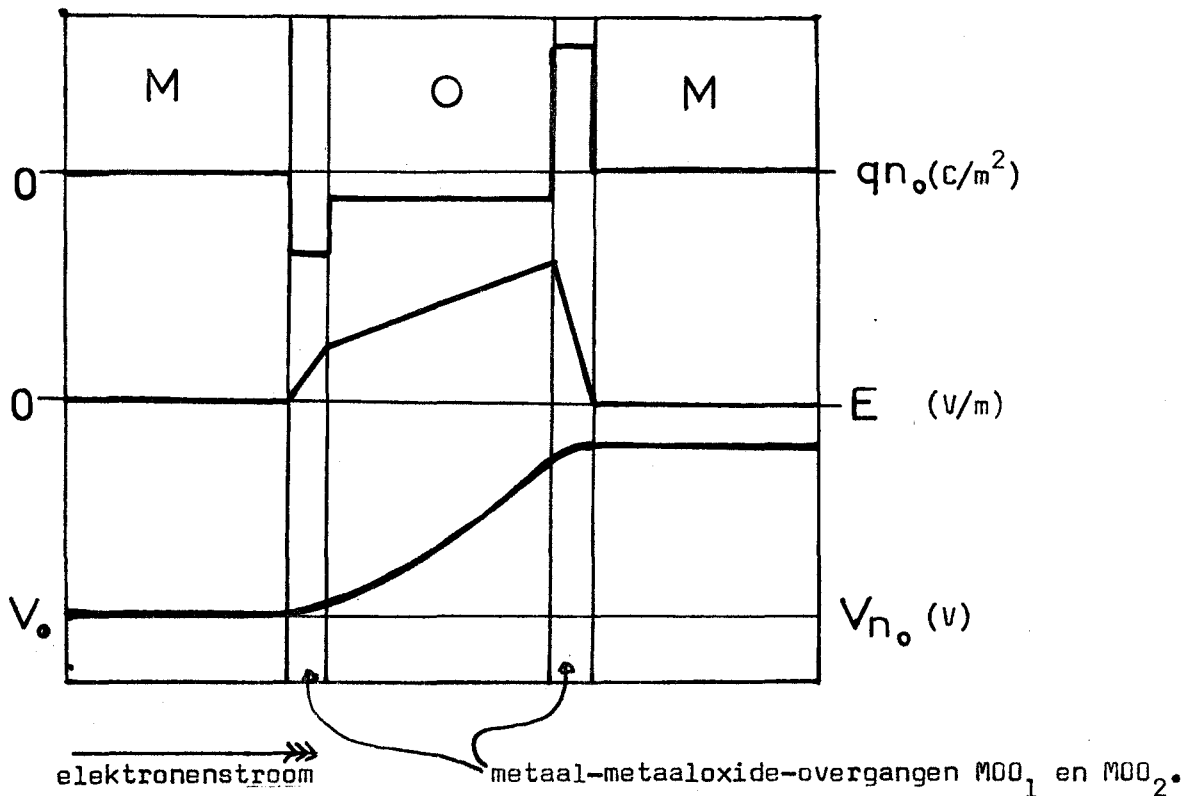


fig. 6

schema van een MOM-structuur.

Mogelijke varianten op de ladingsverdeling van figuur 6 zijn weergegeven in figuur 7 en figuur 8. Dergelijke ladingsverdelingen zijn als begin-

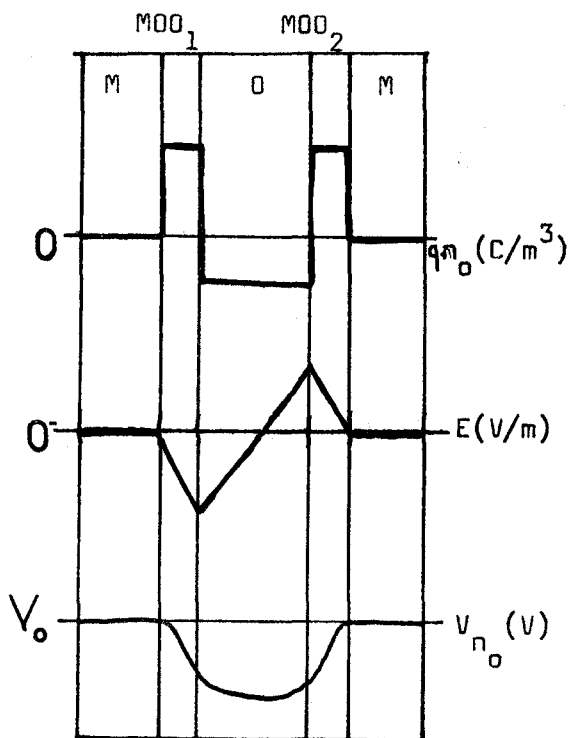


fig. 7  
variant van fig. 6

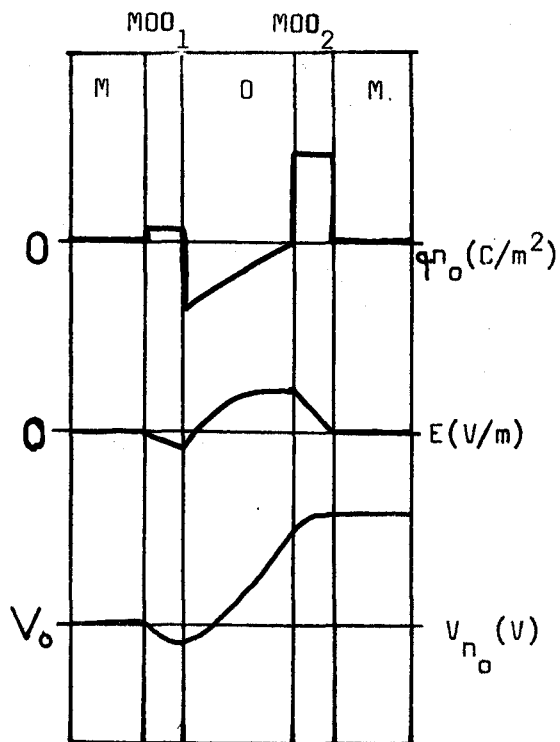


fig. 8  
variant van fig. 6

toestanden voor een ontledingsexperiment te beschouwen. In figuur 5 betekent het openen van de schakelaar dus het maken van zo'n begin-toestand. De vraag is nu wat gebeurt met de ladingen na het openen van de schakelaar. Er wordt een stroom ( $I_{ont.}^*$ ) gemeten (zie fig. 5) veroorzaakt door de ladingen die uit de MOM-sandwich verdwijnen. Om het verloop van  $I_{ont.}$  als functie van de tijd te kunnen beschrijven verdelen we de MOM-lading in vier soorten:

lading 1: vrije lading ter plaatse  $MOO_1$  en  $MOO_2$ .

lading 2: getrapte lading ter plaatse  $MOO_1$  en  $MOO_2$ .

lading 3: vrije lading ter plaatse O. (bulk)

lading 4: getrapte lading ter plaatse O.

Lading 1 zal aanvankelijk  $I_{ont.}$  veroorzaken. Dit stuk van de  $I_{ont.}$ -t-grafiek verloopt zo snel (in minder dan 1 sec), dat het experiment over de tijdconstante,  $\tau_1$ , geen uitsluitsel kan geven.  $\tau_1$  kan wel berekend worden uit de waarde van  $\underline{RE}$  voor dit ontlaadproces. Hierbij wordt weerstand  $\underline{R}$  voor deze stroom afkomstig van de lading 1 de ontlaadingsweerstand  $R+S$  (fig. 5) en  $\underline{C}$  de capaciteit van de condensator die gevormd wordt door de metaallagen met als tussen stof  $Al_2O_3$ .  $I_{ont.}$

\*)  $I_{ont.} = \Delta V / (\text{ontladingsweerstand})$

zal vervolgens bepaald worden door de vrije ruimteladingen in de bulk, de tijdconstante,  $\tau_3$ , van deze ontlading zal mede bepaald worden door de specifieke weerstand van het bulkmateriaal. ( $Al_2O_3$ ) Het verdwijnen van de getrapte lading 2 en 4 zal meer tijd in beslag nemen en dit zal na enige tijd de grootte van de  $I_{ont}$  bepalen.

Van voorgaande veronderstellingen zal gebruik worden gemaakt bij de interpretatie van de meetresultaten. In grafiek 6 zou dat kunnen betekenen dat in gebied I het verdwijnen van ladingen 1 en 3, en in gebied II het verdwijnen van lading 2 en lading 4 het verloop van de ontladingskurven bepalen. Het lijkt vervolgens aannemelijk dat het verdwijnen van lading 4 de meeste tijd kost, zodat het verloop in gebied II geheel door de lading 4 zal worden bepaald. In grafiek 7 is nagegaan wat de invloed van de oplaadtijd is op de ontlading. Het blijkt dat gebied I uit grafiek 6 hier overheerst behalve voor oplaadtijden van de orde van een uur. Kennelijk is er bij een korte oplaadtijd alleen nog maar sprake van het ontstaan van lading 1, 2 en 3. Lading 1 zal steeds aanleiding geven tot eenzelfde tijdconstante bij de ontlading, onafhankelijk van de oplaadtijd. Het verschil in de krommes in grafiek 7 wordt dan ook toegeschreven aan lading 2 en 3. (tijdconstante = 1 à 50s) Een aanwijzing dat hier lading 4 nog geen rol speelt kan als volgt worden aangetoond. Uit grafiek 7 is voor elke kromme de totale hoeveelheid lading berekend die is verdwenen tijdens het experiment. (via de ontladingsweerstand, in tab. 2 zijn deze ladingen weergegeven) De lading die op de condensatorplaten zit van een condensator gevormd door de MOM-sandwich is van de orde van tienden van een  $\mu$  Coulomb. Dit leidt tot het meer aannemelijk maken van de veronderstelling dat lading 4 de overheersende ontladingsstroom geeft in gebied II. (grafiek 6) Aan de hand van grafiek 8 is met de tot nu toe gegeven interpretatie eenvoudig in te zien dat naarmate de opladingsspanning langer aanstaat de bulk oplading overheersend gaat worden. Het lijkt erop dat de ladingsverdeling die hoort bij fig. 6 overgaat in één die hoort bij fig. 8. Grafieken 11 en 12 kunnen op een dergelijke manier geïnterpreteerd worden, alleen met dit verschil dat bij hoge opladingsspanningen in het  $Al_2O_3$  de tijdconstante van de traps,  $\tau_1$ , kleiner wordt en dit dan ook daarna bij lage opladingsspanningen blijft. De kurven in grafiek 12 geven bij verschillende temperaturen nauwelijks een andere tijdconstante te zien. De oplading gaat echter veel sneller in zijn werk, de geleiding is immers beter geworden, zie grafiek 3, wat tot de veronderstelling leidt dat een groot gedeelte van de oplading niet door de ontladingsweerstand afvloeit, maar alleen via de bulk wordt ontladen, zodat er eigenlijk nog maar weinig over de lading in de bulk gezegd kan worden bij hogere temperaturen. (100-150°C)

### 3.4.1. Metingen met de vector-impedantiemeter.

Met een vector-impedantiemeter (hp 4800A) is de amplitude  $|Z|$  ( $1-10^7 \Omega$ ) en de fasehoek  $\varphi$  van de sandwich als functie van  $\omega$  ( $40-3 \cdot 10^6$  rad/sec) bepaald. ( $\Delta V = 0,3 \cdot \sin \omega t$  volt)

De meetopzet is als volgt:

- I. Met de vector-impedantiemeter wordt de sandwich over het hele frequentiegebied van de meter, voor zover dit mogelijk is, door-gemeten.
- II. Meting I wordt uitgevoerd met de oppervlakte van het  $Al_2O_3$ -laag-je als parameter. Hiertoe worden elektrodes van verschillende oppervlaktegrootte op een Al-plaatje gedampt. ( $1mm \phi - 30mm \phi$ )
- III. In plaats van de oppervlakte van het  $Al_2O_3$ -laagje wordt de tem-peratuur als parameter gebruikt. Deze metingen zijn bij meerdere Al-plaatjes uitgevoerd.

