

Многочастичные процессы при полевой электронной эмиссии из структурированного углерода

© *В.И. Маслов*

Санкт-Петербургский государственный университет телекоммуникаций
им. проф. М.А. Бонч-Бруевича
E-mail: mvi58@yandex.ru

*Поступило в Редакцию 24 июля 2006 г.
В окончательной редакции 25 июля 2007 г.*

Проведены исследования статистики полевой электронной эмиссии (ПЭЭ) из углеродных материалов. Обнаружена многочастичная ПЭЭ из фуллереносодержащего углерода. Анализ экспериментальных данных указывает на закономерности полученных результатов с ранее проведенными исследованиями статистики ПЭЭ из ВТСП. Обсуждаются модели механизма многоэлектронных процессов.

PACS: 71.20.Tx, 79.70.+q

Электронные свойства углеродных структур, таких как алмазоподобные пленки, наноуглеродные трубки, фуллерены, обладают рядом специфических особенностей. Особый интерес представляет полевая электронная эмиссия (ПЭЭ) из углеродсодержащих материалов, отличающаяся аномально высокой эффективностью эмиттеров. Выполненные расчеты для углеродных катодов с учетом усиления поля и понижения работы выхода не позволяют говорить о завершенной адекватной модели эмиссионного механизма; в первую очередь, это относится к наноуглеродным трубкам [1].

Вследствие указанной и других причин, теоретические подходы кроме традиционных одноэлектронных приближений учитывают также сложные кооперативные взаимодействия электронов на поверхности и внутри твердого тела. Вполне возможно, что за большинство разнообразных физических эффектов в структурированном углероде ответственен один механизм электронного взаимодействия, проявляемый в различных условиях по-разному.

Здесь, как и в аналогичных случаях исследования физических явлений, при разработке адекватной модели взаимодействия выдвигается на передний план задача корректного использования экспериментальных данных; при этом более высокий приоритет отводится прямым экспериментальным наблюдениям.

Предлагаемая работа, выполненная в контексте вышесказанного, посвящена поиску и исследованию корреляционных электронных эффектов при эмиссии из структурированного углерода прямым экспериментальным методом.

Известно, что при ПЭЭ электроны туннелируют в вакуум без предварительного возбуждения. Тем самым эмиссионный поток содержит информацию о пространственно-временных корреляциях, происходящих как на поверхности твердого тела, так и (что более важно) внутри него. В наших исследованиях использовалась методика изучения численности элементарных актов ПЭЭ и распределения актов по их численности, т.е. статистика ПЭЭ, изложенная в работах [2,3]. Для этой цели применялся спектрометр, использующий принцип энергетической дисперсии, включающий в себя пропорциональный детектор и амплитудный анализатор импульсов с временным разрешением $\sim 5 \mu\text{s}$. Подчеркнем, что применение в установке зондового метода дает возможность кроме временной корреляции изучать пространственную корреляцию, размерные эффекты и выделять особенности ПЭЭ в различных кристаллографических направлениях.

Излагаемые ниже результаты (в отличие от предыдущих работ [4,5]) получены на модернизированной установке. Измерения проводились в режиме непрерывной откачки при вакууме (10^{-5} – 10^{-6}) Па. В качестве объекта изучения использовался фуллеренсодержащий углерод. Тренировка и активация катода проводилась в вакууме (10^{-3} – 10^{-6}) Па и состояла из этапа прогрева и обезгаживания, а затем режима отбора эмиссионного тока. В результате тренировки увеличивался эмиссионный ток при фиксированном катодном напряжении и значительно возрастала стабильность тока ПЭЭ (уменьшение низкочастотных флуктуаций достигало 10–30 раз).

Автоэмиссионная картина, наблюдаемая с помощью катодно-люминесцентного стекла на аноде экспериментального прибора, была в виде нерегулярной структуры отдельных пятен различной яркости.

Вольт-амперные характеристики (ВАХ) полного тока, учитывая многоцентровый характер эмиссии, неудобны для интерпретации. Поэтому наряду с ВАХ полного тока были измерены и ВАХ с локальных

