

Application des Loïs de Penetration de Makhov a la Conductibilite Induite par Bombardement Electronique dans des Couches Minces de ZnS *

J. BENOIT, P. BENALLOUL et J. MATTLER

Laboratoire de Luminescence II ** Faculté des Sciences de Paris

(Z. Naturforsch. 24 a, 1569—1574 [1969] ; reçu le 6. Juni 1969)

En hommage au Professeur H. GOBRECHT à l'occasion de son 60^{ème} anniversaire

Al-ZnS-Al cells withstanding fields of 10^6 V cm^{-1} were studied; their resistivity being of $10^{14} \Omega \cdot \text{cm}$. The induced conductivity is related to MAKHOV's law of the absorption of the electronic flux. The distribution of the secondary charge carriers and the electric field inside of the layer are given. The experimental results agree with MAKHOV's law. It is possible therefore to express the dependence of the range in the thin ZnS layer upon the energy of the bombarding electrons: $R = 95 E_0^{1/2}$, where R is expressed in Å and E_0 in keV. The optimal conditions for the gain as a function of the energy of the electronic flux, the thickness, and the quality of the layer are given.

I. INTRODUCTION

De nombreux auteurs ont étudié la conductibilité induite par un faisceau d'électrons de quelques keV à plusieurs centaines de keV dans des couches minces de semi-conducteurs et d'isolants¹⁻⁴. Un bon accord existe entre les résultats expérimentaux. Ce phénomène a déjà trouvé des applications dans les détecteurs et amplificateurs d'électrons; mais beaucoup de points n'ont pas encore reçu une explication entièrement satisfaisante.

Cette conductibilité induite est due aux porteurs secondaires créés par les électrons incidents. Il est donc nécessaire de préciser préalablement le phénomène de l'absorption d'un faisceau électronique. Cette absorption a été déterminée expérimentalement par deux méthodes:

la première consiste à mesurer directement la distribution énergétique du faisceau électronique transmis; par exemple YOUNG^{5,6}, utilise cette méthode pour des couches minces de Al_2O_3 .

la seconde, nécessitant un matériel luminescent, prend comme hypothèse la proportionnalité entre luminescence et absorption énergétique; certains auteurs^{7,8,9} ont alors déterminé la répartition

énergétique par observation au microscope de la tache lumineuse.

Par ailleurs, MAKHOV¹⁰ dans un travail non uniquement expérimental a établi une loi d'absorption, le point de départ de son étude étant la fonction de distribution des électrons primaires dans un solide.

Notre travail a pour but essentiel de préciser la loi d'absorption d'un faisceau électronique (d'énergie 5 keV—50 keV) dans une couche mince de ZnS et de lier cette absorption à la conductibilité induite.

II. ETUDE THEORIQUE DE L'ABSORPTION D'UN FAISCEAU ELECTRONIQUE D'ENERGIE INFERIEURE A 50 keV

1) Pénétration d'un faisceau électronique

Le nombre relatif d'électrons franchissant au moins l'épaisseur x est donné par la loi expérimentale:

$$\eta(x) = \exp \{ - (x/C E_0^n)^p \} \quad (1)$$

E_0 = énergie des électrons incidents; C, p, n sont des constantes dépendant du corps considéré;

Sonderdruckanforderungen erbeten an Prof. J. MATTLER, Faculté des Sciences, Lab. de Luminescence II Tour 13, 9 Quai St. Bernard, Paris 5^e, Frankreich.

* Ce travail a fait l'objet du contrat D.R.M.E. n^o 64-34-170.

** Equipe associée au C.N.R.S.

¹ L. PENSACK, Phys. Rev. **75**, 472 [1950]; **79**, 171 [1950].

² F. ANSBASHER and W. EHRENBURG, Proc. Phys. Soc. London **A64**, 362 [1951].

³ W. E. SPEAR, Proc. Phys. Soc. London **B68**, 991 [1955].

⁴ W. EHRENBURG, and N. J. HIDDEN, J. Phys. Chem. Solids **13**, 1135 [1962].

