



**HAL**  
open science

# Etude des phénomènes d'injection et de stockage de charges électriques dans des couches minces de $\text{SiO}_x\text{N}_y$ par microscopie à sonde de Kelvin (KPFM)

Florian Mortreuil, Christina Villeneuve-Faure, Laurent Boudou, Kremena Makasheva, G. Teyssedre

## ► To cite this version:

Florian Mortreuil, Christina Villeneuve-Faure, Laurent Boudou, Kremena Makasheva, G. Teyssedre. Etude des phénomènes d'injection et de stockage de charges électriques dans des couches minces de  $\text{SiO}_x\text{N}_y$  par microscopie à sonde de Kelvin (KPFM). 9e Conférence Société Française d'Electrostatique (SFE), Toulouse, France, 27-29 Aout 2014, Aug 2014, Toulouse, France. pp. 134-139. hal-03034509

**HAL Id: hal-03034509**

**<https://hal.science/hal-03034509>**

Submitted on 1 Dec 2020

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

## Etude des phénomènes d'injection et de stockage de charges électriques dans des couches minces de SiO<sub>x</sub>N<sub>y</sub> par microscopie à sonde de Kelvin (KPFM)

F. Mortreuil<sup>1\*</sup>, C. Villeneuve-Faure<sup>1</sup>, L. Boudou<sup>1</sup>, K. Makasheva<sup>1,2</sup>, G. Teysseire<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup>Laboratoire Plasma et Conversion d'Energie – LAPLACE  
Bât. 3R3, 118 route de Narbonne, 31062 Toulouse Cedex, France

<sup>2</sup>CNRS ; laplace ; F-31062 Toulouse, France

\* E-mail : mortreuil@laplace.univ-tlse.fr

**Abstract:** L'évolution des charges injectées, en surface ou à proximité, au cours du temps peut être caractérisée par l'observation des variations du potentiel de surface résultant. Des mesures à l'échelle locale sont possibles grâce à la microscopie à sonde de Kelvin (KPFM). Dans ce papier, nous nous proposons d'étudier l'influence des conditions d'injection et de l'épaisseur de la couche isolante sur l'évolution au cours du temps des charges électriques. Deux comportements distincts seront mis en évidence par les mesures KPFM ainsi que la mesure du courant électrique traversant la couche de SiO<sub>x</sub>N<sub>y</sub> lors de l'injection.

### I. INTRODUCTION GENERALE

L'injection et le stockage de charges électriques dans des films minces diélectriques sont des phénomènes très étudiés, notamment dans le domaine de la microélectronique. Les échelles sub-micrométriques auxquelles ont lieu ces phénomènes ne peuvent pas être atteintes avec les techniques classiques de mesure de charge d'espace telles que la PEA (Pulsed Electro Acoustic) [1] ou la FLIMM (Focused Laser Intensity Modulation Method) [2]. Toutefois l'échelle locale est accessible grâce aux techniques de la microscopie en champ proche, notamment au travers de plusieurs approches fonctionnelles permettant d'étudier les propriétés électroniques des matériaux : la mesure du potentiel de surface par la microscopie à force électrostatique (EFM) [3-4] ou à sonde de Kelvin (KPFM) [5], ou bien la mesure du courant traversant l'échantillon (Conductive – Atomic Force Microscopy C-AFM) [6]. L'ensemble de ces techniques permettent la mesure, faiblement intrusive, des propriétés électriques avec une résolution de l'ordre de la dizaine de nanomètres.

Dans ce papier nous présentons une étude par KPFM de l'injection de charges et de leur évolution spatiale et temporelle après injection (mécanisme de décharge) dans des couches amorphes d'oxynitride de silicium (a-SiO<sub>x</sub>N<sub>y</sub>:H, x < 2, y < 1) déposée par procédé plasma, pour différentes épaisseurs comprises entre 6 et 130nm. Pour mieux comprendre les phénomènes en jeu, les résultats KPFM ont été complétés par des mesures de courant lors de l'injection par la pointe AFM.