In de volgende paragraaf worden grafieken toegelicht die volgens deze meetopzet zijn ontstaan.

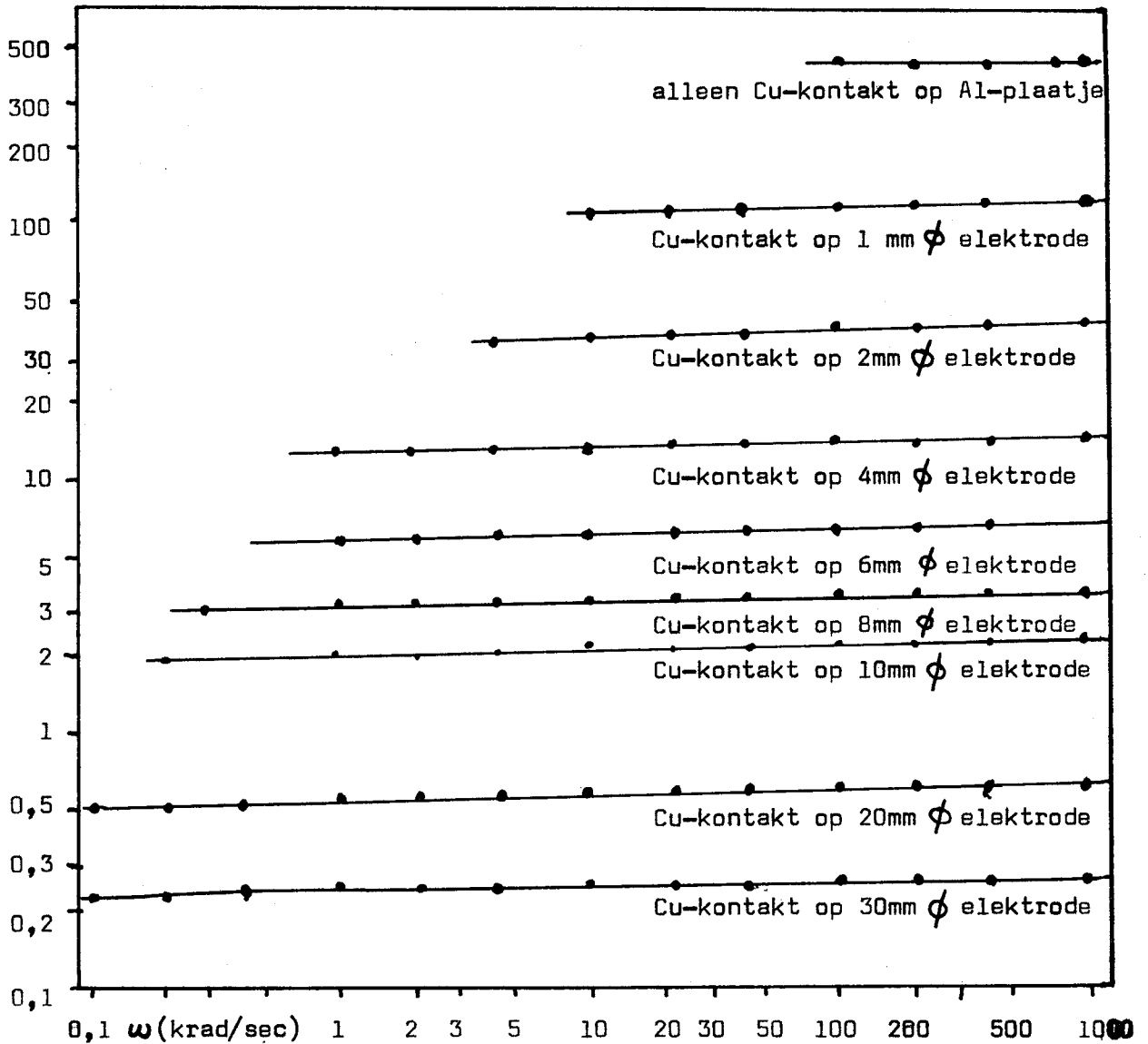
### 3.4.2. Aard en toelichting van de vector-impedantiemetingen.

Bij meetopzet I is uitgeprobeerd hoe  $|Z|$ ,  $\varphi$  en  $\omega$  tegen elkaar uit-gezet kunnen worden in grafieken, zodat de metingen eventueel rede-lijk te interpreteren zijn. Ik ben tot de konklusie gekomen dat  $\log |\omega \cdot Z_{im}| - \log \omega$  -grafieken en  $\log Z_{re} - \log \omega$  - grafieken kur-ven hebben die wijzen in de richting van een capaciteit, die parallel met een weerstand geschakeld is. (over de theorie hiervan wordt in de volgende paragraaf verder ingegaan)

De grafieken 13 en 15 (resp. meetopzet II en III) zijn op de hierboven beschreven manier uitgezet. In grafiek 13 is alleen  $|\omega \cdot Z_{im}|$  tegen  $\omega$  uitgezet vanwege de grote onnauwkeurigheid in  $Z_{re}$  bij hoge  $\omega$ 's. (immers  $|Z| \cdot \cos \varphi = Z_{re}$  en hier is  $\varphi = -80 - -90$  graden, welke tot ongeveer 1 graad nauwkeurig op de meter afgelezen kunnen worden)

In grafiek 14 wordt  $|\omega \cdot Z_{im}|$  als functie van de elektrodediameter  $\phi$  \*) uitgezet. ( $\omega = 10^6$  rad/sec en uit dezelfde metingen als voor grafiek 13 bepaald) Door de punten die bij de elektrode-diameters 8, 10, 20 en 30mm horen kan in grafiek 14, binnen de meetnauwkeurigheid, een lijn met hel-ling twee getrokken worden. D.w.z. er blijkt een omgekeerde evenredigheid te zijn tussen  $|\omega \cdot Z_{im}|$  en de oppervlakte van de elektrodes. In de volgende paragraaf

$$*) \left| \frac{I}{\omega \cdot Z_{im}} \right| = C = \frac{\epsilon_0 \cdot \epsilon_r \cdot A}{s}, \quad A = \pi \cdot \left( \frac{\phi}{2} \right)^2$$

$|\omega \cdot Z_{im}| (\text{G}\Omega \cdot \text{rad/sec})$ 


grafiek 13.

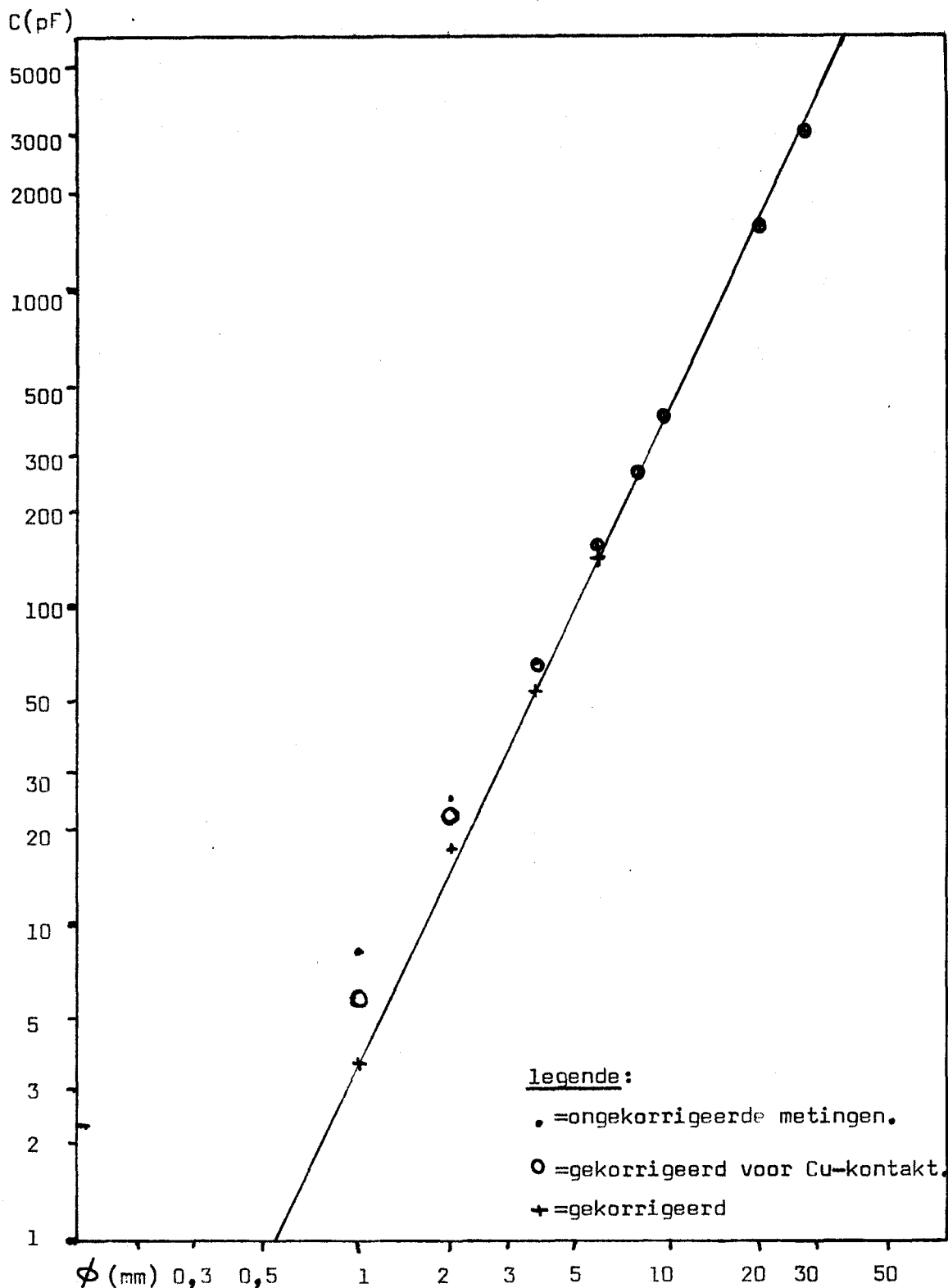
$\log|\omega \cdot Z_{im}| - \log\omega$  - grafiek van Al-plaatje 3 met de elektrodediameter als parameter.

worden de correcties voor de kleinere elektrodes besproken.

In grafiek 15 is te zien dat in het lage frequentiegebied  $Z_{re}$  en  $|\omega \cdot Z_{im}|$  beide sterk temperatuurafhankelijk zijn, terwijl in het hoge frequentiegebied alleen  $Z_{re}$  sterk temperatuurafhankelijk is.

Grafiek 16 is volgens meetopzet III bepaald. De helling van deze C/A - 1/s - grafiek is omgekeerd evenredig met de  $\epsilon_r$  van het  $\text{Al}_2\text{O}_3$  als verondersteld wordt dat het oxide-laagje als tussenstof van de gemeten capaciteit kan worden beschouwd. ( $|\omega \cdot Z_{im}| = 1/(\text{gemeten capaciteit})$ ) De  $\epsilon_r$  blijkt bij de 4 en 8  $\mu\text{m}$  laagdikte sterker temperatuurafhankelijk te zijn als bij 14  $\mu\text{m}$  laagdikte. Niet bij 100°C maar bij 23°C zijn de kleinste  $\epsilon_r$ 's te vinden. (voor  $\omega = 10^6$  rad/sec)





grafiek 14.

log C - log  $\phi$  - grafiek van Al-plaatje 3 uit grafiek 13 afgeleid. ( $C = |1/\omega \cdot Z_{im}|$ )  
na de korrektie van de meetpunten komen deze vrijwel op een rechte met helling 2 te liggen.

