= ОРИГИНАЛЬНЫЕ СТАТЬИ ==

УДК 537.533.2: 62-982

# © В. Э. Птицын

# НОВЫЙ ВЫСОКОИНТЕНСИВНЫЙ "ТОЧЕЧНЫЙ" ИСТОЧНИК ЭЛЕКТРОНОВ

Разработана физическая технология формирования самоорганизованных наногетероструктур, образованных тонким (~ 5–10 нм) слоем диэлектрика (ZrO<sub>2</sub>) на поверхности острийного микрокристалла W <100>. Проведено исследование термоактивированного процесса электронной эмиссии в вакуум с поверхности границы раздела ZrO<sub>2</sub>—вакуум в условиях воздействия на наногетероструктуру электростатического поля. Показано, что закономерности электронной эмиссии не согласуются с теорией явления термополевой эмиссии. Исследованному явлению дано специальное наименование "аномальная термополевая эмиссия". Установлено, что в режиме аномальной термополевой эмиссии приведенная яркость и угловая интенсивность эмиссии с поверхности наногетероструктуры на два порядка величины превосходят аналогичные параметры ZrO/W<100> Шоттки-катодов. Предложена феноменологическая модель механизма аномальной термополевой эмиссии.

#### введение

Для характеристики электронного пучка в области его взаимодействия с поверхностью исследуемого образца (или мишенью), как известно [1], принято использовать следующий ряд основных электронно-оптических параметров: приведенная яркость  $\beta$  [A/(м<sup>2</sup>·cp·B)], угловая интенсивность  $\theta$  [A/ср], а также плотность мощности  $\eta$  [Вт/м<sup>2</sup>].

В настоящее время для решения научнотехнологических задач в различных областях физики и химии поверхности, а также микро- и наноэлектроники широко используются приборы растровой электронной микроскопии, спектроскопии и установки электронной литографии. Источником электронов в большинстве указанных приборов установок являются так называемые И ZrO/W<100> Шоттки-катоды [2]. Как показано в [3], электронный микрозонд, сформированный электронно-оптической системой (OC) С ZrO/W<100> Шоттки-катодом, на поверхности образца имеет весьма высокий уровень приведенной яркости  $\beta \approx 10^8$  A/(м<sup>2</sup>·ср·В).

Однако для реализации ряда перспективных научно-технологических проектов [4–8] необходимы электронные пучки, у которых уровень  $\beta$  должен достигать значений порядка ~ 10<sup>10</sup> A/(м<sup>2</sup>·ср·B) а уровень  $\eta$  до ~ 1 ТВт/см<sup>2</sup>.

Принимая во внимание теорему Лиувилля [1], легко видеть, что задача формирования пучков с вышеуказанными параметрами не может быть решена посредством оптимизации или же усовершенствования электронной и магнитной оптики существующих ЭОС, так как современные ЭОС характеризуются аберрационными коэффициентами, которые практически близки к предельным минимальным значениям.

Цель настоящей работы заключалась в поиске подходов и методов создания нового класса источников электронов, для которых такие эмиссионные параметры, как  $\beta$  и  $\theta$ , значительно (на порядки величины) превосходят аналогичные параметры существующих ZrO/W<100> Шоттки-катодов.

## О ПОСТАНОВКЕ ЗАДАЧИ ИССЛЕДОВАНИЙ

Как известно [9], в условиях термополевой эмиссии (TFE) электронов теоретически возможные значения плотности тока эмиссии J, а также  $\beta$  существенно (на три, четыре порядка величины) превышают соответствующие величины, характерные для режимов Шоттки-эмиссии (SE) и расширенной (Extended) Шоттки-эмиссии (ESE).

В связи с этим первоначально исследовалась возможность создания высокоинтенсивных и высокостабильных источников электронов, которые были бы способны функционировать в условиях TFE. Для этих исследований использовались как острийные эмиттеры, изготовленные из тугоплавких переходных металлов (W, Mo, Ta, Nb), так и ZrO/W<100> Шоттки-катоды (эмиттеры). Отметим здесь, что вершина острийного эмиттера обычно представляет собой микрокристалл (MK) заданной кристаллографической ориентации, причем поверхность вершины острийного МК либо является атомарно-чистой, либо, как это имеет место для ZrO/W<100> Шоттки-катодов, покрыта монослоем адсорбата.

