12.1;13.2

Проверка применимости закона полевой эмиссии к исследованию многоострийных полевых эмиттеров методом анализа степени предэкспоненциального множителя напряжения

© Е.О. Попов, А.Г. Колосько, С.В. Филиппов

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, Россия E-mail: E.Popov@mail.ioffe.ru

Поступило в Редакцию 29 мая 2019 г. В окончательной редакции 29 мая 2019 г. Принято к публикации 5 июня 2019 г.

> Описан метод проверки соответствия экспериментальных вольт-амперных характеристик режиму холодной полевой эмиссии. Метод основан на вариации степени напряжения в полулогарифмических координатах $\ln(I/U^k) - 1/U$, а также статистическом анализе флуктуаций экспериментальных данных. Показано, что вольт-амперные характеристики, полученные с применением методики быстрого сканирования высоким напряжением, имеют лучшее соответствие закону полевой эмиссии, чем характеристики, которые дает медленное сканирование постоянным напряжением. В качестве образца взят многоострийный нанокомпозитный эмиттер на основе углеродных нанотрубок. Для обработки экспериментальных данных предложено использовать модифицированные координаты Фаулера–Нордгейма со степенью 1.24.

> Ключевые слова: электронная полевая эмиссия, многоострийные полевые эмиттеры, тест на классическую полевую эмиссию, степень напряжения в предэкспоненциальном множителе, метод минимального отклонения.

DOI: 10.21883/PJTF.2019.18.48230.17898

Теоретическое описание эффекта полевой эмиссии электронов в вакуум, основанное на зоммерфельдовской модели свободных электронов, сформировалось в 1928 г. [1]. Фаулер и Нордгейм с помощью квантовомеханических представлений вывели уравнение, которое позволяло связать величину потока эмитируемых электронов *j*, приходящегося на единицу площади поверхности катода (металла), с величиной напряженности поля F в этой зоне. Изначально потенциальный барьер на границе металл/вакуум был задан треугольным, и уравнение полевой эмиссии, полученное с использованием функций Бесселя, по форме стало напоминать уравнение Ричардсона-Дешмана для термоэмиссии. В дальнейшем теория полевой эмиссии существенно усложнилась за счет введения более реалистического барьера Шоттки-Нордгейма и применения математического аппарата JWKB [2,3]. Аналитическое решение потребовало разработки серии приближений и введения специальных функций τ_F и ν_F , заданных в трансцендентном виде [4]. На данный момент оптимальным выражением этих функций можно считать приближение Форбса [5]. Представим с учетом этих приближений стандартное уравнение полевой эмиссии в виде (в единицах СИ):

$$J = a_{FN} \varphi^{-1} [1 + f/9 - (f/18) \ln f]^{-2} F^2$$

 $\times \exp(-b_{FN} \varphi^{3/2} [1 - f + (f/6) \ln f]/F), \qquad (1)$

где J — плотность тока [A/m²];

$$a_{FN} = 1.54 \cdot 10^{-6} \,\mathrm{A \cdot eV \cdot V^{-2}},$$

 $b_{FN} = 6.83 \cdot 10^9 \,\mathrm{eV^{-3/2} \cdot V/m}$

— первая и вторая константы Фаулера-Нордгейма; φ — работа выхода поверхности [eV]; $f = F/F_R$ безразмерное поле на поверхности, связанное с полем снятия потенциального барьера $F_R = \varphi^2 \cdot 4\pi\varepsilon_0/e^3 \approx \varphi^2 \cdot 6.94 \cdot 10^8 \text{ V/(m} \cdot \text{eV}^2).$

Наиболее же распространенным в применении является приближение Элинсона–Шредника, написанное для температуры катода T = 0 К и приближенной барьерной функции $\vartheta(y) = 0.95 - 1.03y^2$, где y — безразмерный параметр Нордгейма: $y^2 \equiv f[6]$. Здесь мы представим аналог этого уравнения, выведенный из уравнения (1) в предположении, что безразмерный фактор f = 0.3(также в единицах СИ):

$$J = 1.4 \cdot 10^{-6} \varphi^{-1} \exp(10.17/\sqrt{\varphi}) F^2$$
$$\times \exp(-6.49 \cdot 10^9 \varphi^{3/2}/F).$$
(2)

В предположении, что эмиссионная поверхность катода (площадью A_n) обладает одинаковым полем F, это уравнение можно переписать в виде

$$I = A_n A (\gamma/d_{sep})^2 U^2 \exp\left(-\frac{Bd_{sep}}{\gamma U}\right), \qquad (3)$$

где I — полный ток с катода; U — электрическое напряжение между анодом и катодом; A и B — коэффициенты, зависящие от φ ; d_{sep} — межэлектродное расстояние; γ — безразмерный фактор усиления поля на острие, который определяется как отношение поля на острие F к макроскопическому полю $F_m = U/d_{sep}$.

