

## Универсальная методика экспериментального определения напряженностей испаряющих электрических полей для полевых эмиттеров ионов

© О.Л. Голубев

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН,  
194021 Санкт-Петербург, Россия  
e-mail: O.Golubev@mail.ioffe.ru

(Поступило в Редакцию 4 июня 2015 г.)

Описывается оригинальная методика экспериментального определения величин напряженностей испаряющих полей  $F_{ev}$  для полевых эмиттеров. Методика является универсальной и пригодна для любых полевых эмиттеров, в том числе и для наноразмерных выступов, выращенных *in situ* на поверхности таких эмиттеров для усиления локализации эмиссии. Приведены примеры определения величин  $F_{ev}$  для эмиттеров из некоторых металлов, а также и проанализированы ограничения методики.

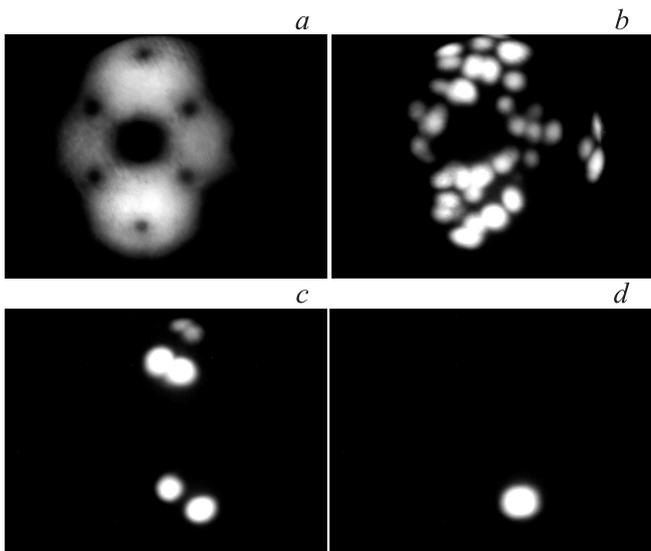
### Введение

Эмиттеры заряженных частиц, использующие явление полевого испарения (полевые эмиттеры), могут представлять большой интерес как источники ионов для разнообразных электронно-лучевых приборов высокого разрешения, а также и для целей нанотехнологии. Однако для эффективного использования таких эмиттеров в приборах высокого разрешения и нанотехнологии необходимо резко повысить локализацию эмиссии. Подобное повышение локализации успешно достигается с помощью выращивания на поверхности острейного полевого эмиттера с радиусом кривизны острия обычно  $r \sim 1 \mu\text{m}$  наноразмерных выступов, имеющих  $r \sim 1-10 \text{ nm}$ , позволяющих резко усилить *in situ* локальную величину напряженности электрического поля  $F$  и уменьшить величину углов эмиссии от  $1-2 \text{ sr}$  до  $n \cdot 10^3 \text{ sr}$  [1]. Как точечные источники электронов они вполне конкурентоспособны по сравнению с эмиттерами на основе единичных углеродных нанотрубок [2], как точечные источники ионов различных элементов нановыступы вообще не имеют конкурентов [3,4]. Главный принцип работы подобных ионных источников — полево испарение атомов в виде ионов с вершин нановыступов. Основной характеристикой процесса полевого испарения является величина напряженности испаряющего поля  $F_{ev}$ . Обычно для острейных эмиттеров принято определять величину  $F_{ev}$  при фиксированной скорости испарения  $\nu \sim 10^{-2}$  моноатомного слоя в секунду, однако зависимость  $\nu$  от  $F_{ev}$  столь велика, что процесс носит практически пороговый характер и выбор величины  $\nu$  непринципиален. В настоящее время существуют два, ставших уже классическими, метода определения  $F_{ev}$  — метод Мюллера и Янга и метод Мюллера и Сакураи [5]. Не вдаваясь в подробности обоих методов, отметим следующее. Данные методы пригодны только для тугоплавких металлов и объектов, оказываются малоэффективными для нетугоплавких и неприменимы к легкоплавким объектам, поэтому ве-

личины  $F_{ev}$  экспериментально определены только для 15 элементов из примерно 50, представляющих интерес для полевых методов исследования и полевых источников заряженных частиц. В особенности эти методы непригодны для наноразмерных выступов, поскольку требуют значительного испарения выступа, а в этом случае величины  $F_{ev}$  будут характеризовать уже не столько сам выступ, а острейный эмиттер, на поверхности которого выступы вырастают. При этом сами выступы должны испаряться при более низких полях по сравнению с остриями, подобный эффект понижения  $F_{ev}$  для острий особо малых радиусов кривизны был обнаружен давно [5].