Выполненные эксперименты показали, что в условиях TFE при температурах  $(T_s)$ , превышаю-

щих ~ 1500 К, эмиттеры с атомарно-чистой поверхностью, а также ZrO/W<100> Шоттки-катоды являются нестабильными источниками электронов. Физический механизм взаимосвязанных термополевых процессов, которые приводят к нестабильности тока эмиссии, возбуждению неустойчивости тока TFE и вакуумному пробою, описан в [10, 11]. Как показано в [10, 11], в условиях интенсивной TFE вакуумный пробой вполне закономерно развивается в сильных электрических полях ( $F_{\rm s} \sim 5.0 \cdot 10^7$  B/см) в результате формирования у вершины MK плазменного сгустка, ионная составляющая которого образуется вследствие полевой и ударной ионизации испаряющихся собственных поверхностных атомов вещества MK.

Таким образом, если опустить более подробное рассмотрение всего комплекса взаимосвязанных термополевых процессов, то на основании проведенных исследований можно констатировать, что в условиях интенсивной TFE (т. е. при  $T_s \ge (1500 - 1500)$ 2000) К,  $F_s \ge (4.0-5.0) \cdot 10^7$  В/см) как острийные эмиттеры, изготовленные по "классической" технологии Э. Мюллера [12], так и эмиттеры, изготовленные по стандартной технологии формирования ZrO/W<100> Шоттки-катодов [2], непригодны для практического использования в качестве стационарных источников электронов (катодов) в ЭОС различного назначения. Заметим, что вышесказанное не относится к так называемым автоэлектронным (или, как их сейчас принято называть, полевым) катодам, которые нашли практическое применение в просвечивающей и растровой электронной микроскопии сверхвысокого разрешения и успешно эксплуатируются в условиях  $T_{\rm s} = (77-300)$  К и  $F_{\rm s} < 4.0 \ 10^7$  В/см и соответственно характеризуются следующими эмиссионными параметрами:  $J \le 10^4$  A/см<sup>2</sup> и  $\beta < 10^8$  A/(м<sup>2</sup>·ср·В).

Другое важное следствие, очевидно, заключается в том, что поставленная в работе задача разработки и создания новых высокоинтенсивных стабильных источников электронов, способных функционировать в условиях интенсивной TFE, не может быть решена на основе традиционных технологических методов формирования острийных эмиттеров [2, 12].

В связи с этим в основу изложенного ниже метода создания новых высокоинтенсивных стабильных источников электронов были положены результаты работ [10, 13]. В этих работах было обнаружено, что интенсивная эмиссия (~ 10<sup>3</sup> A/см<sup>2</sup>) электронов с поверхности широкозонных полупроводниковых острийных эмиттеров (на основе MK CdS) может возбуждаться при весьма низких значениях напряженности поля (≤ 50 В/мкм) на границе раздела полупроводник—вакуум. В [10, 13] показано, что на процесс эмиссии, активируемой электрическим полем, могут оказывать существенное влияние такие факторы, как степень ле-

гирования CdS (атомами Ni) и температура эмиттера ( $T_{\rm s}$ ). Оказалось, что при относительно низкой степени легирования ( $n_{\rm Ni} \sim 10^{16} \, {\rm cm}^{-3}$ ) процесс электронной эмиссии возбуждается при невысоких значениях (менее ≈ 100–300 В) экстрагирующего потенциала ( $V_{e}$ ), причем зависимость полного тока эмиссии (I) от  $V_{\rm e}$  не подчиняется закону Фаулера-Нордгейма, а описывается степенной функцией вида:  $I \sim (V_e)^n$ , где  $n \approx 2 \pm 0.1$ . Кроме того, было показано, что при прочих равных условиях в широком диапазоне значений V<sub>е</sub> низколегированный CdS-эмиттер по сравнению с высоколегированным  $(n_{\rm Ni} \sim 10^{19} {\rm ~cm^{-3}}) {\rm ~CdS}$ -эмиттером имеет более высокие (на один, два порядка величины) значения  $\beta$ и Ө. Анализ обнаруженных "аномалий" в закономерностях эмиссионного процесса с поверхности CdS показал [10], что в случае низколегированных широкозонных полупроводников (или диэлектриков) в запрещенной зоне этих эмиттеров при определенных условиях формируется связанный (на локализованных состояниях (ловушках)) пространственный заряд, который даже при низком экстрагирующем потенциале на вытягивающем электроде создает сильные электростатические поля (~ 10<sup>3</sup> В/мкм и выше) на границе раздела (контакте) металл—полупроводник (диэлектрик). В сильном электрическом поле потенциальный барьер на границе раздела становится туннельнопрозрачным для электронов металла. Последующий перенос инжектированного в объем полупроводника (диэлектрика) потока электронов может осуществляться как по баллистическому, так и по прыжковому механизму. Развитые в [10] представления хорошо согласовались с теорией переноса заряда в гетерофазных макроструктурах типа: металл-диэлектрик-металл (вакуум), для которых (при монополярном характере инжекции носителей заряда в вещество диэлектрика) плотность тока проводимости пропорциональна квадрату разности потенциалов между поверхностями инжекции и стока носителей [14, 15].