Ook over het gedrag van de  $\epsilon_r$ 's wordt in de volgende paragraaf verder ingegaan evenals grafiek 17.

In grafiek 17 is een poging gedaan om  $1/R_c$  ( $R_c$  = de weerstand van het  $Al_2O_3$ -laagje bepaald door extrapolatie van  $Z_{re}$  uit grafiek 15) uit te zetten tegen  $1000/T$  (T in graden kelvin) om op die manier meer over het geleidingsmechanisme in het  $Al_2O_3$  laagje te kunnen zeggen.

### 3.4.3. De interpretatie van de vector-impedantiemetingen.

De metingen aan Al-plaatje 3 met de elektrodediameter als parameter (grafiek 13) geven de meetpunten voor grafiek 14. Wordt als stap \*) genomen het veronderstellen, dat het laagje  $Al_2O_3$  fungeert als een vlakke plaatkondensator, met de dikte van het laagje als platenafstand (s), parallel geschakeld met een inwendige weerstand  $R_c$ , dan geldt:

$$|\omega \cdot Z_{im}| \approx 1/C \text{ - - - - - (4)}$$

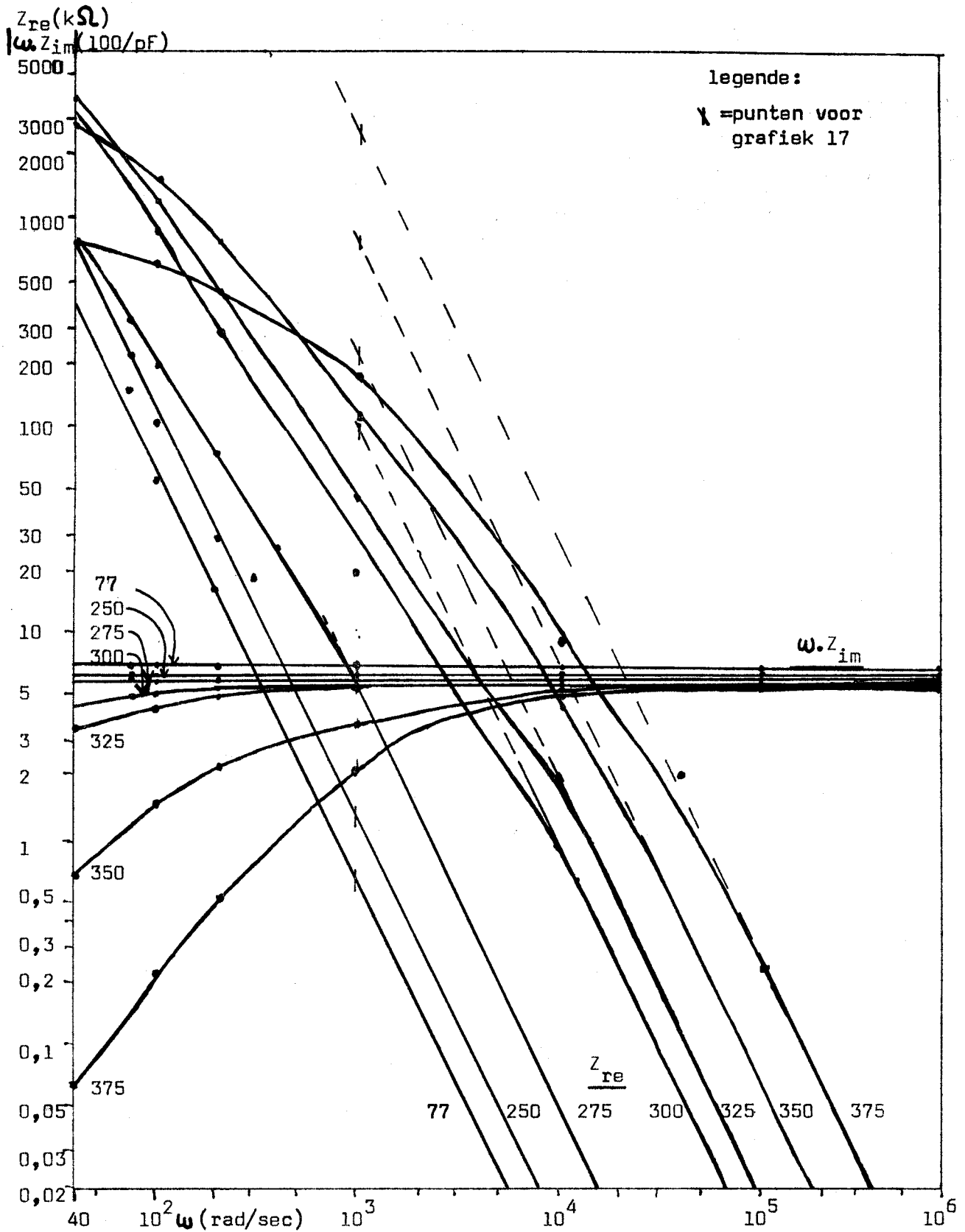
$$Z_{re} \approx 1/(\omega^2 \cdot R_c \cdot C^2) = Z_{im}^2/R_c \text{ - - - - - (5)}$$

$$\text{voor } \omega \cdot R_c \cdot C \gg 1.$$

In grafiek 14 is C uitgezet tegen de diameter van de gouden elektrode waar een koperen elektrisch contact op drukt. Wanneer we met een ideale condensator te doen hebben zal een rechte door alle meetpunten gaan op log-log-grafiekpapier. (met helling 2) Dit is echter niet het geval. En om de oorzaak hiervan op te sporen wordt een overzicht gegeven van de afwijkingen waarmee deze meting behept is, n.l.:

1. de parasitaire capaciteit van het Cu-kontakt. (parallel met de te meten condensator) Deze capaciteit is gemeten. (grafiek 13)
2. randeffekten van de condensator.
3. het  $Al_2O_3$ -laagje is niet overal even dik, en/of  $\epsilon_r$  niet overal hetzelfde.
4. de oppervlaktes van de elektrodes hebben niet precies de aangegeven waarde.
5. fouten binnen het meetbereik van de vectorimpedantiemeter.
6. eventuele andere parasitaire capaciteiten in de meetopstelling. (serie)

Van deze zes punten is alleen punt 1 bekend. Globaal genomen kan voor punt 1 gecorrigeerd worden door de capaciteit, die gemeten is met alleen het Cu-kontakt op het Al-plaatje, af te trekken van de capaciteit, die bij \*) deze stap is alleen volledig juist bij de veronderstelling, dat er bij lage spanningen ( $\Delta V$  = lager dan 0,3 volt) ohmse geleiding door het  $Al_2O_3$ -laagje is, juist is.

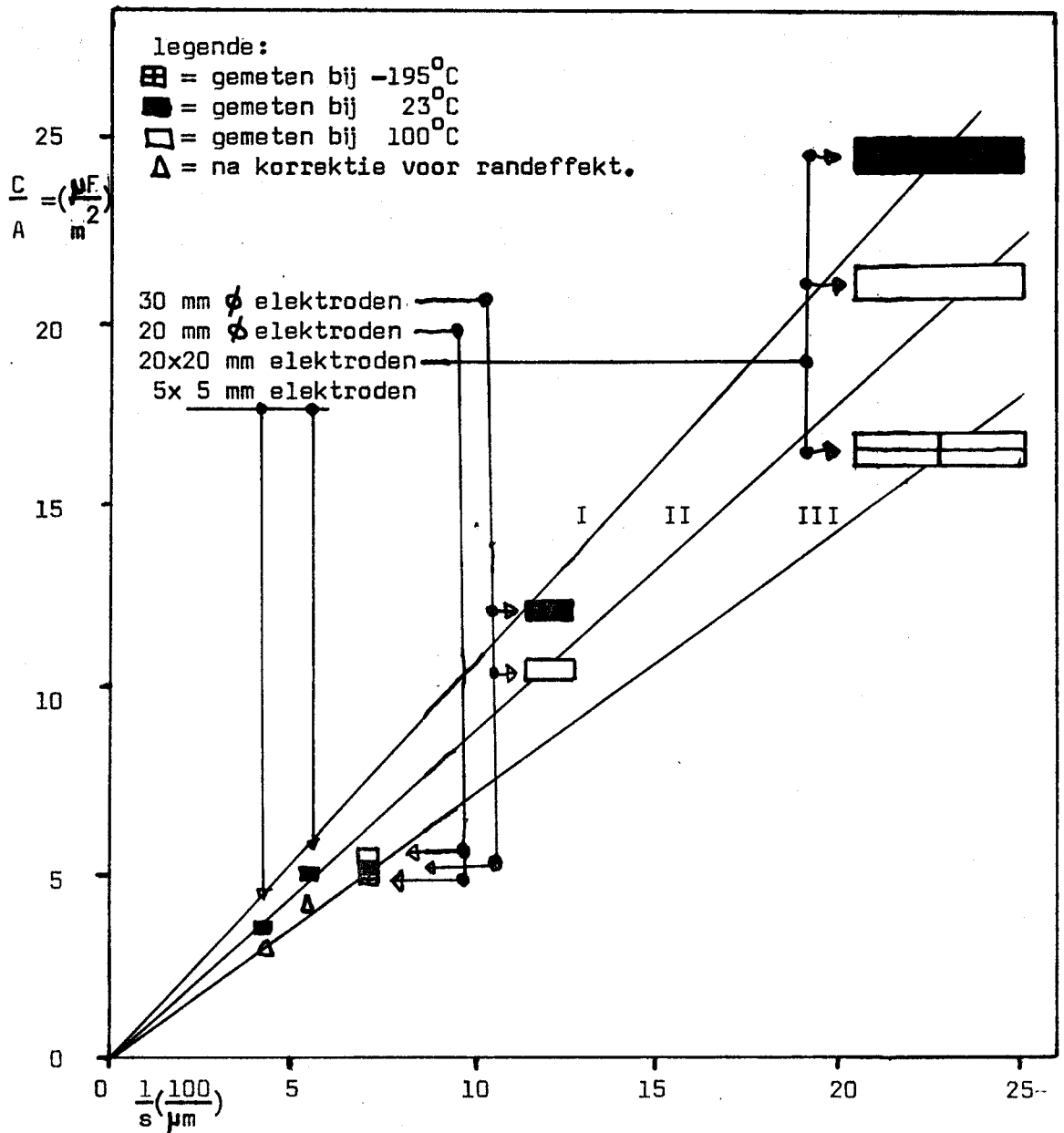


grafiek 15.

$\log Z_{re} - \log \omega$ - grafiek en  $\log |\omega \cdot Z_{im}| - \log \omega$ - grafiek van Al-plaatje 3 met hun respektievelijke temperaturen (in graden kelvin) als parameter. met 20 mm  $\phi$  gouden elektrode.