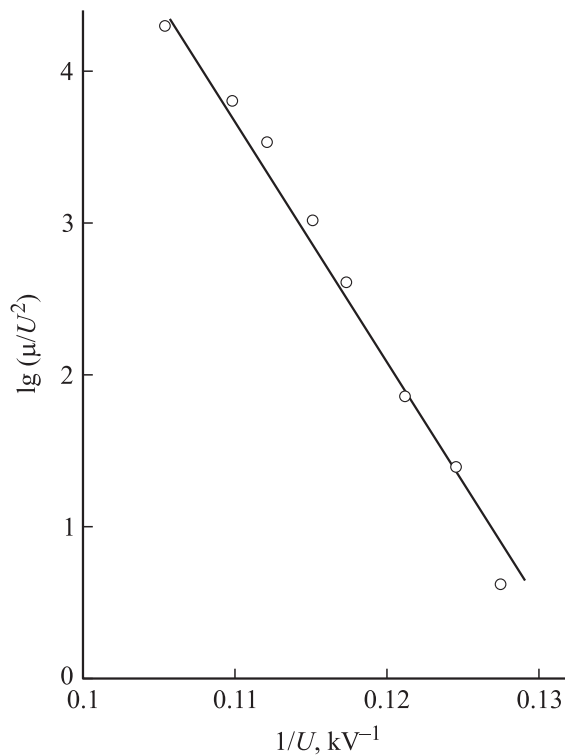


Рис. 1. Зондовая ВАХ, измеренная при ПЭЭ из фуллеренсодержащего углерода; μ — интенсивность потока электронов сквозь зондовое отверстие, U — напряжение на катоде.

участков, используя зондовый метод: измерение интегральной величины потока электронов проводилось дифференциальным способом — в режиме счета отдельных электронов. Типичная ВАХ с локального участка показана на рис. 1. Диаметр зондирующей диафрагмы в данном случае составлял $100 \mu\text{m}$. ВАХ, построенная в координатах Фаулера—Нордгейма, является отрезком прямой (в пределах ошибки измерений).

Измерения статистики ПЭЭ проводились в диапазоне величины зондового потока (10 – 10^4) е/с. Для улучшения энергетического разрешения были применены новые схемные решения зарядочувствитель-

ного усилителя с использованием зарубежных полевых транзисторов. Было достигнуто энергетическое разрешение ~ 1.5 keV, что на 0.6 keV меньше, чем в предыдущих работах [4,5]. Эта приборная модернизация позволила повысить точность измерений и также значительно улучшить стабильность и надежность работы всего спектрометрического тракта. Последнее всегда составляло трудную техническую задачу из-за существенного влияния высоковольтной части установки на работу предварительного усилителя — это воздействие является одной из главных причин электрических помех и наводок.

В качестве базовых проведены измерения статистики ПЭЭ из неструктурированного углерода с различных участков катода: с сильно- и слабоэмитирующих. Один из полученных спектров приведен на рис. 2, *a*. Обработка результатов измерения показала, что в этих случаях эмиссионные акты являются одноэлектронными с точностью не хуже 99.9% (при скорости счета не более 1000 e/s).

Для фуллеренсодержащего углерода характер эмиссии принципиально иной — с различных образцов наблюдалась многочастичная ПЭЭ. Полученные спектры статистики указывают на корреляционные процессы из двух и трех электронов, а в некоторых случаях и с участием четырех электронов. Один из многопиковых спектров статистики показан на рис. 2, *b*. Относительная доля групп из двух электронов в общем эмиссионном потоке составляет $\sim 3\%$, что в 30 раз превышает уровень пуассоновских наложений при данных условиях эксперимента: загрузка полупроводникового детектора составила ~ 500 e/s, разрешающее время $t_p \sim 5$ μ s. Интенсивность групп из трех электронов превышает уровень импульсов наложений в 50 раз. С некоторых участков катода уверенно регистрируется над уровнем фона пик, обусловленный группами из четырех электронов. Многочастичная ПЭЭ наблюдалась в температурном интервале (200–400) K, в диапазоне зондового потока (10 – 10^4) e/s: существенных зависимостей статистики при указанных условиях эксперимента не выявлено. В течение времени наблюдений, составлявшем десятки минут, параметры спектров также оставались неизменными.

Как представляется вполне вероятным, один из возможных механизмов многоэлектронной эмиссии может включать в себя локализованные состояния на поверхности образца. В этих локализованных состояниях в течение их жизни группируются связанные электроны, которые своим объединенным зарядом создают „выталкивающее“ поле, потенциал