Дальнейшие широкие исследования эмиссионных свойств систем металл-диэлектрик-вакуум, в которых в качестве вещества диэлектрика использовались углеродные и алмазоподобные пленки, а также графитовые нанотрубки и фуллерены, проводились и ведутся до настоящего времени во многих странах. Однако до последнего времени проблема, которую теперь принято называть "Low Macroscopic — Field Electron Emission" (LMFE), остается нерешенной [16]. Теория явления LMFE, которая была бы адекватна многочисленным экспериментальным данным, пока не создана, а применяемые физические нанотехнологии формирования металлопленочных систем не позволяют создавать источники электронов с априорно заданными и воспроизводимыми эмиссионными параметрами. Кроме того, разработанные экспериментальные образцы источников электронов на основе явления LMFE характеризуются сравнительно невысокими уровнями  $\beta$  и J и низкой временной стабильностью. Неудовлетворительная воспроизводимость эмиссионных свойств больших (~ 10–100 см<sup>2</sup>) металлопленочных макросистем может быть [16] обусловлена как локальной неоднородностью структуры границы раздела: металл—диэлектрик, так и зависимостью функции распределения плотности локализованных состояний в запрещенной зоне диэлектрика от вариаций и особенностей в нанотехнологиях формирования диэлектрических пленок, применяемых в различных экспериментах.

Учитывая вышеперечисленные факторы, для создания прототипа нового высокоинтенсивного источника электронов была выбрана наногетероструктура (НГ), представляющая собой тонкую пленку (~ 5–10 нм) особочистого ZrO<sub>2</sub> на поверхности вершины острийного МК W<100>, радиус закругления вершины которого составлял ~ 0.2–1.0 мкм.

Важно отметить здесь, что в отличие от ZrO/W<100> Шоттки-катодов, у которых толщина слоя адсорбата примерно равна одному монослою

(т. е. ~ 0.3 нм), в настоящей работе толщина слоя  $ZrO_2$  была многократно увеличена. Это позволяет при интерпретации результатов измерений рассматривать пленку  $ZrO_2$  как конденсированное вещество и соответственно использовать известные представления физики конденсированного состояния.

Для формирования пленок ZrO<sub>2</sub> заданной толщины использовался как метод молекулярнопучковой эпитаксии, так и метод автоэпитаксии ZrO<sub>2</sub> в условиях воздействия на НГ сильных электрических и тепловых полей. Для контроля за толщиной слоя диэлектрика применялся импульсный режим возбуждения эмиссии с поверхности формируемой НГ [10]. Оценка толщины слоя ZrO<sub>2</sub> осуществлялась посредством измерения характерных времен переходного процесса на осциллограммах эмиссионного тока [10, 14].

После разработки нанотехнологии воспроизводимого формирования тонких диэлектрических слоев на вершине МК W<100> были проведены исследования закономерностей активируемого электрическим полем процесса электронной эмиссии с поверхности НГ при различных температурах НГ.



**Рис. 1.** Блок-схема автоматизированного модуля для исследования эмиссионных свойств НГ на основе наногетероструктуры ZrO<sub>2</sub> /W<100>.

1 — ZrO<sub>2</sub> / W<100> острийный эмиттер; 2 — покрытый люминофором экстрагирующий электрод (коллектор); 3 — супрессорный электрод; 4 — дужка из поликристаллической W-проволоки (диаметром 0.127 мм); 5 — стабилизированный источник постоянного тока для нагревания W-дужки; 6 — компьютер; 7 — процессор; 8 — коммутатор напряжения; 9 — аналого-цифровой преобразователь; 10 — цифро-аналоговый преобразователь; 11 — стабилизированный источник напряжения, задающий потенциал супрессора; 13 — цилиндр Фарадея для измерения тока в приосевой части пучка; 14 — камера сверхвысоковакуумной установки; G — гальванометр; R — резистор