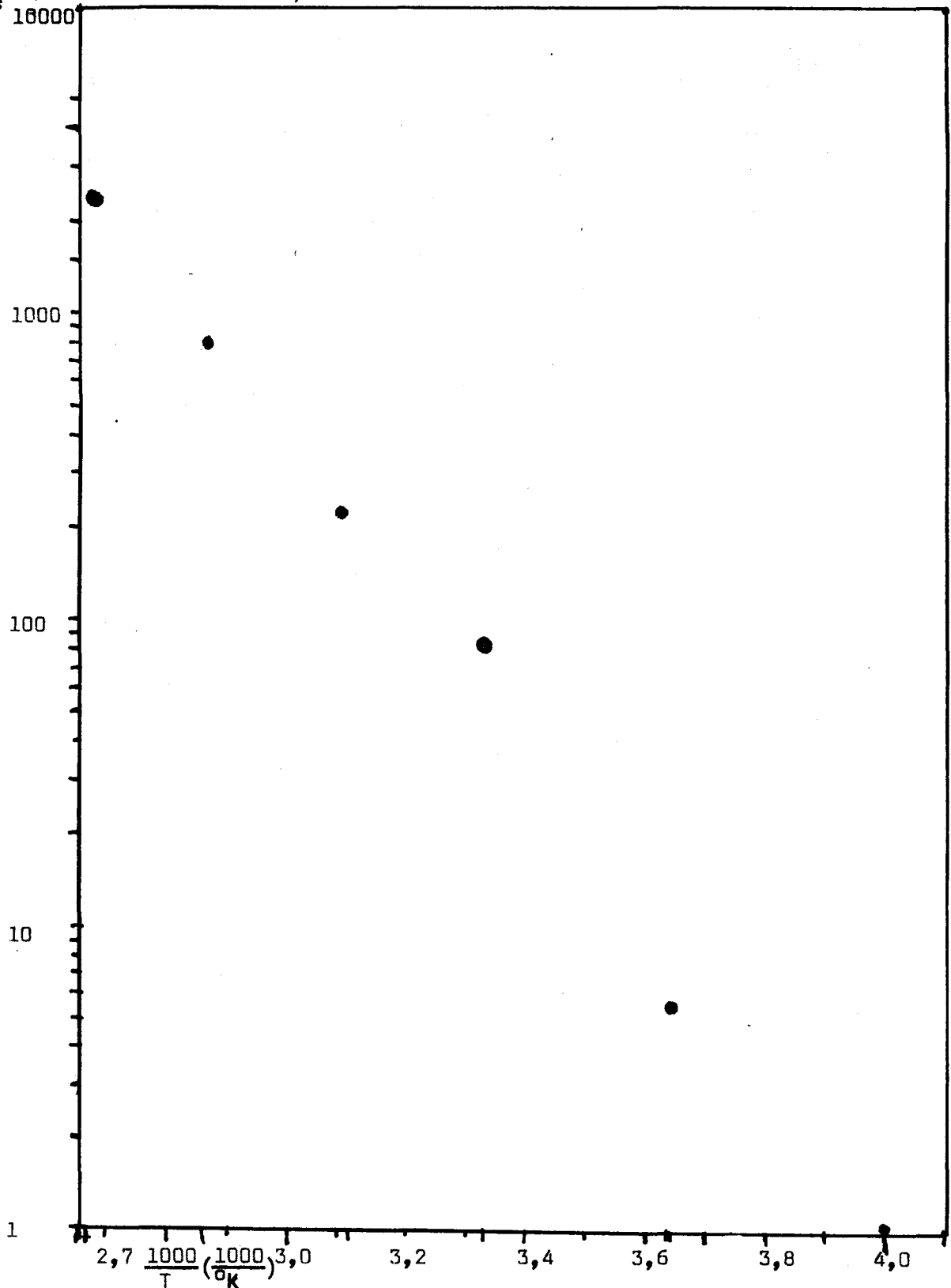
de respektievelijke elektrodes gemeten is. Het blijkt dat de zo gekorrigeerde meetpunten nog niet binnen de meetnauwkeurigheid van de vector-impedantiemeter op een rechte met helling 2 liggen. Punt 2 voor verdere correctie lijkt te kunnen. De correctie voor punt 1, punt 3 (tab. 1, blz. 13 voor de dikte en grafiek 16 voor  $\epsilon_r$ ), punt 4 (de diameters van de elektrodes zijn tot op 0,02 mm nauwkeurig opgedampt) en punt 6 geven elk invloed op de totale meetnauwkeurigheid van de meetpunten, maar kunnen niet verantwoordelijk zijn voor een fout van ongeveer 50% bij het laagste meetpunt, en een fout van ongeveer 40% bij het meetpunt daarboven. Het randeffekt van punt 2 blijft op die manier over om de schuldige van de afwijking te kunnen zijn. In grafiek 14 is voor dit rand-effekt gekorrigeerd. Deze correctie komt erop neer dat het lijkt dat bij de gemeten capaciteit nog een rand van 0,15 mm elektrode bij de opgedampte elektrode is inbegrepen. Dit verschijnsel is eventueel te verklaren als er oppervlaktestromen over het  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -laagje kunnen lopen, vanaf de elektrode. Het afbuigend karakter van de kurven in grafiek 15 is te verklaren door de temperatuur- en frequentieafhankelijkheid van de  $\epsilon_r$ . (in de literatuur (10) worden voor  $\text{Al}_2\text{O}_3$   $\epsilon_r$ 's gevonden die op deze wijze van de frequentie en temperatuur afhangen) Het blijkt dat bij hoge frequenties ( $\omega = 10^6$  rad/sec) de  $\epsilon_r$  veel minder temperatuur-afhankelijk is, en de kurven van  $Z_{re}$  dientengevolge met helling -2 geextrapoleerd kunnen worden in het hoge frequentiegebied. Door het doortrekken van de -2 hellingen over de hele grafiek kunnen de verhoudingen van  $1/R_c$  (rel. 5) worden bepaald voor  $\omega = 10^6$  rad/sec op  $\omega = 10^3$  rad/sec. (voor de temperatuurafhankelijkheid van  $Z_{im}$  moet dus nog gekorrigeerd worden) In grafiek 17 worden deze verhoudingen van  $1/R_c$  tegen  $1000/T$  uitgezet. Wanneer nu de spanningsamplitude van de vector-impedantiemeter konstant blijft is  $1/R_c$  evenredig met de stroom  $I_c = \text{evenredig met } \exp(-\Delta E/kT)$ , wanneer uitgegaan wordt van een exponentieel verband tussen de temperatuur van het  $\text{Al}_2\text{O}_3$  en de hoeveelheid vrije elektronen bij de eventuele ohmse geleiding. Uit de helling van grafiek 17 volgt voor  $\Delta E$  ongeveer 0,7 eV, terwijl het punt (13;0,6) op tunneleffekt wijst. In de discussie wordt hier verder op ingegaan. (zie lit.(9), blz. 498)

In Grafiek 16 laat lijn III zien dat de  $\epsilon_r$  bij  $T = -195^\circ\text{C}$  bij laagjes van 4 en 14  $\mu\text{m}$  ongeveer hetzelfde is, terwijl bij dunne laagjes en stijgende temperatuur de  $\epsilon_r$  afneemt en vervolgens weer lijkt toe te nemen. Dit verschijnsel is misschien te wijten aan het feit dat bij 4 en 8  $\mu\text{m}$ -laagjes de  $\epsilon_r$  niet meer de waarde heeft van de bulk- $\epsilon_r$ . Bij het laagje van 14  $\mu\text{m}$  blijkt voor  $\omega = 10^6$  rad/sec nauwelijks temperatuurafhankelijkheid te bestaan.



grafiek 16. (gemeten is volgens meetopzet III)

$\frac{C}{A} - \frac{1}{s}$  - grafiek,  $(C = \frac{\epsilon_r \epsilon_0 \omega \cdot A}{s})$  waarbij de helling van de rechte omgekeerd evenredig is met  $\epsilon_r$  van het  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -laagje. Van links naar rechts in de grafiek zijn de Al-plaatjes 1, 2, 3, 6 en 4 gebruikt. (voor de dikte van de  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -laagjes, zie tab. 1, blz. 13) Alle punten in deze grafiek horen bij een  $\omega$  van  $10^6$  rad/sec.

$1/R_c$  (arbitraire eenheden)


grafiek 17.

$\log \frac{1}{R_c} - \frac{1000}{T}$  - grafiek. Al-plaatje 3, 20 mm  $\phi$  gouden elektrode.  
(de meetpunten zijn uit grafiek 15 afgeleid)

aan deze grafiek dient het punt (13;0,6) nog toegevoegd te worden.  
op de punten in de grafiek zijn nog geen korrekties uitgevoerd.

#### 4. De vakuumpstelling.

##### 4.1 Inleiding.

In het vorige hoofdstuk is een begin gemaakt met de behandeling van elektrische opladingen in dunne laagjes, door een analyse van de oplaadingsverschijnselen in deze laagjes.

Om nu te kunnen meten aan elektrische opladingen in vacuüm is een vacuümruimte noodzakelijk waarin deze opladingen gemaakt en gemeten kunnen worden.

Daar de oplading mogelijk afhankelijk kan zijn van de van gasmolekulen en verontreinigingen, die zich in het vacuüm en op de wanden bevinden, moet het vacuüm aan een aantal eisen voldoen, zoals : het vacuüm moet schoon zijn (d.w.z. er mag geen vet van een pomp in het vacuüm komen) en de gasdruk in het vacuüm moet zodanig zijn dat zich geen laag gasmolekulen, die regelmatig aangevuld wordt, op de wanden kan vormen. Verder is in de opstelling een voor het doel geschikte elektronenbron nodig met behulp waarvan de oplading gemaakt kan worden.

##### 4.2. De opstelling. (fig. 9)

Om aan de eisen van 4.1 te kunnen voldoen worden voor het voor-vacuüm krypompen gebruikt en een Utek ionengetterpomp voor het hoog-vacuüm. Om een nog hoger vacuüm te kunnen halen wordt het vacuümgedeelte van de opstelling uitgestookt met behulp van een dubbelwandige kast, die over de opstelling wordt geplaatst en waarin met vier verhitters hete lucht wordt geblazen. Uitstoken was zo mogelijk tot een temperatuur van  $400^{\circ}\text{C}$ , terwijl de krypompen afwisselend gebruikt konden worden om de uitgestookte gassen af te zuigen. Na het uitstoken wordt de U.H.V.-kraan tussen de ionengetterpompen en de krypompen dichtgedraaid, de uitstookkast verwijderd en de ionengetterpomp gestart. Op deze manier worden drukken bereikt van  $10^{-8}$  torr en lager, in een vacuümruimte van 1,5 liter inhoud.

Bij niet te hoge brandspanningen van de indirekt verhitte elektronenbron ( 6 volt ) blijft de druk gedurende lange tijd onder de  $2 \cdot 10^{-8}$  torr, terwijl hogere brandspanningen drukken van  $10^{-6}$  torr te zien geven. ( brandspanning = 9 volt ).

