

负脉冲激励下 PLZST 电子发射特征 及发射机理研究^{*}

张琳丽^{1)†} 徐 卓²⁾ 冯玉军²⁾ 盛兆玄²⁾

1) 西安建筑科技大学物理系, 西安 710055)

2) 西安交通大学电子材料与器件教育部重点实验室, 西安 710049)

(2008 年 6 月 23 日收到, 2008 年 8 月 6 日收到修改稿)

采用固态烧结工艺制备了位于反铁电/铁电相界附近的掺镧锆锡钛酸铅(PLZST)反铁电陶瓷样品. 采用该样品作为阴极材料, 研究了其在负脉冲激励电场下的电子发射行为. 负脉冲激励下, 0.5 mm 厚 PLZST 反铁电陶瓷圆片发射阈值电压为 500 V; 当激励电压为 500 V, 抽取电压为 3.5 kV 时, 得到 690 A 发射电流. 结果表明, PLZST 反铁电陶瓷发射阈值电压低, 发射电流大, 即使激励电场低于陶瓷的正向开关电场, 仍能得到强发射电流. 最后, 讨论了 PLZST 反铁电陶瓷在负脉冲激励下电子发射内在机制.

关键词: 反铁电材料, 铁电阴极, 电子发射

PACC: 7970, 7900, 7780

并对实验数据进行分析讨论.

1. 引 言

铁电阴极是一种在脉冲电压或脉冲激光激励下从铁电陶瓷表面获得强脉冲电子束的新型电子发射阴极. 铁电阴极具有室温下发射、发射电流密度大、发射电子束品质好、不易“中毒”等优点^[1-6]. 因此铁电阴极在高功率微波^[3-5]、平板显示^[3, 4, 7]以及航空航天等领域具有广泛的应用前景^[8, 9].

自 1989 年 Riege, Gundel 等^[1]报道 PLZT(锆钛镧酸铅)陶瓷强电子发射以来, 人们对铁电阴极的研究已有二十多年的历史. 在此期间, 研究者们取得了许多有价值的成果, 并且将铁电阴极研究逐渐推向了实际应用阶段. 目前经常研究的铁电阴极材料有 PLZT- $x/65/35$ (锆钛镧酸铅), PLZT- $x/95/5$ (锆钛镧酸铅), LiNbO₃(铌酸锂), TGS(三甘肽硫酸盐), Gd₂(MoO₄)₃(钼酸钪), Pb₅Ge₃O₁₁(锗酸铅), BaTiO₃(钛酸钡)等. 由于 PZT 材料体系发射性能良好, 故在铁电阴极方面, 其改性实验做得最多. 国外实验研究铁电阴极的发射行为一般都采用铁电陶瓷 PLZT- $x/65/35$ 和 PLZT- $x/95/5$. 本文研究了 La 改性 P(Zr, Sn, Ti)O₃(简称 PLZST)反铁电陶瓷的电子发射行为,

2. 实验方法

以分析纯 PbO, ZrO₂, TiO₂, SnO₂, La₂O₃ 为原料, 采用传统电子陶瓷制备工艺, 将原料粉未经配料、球磨、煅烧、二次球磨和成型后, 将试样放置于封闭的刚玉坩埚中, 在富铅气氛条件下 1340 °C 保温 3 h 烧结. 烧成的圆片试样在砂纸上先后经过 500 目水砂纸粗磨, 800 目水砂纸细磨, 最后在 1200 目金相砂纸上抛光. 为了保证厚度均匀, 打磨、抛光时在砂纸上采用“8”字形轨迹. 金相砂纸抛光后, 样品表面粗糙度 $\delta < \pm 5 \mu\text{m}$. 烧成的圆片试样经表面研磨、抛光后, 采用丝网印刷方法印制银电极图形, 在 550 °C 烧成后形成银电极用于电子发射性能测试.

陶瓷样品是厚度为 0.5 mm, 直径为 18 mm 的圆片, 图 1 为样品实物图. 陶瓷前电极涂成直径为 12 mm 的等间距条形电极, 前电极条栅宽度为 200 μm , 陶瓷裸露部分宽度为 200 μm , 如图 1(a). 由此计算出样品的有效发射面积(前电极内部陶瓷裸露部分面积)约为 0.47 cm². 前电极在背电极的正下方, 陶瓷的背电极涂成直径为 14 mm 的圆形满电

^{*} 国家自然科学基金(批准号 50632030, 10474077)和国家重点基础研究发展计划(批准号 2002CB613307)资助的课题.