#### ТЕХНИКА И РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

Формирование НГ, а также исследование ее эмиссионных свойств проводилось в сверхвысоковакуумной физико-технологической установке, состоящей из двух модулей: 1 — технологический модуль для формирования исходной НГ и 2 — модуль для исследования эмиссионных свойств НГ. Описание технологического модуля установки приведено в [17]. Для исследования эмиссионных свойств сформированной НГ последняя посредством поворота в вакууме на заданный угол устанавливалась на оси автоматизированного модуля (АМ) установки. Блок-схема АМ показана на рис. 1. При проведении измерений рабочая температура поверхности НГ устанавливалась посредством пропускания определенного тока накала через поликристаллическую W-проволоку (дужку) 4. Разность потенциалов (до 30 кВ) между коллектором 2 и НГ 1 формировалась источником напряжения 11, на вход которого подавалось управляющее напряжение (в пределах от 0 до 10 В). Для измерения полного тока эмиссии использовался калиброванный прецизионный резистор R. Процессор 7, аналого-цифровой преобразователь 9, цифро-аналоговый преобразователь 10 и коммутатор напряжения 8 сопрягались с управляющим компьютером 6 при помощи интерфейсного канала RS232 на выходе СОМ-порта компьютера. Укажем, что цифро-аналоговый преобразователь 10 формирует управляющее напряжение высоковольтного источника 11 в диапазоне от 0 до 10 В, а аналого-цифровой преобразователь через коммутатор напряжения 8 производит как измерение тока эмиссии (посредством преобразования падения напряжения на R в цифровой код), так и напряжения высоковольтного источника 11. Программное обеспечение (ПО) АМ включает исполняемый файл Cathode.exe и два файла конфигурации — SysPar.cnf и ParRegVAF.cnf. Кроме того, операционная система (OC) должна содержать системные Mfc42.dll, Mfc42d.dll, Mfco42d.dll, файлы Msvcirtd.dll, Msvcrtd.dll. ПО работает в среде ОС Windows 98 и легко может быть адаптировано в среду ОС Windows XP. Более подробное описание АМ дано в [18].

Основные результаты исследований приведены на рис. 2–7. На рис. 2 показаны типичные вольтамперные характеристики (ВАХ) для одного и того же исходного острийного МК W<100>. Кривая 1 соответствует ВАХ острийного МК W<100>, на вершине которого сначала было создано монослойное покрытие молекулярными комплексами ZrO<sub>2</sub>. После проведения измерений ВАХ монослой ZrO<sub>2</sub> удалялся с поверхности МК W<100> за счет высокотемпературного (~ 2500–3000 К) испарения адсорбата. Затем на атомарно-чистую поверхность



Рис. 2. Вольт-амперные характеристики НГ, последовательно сформированных на одном и том же исходном острийном микрокристалле W<100> различными методами (точки — эксперимент, линии — аппроксимирующие аналитические функции):

1 — монослой  $ZrO_2/W(100)$  (Шоттки-катод), аппроксимация  $y = 0.0226 \cdot e^{0.0004x}$ ;

2 — тонкий слой ZrO<sub>2</sub>/W(100), аппроксимация  $y = 2 \cdot 10^{-8} \cdot x^{1.9876}$ 

МК W<100> из молекулярной пушки наносился тонкий (~ 5-10 нм) слой ZrO<sub>2</sub> и проводились следующие измерения ВАХ. Результаты этих измерений показаны на рис. 2 (кривая 2). Из рис. 2 следует, что функциональные зависимости для кривых 1, 2 существенно различаются. Так, для монослойного покрытия МК W<100> комплексами ZrO<sub>2</sub> в соответствии с уравнением для ESE [2] экспериментальная кривая  $I_{\rm e}(V_{\rm e})$  с достоверностью  $R^2$  = = 0.998 близка к экспоненте (рис. 2, кривая 1). Если же на вершине МК W<100> сформирован тонкий слой ZrO<sub>2</sub>, то BAX (рис. 2, кривая 2) представляет собой степенную функцию вида  $I_{\rm e} \approx V_{\rm e}^2 (R^2 =$ = 0.996), причем при прочих равных условиях полный ток эмиссии с поверхности ZrO<sub>2</sub>/W<100> источника в 2-3 раза превосходит полный ток эмиссии с поверхности ZrO/W<100> Шотткикатода. Если же учесть, что Шоттки-катод при полных токах, больших ~ 0.2-0.25 мА, переходит в режим TFE и утрачивает стабильность эмиссии,

то соотношение между полными токами эмиссии для этих источников возрастает более чем в 10 раз.





В

б



Рис. 3. Эмиссионные изображения микрокристалла W<100> на различных стадиях формирования структуры эмиттирующей поверхности источника электронов.

а — исходная атомарно-чистая поверхность скругленно-сглаженной вершины микрокристалла W<100>; б — распределение локальных участков эмиссии на вершине W<100> с монослойным по-крытием комплексами ZrO<sub>2</sub>; в — распределение ло-кальных участков эмиссии на вершине W<100>, по-крытой тонким слоем диэлектрика ZrO<sub>2</sub>

Наряду с указанными изменениями ВАХ в результате создания на вершине W<100> острийного МК тонкого слоя ZrO<sub>2</sub> происходит также существенная трансформация эмиссионного изображения. Сравнивая изображения поверхности МК W<100> для различных источников (рис. 3, б и рис. 3, в), легко видеть, что в условиях эмиссии с поверхности ZrO<sub>2</sub>/W<100> интенсивная эмиссия наблюдается только с поверхности локальных участков, прилегающих к трехгранным углам в направлениях типа <111>. Кроме того, необходимо отметить, что угол расходимости потоков электронов, эмиттированных вблизи направлений <111>, оказывается значительно (в 2-3 раза) меньшим, чем у центрального потока электронов, экстрагируемого с поверхности ZrO<sub>2</sub>/W(100) в режиме Шоттки-эмиссии.