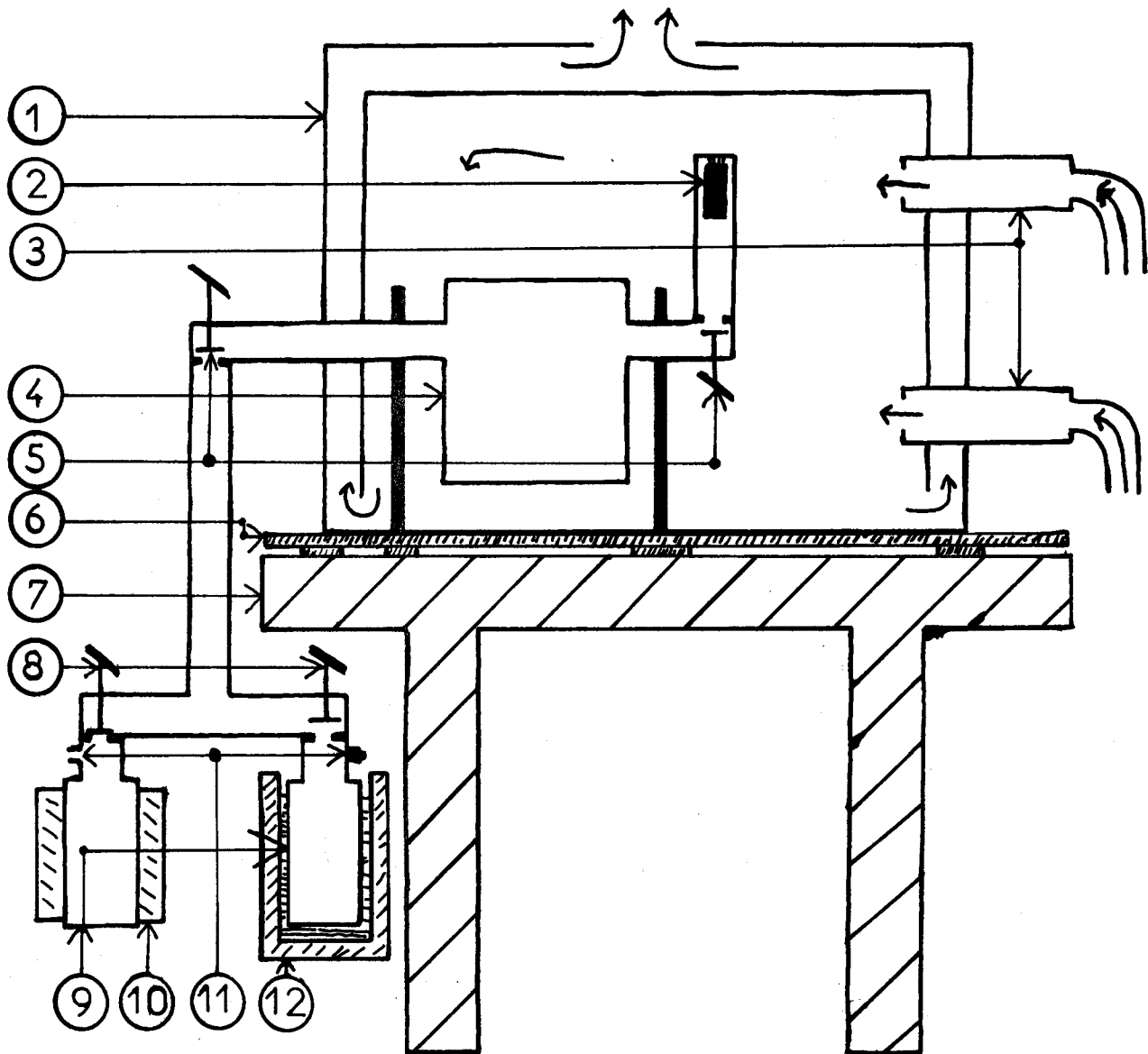


fig. 9

schema van de vakuumpstelling.

1. dubbelwandige uitstookkast.
2. elektronenbron. (zie fig. 10)
3. verhitters.
4. Ultek ionengetterpomp.
5. ultra-hoog-vakuum-kranen.
6. isolatieplaat.
7. tafel.
8. vakuumpompen.
9. kryopompen.
10. uitstookmantel voor een kryopomp.
11. ontgassings-uitgang van de kryopompen.
12. vat met vloeibare stikstof om de kryopomp te koelen.



De eisen die aan de elektronenbron gesteld werden zijn als volgt te formuleren. De druk mag niet te veel oplopen wanneer de bron aan staat en verder moet het mogelijk zijn om met de elektronenbron een kleine oppervlakte gelijkmatig te beschieten met elektronen. Deze elektronen moeten bovendien zoveel mogelijk allemaal dezelfde energie hebben en de elektronenstroom moet te regelen zijn, bijv. van  $10^{-14}$  A/mm<sup>2</sup> tot  $10^{-7}$  A/mm<sup>2</sup>.

Aan deze eisen voldeed een elektronenbron die bestond uit een indirect verhitte BaO-kathode en een elektronenlens met rooster zoals F.E.F.A. van de Laarschot voor ionen heeft gebruikt.

In deze elektronenlens, die een konische vorm heeft kunnen de radiële- en axiale elektronensnelheden onafhankelijk van elkaar beschouwd worden, zodat de elektronenbanen eenvoudig berekend kunnen worden.

#### 4.3. De mogelijkheid om elektrische opladingen te maken en te meten.

Elektrische opladingen kunnen gemaakt worden door in vacuum m.b.v. een elektronenbron een oxidelaagje te beschieten.

In fig. 10 is de elektronenbron schematisch weergegeven. Met behulp van de lens en het rooster kan de BaO-kathode elektronen op de elektronenopvangs schieten. De sterkte van de elektronenstroom kan geregeld worden door de brandspanning van de indirect verhitte kathode te variëren. De energie van de elektronen die op de elektronenopvangs terecht komen is te regelen door de spanning van de kathode te variëren. Tenslotte kan de elektronenstraal nog gefocusseerd worden om de oplading en de oplaadmetingen optimaal te laten verlopen. (De verdeling van de elektronen die op de elektronenopvangs 1, 2 en 3 en het rooster komen spelen een belangrijke rol bij het meten van de oplading.)

Het is mogelijk om de energie van de elektronen en de elektronenstroom van opvangs 1 te meten, zodat bekende oplaadstromen met bekende energieën kunnen worden gemaakt.

De oplaadelektronen krijgen hun energie door het doorlopen van het spanningsverschil tussen de kathode en de aarde plus nog een thermische energie door de hoge temperatuur van de BaO-kathode (ongeveer 800 °K).

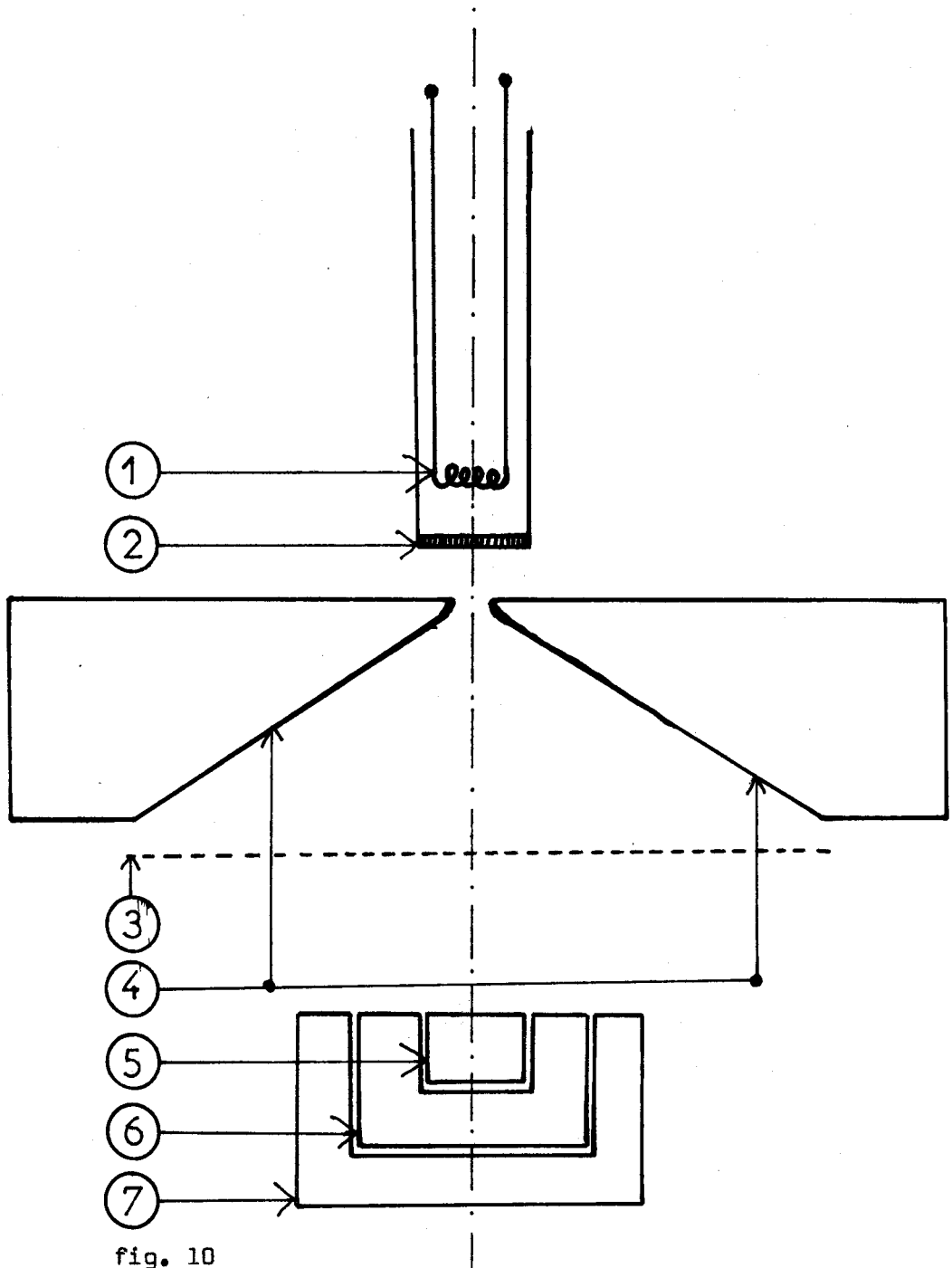


fig. 10

schema van de elektronenbron met lens, rooster en opvangers.

1.gloeidraad om BaO-kathode te verhitten.

2.BaO-kathode.

3.rooster.

4.lens.

5.elektronenopvanger 1.

6.elektronenopvanger 2.

7.elektronenopvanger 3.

(2,3,4,5,6 en 7 zijn rotatiesymmetrisch)

De hoeveelheid elektronen die op het plaatje terecht komt kan worden afgeleid uit de stroom die op het rooster valt en de stroom van de drie elektronenopvangsers. Elektronenenergieën van 1 tot 20 eV en op- laad stromen van  $10^{-14}$  tot  $10^{-8}$  A/mm<sup>2</sup> kunnen op deze manier bereikt worden.

Voordat verder wordt ingegaan op de metingen van elektronenstromen en opladingen eerst enkele gemeten karakteristieken van de elektro- nenlens, welke met de lensformules worden geïnterpreteerd.

Met laplace en lagrangiaan voor de elektronenlens worden de volgende plaats-en snelheidsformules gevonden :

$$r = \frac{v_{or}}{k} \cdot \sin kt \text{ ----- (1)}$$

$$z = \frac{v_{oz}}{\sqrt{2}k} \cdot \sinh \sqrt{2}kt \text{ ----- (2)}$$

$$\dot{r} = v_{or} \cdot \cos kt \text{ ----- (3)}$$

$$\dot{z} = v_{oz} \cdot \cosh \sqrt{2}kt \text{ ----- (4)}$$

waarbij :

$$k = \left[ \frac{V_g \cdot q}{z_g \cdot m} \right]^{\frac{1}{2}}, \text{ ----- (5)}$$