### II. LA MICROSCOPIE A SONDE DE KELVIN (KPFM)

La microscopie à champ proche est une technologie récente et développée par G.Binnig et H.Rohrer [7]. Après la conception d'un microscope à effet tunnel (STM) en 1981 [7], il faut attendre 5 ans pour que la microscopie à force atomique (AFM) voit le jour. Par la suite, un grand nombre de techniques dérivées apparaissent permettant de caractériser les différentes propriétés électriques, mécaniques ou thermiques d'une surface à l'échelle locale.

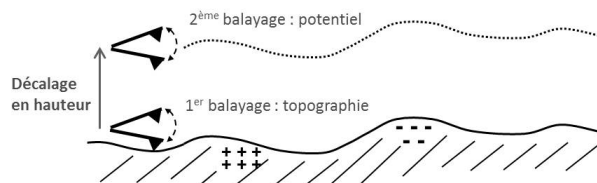


Figure 1 : schéma de fonctionnement du KPFM.

L'AFM est une technique de caractérisation locale qui sonde la surface à l'aide d'une pointe de dimension nanométrique. Les forces exercées par la surface sur la pointe se regroupent en deux catégories : les forces à longue distance (force électrostatique ou magnétique) et les forces à courte distance (Van der Waals, capillarité, adhésion moléculaire...). Pour la mesure par KPFM, seule la force électrostatique doit être sondée. Pour cela la méthode de mesure consiste en un premier balayage à la surface de l'échantillon permettant d'obtenir sa topographie, suivi d'un second balayage à distance pointe-surface constante (entre le nanomètre et plusieurs centaines de nanomètres) permettant de mesurer le potentiel de surface par l'intermédiaire de la force électrostatique (Fig.1).

En effet, lors du deuxième balayage, une tension sinusoïdale  $V_{tip}$  est appliquée sur le bras de levier, il en résulte une force électrostatique qui peut être exprimée sous la forme [8]:

$$F_c = \frac{1}{2} \int_A \frac{dC'}{dz} (V_{tip} - V)^2 dS \quad (1)$$

avec:

$$V_{tip} = V_{dc} + V_{ac} \sin(\omega t) \quad (2)$$

où  $V$  représente le potentiel de surface,  $V_{ac}$  la tension

d'excitation du bras de levier et  $\omega$  la pulsation. La composante de cette force à la fréquence d'excitation, peut être annulée en égalant le potentiel de surface  $V$  et la tension continue appliquée  $V_{dc}$ . C'est ainsi que le potentiel de surface est déterminé. La résolution latérale de cette technique est liée au rayon de courbure de la pointe (typiquement de 20 à 30nm pour des pointes en Silicium avec un revêtement en Platine/Iridium), ainsi qu'à la distance pointe/surface du fait des capacités parasites [9].

### III. METHODOLOGIE EXPERIMENTALE

Dans cette étude, nous nous sommes intéressés à l'impact de l'épaisseur de la couche sur les mécanismes de dissipation des charges électriques. Pour cela nous avons choisi comme matériau des couches minces de  $SiO_xN_y$ , élaborées par procédé plasma, avec des propriétés proche aux celles de la silice ( $SiO_2$ ). Les couches de  $SiO_xN_y$  ont été déposées par Pulsed Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition (PPECVD), dans une décharge radiofréquence (RF) capacitive ( $f = 13,56$  MHz). Le signal RF est modulé par des pulses d'une durée de 100ms, avec un rapport cyclique de 0,25. La pression totale du gaz est de 500mTorr (mélange d'hélium et des gaz précurseurs :  $SiH_4$  et  $N_2O$ ). Les propriétés structurales et électriques des couches  $SiO_{1,92}N_{0,08}$ , utilisées dans ce travail, sont connues et maîtrisées [10] et les valeurs obtenues sont : 3,9 de permittivité diélectrique et  $2,2 \times 10^{15} \Omega.m$  de résistivité électrique. Ce matériau a été choisi pour son temps de rétention de charge important qui permet une bonne reproductibilité des mesures.