⁵ J. R. YOUNG, Phys. Rev. **103**, 292 [1956].

⁶ J. R. YOUNG, J. Appl. Phys. **28**, 524 [1957].

⁷ W. EHRENBURG and J. FRANKS, Proc. Phys. Soc. London **66**, 1057 [1953].

⁸ W. EHRENBURG and N. KING, Proc. Phys. Soc. London **81**, 751 [1963].

⁹ G. F. GARLICK, Cathodo- and Radioluminescence. Luminescence of Inorganic Solids (Ed. by P. GOLDBERG). Academic Press, New York 1966, p. 685.

¹⁰ A. F. MAKHOV, Soviet Phys.-Solid State **2**, 1934 [1961].



Dieses Werk wurde im Jahr 2013 vom Verlag Zeitschrift für Naturforschung in Zusammenarbeit mit der Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften e.V. digitalisiert und unter folgender Lizenz veröffentlicht: Creative Commons Namensnennung-Keine Bearbeitung 3.0 Deutschland Lizenz.

Zum 01.01.2015 ist eine Anpassung der Lizenzbedingungen (Entfall der Creative Commons Lizenzbedingung „Keine Bearbeitung“) beabsichtigt, um eine Nachnutzung auch im Rahmen zukünftiger wissenschaftlicher Nutzungsformen zu ermöglichen.

This work has been digitalized and published in 2013 by Verlag Zeitschrift für Naturforschung in cooperation with the Max Planck Society for the Advancement of Science under a Creative Commons Attribution-NoDerivs 3.0 Germany License.

On 01.01.2015 it is planned to change the License Conditions (the removal of the Creative Commons License condition "no derivative works"). This is to allow reuse in the area of future scientific usage.

p varie entre 1 et 2. Remarquons que pour
 $p = 1$, le parcours moyen est $\bar{x} = CE_0^n$;
 $p = 2$, le parcours quadratique moyen est:
 $R = \sqrt{x^2} = CE_0^n$.

2) Absorption énergétique du faisceau

A partir de la relation précédente, MAKHOV¹⁰ établit la fonction de distribution des particules présentes à une profondeur x d'énergie E :

$$g(N_0, E_0, x, E) = N_0 p n \chi^p \frac{\xi^{(n-1)}}{(1 - \xi^n)^{p+1}} \cdot \frac{1}{E_0} \exp \left\{ - \left(\frac{\chi}{1 - \xi^n} \right)^p \right\}$$

N_0 = nombre d'électrons incidents; $\chi = x/(CE_0^n)$;
 $\xi = E/E_0$.

Il obtient ainsi la loi donnant la proportion d'énergie absorbée jusqu'à une distance x

$$w(\chi) = 1 - \int_0^1 \exp \left\{ - \left(\frac{\chi}{1 - \xi^n} \right)^p \right\} d\xi. \quad (2)$$

3) Application des résultats de Makhov à une couche mince

Energie absorbée dans une couche d'épaisseur d :

$$W(d, E_0) = N_0 E_0 w(\chi_d), \quad \chi_d = d/(CE_0^n).$$

Nous avons vu que CE_0^n représente toujours une certaine moyenne du parcours des électrons; il est commode d'introduire une épaisseur normalisée:

$$D^* = CE_0^n/d = 1/\chi_d.$$

Introduisons aussi les grandeurs normalisées suivantes:

$E_0^* = D^{*1/n} = E_0 \cdot (C/d)^{1/n}$: énergie incidente normalisée (3).

$$W^* = N_0 E_0^* w(1/D^*) = W(E_0, d) \cdot (C/d)^{1/n};$$

énergie absorbée (4) (dans une couche d'épaisseur normalisée D^*).

Pour un corps donné, W^* ne dépend que de l'épaisseur normalisée D^* au lieu du couple de variables dépendantes E_0 et d ; cela facilitera l'exploitation des résultats.