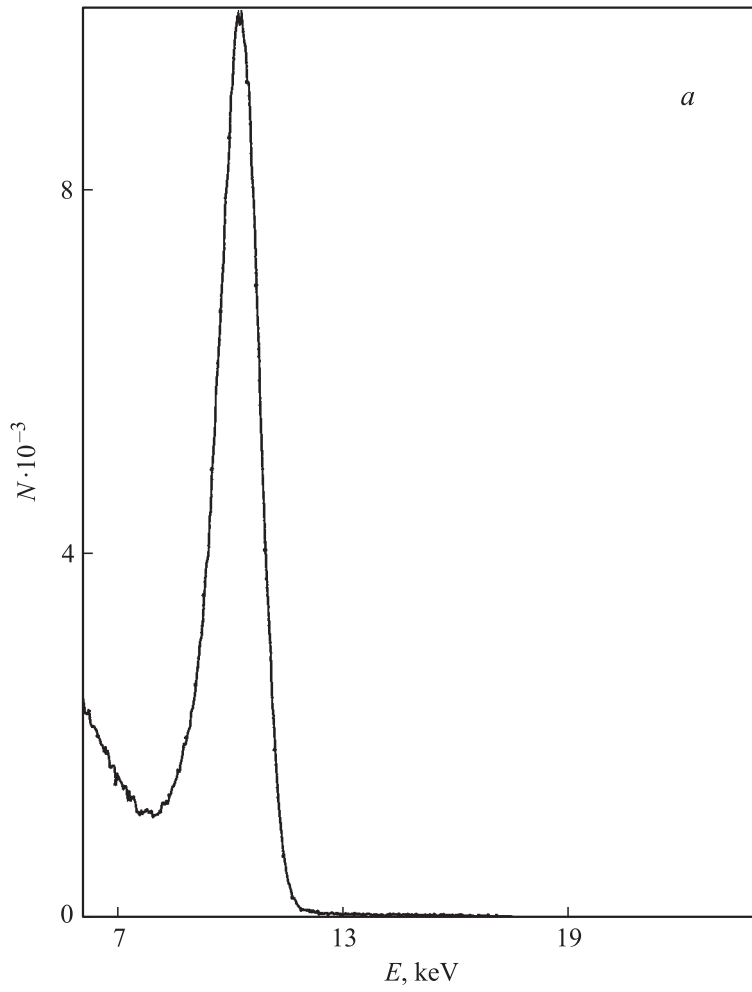


Рис. 2. Спектр статистики ПЭЭ: *a* — из неструктурированного углерода, *b* — из фуллеренсодержащего углерода. N — число отсчетов анализатора, E — энергия.

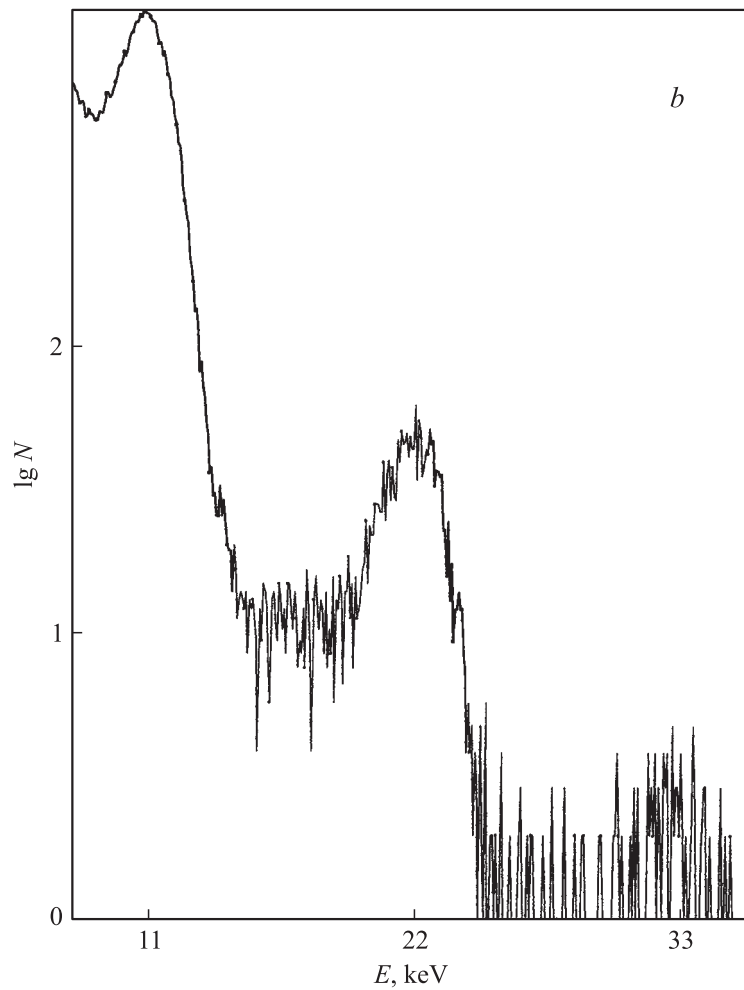


Рис. 2 (продолжение).