[†] E-mail: Zhangll@xauat.edu.cn

极,如图 1(b).在偏光显微镜下测得银电极的厚度约为 $10\text{ }\mu\text{m}$.为了避免真空中样品侧面闪络,在陶瓷

样品侧面和边缘裸露部分涂上一层绝缘漆.

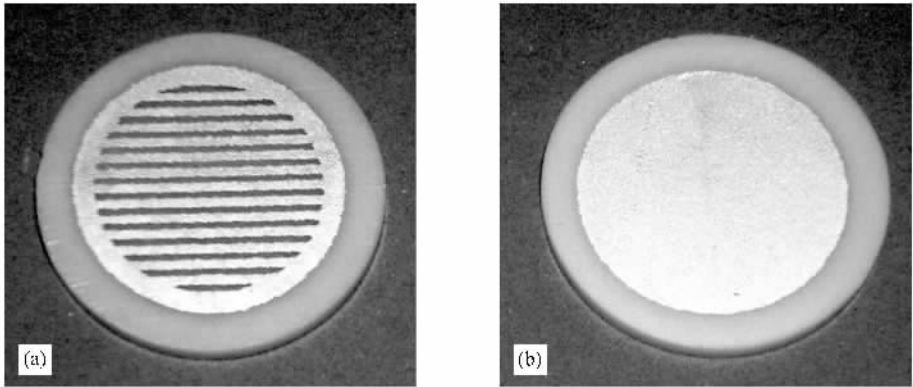


图 1 实验中制作的陶瓷样品 (a)前电极 (b)背电极

铁电阴极发射实验装置及测试电路如图 2 所示.该实验装置由一台高压脉冲源、装有铁电阴极的真空室、分压电路和电流测试电路构成.其中, R_1 为匹配电阻, R_2, R_3 为分压器电阻,用于测试加在陶瓷两端的电压, $R_4 = 1\text{ }\Omega$ 为分流器电阻, R_5 是阻止发射电流流向直流高压源的大阻值电阻, $C = 100\text{ nF}$ 为隔直电容.高压脉冲源输出上升前沿为 1.3 ns ,脉宽为 $50\text{ ns}—1\text{ }\mu\text{s}$ 的方波脉冲,输出电压为 $0—2\text{ kV}$,极性可正可负.图中 FE 为陶瓷样品, GE 为前电极, FC 为一圆锥形石墨,用来收集发射电子.前电极接地,前电极与石墨表面间距为 6 mm .高压脉冲源输出的电压脉冲加到与电阻 R_1 并联的样品背电极上,引起陶瓷样品的电子发射.发射电子在阳极抽取电压下,以非零初速度向 FC 渡越,采用 Pearson6585 罗氏线圈和分流电路测试发射电流,记录仪器采用 Tektronix-TDS724C 示波器.

3. 结果与讨论

3.1. 电滞回线

实验中选用的阴极材料为 $\text{Pb}_{0.94}\text{La}_{0.04}(\text{Zr}_{0.53}\text{Sn}_{0.30}\text{Ti}_{0.17})\text{O}_3$ (PLZST4/53/17/30)反铁电陶瓷,所选材料组分使得该陶瓷位于 PZST 系相图中三方铁电/四方反铁电相界附近反铁电相一侧.选择该陶瓷作为阴极材料是因为:前期研究结果表明掺镧锆钛酸铅 (PLZT)具有较强的电子发射性能;另一方面室温下该陶瓷处于反铁电相,研究该陶瓷的电子发射特性有助于认识反铁电陶瓷的电子发射特性及发射机理.图 3 给出了室温环境中测得的 PLZST4/53/17/30 样品极化强度 P 随外加电场强度 E 之间的变化关系.图 3 是采用改进 Sawyer-Tower 线路测量得到的 $P-E$ 关系, Trek609A 高压放大器供给一个频率为 1 Hz 正弦交变电压,通过计算机程序控制和采集数据绘出 $P-E$ 曲线.从图 3 中可以看出, PLZST 为典型的双电滞回线反铁电体,正向转换场强 $E_{\text{AFE-FE}}$ 约为 $2.4 \times 10^3\text{ V/mm}$.