Это уравнение широко используется в анализе экспериментальных вольт-амперных характеристик (ВАХ). Зависимость I(U) строится в полулогарифмических координатах Фаулера–Нордгейма X-Y: X = 1/U, $Y = \ln(I/U^2)$ (обозначим как ВАХ-ФН). Метод линеаризации ВАХ-ФН при заданной величине φ позволяет вычислить эффективные параметры катода γ_{eff} и A_{eff} [7].

Эффективность параметров γ_{eff} и A_{eff} обусловлена их косвенной связью с реальными величинами γ_C и A_n . Величина γ_C определяется как отношение поля на вершине катода F_C к приложенному полю F_m , а величина A_n определяется как отношение I/J_C , где J_C — плотность тока на вершине катода [8]. Впрочем возможны и другие определения площади эмиссии. Особенно сильно косвенность связи эффективных и реальных величин сказывается на результатах анализа экспериментальных данных многоострийных полевых катодов, где каждый эмиссионный центр имеет свою γ_C , свою A_n и свою работу выхода φ [9].

Отдельным вопросом при этом является применимость самого уравнения (3) для описания экспериментальных данных. Обычно экспериментаторы наблюдают прямолинейность зависимости ВАХ-ФН и делают из этого вывод о применимости закона. Однако даже элементарное введение в уравнение полевой эмиссии первых членов разложения по полю f [5] корректирующих факторов v и τ — туннелирования для экспоненты (tunnelling exponent correction factor) и скорости затухания барьера (decay-rate correction factor) соответственно — дает изменение степени напряжения в предэкспоненциальном множителе уравнения (1). Так, простой аналитический результат для барьера Шоттки-Нордгейма и упрощенного случая $\tau = \mathrm{const}$ дает значение степени напряжения $k \approx 1.24$ при $\varphi = 4.6 \, \text{eV}$, что уже делает квадратичную зависимость ВАХ-ФН (3) непрямолинейной.

Форбс предложил тест, позволяющий оценить соответствие экспериментальных данных классическому закону холодной полевой эмиссии [10]. Тест основан на вычислении диапазона безразмерного поля f и проверке соответствия этого диапазона границам, полученным эмпирическим путем. Мы реализовали применение этого теста на практике к результатам исследования многоострийных полевых катодов и показали, что выбор режима приложения высокого напряжения к катоду (постоянный или полусинусоидальный) существенно влияет как на форму регистрируемой ВАХ, так и на применимость к ней классического закона [11].

Целью настоящей работы является разработка и применение метода вариации степени в координатах Фаулера—Нордгейма для определения применимости классического уравнения полевой эмиссии для анализа экспериментальных данных, полученных в различных режимах сканирования эмиттера высоким напряжением.

Экспериментальный стенд состоит из компьютеризированной установки, которая позволяет регистрировать и обрабатывать в режиме онлайн вольт-амперные характеристики полевых эмиттеров [12]. ВАХ получаются в двух режимах: в режиме "fast" (полусинусоидальный импульс амплитудой $U_m \sim 1-2 \, \text{kV}$ дает одну ВАХ каждые 20 ms) и в режиме "slow" (одна ВАХ получается за время более 10 s, которое задает экспериментатор). Соотношение ВАХ, регистрируемых в этих двух режимах, было изучено нами ранее [13]. Уровень вакуума в измерительной камере $\sim 10^{-7}$ Torr. Межэлектродное расстояние было установлено равным 370 μ m.

Исследованный образец являлся нанокомпозитом: одностенные углеродные нанотрубки в матрице полимера. Использовались нанотрубки фирмы Ltd OcSiAl Novosibirsk (диаметр ~ 2 nm, длина более 2.5μ m). Суспензия углеродные нанотрубки—полимер (раствор полистирола в о-ксилоле) была нанесена на металлическую подложку методом вращающегося столика.