$r$  = de radiële richting van de lens,

$z$  = de axiale richting van de lens,

$z = 0$  waar de konische lens begint,

$z_g$  = de plaats waar het rooster is,

$V_g$  = de roosterspanning ( $V_1 = 0$  volt), ( $V_1 \neq$  de lensspanning),

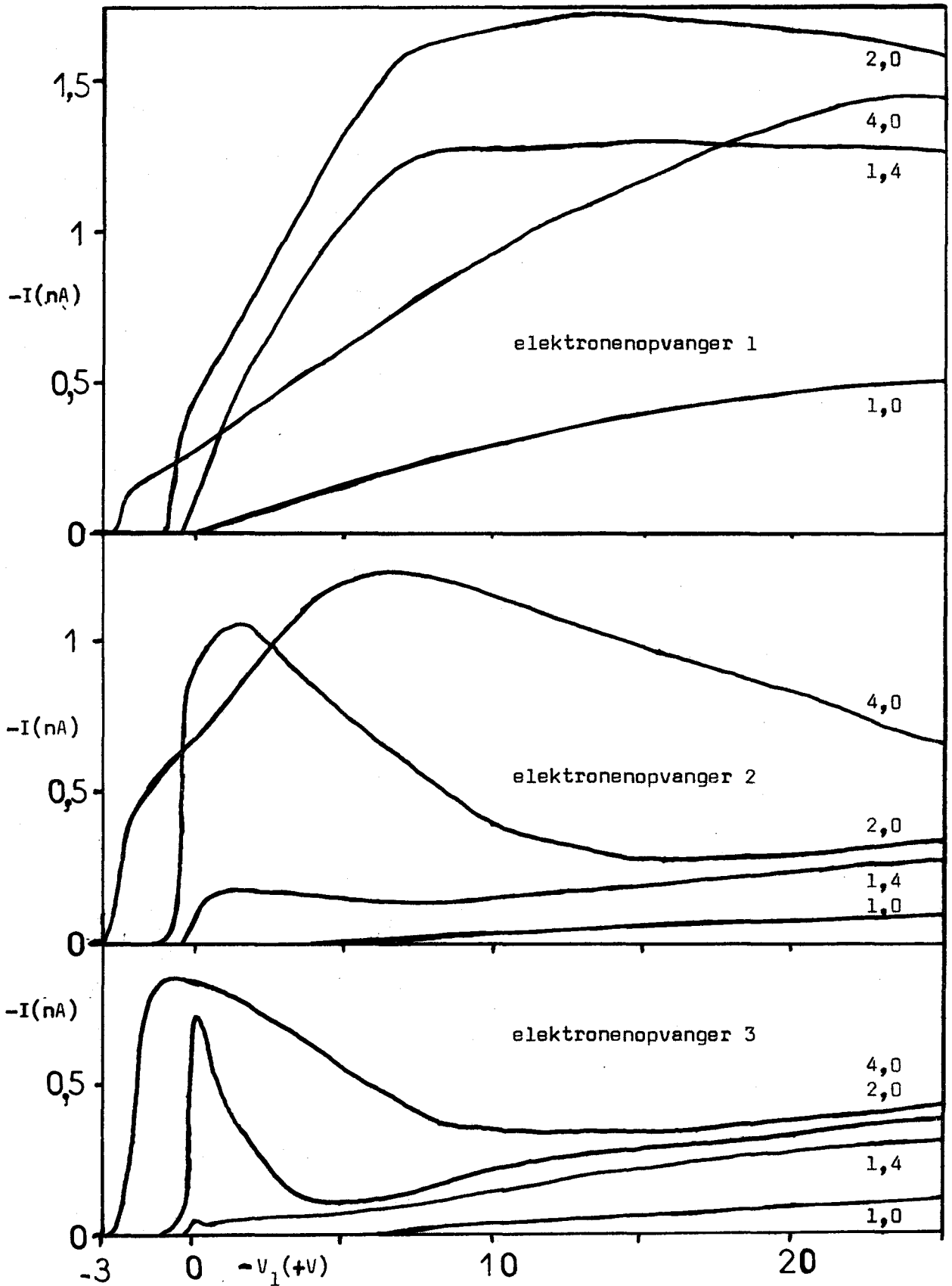
$v_{or}$  = de snelheid van de elektronen in de radiële richting  
ter plaatse  $z = 0$ ,

$v_{oz}$  = de snelheid van de elektronen in de axiale richting  
ter plaatse  $z = 0$ ,

$q$  = de lading van een elektron en

$m$  = de massa van een elektron

Als  $V_1 = V_g$ , dan werkt de konische lens niet elektrisch, immers er is geen potentiaalverschil tussen rooster en lens. De elektronen ver- volgen de weg die zij hadden voor het passeren van de lensopening.



grafiek 18

karacteristieken van de stromen op de elektroenenopvangers 1,2 en 3 van de elektroenenbron, met  $V_1 - V_g$  (in volts) als parameter, als functie van  $V_1$ . ( $V_g = 0$  Volt)<sup>k</sup>

Dientengevolge zal de stroom, die door elk van de opvangers gaat, afhangen van de grootte van het vangoppervlak en weinig van de radiale afstand tot de as van de elektronenbron.

De karakteristieken van de elektronenlens laten duidelijk zien dat de lens een focuserende werking heeft in het lage-spanningengebied.

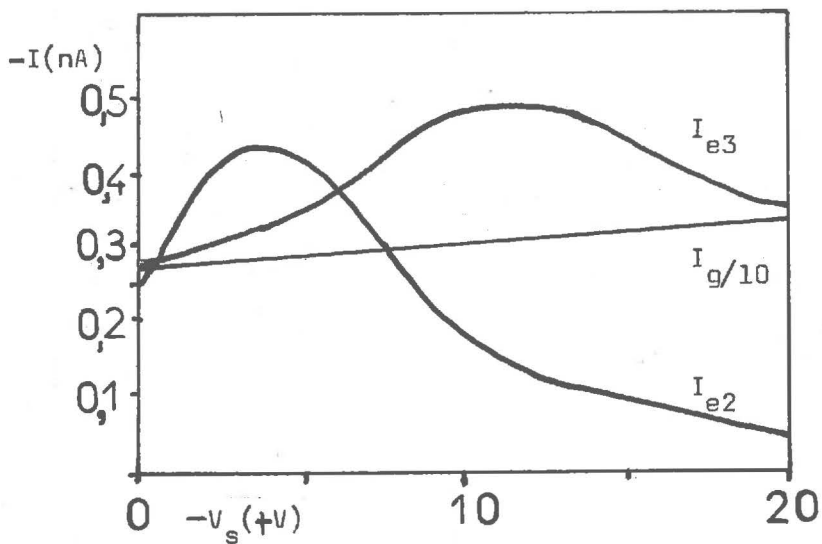
Namelijk bij een negatievere lensspanning komen er op elektronenopvangener 1 meer elektronen. (bij roosterspanning  $V_g = 0$  volt.)

Bij opvangener 2 is eerst een toename en dan een afname van de elektronenstroom te zien als de lensspanning negatiever wordt. Bij opvangener 3 is er al snel een lage elektronenstroom in dit geval.

M.b.v. de lensformules is het focuseren ook in te zien. Is namelijk in formule (3)  $k$  groot (grotere negatieve lensspanning) dan zal de radiële snelheid vlugger nul worden en vervolgens de elektronenstraal gaan focuseren. Het is nu van belang de lensspanning ( $V_1$ ) zo te maken, dat deze geschikt is voor de beoogde focussing. Bij de focussing spelen zowel de beginsnelheid  $v$ , bestaande uit een axiale snelheid  $v_{oz}$  en een radiale snelheid  $v_{or}$ , als de roosterspanning ( $V_g - V_1$ ) een rol. Om iets te kunnen zeggen over de elektronenstroom, die uit de elektronenbron komt wordt de roosterstroom gemeten. (de roosterstroom is de stroom die door het rooster wordt afgevoerd als  $V_g = 0$  volt.) Het blijkt dat de roosterstroom, bij een brandspanning van de elektronenbron van 6 volt, 70 % is van de elektronenstroom, die door de elektronenlens gaat. (het rooster is een fijn gaasje met roosterafstand  $34 \mu\text{m}$  en vierkante gaatjes van  $20 \times 20 \mu\text{m}$ )

Tenslotte is om aan te tonen dat een oplading gemeten kan worden met deze opstelling een simulatie-oplading gemaakt. D.w.z. elektronenopvangener 1 krijgt een spanning (simulatie-oplading) en de stromen van de elektronenopvangeners 2 ( $I_{e2}$ ) en 3 ( $I_{e3}$ ) en de roosterstroom ( $I_g$ ) worden gemeten als functie van de simulatie-oplading. (grafiek 19) Verdere uitwerking hiervan laat zien dat opladingen gemeten kunnen worden, wanneer de elektronenopvangeners 2 en 3 en het rooster niet opgeladen worden.

Deze uitwerking komt er op neer, dat m.b.v. de gemeten stromen zodanig teruggekoppeld dient te worden dat de oplading ( $V_{opl}$ ) gelijk is aan de negatieve simulatiespanning ( $-V_s$ ) op het sample. (elektronenopvangener 1) Met dit systeem kan in principe bij iedere oplaadstroom de oplading ( $-V_s$ ) direkt afgelezen worden als functie van de tijd. De ontladingen kunnen eventueel als functie van de tijd bij zo laag mogelijke elektronen stromen (op opvangener 1) gemeten worden. Figuur 11 toont een schema van een der-



grafiek 19

grafiek van de simulatie-opladings-meting.

$I_{e2}$ . stroom gemeten van elektronenopvanger 2.

$I_{e3}$ . stroom gemeten van elektronenopvanger 3.

$I_g$ . stroom gemeten van rooster.

$V_s$ . simulatiespanning op elektronenopvanger 1 t.o.v. aarde.

gelijk systeem. Met dit systeem wordt aan de hand van de gemeten stroom op elektronenopvanger 2 ( $I_{e2}$ ) teruggekoppeld. Dit terugkoppelen gaat als volgt te werk:

De gemeten stroom op elektronen opvanger 2 ( $I_{e2}$ ) wordt omgezet in een spanning ( $V_{I_{e2}} = I_{e2} \cdot R_{omzet}$ ). Deze spanning wordt vergeleken met de referentiespanning ( $V_r$ ). ( $V_r = I_{e20} \cdot R_{omzet}$ ,  $I_{e20}$  is de stroom die op elektronenopvanger 2 komt als elektronenopvanger 2 geen oplading en/of simulatiepotentiaal heeft).  $V_{I_{e2}} - V_r$  wordt versterkt en daarna geïntegreerd bij de simulatiespanning op elektronenopvanger 1.  $V_{opl} + V_s \rightarrow 0$  volt op elektronenopvanger 1 en  $V_{I_{e2}} \rightarrow V_r$ .

De simulatie spanning is op de integrator af te lezen en benaderd op boven beschreven wijze steeds ( $-V_{opl}$ ). Uit de roosterstroom kan eventueel ( $V_r$ ) afgeleid worden, immers  $I_{e20}$  is een functie van de elektronenstroom, die door het rooster komt. Op deze wijze zijn er nog meer verfijningen in dit systeem aan te brengen.

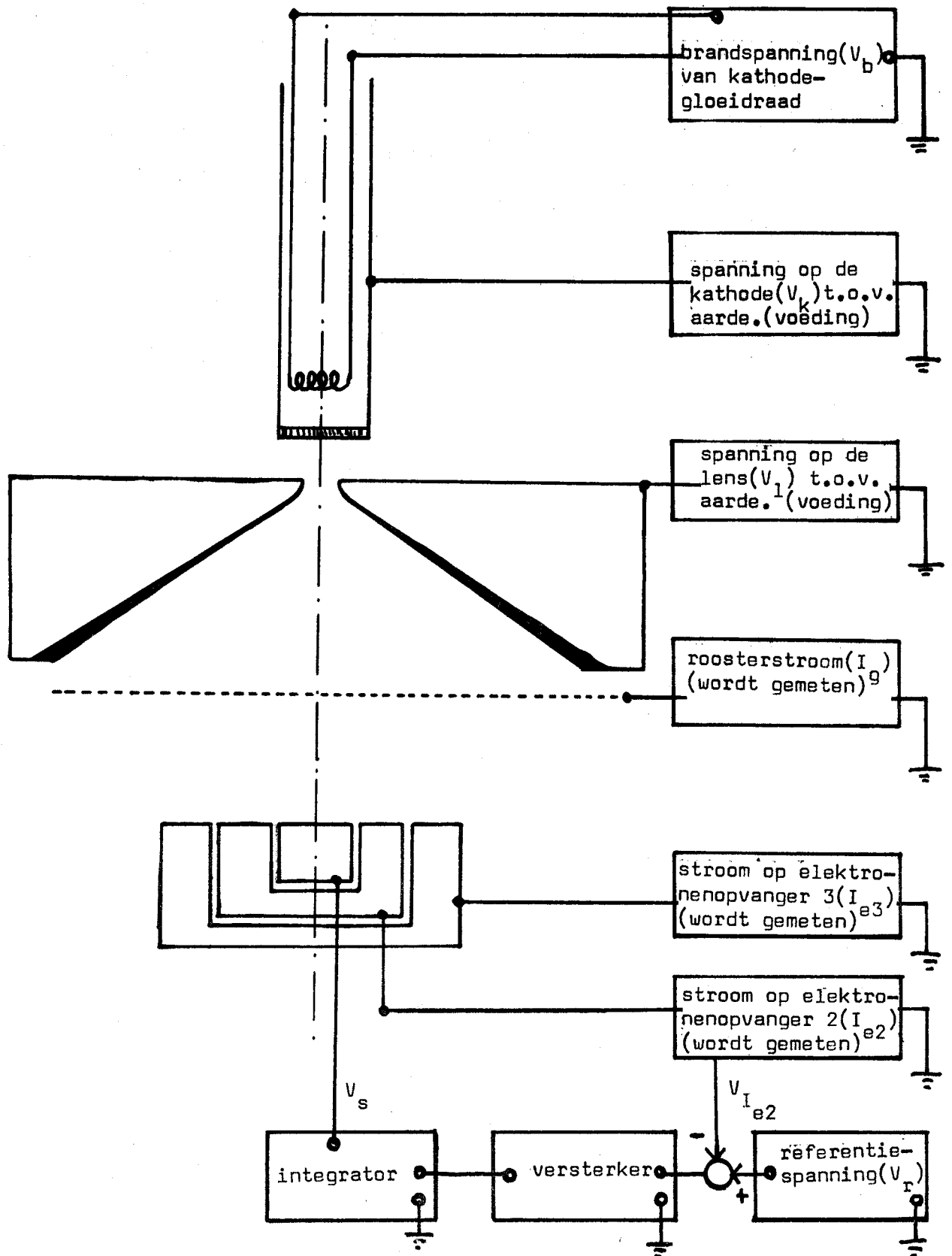


fig. 11

schema van een opladingsmeting met feedback-regeling.