### Экспериментальные результаты

В настоящей работе предлагается новый оригинальный метод определения величины  $F_{ev}$ . Метод является в принципе универсальным, он годится для любых материалов как тугоплавких, так и легкоплавких, а также и для эмиттеров любых радиусов, в случае же нановыступов метод вообще является уникальным. При этом необходимо отметить, что именно наноразмерные выступы наиболее интересны в качестве полевых эмиттеров заряженных частиц, поскольку вследствие сильной локализации эмиссии в малых телесных углах они могут служить эффективными точечными источниками заряженных частиц как электронов, так и ионов. Подобные нановыступы легко получаются посредством так называемой термополевой обработки острейного полевого эмиттера — одновременного воздействия на эмиттер сильных электрических обрабатывающих полей  $F_{tr}$  и высоких температур  $T$ , при этом количество вырастающих на поверхности эмиттера нановыступов можно регулировать, подвергая эмиттер воздействию различных комбинаций  $F_{tr}$  и  $T$ . Пример эмиссионных изображений подобных выступов показан на рис. 1. Показано изображение исходного сглаженного вольфрамового эмиттера

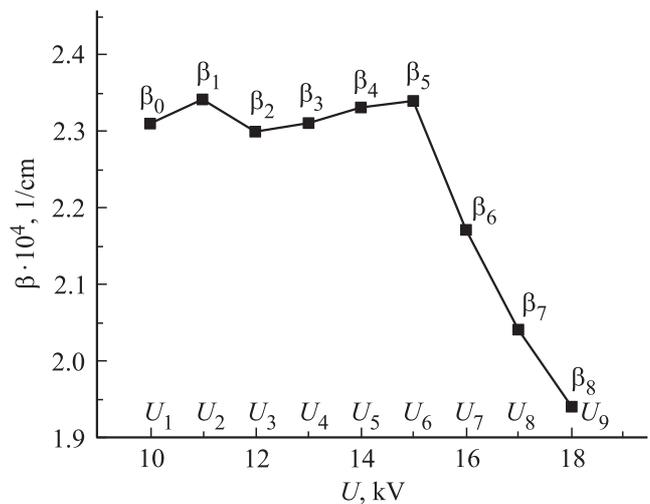


**Рис. 1.** Полевые электронные изображения изменений поверхности вольфрамового эмиттера в процессе термополевого воздействия. *a* — исходный эмиттер формы отжига; *b* — после воздействия при  $F_{tr} = 4.45 \text{ V/nm}$  и  $T = 1700 \text{ K}$ , на поверхности много нановыступов; *c* — после снижения  $F_{tr}$  до  $4.13 \text{ V/nm}$  при  $T = 1700 \text{ K}$  осталось четыре яркоэмиттирующих нановыступа; *d* — после снижения  $F_{tr}$  до  $3.80 \text{ V/nm}$  при  $T = 1700 \text{ K}$  остался единственный нановыступ.

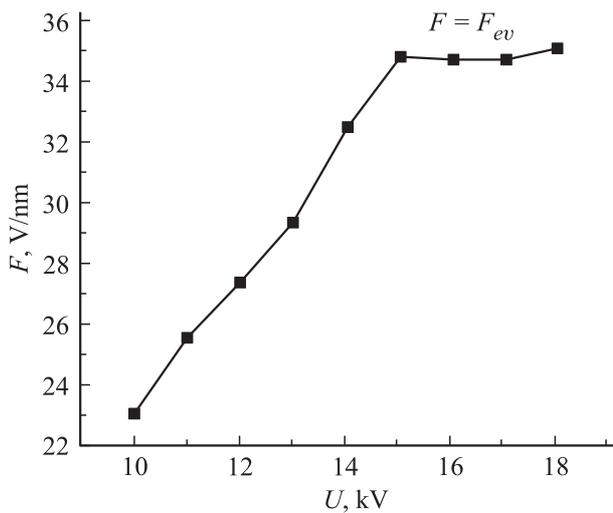
с радиусом кривизны  $r \sim 1 \mu\text{m}$  и углом эмиссии  $\omega \sim 2 \text{ sr}$ . Рис. 1, *b* показывает большое количество нановыступов после воздействия  $F_{tr}$  и  $T$ . Рис. 1, *c* и *d* показывают ситуацию, когда после контролируемого снижения величины обрабатываемого электрического поля  $F_{tr}$  при определенной  $T$  на поверхности осталось 4 выступа и единственный выступ соответственно, величины радиусов кривизны для выступов  $r \sim 3\text{--}5 \text{ nm}$  и углы эмиссии здесь  $\omega \sim 0.05 \text{ sr}$ .