Для регистрации, сбора и онлайн обработки экспериментальных ВАХ стенд использует специальную программу, написанную нами на языке графического программирования LabView. В программу мы включили модуль, который автоматически производит линеаризацию ВАХ-ФН (метод наименьших квадратов) и определяет относительную степень отклонения экспериментальных данных от общей линии тренда

$$Res = \left[\frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N} (\hat{y}_i - y_i)^2\right] / \left[\frac{1}{N-1}\sum_{i=1}^{N} (y_i - \bar{y})^2\right], \quad (4)$$

где y_i — элемент массива экспериментальных значений *Y*; \hat{y}_i — элемент массива соответствующих значений линии тренда; \bar{y} — среднее арифметическое значений y_i .

Кроме того, модуль автоматически сканирует степень *k* напряжения *U* в координате *Y* в заданном экспериментатором интервале ($Y = \ln(I/U^k)$), строит зависимость *Res* от *k* и находит на ней минимум (степень k_o с минимальным *Res*).

Поскольку значение k_o оказывается достаточно сильно зависящим от флуктуационного искривления ВАХ-ФН, мы заложили в модуль возможность сбора значений k_o и построение статистики с определением наиболее вероятного $\langle k_o \rangle$.

На рис. 1 представлена ВАХ, полученная в режиме "slow". На вставке показана зависимость Res(k), на которой не наблюдается минимума. Отметим, что зависимость от степени k числителя уравнения (4) минимум все-таки имеет, хотя он и далек от значения 2, однако деление на монотонно падающий с величиной k знаменатель, который представляет собой дисперсию величины y, математически уничтожает его. Деление на дисперсию необходимо для устранения влияния размерности величины y, зависящей от степени k, на масштаб экспериментальной кривой ВАХ-ФН.

На рис. 2 приведена ВАХ, полученная в режиме "fast". На вставке показана зависимость Res(k), на которой наблюдается четкий минимум ($k_o = 1.6$).

На рис. З показана статистика значений k_o , собранных за несколько минут работы катода в режиме стабильного уровня эмиссионного тока. Статистика имеет форму нормального распределения с ярко выраженным пиком



Рис. 1. Экспериментальная ВАХ нанокомпозитного катода, зарегистрированная в режиме "slow". На вставке — зависимость от степени k отклонения данных от линии тренда *Res*.



Рис. 2. Экспериментальная ВАХ нанокомпозитного катода, зарегистрированная в режиме "fast". На вставке — зависимость от степени k отклонения данных от линии тренда *Res*.

(среднее $\langle k_o \rangle = 1.65$). Отметим, что форма статистики, а также положение ее центра достаточно сильно зависят как от амплитуды импульсов приложенного напряжения U_m , так и от участка ВАХ-ФН, выбранного для анализа: $[U_1; U_2]$. Мы полагаем, что изменение формы ВАХ при изменении уровня напряжения U_m связано с изменением уровня вакуума в измерительной камере, так как меняется выделяемая на аноде мощность и меняется поток частиц, десорбирующихся с него. Влияние же выбора участка $[U_1; U_2]$ связано с общим искривлением ВАХ-ФН, которое может быть вызвано как адсорбционно-десорбционными процессами на поверхности катода [14], так и множественностью разнородных эмиссионных центров [15].

ВАХ в режиме "fast" не показали желаемого уровня стабильности степени k_o , однако наличие минимума на зависимости Res(k), близкого к теоретическому значению, делает этот режим более привлекательным для применения закона Фаулера—Нордгейма, чем режим "slow", который вообще не демонстрирует минимума. С другой стороны, применение теста Форбса также указывает на преимущество режима "fast" перед режимом "slow" [11]. Таким образом, применение техники быстрого сканирования напряжением не только демонстрирует свою пригодность для анализа полевых катодов, но и указывает на несовершенство ВАХ, получаемых в режиме медленного сканирования. Мы объясняем этот эффект кратковременностью воздействия на катод режима "fast" и очевидным перегревом и изменением состояния поверхности катода при сканировании в режиме "slow", так что каждая точка на ВАХ в итоге обладает своими эффективными параметрами.