## 5. Discussie.

De in dit verslag behandelde experimenten en hun uitwerking worden in een eerste ronde opgesomd, terwijl een tweede ronde gebruikt wordt om de eerste ronde uit te werken.

### eerste ronde;

Als uitgangspunt van het opladingsonderzoek kan R. I. Stewart (literatuur (8)) worden genoemd. Het opladingsonderzoek is voortgezet d.m.v. metingen aan metaaloppervlakken in vacuüm. Deze metaaloppervlakken worden dan met behulp van elektronenstralen opgeladen, om vervolgens de oplading te meten. Een van deze onderzoeken is uitgevoerd door R. Dobrozemsky en F. Haltau. (literatuur (1)) Bij dit onderzoek heb ik stage gelopen, zoals in de inleiding reeds vermeld is.

De volgende punten zijn van belang voor de discussie;

1. de ontladingskurven van Dobrozemsky. (VOM-structuur, fig. 2)
2. de ontladingskurven van een MOM-structuur. (paragraaf 3.3.2.)
3. I-V-karakteristieken en vector-impedantiemetingen. (par. 3.2. en 3.4.)
4. het model van de oplading in VOM-structuur. (app. B)
5. het begin van een vakuümonpladingsinstelling. (hoofdstuk 4 en app. A)

De punten 1 en 2 geven beide ontladingskurven te zien, welke met elkaar worden vergeleken. De resultaten van de metingen worden gebruikt voor de interpretatie van de ontladingskurven van een VOM-structuur.

De verschijnselen zijn in te delen naar;

1. a. vrije lading in het oxidelaagje. (bv. met onderscheid tussen bulk-  
b. otrante lading in het oxidelaagje. en overgangslading)
2. geleidingsmechanismen in het oxidelaagje, uitgaande van de I-V-karakteristieken en de vector-impedantiemetingen.

### tweede ronde;

Ontladingskurven gemeten met ontladingsweerstand  $100 \text{ M}\Omega$  en oxidelaandikte  $10 \mu\text{m}$  hebben in gebied II een ontladingstijdconstante ( $\tau$ ) van circa 60 sec. (tab. 4, blz. 22 en grafiek 6)

De ontladingskurven gemeten door Dobrozemsky hebben dezelfde gedaante als de ontladingskurven in paragraaf 3.3.2.. Bij Dobrozemsky is de oxidelaandikte  $20 \text{ \AA}$  (5000x kleiner) en is de ontladingstijdconstante ( $\tau$ ) in gebied II circa 400x groter, namelijk circa 7 uur. (in beide gevallen  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -laagjes)



Het blijkt, in dit geval, dat de verhouding van de  $\tau$ 's ongeveer omgekeerd evenredig is met die laagdiktes waaraan gemeten is in MOM- en VOM-structuur. En omdat de capaciteit van een condensator omgekeerd evenredig is met de plaatafstand rijst het vermoeden, dat hier sprake kan zijn van een min of meer vaste weerstand, die het oxidelaagje vertegenwoordigt en een capaciteit, die gevormd wordt door de oxideoppervlakken.

Overwegingen en aannamen die hierbij een rol spelen zijn;

1. met behulp van de metingen van tabel 4 is het aannemelijk te maken dat de weerstand die de elektronen "zien" groter is dan  $10^8 \Omega$ . de aanname is dat een dergelijke weerstand ook bij metingen van Dobrozemsky een rol heeft gespeeld.
2. de eigen metingen (laagdikte  $10^{-5}$  m) geven bij  $10^8 \Omega$  een  $\tau$  van circa 60 sec, dit komt overeen met een capaciteit per oppervlakte-eenheid van  $C^* \approx 10^{-7} \text{ F/cm}^2$ , de gemeten en ook berekende waarde van  $C^* \approx 10^{-9} \text{ F/cm}^2$ . De metingen van Dobrozemsky geven met de aanname uit punt 1 en is 7 uur een waarde van  $C^* \approx 1,2 \cdot 10^{-4} \text{ F/cm}^2$ , terwijl berekeningen hier  $C^* \approx 5 \cdot 10^{-6} \text{ F/cm}^2$  oplevert.
3. niet voor deze gedachtengang pleit het feit dat bij een dikte van het  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -laagje van  $10^{-6}$  m de  $\tau$  ongeveer 100 sec bedraagt.
4. bij de aanname in punt 1 is er van uitgegaan dat een OM-overgang een van hetzelfde soort is als een OV-overgang. (beide elektrodes voor de condensatorplaten zijn hier  $2 \text{ cm}^2$  genomen)

Uit de experimenten volgt niet dat er met zekerheid gesteld kan worden dat er sprake is van een konstante weerstand bij een overgang van het  $\text{Al}_2\text{O}_3$  naar metaal of vacuüm. Ook een verband waarbij de capaciteit van het  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -laagje omgekeerd evenredig met de laagdikte verloopt (voor de grote eventueel aanwezige capaciteiten) is niet met zekerheid vastgesteld. De resultaten van MOM- en VOM-metingen zouden beter in overeenstemming zijn (met elkaar) als in beide gevallen de mogelijkheid bestaat dat eventueel getrapte elektronen een weerstand van circa  $10^{10} \Omega$  zouden "zien".

-Uit de MOM-structuur-ontladingsmetingen is af te leiden hoeveel lading er is opgehoopt in het oxide tijdens de oplading. In tabel 2 is te zien dat er in een oxidelaagje met een oppervlakte van  $4 \text{ cm}^2$   $1,6 \cdot 10^{-5} \text{ C}$  lading zit. (d.w.z.  $4 \cdot 10^{-6} \text{ C/cm}^2$ ). Wanneer deze lading homogeen over het oxidelaagje verdeeld zou zijn zou dit een oplading van circa 1500 volt met zich meebrengen. Er wordt hier echter maar 30 volt opladingsspanning gebruikt. Mogelijke verklaringen waar al deze lading kan zitten zijn :

1. de lading zit niet allen op het oxide-oppervlak, dat bedekt is met de elektrode maar op het hele oxideoppervlak van het Al-plaatje.
2. de gemeten lading zit in een zeer dun laagje van de oxidelaag, namelijk in de  $100 \text{ \AA}$  oxidelaag die aan het metaal grenst.

(deze beide uitspraken komen er op neer dat er in feite aan een veel grotere capaciteit gemeten wordt dan waavan sprake is. dus ook hier , net zoals bij het vergelijken van de ontladingskurven, zou een grotere capaciteit uitkomst brengen. hoe het mogelijk is dat een capaciteit van  $1,2 \cdot 10^{-4} \text{ F/cm}^2$  bestaat is niet helemaal duidelijk. een platenafstand van  $5 \cdot 10^{-12} \text{ m}$  is zeer onwaarschijnlijk, evenals een epsilon in orde van grootte van  $10^3$ .)

Punt 1 blijkt niet in strijd te zijn met de experimenten ( zie grafiek 14 ) er blijken inderdaad stromen in de langsrichting door het oxide te kunnen lopen, maar of deze stromen dat in die mate doen, zodat er veel grotere capaciteiten worden gemeten is nog niet uit de experimenten gebleken.

-De kurven van grafiek 7 vertonen een enorme spreiding; dergelijke kurven konden in de opstelling van Dobrozemsky niet gemeten worden vanwege het feit dat er altijd enige tijd verstreek tussen de beschieting met elektronen op het oxidelaagje en het meten van de oplading van dat laagje. Of dergelijke kurven als in grafiek 7 voor dunne oxidelaagjes gevonden worden is nog een open vraag. De enorme spreiding van de kurven in grafiek 7 zou best een gevolg van de laagdikte kunnen zijn. ( dunne laagjes van  $20 \text{ \AA}$  zijn niet gemeten in MOM-structuur, terwijl dikkere laagjes van  $10^{-5} \text{ m}$  niet zijn gemeten in VOM-structuur ).

- Wanneer de eigen I - V -karakteristieken vergeleken worden met de opaadstromen die in de VOM-structuur nodig zijn om een zekere oplading te verkrijgen, dan blijkt dat die voor metingen resultaten geven die liggen in de orde van grootte van deze I - V -karakteristieken. Hierbij moet wel bedacht worden dat de VOM-opladingen bij spanningen beneden de 10 volt hebben plaats gevonden, terwijl de I - V -karakteristieken pas boven de 30 volt een redelijk vast verloop hebben. De verklaring voor bovenstaand verschijnsel kan zijn : de dunnere laagjes ontladen zich globaal genomen veel langzamer, zodat een veel kleinere stroom nodig is om een oplaadingsdichtheid te verkrijgen die nodig is voor een oplading van dezelfde orde van grootte als bij de eigen I-V-metingen. Het gevolg hiervan is dat de opladingen in VOM-structuur langer duren dan in de MOM-structuur.
- Bij de vektor-impedantiemetingen leek het er bij de metingen van verschillende elektrodeoppervlakken op dat er sprake kon zijn van stromen die over de oppervlakte van het oxidelaagje lopen. ( aan de kant van de gouden elektrode ). Indien dit werkelijk het geval is dan zouden deze bij de opladingen in vacuüm een enorme rol kunnen spelen. Punten op de oppervlakte van het oxidelaagje die zich opgeladen hebben zouden zich dan via de oppervlakte naar punten met een lage oplading kunnen ontladen. In verband met dergelijke verschijnselen kunnen mogelijke verfijningen aangebracht worden in het oplaadingsmodel.
- De vektor-impedantiemetingen resulterend in grafiek 17 (  $\log I - 1/T$  ) kunnen informatie geven over de trapdiepte waarbij ohmse geleiding wordt aangenomen. Ook is te zien dat tunnelen bij  $77^{\circ}K$  niet uitgesloten is. (hopping) De punten in grafiek 17 zijn niet met elkaar verbonden omdat er nog de nodige vraagtekens zijn bij de meeste van deze punten, zoals; 1. is er wel sprake van ohmse geleiding, indien niet hoe groot is dan de gemaakte fout. 2. er moet nog gecorrigeerd worden voor de temperatuurafhankelijkheid van de  $Z_{im}$ 's . 3. in hoeverre zijn de extrapolaties in grafiek 15 verantwoord. (deze hingen hoofdzakelijk af van de meetnauwkeurigheid van de vektor-impedantiemeter bij de hoge frequenties ( $10^6$  rad/sec))
- Een volgend punt is het opladen van de wanden in een vacuümopstelling en de afwijkingen van de elektronenstralen door deze opladingen. Als voorbeeld kan de elektronenstraal genomen worden die uit de elektronenlens komen van hoofdstuk 4 (fig.10, schaal 5:1) Formule (A3) laat zien dat elektronen met een energie van 4 eV na 12 mm al een afwijking van hun baan kunnen hebben van 1,2 mm wanneer het aardmag-

neetveld zodanig t.o.v. de elektronenstraal gericht is dat deze zijn maximale afwijking geeft. (de 12 mm is de afstand van het begin van de elektronenlens tot de elektronenopvangsers)

De afbuiging die bij een elektronen energie van 2,5 eV ontstaat doordat de drie elektronenopvangsers verschillende potentialen hebben, is bij een potentiaal verschil van één volt volgens formule (A1) ongeveer 0,3 mm. Uit grafiek 19 is te zien dat inderdaad afbuigingen van deze orde van grootte optreden.