Différentes épaisseurs des couches  $SiO_{1,92}N_{0,08}$  ont été déposées (6, 11, 16, 31, 50, 68 et 130nm). Chaque couche de  $SiO_{1,92}N_{0,08}$  a été réalisée sur un substrat différent. Les substrats de Si ont été recuits à 1100°C pendant 3 heures sous atmosphère faiblement oxydante ( $N_2 + 1\% O_2$ ) pour faire croître une couche de silice thermique de  $50 \pm 1$ nm d'épaisseur. Une couche de titane de 20nm d'épaisseur a été déposée pour servir de couche d'accroche entre la silice thermique et l'électrode en or de 80nm d'épaisseur (Fig.2 et Fig.3). Les dimensions latérales des électrodes sont de  $0,4cm \times 0,4cm$ .

Les mesures AFM ont été réalisées sur un microscope Multimode 8 de Bruker en utilisant des pointes en Silicium avec un revêtement en Platine/Iridium.

L'injection de charges est réalisée en maintenant la pointe en contact avec l'échantillon, puis en appliquant une tension comprise entre 5V et 15V sur la pointe pendant un temps donné, la face arrière étant maintenue à la masse (Fig.2). Pour s'affranchir des propriétés électriques de la couche d'eau en surface, l'échantillon est maintenu à 140°C pendant 3min puis placé sous atmosphère d'azote pour réaliser les mesures.

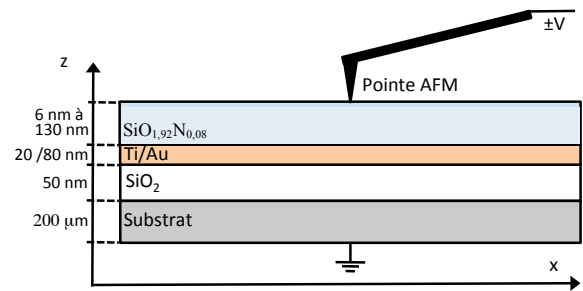


Figure 2 : Configuration 1 utilisée lors de l'injection de charge dans le film mince de  $SiO_{1,92}N_{0,08}$ .

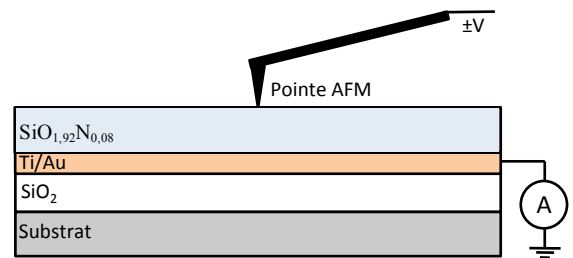


Figure 3 : Configuration 2 utilisée lors de la mesure de courant.

Le courant traversant la couche  $SiO_{1,92}N_{0,08}$  lors du chargement de l'isolant est mesuré à l'aide d'un KEITHLEY 6517B©, relié à l'électrode d'or (Fig.3), qui se trouve ainsi à un potentiel quasi nul. Comme précédemment, la pointe est maintenue en contact avec la surface et une tension est appliquée. La procédure suivie consiste à mesurer le courant lors d'une montée en tension de 0V à 4,5V, par palier de 0,5V, chacun durant 30s.