III. EXPRESSION DU COURANT INDUIT PAR UN FAISCEAU D'ENERGIE E

1) Densité des porteurs secondaires

Si ω représente l'énergie nécessaire pour créer une paire électron-trou, la densité $\mathcal{N}(x)$ de porteurs

secondaires créés par seconde s'écrit:

$$\begin{aligned} \mathcal{N}(x) &= (\mathcal{N}_0/\omega) E_0 (dw/dx) \\ &= (\mathcal{N}_0/\omega) (E_0^{n+1}/C) (dw/d\chi) \end{aligned}$$

où $\mathcal{N}_0 = N_0/t$ représente le nombre d'électrons incidents par seconde. La densité des porteurs à l'équilibre s'écrit $n(x) = \mathcal{N}(x) \tau$, τ étant la durée de vie des porteurs que nous supposons être constante dans la couche.

2) Expression de la densité J du courant induit

Nous nous plaçons dans les conditions où les courants vérifient la loi d'Ohm; nous ne tenons pas compte du courant de diffusion (voir annexe):

$$J = C^{te} = \sigma(x) \cdot \mathcal{E}(x)$$

$\sigma(x) = \mu_n \cdot n(x) \cdot e$ dans le cas d'un seul type de porteurs.

$$V = \int_0^d \mathcal{E}(x) dx = \frac{J \omega C^2 E_0^{2n-1}}{\mu_n \tau e \mathcal{N}_0} \int_0^{\chi_d} \frac{d\chi}{(dw/d\chi)}.$$

Soit:

$$J = \mu_n \tau e \mathcal{E}_{\text{moy}} \mathcal{N}_0 \frac{1}{\omega} \frac{d}{C^2 E_0^{2n-1}} \frac{1}{\int_0^{\chi_d} d\chi/(dw/d\chi)}$$

Introduisons la grandeur $(J \cdot d)$

$$(J \cdot d) = \mu_n \tau e \mathcal{E}_{\text{moy}} \mathcal{N}_0 \frac{1}{\omega} \frac{d^2}{C^2 E_0^{2n-1}} \frac{1}{\int_0^{\chi_d} d\chi/(dw/d\chi)}.$$

Soit J^* la grandeur normalisée correspondante

$$\begin{aligned} J^* &= (J \cdot d) (C/d)^{1/n} \\ &= a \mathcal{N}_0 e \frac{E_0^{(1-2n)}}{\int_0^{\chi_d} d\chi/(dw/d\chi)} \end{aligned}$$

avec $a = \mu_n \tau \mathcal{E}_{\text{moy}}/\omega$.

3) Expression du gain

Il est courant d'introduire la notion de gain G défini par $G = J/J_0$, $J_0 = \mathcal{N}_0 \cdot e$ étant la densité du courant électronique incident.

$$G = a \frac{1}{d} \left(\frac{d}{C} \right)^{1/n} \cdot \frac{E_0^{*(1-2n)}}{\int_0^{\chi_d} d\chi/(dw/d\chi)}$$

Introduisons la grandeur

$$\frac{G^*}{a} = \left(\frac{G \cdot d}{a} \right)^* = \frac{G \cdot d}{a} \left(\frac{C}{d} \right)^{1/n} = \frac{E_0^{*(1-2n)}}{\int_0^{\chi_d} d\chi/(dw/d\chi)}. \quad (5)$$

La grandeur G^*/a ne dépendant que de l'énergie incidente normalisée E_0^* , nous permettra de

normaliser nos résultats expérimentaux. Remarquons que pour une énergie E_0^* donnée, le gain est proportionnel à $d^{(1-n)/n}$, et donc diminue lorsque l'épaisseur augmente.

IV. ETUDE EXPERIMENTALE DE L'ABSORPTION DANS UNE COUCHE MINCE DE ZnS

1) Réalisation des cellules

Dans une enceinte à la pression de 10^{-6} torr obtenue avec un ensemble de pompage à diffusion d'huile équipé de pièges à azote liquide, nous évaporons successivement, sans casser le vide, sur support en pyrex :

une première électrode d'Al d'épaisseur 100 Å environ,

une couche de ZnS déposée à vitesse constante (200 Å/mm) et d'épaisseur d variant entre 0,3 et 4 μ déterminée pendant l'évaporation par contrôle optique [en prenant comme indice de réfraction 2,37],

une seconde électrode d'Al de même épaisseur que la première.