- Appendix B wijst op de grootheden, die gemeten kunnen worden bij opladingen in vacuum. De gereflekteerde elektronen kunnen hier wellicht informatie geven omtrent het niet of wel opnemen van elektronen door het oxide. Worden namelijk niet alle elektronen met een bepaalde energie opgenomen, dan moet dit op den duur merkbaar zijn in de orde van grootte van de oplading. (metingen bij de opladingsopstelling van Dobrozemsky konden dit verschijnsel niet meenemen en hadden bovendien een grote spreiding in energie van de opladingselektronen.)
- Tenslotte volgen hier nog enkele suggesties voor verdere metingen aan MOM-structuren;
  - 1. Ontladingskurven met als parameter de oplaadtijd en de elektrodeoppervlakte kunnen uitkomst brengen hoeveel de lading van de oplading in een oppervlakte-eenheid oxidelaag is. (analoog als voor grafiek 14 kunnen eventueel correcties aangebracht worden)
  - 2. Ontladingskurven zoals in grafiek 11 en de laagdikte als parameter erbij genomen kunnen meer inzicht geven over de opladingsverandering.
  - 3. Capaciteitsmetingen bij kleine oppervlakken ( $1-5 \text{ mm}^2$ ) en de laagdikte als parameter kunnen uitkomst brengen of de correctie van grafiek 14 laagdikte-afhankelijk is.
  - 4. Bij het meten van opladingen in de VOM-structuur moet ook aan dikkere  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -laagjes dan voorheen gemeten worden. (in de literatuur is in VOM-structuur aan  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -laagjes van 20-1000 Å gemeten, terwijl in MOM-structuur alleen aan laagjes van 4-40  $\mu\text{m}$ , bij dit onderzoek, gemeten kon worden)
  - 5. In plaats van  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -laagjes kan ook aan andere oxiden gemeten worden, indien er een mooie oxidelaag aan te brengen in sandwich-vorm voor MOM-metingen en op een metaal voor VOM-metingen. (opdampen van oxidelaagjes zou hiertoe een mogelijkheid zijn)

7. Appendices.A. Baanafwijkingen van geladen deeltjes (in vacuüm) ten gevolge van elektrostatiche opladingen.

Wordt een geladen deeltje in een vacuümruimte geschoten, dan is zijn baan rechtlijnig en zijn energie konstant, indien er geen krachten op dit deeltje werken. Daar dit een niet realiseerbare eis is, wordt nu berekend hoe groot de afbuiging is van een geladen deeltje, dat zich voortbeweegt in een elektrisch veld, dat mogelijk het gevolg is van een elektrostatiche oplading. Ter vergelijking zal ook de afbuiging in het aardmagneetveld worden berekend.

-Daar er naar de afbuiging gekeken wordt kan in eerste benadering voor kleine elektrische stoorvelden ( $E_s$ ) de volgende relatie afgeleid worden;

$$\frac{l_{se}}{L} = \frac{E_{s\perp} \cdot L}{4 \cdot V_d} \text{ ----- (1)}$$

waarin;  $l_{se}$  = de afbuigafstand nadat het deeltje L meter van zijn baan heeft afgelegd.

$E_{s\perp}$  = de komponent van  $E_s$  loodrecht op de baanrichting.

$V_d$  = de versnellingspanning van het deeltje.

-Voor magnetische stoorvelden ( $B_s$ ) geldt de volgende relatie;

$$\frac{l_{sm}}{L} \approx \frac{B_{s\perp} \cdot L}{(2 \cdot m \cdot V_d / q)^{1/2}} \approx \frac{6 \cdot 10^5 \cdot B_{s\perp} \cdot L}{V_d^{1/2}} \text{ ---- (2)}$$

waarin;  $l_{sm}$  = de afbuigafstand nadat het deeltje L meter van zijn baan heeft afgelegd.

$m$  = massa van het deeltje. (voor elektron ingevuld)

$q$  = lading van het deeltje. (voor elektroen ingevuld)

$B_{s\perp}$  = de komponent van  $B_s$  loodrecht op de baanrichting genomen.

Als voor  $B_{s\perp}$  het aardmagneetveld wordt genomen, ( $B_s = 4,6 \cdot 10^{-5} \text{ Vs/m}^2$ ) dan wordt de relatie; (voor elektronen)

$$\frac{l_{sm}}{L} \approx \frac{18 \cdot L}{V_d^{1/2}} \text{ ----- (3)}$$

(3) wil zeggen dat in dit geval elektronen met een energie van 1 eV na 6 mm al een afwijking van ongeveer 0,6 mm hebben. (10%)  
 -Tenslotte kan nog de verhouding van de verstoringen door het magnetische en het elektrische veld in formulevorm worden weergegeven;

$$\frac{l_{se}}{l_{sm}} \approx \frac{E_{s\perp} \cdot (2 \cdot m/q)^{\frac{1}{2}}}{4 \cdot B_{s\perp} \cdot V_d^{\frac{1}{2}}} \approx \frac{E_{s\perp}}{2,4 \cdot 10^6 \cdot B_{s\perp} \cdot V_d^{\frac{1}{2}}} \quad (4)$$

Voor  $B_{s\perp}$  is het aardmagneetveld geeft formule (4)  $E_{s\perp} \approx 1,1 \cdot 10^2 \cdot V_d^{\frac{1}{2}}$  voor elektronen evengrote afwijkingen t.g.v.  $E_{s\perp}$  als van  $B_{s\perp}$ .  
 Voor ionen kunnen de relaties (1), (2), (3) en (4) ook ingevuld worden.

#### B. Model van een oplading in VOM-structuur.

Een metaalwand met een oxidelaagje erop, die in vacuüm met elektronen beschoten wordt, kan zich opladen. (zie fig. 2)

In deze paragraaf volgt de opbouw van een model dat de oplading van het laagje beschrijft. De berekeningen in het model worden in drie stadia uitgevoerd waarna in een vierde stadium het model wordt verfijnd. We kunnen dus de volgende stadia onderscheiden:

1. de stationaire toestand
2. de ontlading
3. de oplading
4. mogelijke verfijning van het model

1. In een stationaire toestand gelden voor het oxidelaagje de volgende relaties:

$$N_r = f \cdot N_i \cdot n_o + a \cdot n_o \quad (5)$$

$$N_d = c \cdot N_i + b \cdot n_o \quad (6)$$

$$N_i = N_d + N_r \quad (7)$$

waarbij : a = de kans per seconde dat een elektron dat zich getrapd of vrij in het oxide bevindt naar het vacuüm gaat. (1/sec)

b = de kans per seconde dat een elektron dat zich getrapd of vrij in het oxide bevindt naar het metaal gaat. (1/sec)

$c$  = de kans dat een invallend elektron door het oxide-laagje gaat.

$f \cdot n_o$  = de kans dat een invallend elektron wordt gereflek-teerd.

Uit (5), (6) en (7) volgt:

$$n_o = \frac{(1 - c) \cdot N_i}{a + b + f \cdot N_i} \text{ ----- (8)}$$

Waaruit voor  $N_i \rightarrow \infty$  volgt dat:

$$n_o = \frac{1 - c}{f} \text{ ----- (9)}$$

Vgl. (9) laat zien dat dan bij kleine  $f$  (weinig reflectie) en kleine  $c$  (kleine doorlaatkans) van de elektronen een grote oplading plaats heeft.

2. Bij ontlading geldt de relatie:

$$\frac{dn_o(t)}{dt} = -(a + b) \cdot n_o(t) \text{ ----- (10)}$$

Waaruit volgt dat:

$$n_o(t) = n_o(0) \cdot \exp(-(a + b) \cdot t) \text{ ----- (11)}$$

Waarin  $n_o(0)$  de lading is die ten tijde  $t=0$  in het laagje zit, bijv.  $n_o$  uit (8) of (9). Een ontlading zal des te sneller verlopen naarmate  $a$  en/of  $b$  groter zijn.

3. De oplading voldoet aan de relatie:

$$\frac{dn_o(t)}{dt} = (N_i - N_d - N_r) \text{ ----- (12)}$$

Uit (12) volgt met (5) en (6)

$$n_o(t) = \frac{(1 - c) \cdot N_i}{a + b + f \cdot N_i} \cdot (1 - \exp(-(a + b + f \cdot N_i) \cdot t)) \text{ ----- (13)}$$

Met voorwaarde dat op  $t=0$  de oplading  $n_o(0)$  en  $N_i$  is konstant.

Relatie (13) wordt voor  $t \rightarrow \infty$  relatie (8) of (9), m.a.w. bij een oplading met bovengenoemde voorwaarden ontstaat voor  $t \rightarrow \infty$  een stationaire toestand.

4. Mogelijke verfijning van het model. Het model kan verfijnd worden door in het oxidelaagje onderscheid te maken tussen bulk-effecten, metaal-metaaloxide-overgang-effecten en vacuüm-metaal-oxide-overgang effecten enerzijds en tussen vrije en gebonden lading anderzijds.



8. Literatuur.

- (1) R. Dobrozemsky & E. Haultau.  
Electrical surface charges on metals.  
Nederlands tijdschrift voor vakuumtechniek 8 (1970) 133-138
- (2) Walter C. Johnson.  
Electronic transport in insulating films.  
I.E.E.E. Transactions on nuclear science 19( juni 1972) 33-40
- (3) R.M. Hill.  
Single carrier transport in thin dielectric films.  
Thin solid films 1(1967) 39-68
- (4) prof.ir.O. Rademaker  
Kollege diktaat Dynamische systemen 1970
- (5) P. N. Murgatroyd.  
Theorie of space-charge-limited currents with large drift velocities.  
Physica status solidi(a)8(1972) 259-265
- (6) F.E.E.A. van de Laarschot.  
Afstudeerverslag 1974
- (7) R.H. Tredgold.  
Space charge conduction in solids.  
Elsevier, Amsterdam 1966.
- (8) R. Lariviere Stewart.  
Insulating films formed under elektron and ion bombardment.  
Physical Review 45(1934) 488-490
- (9) S.M. Sze.  
Physics of semiconductor devices.  
John Wiley and Sons, New York 1969
- (10) Landolt-Börnstein, 6. Aufl., Bd. II/6.  
Dielektrische Eigenschaften 541-542

## 6. Konklusie.

I-V-karakteristieken geven enig inzicht omtrent de ruimteladingsbegrensde stroom bij spanningen tussen de 30 en 500 volt over het oxidelaagje. Trapping speelt hierbij een belangrijke rol en neemt zeker een deel van de oplading voor zijn rekening. (literatuur (3) en (7))

Ontladingskurven. Hieruit is de hoeveelheid lading, die in het oxidelaagje heeft gezeten, af te leiden. Deze hoeveelheid lading kan eigenlijk niet in de condensator, die aangenomen wordt als vervanger van de MOM-sandwich, opgeslagen zijn.

Capaciteitsmetingen, geven duidelijkheid omtrent stromen in de langsrichting van de oxidelaan.

Log I- 1/T- grafiek. Deze zegt iets over het geleidingsmechanisme; bij lage temperaturen kan hopping aangenomen worden.

Vakuumpstelling. De simulatieopladings hebben aangetoond dat oploadingen te meten zijn met de in hoofdstuk 4 beschreven opstelling.