Результаты измерений влияния температуры на процесс эмиссии с поверхности  $ZrO_2/W<100>$  источника приведены на рис. 4. Как видно из этого рисунка, зависимость  $I_e(T_s)$  является весьма сильной (близка к экспоненциальной) и имеет пороговый характер по величине температуры, начиная с которой (при фиксированном значении потенциала  $V_e$ ) происходит возбуждение процесса эмиссии. Кривая  $I_e(T_s)$  достигает максимума при  $T_s \approx \approx 2150$  K.



Рис. 4 Зависимость тока эмиссии от температуры для НГ, образованной тонким слоем  $ZrO_2$  на поверхности МК при фиксированном значении экстрагирующего потенциала ( $V_e = 6000$  B)

Совокупность приведенных выше данных не поддается простой интерпретации в рамках существующих представлений о механизмах известных эмиссионных явлений [9]. Как следует из экспериментальных данных, исследованный в работе эмиссионный процесс с поверхности ZrO<sub>2</sub>/W<100> НГ активируется электростатическим полем и демонстрирует весьма сильную зависимость эмиссионной способности НГ от температуры. В связи с тем, что формально такие эмиссионные процессы, как термоэлектронная эмиссия (TE), SE, ESE, а также полевая (автоэлектронная) эмиссия, являются частными случаями явления TFE, исследованному в работе эмиссионному процессу можно дать собственное наименование — аномальная термополевая эмиссия (ATFE).

Не останавливаясь пока на обсуждении механизма ATFE, отметим, что после завершения технологического процесса формирования НГ, процесс ATFE характеризуется высокой (~ 0.1 %/ч) временной стабильностью (см. рис. 5) и сверхвысокой (порядка ~  $10^{10}$  A/(м<sup>2</sup> ср  $\dot{B}$ ) приведенной яркостью  $\beta$  (см. рис. 6). Оценочные расчеты величины  $\theta$  для каждого из потоков электронов в направлениях, близких к <111> (см. рис. 3, б), показали, что данный параметр достигает значений ~ 10<sup>2</sup> мА/ср. Отметим, что вклад в полный ток эмиссии (I<sub>e</sub>) от всех 4 потоков электронов в направлениях типа <111> составляет от ~ 80 до ~ 90 %. Откуда следует, что использование разраисточников ботанных электронов вила ZrO<sub>2</sub>/W<111> в ЭОС формирования микрозондов позволит создавать микрозонды с током до ~ 0.5 мА (и более) и плотностью мощности до  $\sim 1.0 \text{ TBt/cm}^2$ .

#### ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Для интерпретации установленных в работе закономерностей ATFE будем основываться на полученных экспериментальных данных. Согласно этим данным, плотность тока в области тетраэдрических углов в направлениях <111> (см. рис. 3, в) может достигать значений ~  $10^8-10^9$  A/см<sup>2</sup>. Этот результат означает, что инжекция электронов через границу раздела (металл (W))—(диэлектрик (ZrO<sub>2</sub>)) может происходить только по туннельному (или точнее, термополевому) механизму [9, 11], и, следовательно, на этой границе в условиях ATFE создается сильное (порядка ~  $10^8$  B/см) электрическое поле ( $F_{si}$ ).

Для полусферической модели границы раздела диэлектрик—вакуум в одномерном приближении локальное значение напряженности поля в произвольной точке на межфазовой границе раздела W—ZrO<sub>2</sub> можно представить в виде



Рис. 5. Характерная кривая временной стабильности полного тока эмиссии с поверхности НГ (тонкий слой ZrO<sub>2</sub>/ W <100>)



Рис. 6. Зависимость параметра  $\beta$  от экстрагирующего потенциала для НГ, сформированных различными технологическими методами: 1 — монослой ZrO<sub>2</sub>/W<100> (или Шоттки-катод); 2 — тонкий слой ZrO<sub>2</sub>/W<100>

$$F_{\rm si} = \frac{\gamma}{\varepsilon} F_{\rm L} + F_{\rm lc} - F_{\rm sc}, \qquad (1)$$

где  $\gamma$  — локальный фактор усиления поля;  $\varepsilon$  — относительная диэлектрическая проницаемость;  $F_{\rm L}$  — напряженность (лаплассового) поля на границе раздела диэлектрик—вакуум;  $F_{\rm lc}$  — поле пространственного заряда, локализованного на уровнях доноров в запрещенной зоне диэлектрика;  $F_{\rm sc}$  — поле пространственного заряда потока электронов.