3.2. 发射实验

发射实验在室温中进行,真空室真空度保持在 $1 \times 10^{-1}—5 \times 10^{-1}\text{ Pa}$.激励脉冲为负极性方波脉冲,脉冲宽度为 500 ns ,收集极电压为 100 V .激励电压增加到 370 V 时,开始有发射电流出现,但此时发射极不稳定.当激励电压增加到 500 V 时得到较稳定的发射.为了说明某电压下电子发射的稳定性,这里

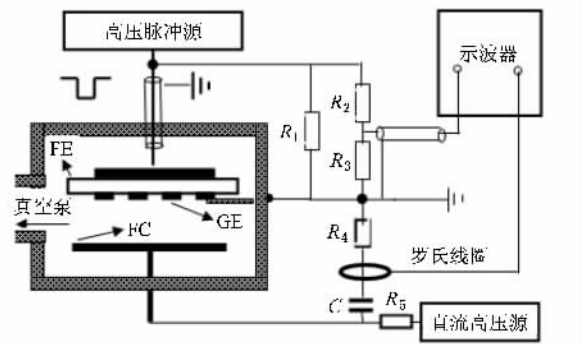


图 2 电子发射实验装置

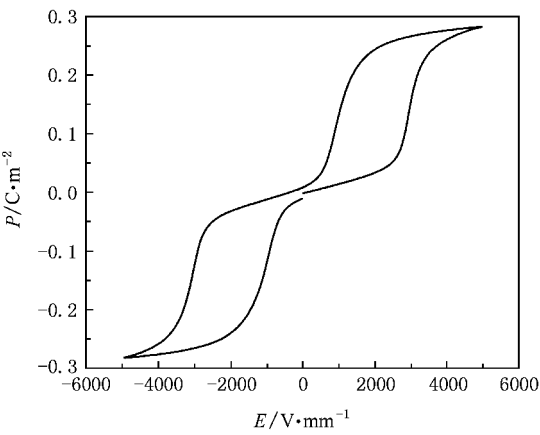


图3 PLZST 极化强度 P 随电场 E 的变化关系

暂且定义某电压下的发射可靠度 β = 该激励电压下有电流发射的次数/该激励电压下总的激励次数. 同时定义发射可靠度为 80% 时, 对应的激励电压为该样品的发射阈值电压. 图 4 给出了不同激励电压下的样品的发射可靠度, 从图中可以看出, 随激励电压升高, 阴极发射可靠度增加. 当激励电压为 500 V 时, 发射可靠度约为 80%, 也就是该样品在负极性脉冲激励下的发射阈值电压为 500 V.

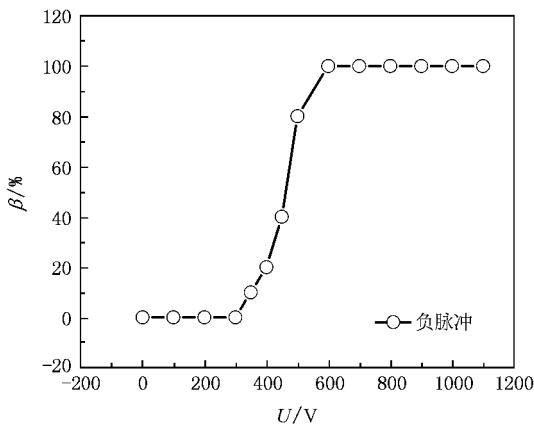


图4 发射可靠度随激励电压的变化关系

图 5 为发射电流随抽取电压的变化关系. 激励电压保持在 600 V, 增加抽取电压, 其他条件不变, 得到发射电流随抽取电压的变化关系. 从图中可以看出, 发射电流随抽取电压增加而线性增加. 当抽取电压 $U_{ac} = 3.5$ kV 时, 发射电流 $I = 690$ A, 按有效发射面积 0.47 cm² 计算, 发射电流密度 $J = 1460$ A/cm², 远大于 C-J 定律的空间电荷限制电流(约为 2.19 A/cm²). 实验中发现, 在较高的抽取电压($U_{ac} \geq 200$ V)下, 发射电流只随抽取电压增加而线性增加,

与激励电压无关.