La résistivité des couches minces de ZnS est de l'ordre de 10^{14} à $10^{15} \Omega \cdot \text{cm}$. On notera que le claquage se produit pour des champs \mathcal{E}_{moy} supérieurs à 10^6 V cm^{-1} .

2) Résultats expérimentaux

Nous avons mesuré la conductibilité induite dans les couches de ZnS par bombardement électronique d'énergie variant entre 5 et 50 keV. La surface bombardée de la cellule est d'environ 0,25 cm²; la focalisation du faisceau est réalisée au moyen d'une bobine de concentration distante de 30 cm de la cellule; le diamètre du faisceau à la sortie de la bobine est de 3 cm.

Ces mesures ont été faites en appliquant une tension continue telle que les courants incidents suivent la loi d'Ohm (Fig. 1, 2 et 3). Nous portons en ordonnées le gain G , facteur déterminant pour les applications du phénomène.

$$G = (I - I_0 - i_0)/I_0 = J/J_0.$$

I_0 = courant électronique incident fixé à 10^{-9} A; i_0 = courant mesuré en l'absence d'excitation, est négligeable; I = courant sous excitation cathodique; $I - I_0 - i_0$ = courant induit.

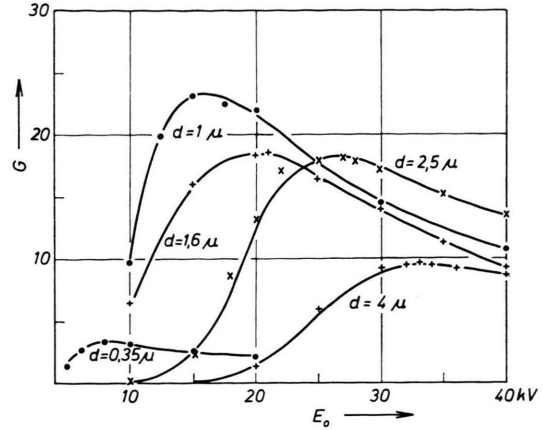


Fig. 1. Variation du gain en fonction de l'énergie du faisceau incident pour des cellules d'épaisseur différente. T ambiante: $I_0 = 10^{-9}$ A, $\mathcal{E}_{\text{moy}} = 2 \cdot 10^5 \text{ V cm}^{-1}$ sauf pour la cellule $d = 0,35 \mu$ pour laquelle $\mathcal{E}_{\text{moy}} = 4 \cdot 10^4 \text{ V cm}^{-1}$.

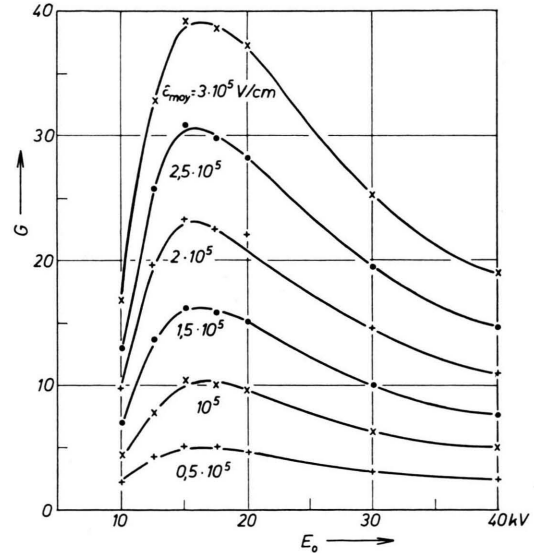


Fig. 2. Variation du gain en fonction de E_0 pour différentes valeurs du champ électrique moyen \mathcal{E}_{moy} . $d = 1 \mu$; $I_0 = 10^{-9}$ A; T ambiante.