электронов повышается относительно электронов проводимости, и, как следствие, это приводит к локальному понижению работы выхода (рис. 3, *a*). Рассматриваемая ситуация аналогична „вытягивающему“

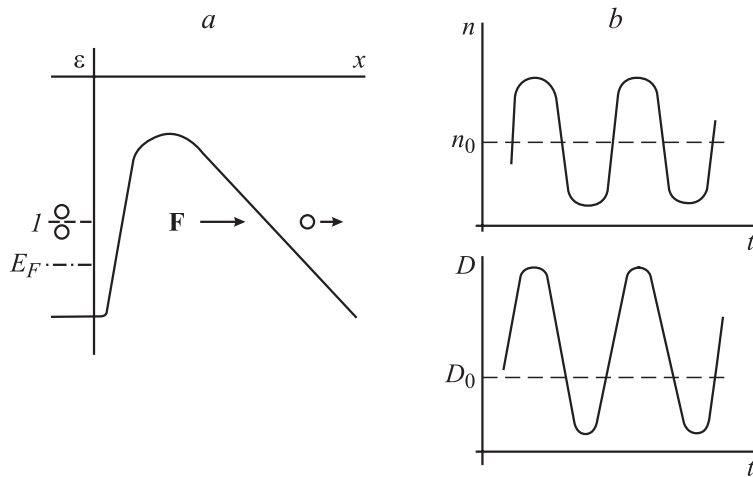


Рис. 3. *a* — энергетическая диаграмма вблизи поверхности эмиттера. Здесь: I — локализованные состояния, F — „выталкивающее“ поле. *b* — поведение во времени параметров электронного газа в плазмоне; n_0 , D_0 — параметры невозмущенных электронов.

полю положительных адатомов на поверхности эмиттера. При такой модели многочастичного процесса можно определить некоторые перво-степенные условия на вероятность его протекания.

1. Время электрон-электронной корреляции t_k в группе должно быть больше времени туннелирования, чтобы на протуннелировавший в вакуум электрон действовала сила отталкивания („выталкивающая“ сила) оставшихся $(k - 1)$ электронов, которая может быть больше силы изображения. В нашем случае $t_k \sim t_{rp}/k$, где t_{rp} — время, за которое регистрируется вся группа из скоррелированных k электронов; очевидное условие в наших измерениях $t_{rp} < t_p$. Проведенный в работе [6] расчет времени туннелирования, рассматриваемого как время пролета области потенциального барьера, дает значение $\sim 10^{-15}$ s. Времена электрон-электронного и электрон-фононного взаимодействия в твердом теле имеют значения порядка $(10^{-12} - 10^{-8})$ s, и, таким образом, первое условие выполняется.

2. Время жизни рассматриваемого локализованного состояния должно быть больше t_k . Мы видим, что в этих двух условиях фигурирует

время корреляции, которое по данной методике невозможно определить (разрешить), но его можно надежно определить с высокой точностью по уникальным методикам, описанным в [7,8]. Экспериментально измерив t_k , мы сможем не только ответить на вопрос, верна ли наша модель, но, главное, конкретизировать сам механизм взаимодействия.

Посмотрим теперь, как одновременно интерпретировать многочастичный характер эмиссии и ВАХ, типичную для одноэлектронного туннелирования при ПЭЭ. Во-первых, общая доля многоэлектронных актов составляет всего несколько процентов в общем эмиссионном потоке, большая часть в котором приходится на одиночные электроны, которые и определяют вид кривой на графике ВАХ (в нашем случае — прямой). Во-вторых, существенно более важным является изучение эмиссии при больших плотностях тока, превышающих реальные плотности зондового тока в данной работе на 3–6 порядков величины. Возможно, зависимость интенсивности потока от численности элементарных актов будет принципиально иной, соответственно изменится и поведение ВАХ. Указанные плотности тока могут быть исследованы при чувствительности к парным актам не хуже 0.1% (как и нынешние данные) с использованием уже упоминавшихся методик [7,8].