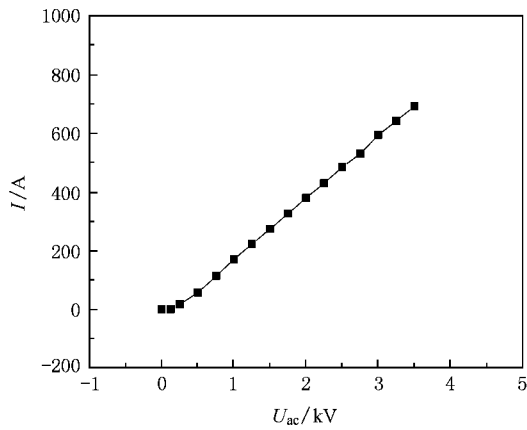


图5 发射电流随抽取电压变化关系

图 6(a)~(d) 给出了负脉冲激励下发射电流波形, 其中激励电压为 $U = 600$ V. 抽取电压分别为 $U_{ac} = 60, 80, 100, 120$ V. 从图中可以看出, 发射电流波形始终有两个典型的发射峰, 这两个发射峰分别出现在激励脉冲的前沿和后沿. 两发射峰之间相隔 200—300 ns. 当抽取电压由 60 V 增加到 120 V 时, 发射电流峰 1 值由 2.7 A 增加到 5.5 A, 半高宽基本保持在 80—90 ns. 发射电流峰 2 由 2.4 A 增加到 11.2 A, 半高宽由 267 ns 增加到 680 ns. 由此可见, 随着抽取电压的增加, 发射电流峰 1 值增加幅度较小, 半高宽基本不变; 发射电流峰 2 值和半高宽均有较大幅度的增加. 抽取电压对发射电流峰 2 影响较大.

3.3. 发射机理

对铁电阴极发射机制的研究, 先后提出了“快极化反转”^[1-3]、“等离子体引起电子发射”^[10-12]、“混合发射”^[13,14]以及“电畴振荡”^[15]等多种模型. 其中最经典的就是“快极化反转”和“等离子体引起电子发射”模型, 下面基于这两种模型对本文中的实验数据进行解释.

在脉冲电压激励下, 反铁电陶瓷表面电子发射现象早有报道, 反铁电陶瓷电子发射被解释为当激励电场高于正向转换电场时发生反铁电-铁电相变导致强电子发射现象. 按照这种观点, 当激励电场低于正向转换电场时, 应该没有发射电流出现. 然而, 实验中发现当激励电压 $U = 360$ V 时就有发射电流出现, 当 $U = 500$ V 时, 发射电流稳定. 按陶瓷厚度 $d = 0.5$ mm, 激励电压 $U = 500$ V 计算, 激励电场 $E = 1 \times 10^3$ V/mm, 远小于正向转换电场 $E_{AFE-FE} = 2.4 \times 10^3$