### IV. RESULTATS EXPERIMENTAUX ET DISCUSSION

La Fig.4 représente une mesure du potentiel mesuré par KPFM suivant l'axe  $x$ , après injection ponctuelle sur une surface homogène. La modification du potentiel initial de la surface traduit une surabondance de charges électriques dans la zone sondée. Sur la Fig.4 le pic de potentiel de forme quasi-gaussien est défini par sa largeur à mi-hauteur (FWHM), son maximum (MAX) et son aire (intégrale sous la courbe de potentiel). La ligne de base correspond à la différence de travail de sortie entre la pointe et la surface de l'échantillon. Elle nous servira donc de référence et sera mise à zéro pour le traitement des données. Les trois autres paramètres apportent des informations sur la charge injectée. La comparaison de leurs évolutions au cours du temps donne des éléments pour la compréhension des comportements liés au transport de charges. Deux mécanismes de dispersion de charge électrique peuvent être différenciés. Un mécanisme en volume, pour lequel la charge s'évacue dans la profondeur  $z$  de la couche, se traduisant par la diminution conjointe du maximum et de l'aire [11]. Dans le cas d'une dispersion en surface, pour lequel la charge s'étale, on observe la diminution

du maximum et l'augmentation de la largeur à mi-hauteur, l'aire restant constante.

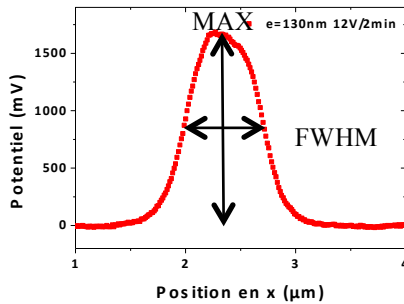


Figure 4 : Profil de potentiel obtenu lors de la mesure KPFM au-dessus de la charge injectée.

De plus l'injection de charge présente une erreur relative de 10% sur l'aire du spot de charges après injection.

#### a. Evolution de la charge en fonction de l'épaisseur de la couche étudiée

Dans cette étude, nous nous sommes intéressés à l'influence de l'épaisseur de la couche isolante dans laquelle sont piégées les charges ainsi qu'à la présence du plan d'or sous-jacent.

La Fig.5 représente l'évolution du maximum de potentiel et de l'aire sous le pic en fonction de la durée d'injection pour trois épaisseurs différentes. Dans le cas de la couche de  $\text{SiO}_{1,92}\text{N}_{0,08}$  de 11nm, l'aire n'augmente que très faiblement alors que le maximum reste stable. De plus, l'étalement de la charge augmente faiblement, ce qui se traduit par une augmentation faible de la FWHM. Pour une couche de 31nm de  $\text{SiO}_{1,92}\text{N}_{0,08}$ , deux comportements sont observés. Tout d'abord (temps inférieur à 7min) on observe une augmentation conjointe du maximum et de l'aire, suivi d'une saturation. Pour la couche la plus épaisse (130nm), seul le régime de croissance est visible. Le régime de saturation n'est pas atteint même après 10mn d'injection.

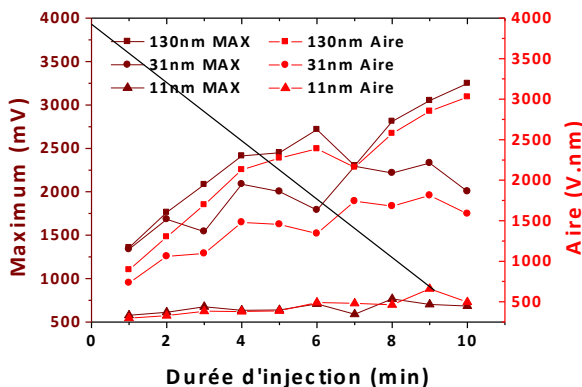


Figure 5 : Evolution du maximum et de l'aire en fonction de la durée d'injection (potentiel appliqué de 12V).

Le phénomène de saturation peut s'expliquer par un aspect géométrique. L'épaisseur de la couche diminuant, le nombre de pièges accessibles sous la pointe s'amointrit. Une fois que ces pièges sont remplis, la couche ne peut plus stocker de charges. Cela pourrait expliquer que le phénomène de saturation se produit d'autant plus rapidement que la couche est fine.