Входящие в (1) величины  $\gamma$ ,  $F_{lc}$  и  $F_{sc}$  являются неизвестными, поэтому для определения вклада каждого из слагаемых будем использовать как

вышеприведенные данные, так и результаты работ [19–21].

Т. к. геометрия электродов и вершины эмиттера (рис. 1) аналогична геометрии электродов, описанной в [2], то из данных этой же работы следует, что в условиях настоящих экспериментов напряженность (лаплассового) поля  $F_{\rm L}$  на границе раздела диэлектрик-вакуум во всем исследованном диапазоне изменения  $V_e$  не превышала ~ 3.0·10<sup>7</sup> В/см. Принимая во внимание, что в условиях ТFE при высоких плотностях тока (вплоть до  $J \approx 10^9 \text{ A/cm}^2$ ) напряженность поля пространственного заряда  $\dot{F}_{\rm sc}$  не превосходит ~ 10<sup>7</sup> В/см [19], и учитывая, что в зависимости от технологии формирования и толщины пленки численное значение є для пленок ZrO2 может варьироваться в пределах от ~ 5 до ~ 32 [20], а параметр у (для направлений типа [111]) удовлетворяет неравенству  $\gamma \le 5$  [12], получим такую оценку:

$$\left| \frac{\gamma}{\varepsilon} \cdot F_{\rm L} - F_{\rm sc} \right| \le 0.2 \cdot F_{\rm lc} \,. \tag{2}$$

Таким образом, из (2) следует, что в условиях АТFE основной вклад в результирующее поле  $F_{si}$  создается объемным зарядом в пленке ZrO<sub>2</sub>. Согласно рис. 4, напряженность поля  $F_{lc}$  при фиксированном значении  $V_e$  весьма сильно зависит от температуры. На участке роста тока (рис. 4) зависимость  $I_{e}(T_{s})$  близка к экспоненте. Такой характер температурной зависимости, по-видимому, обусловлен возрастанием поля  $F_{lc}$  за счет роста концентрации заряда на локализованных уровнях донорного типа в запрещенной зоне ZrO<sub>2</sub>. Как представляется, рост концентрации заряда в этих условиях прежде всего связан с фотоионизацией локализованных состояний равновесным тепловым излучением вещества НГ, а также, разумеется, определенный вклад в этот процесс должна вносить термоэлектронная ионизация в электростатическом поле (ионизация по Френкелю). В рамках этих представлений переход кривой I<sub>e</sub>(T<sub>s</sub>) через экстремум при температурах, больших ~ 2150 К (рис. 4), вызван смещением максимума спектра равновесного теплового излучения в более коротковолновую область (по закону Вина). Отметим, что, согласно предложенной интерпретации, в запрещенной зоне ZrO<sub>2</sub> функция распределения плотности локализованных состояний должна иметь экстремум в "точке" ~ 0.84 эВ ниже дна зоны проводимости ZrO<sub>2</sub>. Кроме того, при T ~ ~ 2000 К возможно аллотропное изменение структуры диэлектрика [21], которое может сопровождаться уменьшением плотности локализованных состояний.



Рис. 7. Энергетическая диаграмма НГ (тонкий слой ZrO<sub>2</sub>/W<100>) в условиях АТFE (ионизованные уровни локализованных состояний показаны знаком +, остальные обозначения являются общепринятыми)

На рис. 7 представлена энергетическая диаграмма исследованной НГ в условиях ATFE. В этих условиях (ATFE) концентрация объемного заряда возрастает настолько, что доминирующим механизмом инжекции в пленку диэлектрика становится процесс TFE.