Полученное отклонение степени предэкспоненциального множителя от 2 (теоретически он близок к 1.24 при $\varphi = 4.6 \,\mathrm{eV}$ в нашем случае) дает экспериментаторам возможность пренебречь зависимостью функции τ от напряжения (взять ее значение $\tau^2 = 1.1$, соответствующее f = 0.3) и применить к анализу ВАХ модифицированные координаты Фаулера-Нордгейма. На вставке к рис. 3 показана такая ВАХ-ФН, построенная для быстрого "режима". Оценка эффективных параметров в этих новых координатах γ' и A'_n заметно отличается от результатов классического анализа: $\gamma' = 1617$, $A'_n = 6780 \, \mathrm{nm}^2$ против $\gamma = 1640, A_n = 5600 \text{ nm}^2$. Предложенные координаты, так же как и классические, ставят в соответствие реальному эмиттеру идеальный плоский эмиттер. Если же вводить в координаты другую степень k, например полученную нами в эксперименте k = 1.6, то для ее обоснования потребуется изменение плоской модели эмиттера. Так, например, для моделирования углеродных нанотрубок сегодня наиболее часто используется модель полусферы на цилиндре (НСР-модель).



Рис. 3. Гистограмма флуктуационного разброса координат экстремума k_o для режима "fast". На вставке — экспериментальная ВАХ-ФН, построенная в классических координатах $\ln(I/U^2) - 1/U$ (черные точки) и в модифицированных координатах $\ln(I/U^k) - 1/U$ (серые точки), где $k \approx 1.24$.

В заключение отметим, что применение разработанного метода вариации степени в координатах ВАХ-ФН в перспективе позволит не только оценивать достоверность экспериментальных данных, но и выяснять уровень их отклонения от классической теории планарных катодов, т. е. характеризовать форму реального эмиттера.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- Fowler R.H., Nordheim L.W. // Proc. Roy. Soc. Lond. A. 1928.
 V. 119. N 781. P. 173–181.
- [2] Nordheim L.W. // Proc. Roy. Soc. Lond. A. 1928. V. 121.
 N 788. P. 626–639.
- Murphy E.L., Good R.H., Jr. // Phys. Rev. 1956. V. 102. N 6.
 P. 1464–1473.
- Burgess R.E., Kroemer H., Houston J.M. // Phys. Rev. 1953.
 V. 90. N 4. P. 515.
- [5] Forbes R.G., Deane J.H.B. // Proc. Roy. Soc. Lond. A. 2007.
 V. 463. N 2087. P. 2907–2927.
- [6] *Елинсон М.И.* Ненакаливаемые катоды. М.: Сов. радио, 1974. 336 с.
- [7] van Oostrom A.G.J. // Philips Res. Rep. Suppl. 1966. V. 1. P. 1–162.
- [8] Amorim M.V., Dall'Agnol F.F., den Engelsen D., de Assis T.A., Baranauskas V. // J. Phys.: Cond. Matter. 2018. V. 30. N 38. P. 385303.
- [9] Колосько А.Г., Попов Е.О., Филиппов С.В. // Письма в ЖТФ. 2019. Т. 45. В. 6. С. 59–62.
- [10] Forbes R.G. // Proc. Roy. Soc. Lond. A. 2013. V. 469. N 2158.
 P. 0271 (1–16).
- [11] Kolosko A.G., Filippov S.V., Romanov P.A., Popov E.O., Forbes R.G. // J. Vac. Sci. Techol. B. 2016. V. 34. N 4. P. 041802 (1–7).
- [12] Попов Е.О., Колосько А.Г., Филиппов С.В., Романов П.А., Федичкин И.Л. // Наноматериалы и наноструктуры — XXI век. 2016. Т. 14. № 1. С. 14–26.
- [13] Filippov S.V., Popov E.O., Kolosko A.G., Terukov E.I., Romanov P.A. // J. Phys.: Conf. Ser. 2016. V. 741. N 1. P. 012029 (1–6).
- [14] Chen J., Li J., Yang J., Yan X., Tay B.K., Xue Q. // Appl. Phys. Lett. 2011. V. 99. P. 2011–2014.
- [15] De Assis T.A., Dall'Agnol F.F., Andrade R.F.S. // J. Phys. D: Appl. Phys. 2016. V. 49. P. 355301 (1–11).