Ces résultats concordent avec ceux obtenus antérieurement⁴. Les résultats les plus nets sont les suivants:

a) Existence d'un seuil d'énergie E_s nécessaire à l'apparition d'un courant induit; nous avons vérifié que E_s est indépendant du sens du champ appliqué, mais dépendant de d .

b) Existence d'un maximum de conduction. E_{max} dépend de d . On peut donner la loi expérimentale suivante (Fig. 4):

$$d = 80 E_{\text{max}}^{1.8}. \quad (6)$$

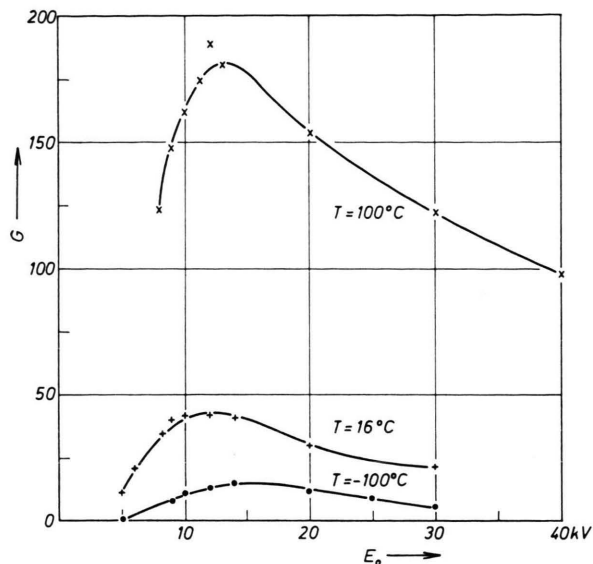


Fig. 3. Variation du gain en fonction de E_0 pour différentes températures.

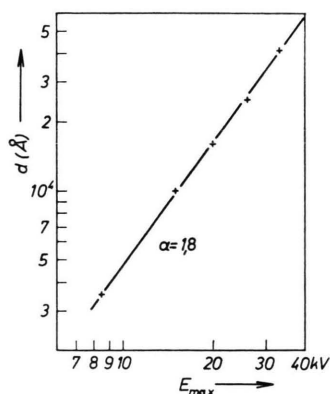


Fig. 4. Variation de l'épaisseur d de la couche mince en fonction de E_{\max} (énergie pour laquelle le gain est maximum).

c) E_{\max} varie peu entre -100°C et $+100^\circ\text{C}$.

3) Détermination de G^*/a pour des couches minces de ZnS

Il est nécessaire de connaître les valeurs de p et de n .

a) *Choix de p .* MAKHOV trouve $p = 1$ pour les éléments lourds, par exemple Pb et Bi, et $p = 2$ pour les corps légers Al, Cu, Ge, Si et Al_2O_3 . En réalité VYATSKIN¹¹ a montré que p varie d'une façon continue entre 1 et 2 (Al: 1,9; Cu: 1,7; Ag:

1,5; Sn: 1,4; Au: 1,3). Ces mesures ont été réalisées par transmission d'un faisceau électronique, ce qui présente de grosses difficultés dans le cas du ZnS par suite de la présence d'un support.

La valeur trouvée pour Al_2O_3 ($p = 2$) nous conduit à prendre cette même valeur pour ZnS. Ce choix donne un bon accord entre la théorie et les résultats expérimentaux.

b) *Détermination de n :* de la relation (3) on déduit

$$E_{\max} = (d/C)^{1/n} \cdot E_{\max}^* \quad (7)$$

La loi expérimentale (6) donne d'autre part E_{\max} proportionnelle à $d^{1/1,8}$, donc n est égal à 1,8. On peut alors tracer la courbe $w(\chi)$ (Fig. 5). On en tire $(dw/d\chi)$ qui donne l'allure de la fonction $n(\chi)$, densité des porteurs secondaires (Fig. 6); on en déduit la répartition du champ électrique $\mathcal{E}(\chi)$ dans la couche mince (Fig. 7).