В рамках вышеизложенных представлений квадратичная функциональная зависимость  $I_e$  от  $V_e$ (рис. 2, кривая 2) является следствием ограничения потока электронов пространственным зарядом в слое ZrO<sub>2</sub>. Аномально высокие (по сравнению с Шоттки-катодом) значения  $\beta$  и  $\theta$  для разработанного источника электронов обусловлены специфическими кристаллографическими особенностями наногетероструктуры, которая формируется на вершине МК переходного металла в условиях высокотемпературного эпитаксиального роста тонкого слоя ZrO<sub>2</sub> в сильных электрических полях. В этих условиях одновременно с формированием слоя диэлектрика происходит процесс термополевой перестройки МК W [10, 22]. Процесс термополевой перестройки заканчивается после огранки МК плотноупакованными гранями типа {100}, {110} и {112} или гранями типа {100}, {110}. Заметим, что это завершенное состояние огранки принято называть "равновесной формой кристалла". Для кристаллов в равновесной форме свободная поверхностная энергия достигает минимального значения. В результате образования равновесной формы МК граница раздела металл-диэлектрик представляет собой многогранник, состоящий из плоских участков, образованных плотноупакованными гранями. Стыкам плотноупакованных граней соответствуют направления типа [111], вблизи которых локальная кривизна поверхности имеет максимальное значение [12]. В связи с этим в условиях ATFE наибольшее численное значение фактора  $\gamma$  и соответственно  $F_{si}$  в (1) должно отвечать направлениям типа [111], что и наблюдается экспериментально (см. рис. 3, в). Если исходить из весьма реалистичной оценки линейных размеров (~ 10-30 нм) для наиболее интенсивно эмиттирующих локальных участков поверхности вблизи направлений [111], то, как отмечалось выше, плотность тока ATFE для этих участков будет составлять ~  $10^8 - 10^9$  А/см<sup>2</sup>. Откуда следует, что при  $\Omega \le 0.01$  ср для каждого из четырех потоков (рис. 3, в)  $\beta$  достигает значений ~  $10^{10}$  A/(м<sup>2</sup>·ср·В) и выше, а  $\theta \ge 10^2$  мA/ср.

В заключение представляет интерес оценить среднюю объемную плотность заряда  $(n_v)$  на локализованных состояниях на границе раздела W <100>—ZrO<sub>2</sub>, а также плотность  $(N_v)$  этих состояний. В приближении однородного распределения связанного заряда в пленке диэлектрика можно положить  $F_{lc} \sim \{e (n_v)^{2/3} / \varepsilon_0\} \approx 10^8$  В/см, где e — заряд электрона,  $\varepsilon_0$  — электрическая постоян-

ная. Тогда имеем такую оценку:  $n_v \approx 10^{20}$  см<sup>-3</sup>. Полагая  $N_v \approx n_v/E_{\rm g}$ , где  $E_{\rm g}$  — ширина запрещенной зоны ZrO<sub>2</sub> ( $E_{\rm g} \approx 7.8$  эВ [21]), получим  $N_v \approx \approx 10^{19}$  см<sup>-3</sup>·эВ<sup>-1</sup>. Последняя оценка дает основания полагать, что в условиях АТFE тонкий слой ZrO<sub>2</sub> на поверхности МК W<100> является структурнонеупорядоченным, или другими словами находится в аморфном состоянии [23]. Если последнее заключение справедливо, то высокая стабильность процесса АTFE объясняется высокой инертностью аморфных пленок по отношению к взаимодействию с газами, а также большой энергией когезии аморфных оксидных пленок.

Основные результаты работы заключаются в следующем.

1. Разработана и создана оригинальная физическая нанотехнология формирования самоорганизованных НГ, образованных тонким (~ 5–10 нм) слоем диэлектрика (ZrO<sub>2</sub>) на поверхности острийного микрокристалла W<100>.

2. На основании исследований полевых эмиссионных свойств разработанных НГ показано, что при определенных температурах созданные НГ являются новыми высокоинтенсивными и высокостабильными точечными источниками электронов и характеризуются уникальными эмиссионными параметрами, а именно приведенной яркостью  $\beta$ до ~ 10<sup>10</sup> A/(m<sup>2</sup>·cp·B) и угловой интенсивностью эмиссии  $\theta$  до ~ 10<sup>2</sup> мА/ср.

3. Показано, что закономерности активированной электрическим полем электронной эмиссии не согласуются с теорией явления термополевой эмиссии. Обнаруженному эмиссионному явлению дано специальное наименование — ATFE. Предложена феноменологическая модель механизма ATFE.

Работа выполнена при поддержке РФФИ, грант № 05-08-33545а.

# СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. Силадьи М. Электронная и ионная оптика. М.: Мир, 1990. 640 с.
- 2. Swanson Lyn W., Schwind Gregory A. A review of the ZrO/W Schottky cathode // Handbook of Charged Particle Optics / Ed. J. Orloff. CRC Press, Boca Raton, Fl, 1997. P. 77–102.
- 3. Fransen M.J., Overwijk M.H.F., Kruit P. Brightness measurments of a ZrO/W Schottky emitter in a transmission electron microscope // Applied Surface Science. 1999. V. 146. P. 357– 362.
- 4. *Лучинин В.В.* Микросистемная техника. Направления и тенденции развития // Научное приборостроение. 1999. Т. 9, № 1. С. 3–18.
- 5. Patent WO 2005001492.