La comparaison des caractéristiques de spot de potentiel, dans les mêmes conditions d'injection (12V pendant 2min), et pour différentes épaisseurs de couche nous confirme un changement de comportement lors de l'injection pour les faibles épaisseurs (Fig.6). Pour une épaisseur supérieure à 16nm, on constate que l'aire sous le pic et la largeur à mi-hauteur sont très peu influencées par l'épaisseur de la couche. En revanche, pour un film de  $\text{SiO}_{1,92}\text{N}_{0,08}$  de 11nm l'aire est plus faible que celle mesurée pour des épaisseurs supérieures d'un facteur 3. Cette tendance s'accroît lorsque l'épaisseur diminue. En effet, une aire de 149V.nm est mesurée pour une épaisseur de 6nm de  $\text{SiO}_{1,92}\text{N}_{0,08}$ , alors qu'on relève 259V.nm pour 11nm et 720V.nm pour 16nm.

De plus, des mesures de potentiel après injection à champ électrique constant [12] montrent une augmentation linéaire du potentiel, avec l'épaisseur de la couche.

Ces résultats renforcent l'hypothèse selon laquelle les pièges disponibles sont tous occupés pour les faibles épaisseurs (<11nm), et que le nombre de pièges accessibles augmente avec l'épaisseur de la couche de  $\text{SiO}_{1,92}\text{N}_{0,08}$ , ce qui explique une saturation de plus en plus tardive du potentiel et de l'aire quand l'épaisseur augmente.

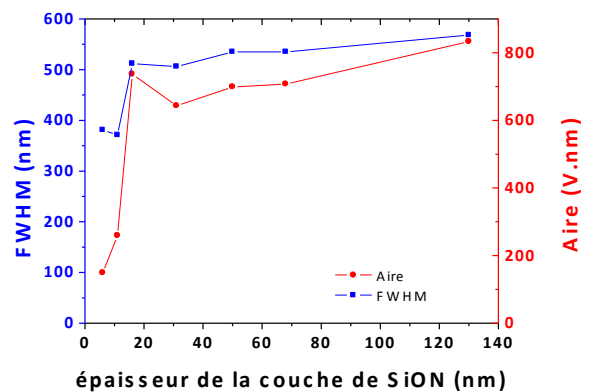


Figure 6 : Evolution de l'aire et de la FWHM du profil de potentiel en fonction de l'épaisseur de la couche de  $\text{SiO}_{1,92}\text{N}_{0,08}$  (tension d'injection de 12V appliquée pendant 2min).

#### b. Comportement lors de la décroissance

Un autre point important, dans l'étude de l'impact de l'épaisseur de la couche, est de vérifier son influence sur la dispersion temporelle de charge. Nous avons suivi l'évolution du profil de potentiel au cours du temps pour différentes épaisseurs comme le montre les Fig.7.a et Fig.7.b

On constate que le potentiel de la ligne de base décroît dans le cas de la couche de 11nm (a) alors qu'il reste stable dans le cas de la couche de 130nm (b). Pour mieux voir ce phénomène, l'évolution au cours du temps du potentiel de référence (ligne de base) a été représenté sur la Fig.8. Une diminution du potentiel sur la ligne de base est observable pour l'échantillon d'épaisseur 11nm (noir) contrairement à la ligne de base de l'échantillon d'épaisseur 50nm (rouge) qui montre une grande stabilité. Pour l'échantillon le plus fin, au-delà de 400s la valeur du potentiel de la ligne de base n'évolue plus. Cette décroissance peut être expliquée par une injection à travers la couche de  $\text{SiO}_{1,92}\text{N}_{0,08}$  dans le plan d'or qui pour la couche la plus fine, est d'autant plus élevé que la tension et/ou le temps de chargement augmente.