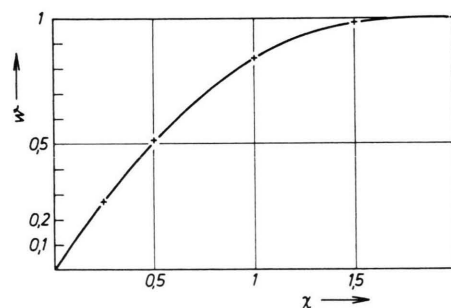


Fig. 5. Proportion d'énergie w en fonction de $\chi = d/C E_0^n$.

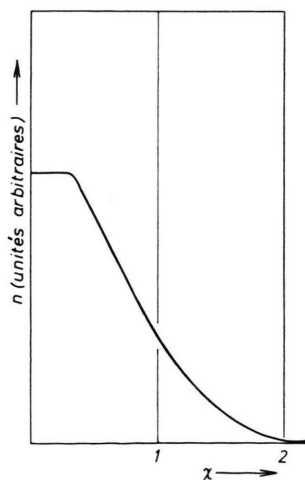


Fig. 6. Densité des porteurs secondaires n en fonction de χ .

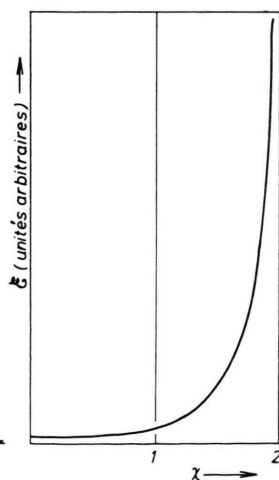


Fig. 7. Répartition du champ électrique \mathcal{E} en fonction de χ .

¹¹ A. Y. VYATSKIN, A. N. PILYANKEVICH, and V. V. TRUNEV, Soviet Phys.-Solid. State 6, 1230 (1964).

c) *Tracé de G^*/a* (Fig. 8): Cette fonction ne croît pratiquement qu'à partir d'un seuil E_s^* . On vérifie en traçant W^* que E_s^* correspond à une énergie incidente à partir de laquelle il n'y a plus absorption totale du faisceau ($W^* < E^*$); les électrons incidents atteignent l'électrode dorsale. Le maximum de G^*/a correspond à $E^* \cong 1,1$.

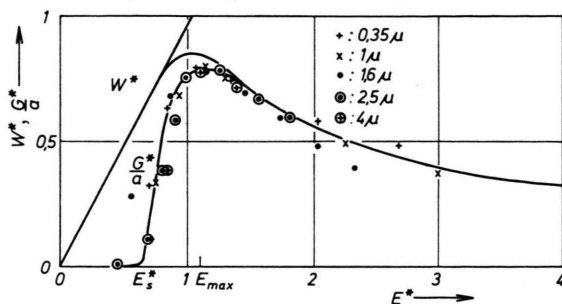


Fig. 8. Courbes théoriques donnant l'énergie absorbée normalisée W^* et G^*/a (G^* gain normalisé) en fonction de l'énergie incidente normalisée E^* (+ × · ⊙ ⊕ points expérimentaux normalisés).

4) Normalisation des courbes expérimentales

La normalisation des courbes expérimentales nécessite la connaissance de C que nous tirons des relations (6) et (7). En prenant $E_{\max}^* = 1,1$ on trouve $C = 95$. La normalisation en abscisse est telle que $E_0^* = E_0(C/d)^{1/n}$. La normalisation en ordonnée est telle que $G^* = G d(C/d)^{1/n}$.

Remarques sur les courbes expérimentales normalisées (Fig. 9). Il n'y a pas superposition des courbes: cela est dû à des valeurs différentes de a , donc à des propriétés physiques différentes pour les couches d'épaisseur différente. Afin de comparer ces courbes avec la courbe théorique G^*/a , nous multiplions les coordonnées de telle sorte que les maxima coïncident. Ces points sont portés sur la figure 8.