Предлагаемый метод определения величин испаряющих полей  $F_{ev}$  основан на использовании вольт-амперных эмиссионных характеристик эмиттера, простого расчета на основе теории Фаулера–Нордгейма и простого полевого электронного микроскопа, т.е вакуумного диода, имеющего острый эмиттер-катод и анод в виде люминесцентного экрана. Заключается данный метод в следующем. Вначале для исследуемого эмиттера в автоэлектронном режиме (минус на эмиттере) снимается классическая вольт-амперная характеристика, строится характеристика Фаулера–Нордгейма в координатах  $\lg(i/U^2) = f(1/U)$  [6], где  $i$  — эмиссионный ток, а  $U$  — напряжение. Наклон такой характеристики  $m = 2.82 \cdot 10^7 \varphi^{3/2} / \beta$  ( $\varphi$  измеряется в eV, а  $\beta$  в  $1/\text{cm}$ ) соответствует, следовательно, отношению работы выхода  $\varphi$  к полювому множителю  $\beta$ . Определив наклон  $m$ , можно определить и полевого множитель  $\beta = 1/kr$  ( $r$  — радиус острейшего эмиттера,  $k$  — коэффициент, зависящий в основном от формы эмиттера), если величина  $\varphi$  материала эмиттера известна. Затем

к эмиттеру прикладывается напряжение  $U$  обратной полярности величиной  $U_1 = 0.5F_{tr}/\beta$ , при этом величина  $F_{tr}$  — это теоретически рассчитанная величина испаряющего поля, которую нетрудно определить по известным выражениям [5,7] для любого практически материала. Величина  $U_1$  должна быть достаточно малой, чтобы наверняка исключить полевое испарение эмиттера. После такого воздействия вновь меняется полярность приложенного напряжения на отрицательную и определяется по вышеописанной процедуре следующая величина полевого множителя  $\beta_1$  и затем к острию прикладывается при смене полярности положительное напряжение  $U_2 = U_1 + (0.025F_{tr}/\beta_1)$  уже большей величины. Значения коэффициентов 0.5 и 0.025, конечно, не являются критическими, просто начинать процесс нужно с величины приложенного электрического поля, когда полевое испарение гарантированно отсутствует, а увеличивать приложенное поле нужно малыми шагам; чем меньше такой шаг, тем точнее будет определена величина испаряющего поля. На первых стадиях такой обработки эмиттера величина  $\beta$  меняться не будет, поскольку отсутствует полевое испарение, и эмиттер форму и радиус не меняет. Такие операции по воздействию на исследуемый эмиттер последовательно возрастающим полевым напряжением  $U_n = U_{n-1} + (0.025F_{tr}/\beta_{n-1})$  и определению соответствующих величин  $\beta$  периодически повторяются до тех пор, пока величина не начнет понижаться вследствие процесса полевого испарения, при этом понижение величины  $\beta$  должно быть больше погрешности ее определения. Так как понижение  $\beta$  может в данных условиях происходить только вследствие полевого испарения, то величина испаряющего поля будет  $F_{ev} = \beta_{n-1}U_n$ , где величина  $\beta_{n-1}$  есть последняя измеренная величина  $\beta$  перед ее падением, а величина  $U_n$  — первая величина  $U$  после падения величины  $\beta$ . Подобный экспериментальный график зависимости величин  $\beta(U_n)$  для полевого испарения нановыступов,



**Рис. 2.** Изменение величины фактора поля  $\beta_n$  под воздействием испаряющего напряжения  $U_n$  для нановыступа на грани (1120) рения.