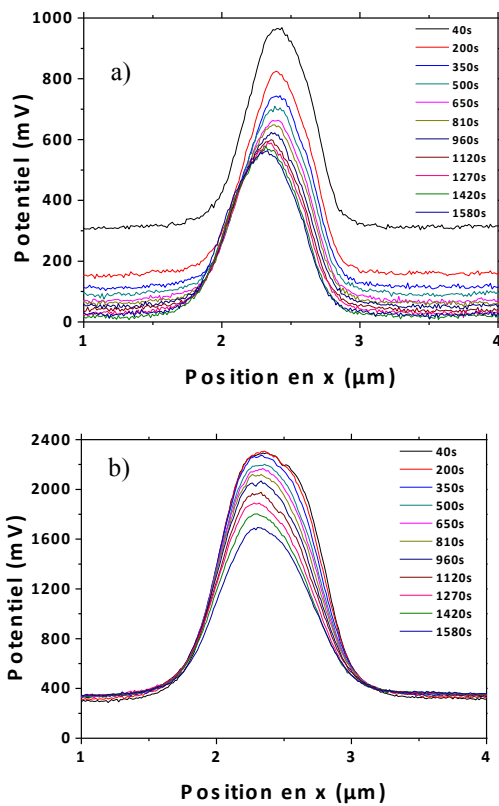


Figure 7 : Profils de potentiels capturés à différents temps lors de la dissipation de la charge. En a) pour une couche de 11nm d'épaisseur et en b) pour une couche de 130nm.

La Fig.9 représente l'évolution au cours du temps de la largeur à mi-hauteur et de l'aire sous le pic (une fois soustraite la ligne de base) après injection dans deux couches d'épaisseurs différentes. Quel que soit l'épaisseur de la couche, la largeur à mi-hauteur présente une très grande stabilité au cours du temps. Par conséquent, les fluctuations du maximum sont retranscrites dans les fluctuations de l'aire, qui présente une décroissance faible de 20% par tranche de 25mn. Par conséquent, le comportement de la charge le plus probable est la dispersion en volume. De plus, l'épaisseur de la couche ne semble pas influencer le

comportement de dispersion des charges électriques. Malgré la faible épaisseur du film de 11nm la grande stabilité de la charge injectée est caractéristique d'une rétention durable des charges électriques dans des pièges.

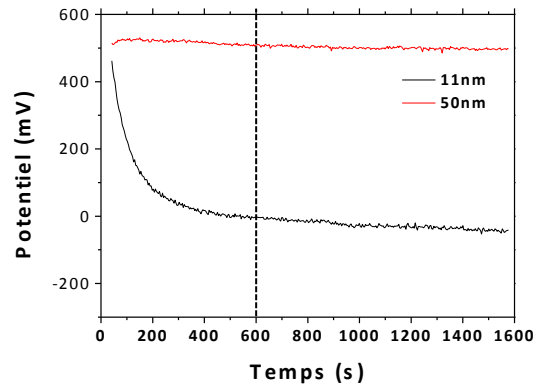


Figure 8 : Décroissance du potentiel au cours du temps sur la ligne de base, pour une injection de 5V pendant 2 minutes pour des couches de 11nm et de 50nm d'épaisseur.

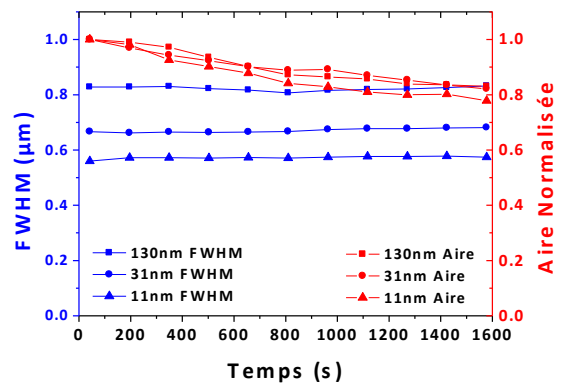


Figure 9 : Evolution de l'aire normalisée (en rouge) et de la FWHM (tension d'injection de 12V appliquée pendant 2min).