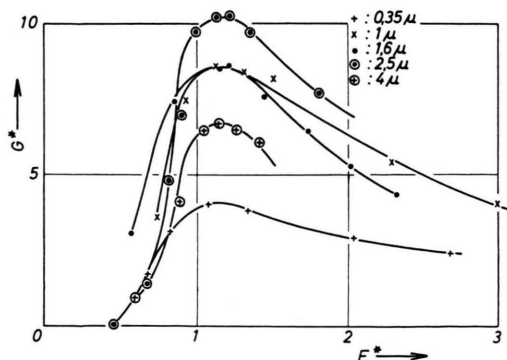


Fig. 9. Courbes expérimentales normalisées G^* en fonction de E^*

V. DISCUSSION DES RESULTATS

Il faut souligner deux points essentiels:

d'une part l'accord des lois de pénétration de MAKHOV avec nos résultats expérimentaux;

d'autre part une dispersion des valeurs des gains expérimentaux normalisés.

1) La bonne superposition des points expérimentaux normalisés avec la courbe G^*/a confirme que le phénomène de conductibilité induite est directement rattaché à l'absorption énergétique du faisceau électronique et surtout, cette superposition fournit une vérification de la loi de MAKHOV (2). Nous en déduisons l'expression du parcours quadratique moyen des électrons dans les couches minces de ZnS

$$R = 95 E_0^{1,8}; \quad R \text{ en } \text{\AA} \text{ et } E_0 \text{ en keV.} \quad (8)$$

Il s'agit plutôt d'un parcours équivalent du fait que la méthode optique de mesure de l'épaisseur de la couche donne une épaisseur équivalente. Ce résultat est en contradiction avec la loi semi-empirique de FELDMAN¹² $R = 63 E_0^{2,4}$.

Cette relation a été obtenue en étudiant la cathodoluminescence des couches minces, l'hypothèse essentielle étant que cette luminescence est proportionnelle à l'énergie absorbée (exception faite d'une couche superficielle dont l'auteur a tenu compte). Le parcours obtenu est donc le parcours extrapolé que l'on peut déterminer expérimentalement en collectant les premiers électrons qui atteignent l'électrode dorsale; le parcours de FELDMAN devrait correspondre approximativement au double du parcours quadratique proposé. De plus une certaine divergence subsiste quant à la valeur trouvée pour n (Fig. 10).

L'étude de l'absorption énergétique du faisceau incident nous permet de montrer que le courant induit apparaît lorsque les premiers électrons atteignent l'électrode dorsale; c'est à dire lorsque l'épaisseur de la couche est égale au parcours extrapolé, ou ce qui revient au même, au double du parcours quadratique moyen: nous confirmons donc les résultats de ANSBASHER² et SPEAR³.

De plus, la normalisation effectuée rend évident le fait que le rapport E_{\max}/E_s soit constant.

2) La dispersion des valeurs des gains expérimentaux normalisés est due aux propriétés physi-

¹² C. FELDMAN, Phys. Rev. **117**, 455 (1960).

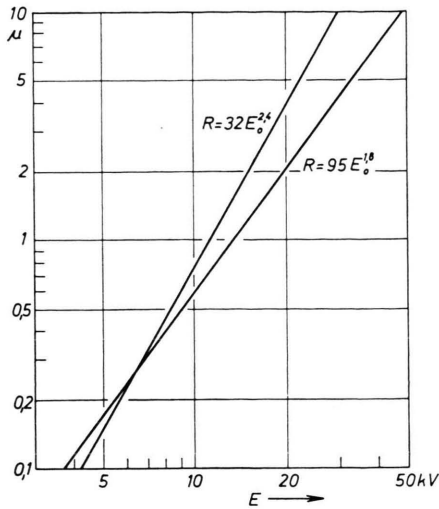


Fig. 10. Lois de parcours quadratique moyen.

ques différentes des couches. Le degré de cristallisation, les impuretés, la répartition des pièges interviennent sur le produit $\mu_n \cdot \tau$ que l'on peut considérer comme le facteur de qualité des couches. Les courbes normalisées (Fig. 9) donnent cependant le même ordre de grandeur pour $\mu_n \cdot \tau$.