**Рис. 3.** Изменение величины напряженности электрического поля  $F_n$  под воздействием испаряющего напряжения  $U_n$  для наноразмерного выступа на грани (1120) рения.

выращенных на поверхности острейного эмиттера из Re, показан на рис. 2, и в этом случае величина испаряющего поля  $F_{ev} = \beta_6 U_7$ .

Обычно графики зависимости величин  $\beta(U_n)$  выглядят как прямая линия, практически параллельная оси абсцисс с довольно резким изломом, поскольку вначале величина  $\beta$  в пределах погрешности практически не меняется, а потом при испарении резко падает, тогда как зависимости величин действующего у поверхности эмиттера электрического поля от приложенного напряжения  $F(U_n)$  выглядят обратным образом (рис. 3 также для Re). Вначале, когда величина  $\beta$  не меняется и испарение отсутствует, величина  $F$  линейно возрастает с ростом приложенного  $U$ , поскольку  $F = \beta U$ , но когда  $\beta$  начинает уменьшаться вследствие испарения, то величина  $F$  при росте  $U$  не меняется, на графике рис. 3 наблюдается излом и участок роста  $F$  переходит в прямую, параллельную оси абсцисс, где  $F = F_{ev}$ . Понижение  $\beta$  здесь компенсируется ростом напряжения  $U$ , но иногда величина может и слабо падать вследствие постепенного испарения наноразмерного выступа и увеличения его радиуса.

## Обсуждение результатов

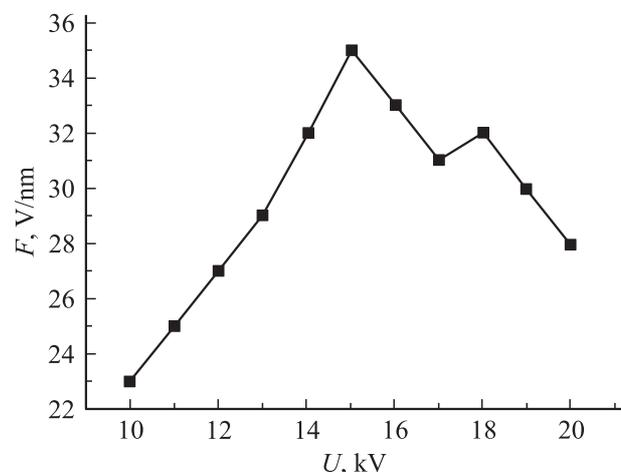
Таблица демонстрирует экспериментальные данные по определению величин испаряющих полей  $F_{ev}$  для наноразмерных выступов, выращенных на некоторых металлических эмиттерах. Очевидно, что величины испаряющих полей  $F_{ev}$  для наноразмерных выступов гораздо ниже по сравнению с „большими острями-эмиттерами“ из тех же материалов вследствие уже отмечавшегося „размерного эффекта“, поскольку нановыступы особо малого радиуса кривизны содержат на поверхности больше атомов в положениях kink, т.е. в положениях

Испаряющие поля для наноразмерных выступов — полевых эмиттеров из различных металлов

Элемент	$F_{ev}$ , V/nm, нановыступы	$F_{ev}$ , V/nm, острья-эмиттеры	Использованная $\phi$ , eV
W	47–51	57	4.5
Re	36–38	48	4.2
Ir	34–37	50	5.0
Pt	28–32	48	5.3

наиболее легкого испарения у изломов монокристаллических ступеней. Показанные в таблице значительные интервалы изменения величин  $F_{ev}$  определяются не точностью определения самой величины  $F_{ev}$ , а тем, что выступы растут на разных кристаллографических участках острья и могут иметь разную структуру и размеры. При этом в процессе определения  $F_{ev}$  необходимо повышать прикладываемое напряжение малыми шагами в каждом цикле определения  $\beta$ . Величина повышения напряжения в каждом цикле  $\delta U_n = 0.025 F_{ev} / \beta$ , конечно, приближенная и может уточняться для каждого конкретного условия. Чем меньше  $\delta U_n$ , тем с большей точностью можно определить  $F_{ev}$ , однако слишком малые величины  $\delta U_n$  ведут к слишком большим временам эксперимента.