- 6. *Brau C.F.* High-brightness electron beams small free-electron lasers // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. 1998. V. 407. P. 1–7.
- Tsai C.C., Foster C.A., Milora S.L., Schechter D.E., Whealton J.H. Electron-beam rocket acceleration of hydrogen pellets // J. Vac. Sci. Technol. Jul./Aug. 1993. V. 11, N 4. P. 1252– 1257.
- 8. *Klimenkov M., Matz W., Nepijko S.A., Lehman M.* Crystallization of Ge nanoclusters in SiO<sub>2</sub> caused by electron irradiation in TEM // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B. 2001. V. 179. P. 209–214.
- Модинос А. Авто-, термо- и вторичноэлектронная эмиссионная спектроскопия: Пер. с англ. / Под ред. Г.Н. Фурсея. М.: Наука, 1990. 320 с.
- Птицын В.Э. Термополевые процессы, активируемые воздействием сильных электрических полей и концентрированных потоков энергии на конденсированное вещество. Дис. ... д-ра физ.-мат. наук. СПб.: ИАнП РАН, 1996. 345 с.
- 11. *Ptitsin V.E.* Non-Stationary Thermal field emission // Advances in Imaging and Electron Physics / Ed. P.W. Hawkes. Academic Press, 2000. V. 112. P. 165–231.
- 12. *Мюллер Э., Цонг Т.* Автоионная микроскопия. М.: Металлургия, 1972. 360 с.
- 13. Птицын В.Э., Егоров Н.В., Баскин Л.М. Исследование стационарной и импульсной автофотоэлектронной эмиссии из низкоомных монокристаллов CdS // Тезисы XVII Всес. конф. по эмиссионной электронике. Ленинград, 1978. С. 361–362;

Баскин Л.М., Птицын В.Э., Егоров Н.В. и др. // Письма в ЖТФ. 1979. Т. 5, вып. 22. С. 1345– 1348.

14. Ламперт М., Марк Р. Инжекционные токи в

твердых телах. М.: Мир, 1973. 416 с.

- 15. Зи С.М. Физика полупроводниковых приборов М.: Энергия, 1973. 656 с.
- 16. *Forbes R.G.* Low-macroscopic-field electron emission from carbon films and other electrically nanostructured heterogeneous materials: hypotheses about emission mechanism // Solid-State Electronics. 2001. V. 45, N 6. P. 779–808.
- 17. Птицын В.Э., Максимов С.В. Термополевой катод с двойной локализацией эмиссии // Научное приборостроение. 1999. Т. 9, № 4. С. 51– 61.
- Птицын В.Э., Бардин Б.В., Волкова Н.А., Демидов В.Н., Монаков А.Г. Система автоматизации исследований эмиссионных свойств термополевых источников электронов // Научное приборостроение. 2004. Т. 14, № 4. С. 3–9.
- Птицын В.Э., Комяк Н.И., Кольцов С.Н. О влиянии поля пространственного заряда эмиттируемых электронов на процесс термополевой эмиссии // Доклады РАН. 1998. Т. 363, № 3. С. 319.
- Chang J.P. et al. Ultrathin zirconium oxide films as alternative gate dielectrics // J. Vac. Sci. Technol. B. Nov./Dec. 2001. V. 19, N 6. P. 2137– 2143.
- Sayan S. et al. // Structural, electronic and dielectric properties of ultrathin zirconia films on silicon // Applied Physics Letters. 2005. V. 86, N 15 (152902, 3 pages).
- 22. Ненакаливаемые катоды / Под ред. М.И. Елинсона. М.: Сов. Радио, 1974. 336 с.
- 23. *Мотт Н., Дэвис Э.* Электронные процессы в некристаллических веществах. Т. 1. М.: Мир, 1982. 368 с.

Институт аналитического приборостроения РАН, Санкт-Петербург

Материал поступил в редакцию 5.09.2005.

# NEW HIGH-INTENSITY POINT ELECTRON SOURCE

## V. E. Ptitsin

Institute for Analytical Instrumentation RAS, Saint-Petersburg

The paper presents a new physical technology to produce self-assembled nanoheterostructures formed in thin ( $\sim$ 5–10 nm) (ZrO<sub>2</sub>) dielectric layers at the surface of pointed W<100> microcrystals. The studies of thermally activated electron emission from the ZrO<sub>2</sub>—vacuum interface into vacuum under electrostatic field have shown that the electron emission behavior does not agree with the thermal field emission theory. The phenomenon studied was called the abnormal thermal field emission. It has been found that the normalized brightness and angular intensity of emission from the nanoheterostructure surface are two orders of magnitude higher than those of ZrO/W<100> Schottky cathodes. A phenomenological model for the mechanism of thermal field emission is offered.