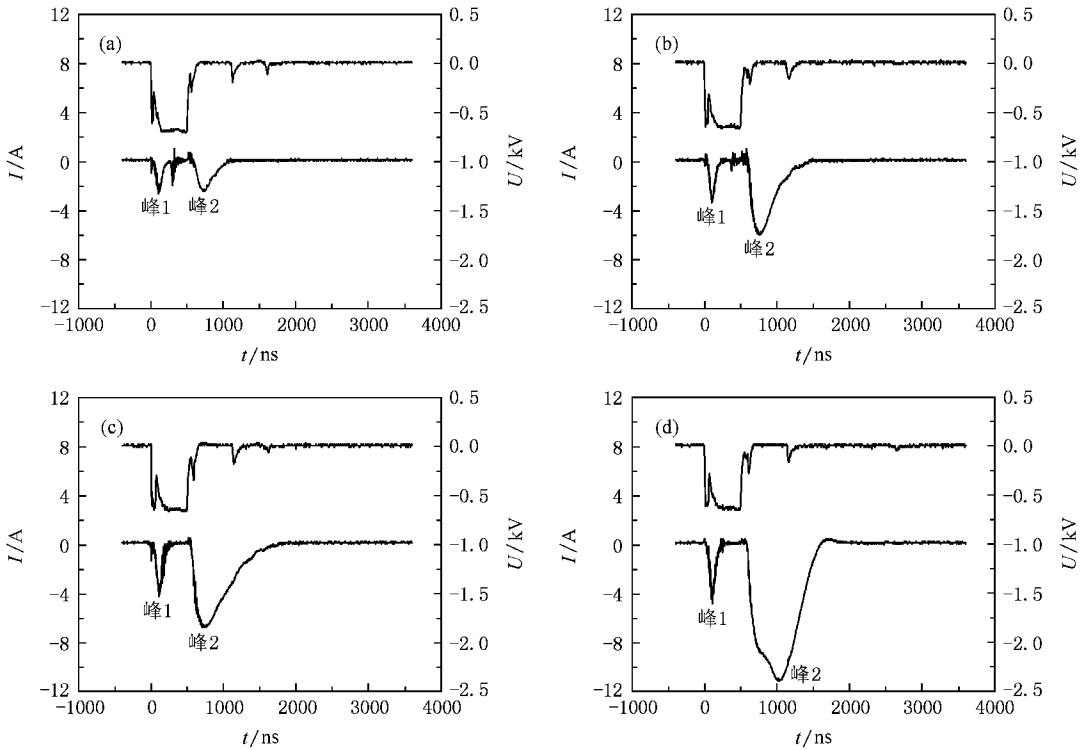


图 6 不同抽取电压下的发射电流波形 (a) $U_{ac} = 60\text{ V}$, (b) $U_{ac} = 80\text{ V}$, (c) $U_{ac} = 100\text{ V}$, (d) $U_{ac} = 120\text{ V}$

V/mm,这与前面提到的相变理论相矛盾.

当加载负激励脉冲时,在陶瓷的前电极面电极边缘‘三接点’(真空、介质和金属交接处)电场可粗略估计为 $E \approx \epsilon_r U_0 / \delta$,其中 U_0 是加载电压, δ 是陶瓷厚度, ϵ_r 是陶瓷的相对介电常数.在本实验中,按激励电压阈值 $U_0 = 600\text{ V}$,陶瓷厚度 $\delta = 0.5\text{ mm}$,相对介电常数 $\epsilon_r = 700$ 计算,在三接点处的电场强度 $E \approx 8.4 \times 10^5\text{ V/mm}$.该电场强度足以导致三接点附近区域陶瓷发生反铁电-铁电相变,形成局域宏观畴.由于相变时间非常短,导致该区域未屏蔽负电荷出现,未被屏蔽的负电荷形成较强的排斥场,使得陶瓷表面电子发射出来,形成发射电流峰 1.发射电流峰 1 出现在负激励脉冲下降沿,滞后激励电压 30—40 ns,持续时间为 140—160 ns,对应陶瓷的充电过程.这也说明峰 1 与局域相变有关,充电完毕时,未屏蔽负电荷被屏蔽,发射电流峰 1 消失.这说明发射电流峰 1 与场发射无关,因为如果发射电流峰 1 有场发射参与,那么充电完毕后剩余的负脉冲时间里依然有发射电流出现,而实验中并没有得到发射电流.在这个过程中,三接点处可能有初始等离子体产生,然而负脉冲激励下,前电极电势高于陶瓷裸露部分电势,陶瓷表面切向电场的方向压制了等离子体

进一步向裸露陶瓷部分扩散.因此,在抽取电场作用下,仅有较少的发射电子到达阳极,所以发射峰 1 较小.随抽取电压增加发射电流峰 1 增加幅度较小.当激励电压消失时,三接点处局域铁电-反铁电相变,宏观畴消失,未屏蔽正电荷出现.未屏蔽正电荷使得三接点处产生很强的电场,导致三接点处场发射电子出现以及初始等离子体形成,等离子体向两侧扩散,产生新的等离子体.等离子体中的电子在抽取电压作用下到达收集极形成发射电流峰 2.当抽取电压增加时,等离子体中更多的电子被加速到收集极,因此,发射电流峰 2 峰值和脉宽明显增大.总之,发射电流峰 1 由于反铁电-铁电相变导致电子发射形成,发射电流峰 2 是场发射和等离子体发射形成.