Данное рассмотрение корректно, если мы имеем на поверхности только один нановыступ, реально эмиттирующий при данном приложенном напряжении  $U_n$ , такая ситуация показана на рис. 1, *d*, или даже несколько нановыступов, если их число не меняется в процессе определения величины  $F_{ev}$ . Если же число таких выступов на поверхности меняется в процессе полевого испарения, то зависимость  $\beta_n = f(U_n)$  становится достаточно сложной, однако фиксировать число реально эмиттирующих нановыступов на экране полевого электронного микроскопа не сложно, а в этом случае и



**Рис. 4.** Изменение величины фактора поля  $\beta_n$  под воздействием испаряющего напряжения  $U_n$  для наноразмерного выступа на грани (1120) рения при температуре эмиттера  $T = 80$  К и  $p \sim 10^{-8}$  Па.

учет изменения количества выступов на поверхности эмиттера также не представляет труда. Рассматриваемый метод в принципе позволяет определить  $F_{ev}$  при любой температуре эмиттера, однако эксперименты с нановыступами, проведенные особенно при низких  $T \leq 77$  К, требуют очень хороших вакуумных условий, не хуже  $p \sim 10^{-11}$  Па по активным адсорбирующимся газам. Малые нановыступы очень чувствительны к адсорбции остаточных газов и возникающему при подаче сильного электрического поля процессу полевого травления — облегченного полевого испарения атомов эмиттера под воздействием сильного поля и активных адсорбированных газов [5], поэтому попытки определить, например, величину  $F_{ev}$  при  $T \leq 77$  К и вакууме  $p \geq 10^{-7}$  Па ( $H_2$ ,  $N_2$ ), как правило, не приводят к успеху. Рис. 4 показывает подобный график зависимости величин  $\beta(U_n)$  для эмиттера с нановыступами на поверхности в случае низкого вакуума  $p \sim 10^{-6}$  Па. Очевидно, что в этом случае корректно определить величину  $F_{ev}$  не представляется возможным.

## Заключение

Таким образом, основные достоинства данного метода состоят в следующем: метод в принципе годится для любых проводящих материалов, величина  $F_{ev}$  может быть определена при любой температуре эмиттера, требуется лишь простейший вариант полевого электронного микроскопа и проведение для определения  $F_{ev}$  простейших операций, а также метод пригоден как для „больших острий-эмиттеров“, так и для наноразмерных выступов, для которых он является уникальным. Недостаток же метода таков: точность определения  $F_{ev}$  определяется здесь точностью описания процесса с помощью теории Фаулера–Нордгейма, не вполне корректно применять эту теорию для наноразмерных выступов с малыми радиусами кривизны  $r = 2–20$  нм, поскольку, как показано в работе [8], при малых величинах  $r \leq 50$  нм реальные величины  $F_{ev}$  могут быть выше экспериментально определяемых на несколько процентов. Следовательно, для наноразмерных выступов, либо даже для острий с очень малыми радиусами кривизны данный метод можно скорее назвать оценочным, хотя и уникальным. Для обычных же эмиттеров это безусловно вполне корректный метод определения величин  $F_{ev}$ , который годится для любого проводящего материала эмиттера, от W до Pb и Sn.

Работа частично поддержана грантом РФФИ (проект № 14-08-00317-а) в части модернизации системы обработки данных.

## Список литературы

- [1] Голубев О.Л. // ЖТФ. 2011. Т. 81. Вып. 6. С. 113–119.
- [2] Niels De Jonge // J. Appl. Phys. 2004. Vol. 95. N 2. P. 673–681.

- [3] Голубев О.Л., Блаженков Н.М., Лаврентьев Г.Я. // ЖТФ. 2007. Т. 77. Вып. 10. С. 11–15.
- [4] Голубев О.Л., Логинов М.В. // ЖТФ. 2006. Т. 76. Вып. 9. С. 107–114.
- [5] Мюллер Э.В., Цонг Т.Т. // Полевая ионная микроскопия, полевая ионизация, полевое испарение. М.: Наука, 1980. 217 с.
- [6] Шредник В.Н. // Ненакаливаемые катоды. М.: Сов. радио. 1974. С. 165–321.
- [7] Мюллер Э., Цонг Т. // Автоионная микроскопия. М.: Металлургия, 1972. 360 с.
- [8] Rabinovich A.A. // Surf. Sci. 1978. Vol. 70. P. 181–185.