On constate donc que l'épaisseur de la couche a une influence importante sur les propriétés d'injection et de stockage de charges. Pour des couches très fines (épaisseur inférieure à 11nm) la quantité de charges stockées dans le matériau est constante, quelles que soient les conditions d'injection, car l'injection se fait dans la couche d'or sous-jacente (augmentation du potentiel de référence). En revanche une fois injectées les charges présentent le même comportement dispersif en volume quelle que soit l'épaisseur.

### c. Mesure de courant

La configuration 2 utilisée pour les mesures de courant (Fig3.) diffère des conditions utilisées précédemment pour l'étude de l'injection et de la rétention des charges (configuration 1 Fig.2). En effet, la masse étant maintenant appliquée sur l'électrode d'or et non sur la

face arrière du substrat silicium le champ électrique sera plus important mais les phénomènes observés resteront les mêmes.

La configuration pointe-plan ne permettant pas un calcul analytique rapide du champ, ce dernier sera calculé grâce au logiciel éléments finis COMSOL®. Le calcul s'effectue par la résolution des équations de Maxwell (3) et (4) :

$$\nabla \cdot E = \frac{\rho}{\epsilon} \quad (3)$$

$$E = -\nabla V \quad (4)$$

dans la couche de  $\text{SiO}_{1,92}\text{N}_{0,08}$  ainsi que dans l'air. Le tableau 1 compare le champ électrique calculé au point de contact pour la configuration pointe-plan utilisée pour la mesure du courant ou le champ constant dans le volume pour la configuration plan-plan. Un renforcement du champ électrique d'un facteur 5 sous la pointe est présent lors de la comparaison entre un modèle pointe/plan et un modèle plan/plan,

$V_{\text{app}}$ (V)	$E_{\text{plan-plan}}$ (MV/m)	$E_{\text{pointe-plan}}$ (MV/m)
1	20	104
2	40	207
3	60	311
4	80	413

Tableau 1 : Champ électrique calculé pour le modèle pointe/plan et plan/plan dans la configuration 2, avec  $V_{\text{app}}$  le potentiel appliqué sur la pointe

Le courant traversant la couche de  $\text{SiO}_{1,92}\text{N}_{0,08}$  est mesuré au travers d'un électromètre connecté au le plan d'or. Les mesures ont été effectuées lors d'une montée en tension par palier de 0,5V pendant 30s pour différentes épaisseurs de  $\text{SiO}_{1,92}\text{N}_{0,08}$ .

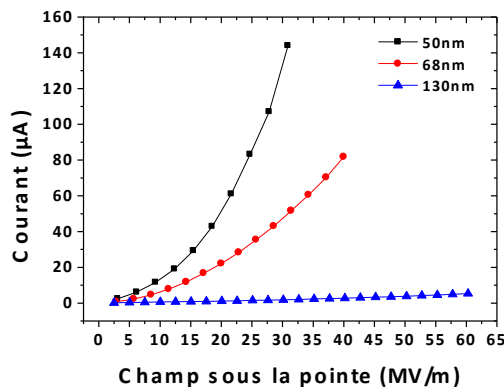


Figure 10 : Variation du courant en fonction du champ électrique simulé pour un modèle pointe-plan, pour différentes épaisseurs de  $\text{SiO}_{1,92}\text{N}_{0,08}$ .

Les mesures de courant ont montré une augmentation constante du courant avec la tension appliquée : le courant croît rapidement avec la tension pour atteindre  $107\mu\text{A}$  pour 4,5V, puis à 5V un claquage dans la couche apparaît (point noir observé au microscope). La Fig.10 présente l'évolution du courant en fonction du champ

électrique simulé sur COMSOL® pour chacun des potentiels appliqués.