Уместно отметить, что в СПбГУТ проведен систематизированный цикл исследований статистики ПЭЭ с разных материалов и в различных условиях. Однако, если не учитывать размерные эффекты [5], только в соединениях ВТСП наблюдались подобные многочастичные процессы [9,4]. Поэтому разумно посмотреть, какие еще закономерности сближают ВТСП и наноуглеродные структуры. Во-первых, в допированных фуллеренах обнаружена сверхпроводимость с довольно высокой критической температурой. Во-вторых, оказывается, что в углеродных наноструктурах при относительно высоких температурах могут протекать незатухающие, а возможно и сверхпроводящие токи [10]. Последнее сообщение коррелирует с псевдощелевым состоянием в ВТСП. Эти перечисленные факты являются весьма интригующим совпадением. В связи с этим следует рассмотреть модель многочастичного взаимодействия в электронной подсистеме, ответственного одновременно за объемные явления переноса и поверхностные эмиссионные эффекты. Коллективные корреляции электронного газа наблюдаются при возбуждении плазмонов — колебаний электронной плотности. Поведение возмущенного электронного газа в плазмоне на поверхности эмиттера поясняется рис. 3, *b*; воспользуемся также выражением для плотности

тока ПЭЭ: $j = e \int_0^{\infty} n(\varepsilon)D(\varepsilon)d\varepsilon$, где n — число электронов, пришедших к единичной площади потенциального барьера, D — коэффициент прозрачности, ε — энергия. В течение полупериода плазменного колебания, когда плотность электронного газа у поверхности катода увеличивается, будет происходить усиление эмиссии как из-за увеличения концентрации электронов, так и из-за уменьшения работы выхода, обусловленного возбужденными состояниями электронов: $E_p > E_F$, где E_p — энергия электрона в плазмоне, E_F — энергия Ферми. Учитывая, что плазмоны являются продольными колебаниями, при определенных пространственно-временных параметрах эксперимента можно ожидать с высокой вероятностью туннелирование сквозь барьер групп из нескольких электронов, что мы наблюдаем реально. Уменьшение тока эмиссии в течение полупериода плазмона с пониженной концентрацией электронов по абсолютной величине будет меньше прибавки тока в течение предыдущего полупериода из-за разницы прозрачности потенциального барьера для электронов рассмотренных полуволн. Таким образом, среднее за период изменение тока будет положительным.

Модель плазмонов не раз предлагалась для обсуждения при рассмотрении механизма ВТСП; впервые модель спаривания электронов за счет электронных возбуждений была предложена Литтлом и Гинзбургом. Она основывается на многозонном характере электронного спектра и слоистой структуре сверхпроводника, что может приводить к образованию двух групп электронов: одной — в зоне проводимости, другой — почти локализованной. В более поздних работах плазмонный механизм был уточнен и согласован с новыми экспериментальными данными. В связи с этим уместно сообщить, что мы обнаружили эффект „гигантского“ скачка тока ПЭЭ из ВТСП, находящегося в псевдощелевом состоянии (материал готовится к печати).

Подведем некоторые итоги. При ПЭЭ из фуллеренсодержащего углерода наблюдаются группы из скоррелированных электронов. Анализ полученных результатов с учетом ранее полученных данных по ВТСП указывает на определенные закономерности. Для конкретизации моделей многочастичных процессов обозначены два вектора цели, пересекающиеся в одной „квaziточке“: проведение систематизированных исследований пространственно-временных корреляций ПЭЭ при больших плотностях тока и с высоким временным разрешением по методикам [7,8]. Это касается углеродных структур и ВТСП-соединений.

Немаловажный вопрос: повернется ли вектор грантообразующих российских фондов к указанной цели?

Автор искренне благодарит А.Л. Шилова и В.Н. Куликова за оказанную помощь при проведении исследований.

Список литературы

- [1] *Елецкий А.В.* // УФН. 2002. Т. 172. № 4. С. 401–438.
- [2] *Афанасьева Н.П., Егоров Н.В., Кочерыженков А.В., Фурсей Г.Н.* // ПТЭ. 1982. № 5. С. 141–142.
- [3] *Fursey G.N., Kocheryzhenkov A.V., Maslov V.I.* // Surf. Sci. 1991. V. 246. P. 365–372.
- [4] *Маслов В.И.* // Письма в ЖТФ. 2001. Т. 27. В. 4. С. 47–51.
- [5] *Маслов В.И.* // Письма в ЖТФ. 2001. Т. 27. В. 5. С. 72–75.
- [6] *Sokolovski D., Baskin L.M.* // Phys. Rev. A. 1987. V. A36. N 10. P. 4604–4608.
- [7] *Маслов В.И., Фурсей Г.Н., Кочерыженков А.В.* // ПТЭ. 1990. № 2. С. 145–149.
- [8] *Маслов В.И.* А.с. 1746340.
- [9] *Фурсей Г.Н., Кочерыженков А.В., Маслов В.И., Смирнов А.П.* // Письма в ЖТФ. 1988. Т. 14. В. 20. С. 1853–1856.
- [10] *Цебро В.И., Омеляновский О.Е.* // УФН. 2000. Т. 170. № 8. С. 906–912.