4. 结 论

负脉冲激励下,PLZST4/53/17/30 作为阴极材料,发射电流特征表现为双峰发射.两个发射峰分别出现在激励电压的前沿和后沿.前沿发射峰幅度和半高宽随抽取电压的增加而增加幅度较小,后沿发射峰幅度和半高宽随抽取电压增加而大幅增加.三接点处场增强导致附近区域发生反铁电-铁电相变,

形成前沿发射峰 ;后沿发射峰是场发射和等离子体 电荷的出现起着关键的作用 .
共同作用的结果 .在电子发射过程中 ,未屏蔽负(正)

[1] Gundel H , Reige H , Wilson E J N , Handerek J , Zioutas K 1989 *Nucl . Instrum . Meth . Phys . Res . A* **280** 1

[2] Rosenman G , Shur D , Garb K , Cohen R , Krasik Y E 1997 *J . Appl . Phys .* **82** 772

[3] Riege H 1994 *Nucl . Instrum . Meth . Phys . Res . A* **340** 80

[4] Fleddermann C B , Nation J A 1997 *IEEE Trans . Plasma Sci .* **25** 212

[5] Rosenman G , Shur D , Krasik Y E , Dunaevsky A 2000 *J . Appl . Phys .* **88** 6109

[6] Sheng Z X , Feng Y J , Huang X , Xu Z , Sun X L 2008 *Acta Phys . Sin .* **57** 4590〔 in Chinese 〕 盛兆玄、冯玉军、黄 璇、徐 卓、孙新利 2008 *物理学报* **57** 4590

[7] Auciello O H , McGuire G E 1995 *U . S . Patent* 5453661

[8] Kemp M A , Kovaleski S D 2006 *J . Appl . Phys .* **100** 1133061

[9] Kovaleski S D 2002 *the 38th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conf . , Indianapolis*

[10] Krasik Y E , Chirko K , Dunaevsky A , Gleizer J Z , Krokhmal A , Sayapin A , Felsteiner J 2003 *IEEE Trans . Plasma Sci .* **31** 49

[11] Sampayan S E , Caporaso G J , Holmes C L , Lauer E J , Prosnitz D , Trimble D O , Westenskow G A 1994 *Nucl . Instrum . Meth . Phys . Res . A* **340** 90

[12] Sampayan S , Caporaso G , Trimble D , Westenskow G 1995 *IEEE Part Accel . Conf .* **2** 899

[13] Shannon D N J , Smith P W , Dobson P J , Shaw M J 1997 *Appl . Phys . Lett .* **70** 1625

[14] Zhang W M , Huebner W , Sampayan S E , Krogh M L 1998 *J . Appl . Phys .* **83** 6055

[15] Yasushi H , Akitoshi O , Eiki H 2003 *J . Appl . Phys .* **94** 749

Characteristics of electron emission from La-doped Pb(Zr ,Sn ,Ti)O₃ antiferroelectric cathode under negative triggering pulse^{*}

Zhang Lin-Li^{1,2†} Xu Zhuo²⁾ Feng Yu-Jun²⁾ Sheng Zhao-Xuan²⁾

1 〕 Department of Physics , Xi 'an University of Architecture and Technology , Xi 'an 710055 , China)
2 〕 Key Laboratory of Electronic Materials Research of Ministry of Education , Xi 'an Jiaotong University , Xi 'an 710049 , China)
(Received 23 June 2008 ; revised manuscript received 6 August 2008)

Abstract

An antiferroelectric cathode material , lanthanum-doped lead zirconate stannate titanate (PLZST) located in the vicinity of antiferro-ferroelectric phase boundary , was prepared by solid state calcination method. The electron emission property of the novel antiferroelectric cathode under the negative triggering voltage pulses was investigated. The emission threshold value voltage from PLZST with 0.5 mm width under negative triggering pulses was 500 V. For negative triggering voltage of 500 V and extraction voltage of 3.5 kV , a large emission current of 690 A was obtained. It was indicated that the emission threshold value voltage was low and the emission current was large. Even when the triggering voltage was lower than the positive switch electric field , strong emission current can be obtained from PLZST. Finally , the mechanism of electron emission of PLZST under negative triggering pulses was discussed.

Keywords : antiferroelectric material , ferroelectric cathode , electron emission
PACC : 7970 , 7900 , 7780

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 50632030 ,10474077) and the National Basic Research Program of China (Grant No. 2002CB613307).
[†] E-mail : Zhangll@xauat.edu.cn