Pour les trois différentes épaisseurs (50, 68 et 130nm) testées le courant suit une loi en  $E^n$  où  $n$  est très proche de 2, avec  $n=2,3$  pour la couche de 50nm d'épaisseur, et  $n=2$  pour la couche de 68nm, toutefois on s'écarte d'une loi en  $E^2$  pour la couche d'épaisseur 130nm avec un coefficient  $n$  de 1,4. C'est le signe, pour les couches de 50nm et 68nm d'épaisseur, d'une conduction limitée par charge d'espace approximée par la loi de Mott-Gurney [13]

$$J = \frac{9}{8} \epsilon_0 \epsilon_r \theta \mu \frac{E^2}{e} \quad (5)$$

où  $J$  est la densité de courant,  $\epsilon_0$  ( $\epsilon_r$ ) la permittivité du vide (relative du matériau),  $\theta$  le rapport de la densité de porteurs libres sur la densité de porteurs piégés,  $\mu$  la mobilité et  $e$  l'épaisseur.

Un bon accord est trouvé sur la dépendance en  $1/e$  pour les couches de 50 et 68nm. Alors que pour la couche d'épaisseur 130nm, le courant mesuré est plus faible que ce que la loi prévoit. Un changement de mécanisme de conduction pour les couches de fortes épaisseurs est probable.

## V. CONCLUSION

L'étude de l'injection de charges dans des couches de  $\text{SiO}_{1,92}\text{N}_{0,08}$  d'épaisseurs différentes a mis en évidence une épaisseur seuil à partir de laquelle le comportement électrique de la couche change: pour les faibles épaisseurs (inférieures à 11nm), la saturation du potentiel mesuré est attribuée à une quantité de pièges limitées et remplis dans un temps relativement court. Pour les épaisseurs plus importantes le potentiel croît avec le temps d'injection et sature d'autant plus tard que la couche est épaisse.

L'étude de la dissipation des charges électriques au cours du temps montre que celle-ci est faible pour le matériau étudié ( $\text{SiO}_{1,92}\text{N}_{0,08}$  proche du  $\text{SiO}_2$ ) et se fait principalement en volume.

Finalement la dernière partie de cette étude a montré que la mesure du courant traversant la couche lors de l'injection permet, en première approximation, de mettre en évidence une conduction limitée par charge d'espace, au moins pour les épaisseurs les plus faibles.

## REFERENCES

- [1] O. Gallot-lavallée, and G. Teyssedre, 2004 *ICSD*, 2004
- [2] A. Petre, C.-D. Pham, D. Marty-Dessus, and L. Berquez, *Journal of electrostatic*, vol. 67, pp 430-434, 2009
- [3] Lambert J, Saint-Jean M and Guthmann C 2004 *J. Appl. Phys.* 96 7361-9
- [4] Dianoux R, Smilde H J H, Marchi F, Buffet N, Mur P, Comin F and Chevrier J 2007 *Nanotechnology* 18 325403
- [5] N. Nonnenmacher, m. P. I'Boyle, and H.K. Wickramasinghe, *Appl. Phys. Lett* 58 (25), 24 June, 1991

- [6] K. Bumho, M. Daeyoung, J. Kisu et al, *Appl. Phys. Lett.* 104, 102101 (2014)
- [7] G. Binnig, C.F. Quate, and Ch. Gerber, *Phys. Rev. Lett.*, vol. 56, number 9, 1986.
- [8] U. Zerweck, C. Loppacher, T. Otto, S. Grafström, and L.M. Eng, *Phys. Rev. B*, 71, 125424, 2004.
- [9] G. Koley, M.G. Spencer, and H.R. Bhangale, *Appl. Phys. Lett.*, 79, 545, 2001
- [10] K. Makasheva, B. Despax, L. Boudou, and G. Teyssedre, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 19, No. 4, pp 1995-2002, 2012
- [11] C. Dumas, L.Ressier, J. Grisolia, A. Arbouet, V. Paillard, G. BenAssayag, S. Schamm, and P. Normand, *Microelectronic Eng.*, vol. 85, pp. 2358-2361, 2008.
- [12] F. Mortreuil, C. Villeneuve-Faure, L. Boudou, K. Makasheva, G. Tesseydre, *Sondes Locales*, 2014
- [13] M.A. Lampert and P. Mark, *Physical Review*, vol.103, n°6, September 15, 1956