Calcul numérique. Pour la couche $d = 1 \mu$; $\mathcal{E}_{\text{moy}} = 2 \cdot 10^5 \text{ V cm}^{-1}$; $G_{\text{max}} \cong 23$; $G_{\text{max}}^*/a = 0,8$; $(d/C)^{1/n} \cong 13 \text{ keV}$.

Des diagrammes de rayons X ayant montré un réseau très désordonné, nous pouvons prendre ω de l'ordre de grandeur du gap soit 4 eV environ. Nous trouvons $\mu_n \cdot \tau \cong 10^{-12} \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1}$.

La valeur du gain maximum permet donc une détermination de $\mu_n \cdot \tau$ et donne une indication sur la qualité de la couche. Les gains faibles obtenus montrent que les couches minces réalisées sont très imparfaites.

Du fait de la superposition des points expérimentaux normalisés avec la courbe G^*/a , l'hypothèse que nous avons faite sur la constance de τ dans toute la couche est donc fondée.

Les applications du phénomène de conductibilité induite impliquent une recherche d'optimisation du gain. La possibilité d'utiliser des couches plus

minces augmentera légèrement les gains, puisque $G \cong d^{-0,45}$. En fait, pour augmenter les gains, il semble nécessaire d'améliorer la structure des couches; ce résultat peut être obtenu, par exemple, par un traitement thermique. Des études cristallographiques^{13,14,15} montrent qu'une température de 300 °C est nécessaire pour apercevoir une amélioration de la structure des couches de ZnS dopé, mais ces températures sont néfastes pour les électrodes d'aluminium.

Nous remercions Monsieur RAMBOARINA qui nous a été d'une grande aide dans la réalisation des cellules.

ANNEXE

Calcul du courant de diffusion

La densité du courant de diffusion J_D est donnée par la relation :

$$J_D = e D \cdot \text{grad } n = \mu_n \cdot kT \cdot \text{grad } n$$

où

$$\begin{aligned} n(x) &= (\mathcal{N}_0/\omega) (E_0^{-n+1}/C) (dw/d\chi) \cdot \partial n/\partial x \\ &= (\mathcal{N}_0/\omega) (E_0^{1-2n}/C) (d^2w/d\chi^2) \end{aligned}$$

et

$$J_D = (\mathcal{N}_0 \mu_n \tau / \omega) kT (E_0^{1-2n}/C) (d^2w/d\chi^2).$$

Or nous avons trouvé pour la densité du courant J au chap. III :

$$J = \mu_n \tau e V \frac{\mathcal{N}_0}{\omega} \cdot \frac{1}{C^2 E_0^{(2n-1)}} \cdot \frac{1}{\int_0^{\chi_d} d\chi / (dw/d\chi)}.$$

Donc

$$\frac{J}{J_D} = \frac{eV}{kT (d^2w/d\chi^2) \int_0^{\chi_d} d\chi / (dw/d\chi)}.$$

L'expression

$$\frac{d^2w}{d\chi^2} \cdot \int_0^{\chi_d} d\chi / (dw/d\chi)$$

en valeur absolue est inférieure à 2 pour $\chi < 2$.

D'où

$$J/J_D > eV/2kT.$$

A température ambiante ($kT \cong 1/40 \text{ eV}$) pour des tensions appliquées de 1 volt (bien inférieures à celles appliquées) le courant de diffusion est déjà négligeable; donc notre simplification est justifiée.

¹³ P. GOLDBERG, and J. NICKERSON, Trans. 10th Natl. Meeting Am. Vacuum Society 1963, MacMillan Co., New York, p. 475—479.

¹⁴ S. A. KOSTYLEV and B. N. SHERSTYAK, Kristallografiya 8, 456 [1963].

¹⁵ K. V. SHALIMOVA, N. K. MOROZOVA, and V. S. SOLDATOV, Kristallografiya 8, 451 [1963].