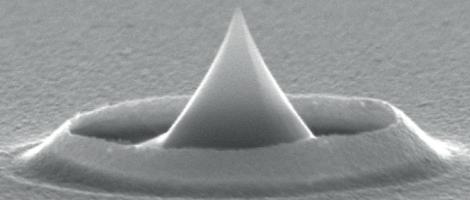


Entwicklung einer
Feldemissionselektronenquelle
basierend auf Siliziumstrukturen
für den Einsatz in einer
miniaturisierten Röntgenquelle

Christian Prommesberger



Entwicklung einer Feldemissions-
elektronenquelle basierend auf
Siliziumstrukturen für den Einsatz
in einer miniaturisierten Röntgenquelle

Dissertation

ZUR ERLANGUNG DES AKADEMISCHEN GRADES
DOKTOR DER INGENIEURWISSENSCHAFTEN
(DR.-ING.)

DER TECHNISCHEN FAKULTÄT
DER CHRISTIAN-ALBRECHTS-UNIVERSITÄT ZU KIEL

VON

Christian Prommesberger

OSTBAYERISCHE TECHNISCHE HOCHSCHULE
REGENSBURG

2019

1. Gutachter:

Prof. Dr. Franz Faupel

2. Gutachter:

Prof. Dr. Rupert Schreiner

Datum der mündlichen Prüfung:

11. Oktober 2019

Berichte aus der Mikrosystemtechnik

Christian Prommesberger

**Entwicklung einer Feldemissionselektronenquelle
basierend auf Siliziumstrukturen für den Einsatz in
einer miniaturisierten Röntgenquelle**

Shaker Verlag
Düren 2019

Bibliografische Information der Deutschen Nationalbibliothek

Die Deutsche Nationalbibliothek verzeichnet diese Publikation in der Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte bibliografische Daten sind im Internet über <http://dnb.d-nb.de> abrufbar.

Zugl.: Kiel, Univ., Diss., 2019

Copyright Shaker Verlag 2019

Alle Rechte, auch das des auszugsweisen Nachdruckes, der auszugsweisen oder vollständigen Wiedergabe, der Speicherung in Datenverarbeitungsanlagen und der Übersetzung, vorbehalten.

Printed in Germany.

ISBN 978-3-8440-7084-2

ISSN 1610-5907

Shaker Verlag GmbH • Am Langen Graben 15a • 52353 Düren

Telefon: 02421 / 99 0 11 - 0 • Telefax: 02421 / 99 0 11 - 9

Internet: www.shaker.de • E-Mail: info@shaker.de

Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Dissertation wurde eine kompakte und zuverlässige Elektronenquelle auf der Grundlage von Siliziumstrukturen entwickelt, die zur Realisierung einer darauf basierenden miniaturisierten Röntgenquelle führte. Mit Hilfe der etablierten Si-basierten Mikroelektronik-Technologie konnten dazu verschiedene Emittierstrukturen mit Verrundungsradien von wenigen Nanometern realisiert werden. Bei hohen elektrischen Feldern kann aus diesen scharfkantigen Kathoden eine kalte Elektronenemission einsetzen, was allgemein als Feldemission bezeichnet wird. Neben der Kathode besteht die dreiteilige Elektronenquelle aus einem dielektrischen Abstandshalter aus Glimmer, sowie einer darauf platzierten Extraktionselektrode. Dieses Extraktionsgitter konnte ebenfalls mit einem mikrotechnologischen Herstellungsprozess auf Siliziumbasis realisiert werden, sodass der hybride Aufbau und die hohe Integrationsfähigkeit der Si-basierten Bauteile zu einer weiteren Miniaturisierung der gesamten Elektronenquelle führte.

Feldemissionsmessungen mit konischen Emitterspitzen mit einer Höhe von $3\ \mu\text{m}$ zeigten jedoch nur geringe Emissionsströme im Bereich von $10\ \text{nA}$, für die hohe Betriebsspannungen von $> 1\ \text{kV}$ notwendig waren. Die Emitterhöhe konnte aber mit einer zusätzlichen Tiefenätzung auf $8\ \mu\text{m}$ gesteigert werden, was dazu führte, dass sich die Feldüberhöhung an den Spitzen erheblich vergrößerte und ein ähnlicher Emissionsstrom bereits bei einer Betriebsspannung von ca. $600\ \text{V}$ erreicht wurde. Der Herstellungsprozess gestattet zudem eine flexible laterale Anordnung der Emitterpositionen, wodurch Arrays mit einer unterschiedlichen Anzahl von 4×4 , 10×10 und 32×32 Emittiern realisiert werden konnten. Bei Kathoden auf Siliziumbasis können die Emissionseigenschaften abhängig von der Art der Dotierung und der Dotierkonzentration stark variieren. Beispielsweise kann bei einer moderaten p-Dotierung eine spannungsunabhängige Sättigung des Emissionsstroms auftreten, die auf eine begrenzte Ladungsträgernachführung und das Eindringen des elektrischen Feldes in den Halbleiter zurückzuführen ist. Messungen mit 4×4 Spitzenarrays zeigten in diesem Bereich bereits eine stabile Elektronenemission mit geringen Stromfluktuation von nur $\pm 5\ \%$. Lokale Metallbeschichtungen um den Scheitelpunkt der Siliziumspitzen veränderten den Emissionsmechanismus nicht, da das elektrische Feld weiterhin in das Substrat eindringen konnte und den Elektronennachschub zur Oberfläche limitierte, sodass nach wie vor ein Sättigungsbereich festgestellt wurde. Dagegen konnte mit einer großflächigen Metallisierung des Bulksiliziums das Eindringen des elektrischen Feldes in den Halbleiter unterdrückt werden und dadurch ein Emissionsmechanismus ähnlich zu n-dotiertem Silizium beobachtet werden. Neben einer p-Dotierung konnten z.B. 10×10 Spitzenarrays mit einer schwach n-dotierten (undotiert) Dotierkonzentration realisiert werden, die einen hohen Emissionsstrom von ungefähr $20\ \mu\text{A}$, geringe Stromfluktuationen von $\pm 4\ \%$ aufgrund des Mittelungseffekts, sowie eine stabile Elektronenemission über einen längeren Zeitraum von 80 Stunden ohne eine geometrische Zerstörung der Spitzen lieferten.

Im Gegensatz zur genauen geometrischen Strukturkontrolle und der exakten Positionierung der Spitzen in einem definierten Abstand zueinander, konnte mittels einer Aufrauätzung eine Oberflächenmodifikation des Siliziums geschaffen werden. Das dadurch

entstandene Siliziumgras (b-Si) konnte mit einem einfachen Herstellungsprozess aus einem selbst maskierenden Ätz- und Passivierungsprozess realisiert werden und weist eine hohe Anzahldichte mit vielen potentiellen Emissionsstellen auf. Durch die Kombination mit einer Tiefenätzung konnte das Siliziumgras auf exponierten Säulen mit einer Höhe von $20\ \mu\text{m}$ platziert werden, wodurch der Einfluss von Feldabschirmungseffekten minimiert werden konnte. Bei p-dotierten Arrays mit Siliziumgras auf 32×32 Säulen konnten niedrige Einsatzspannungen von $< 300\ \text{V}$ und bei n-dotierten Arrays hohe Emissionsströme von über $20\ \mu\text{A}$ bei Spannungen von $1\ \text{kV}$ nachgewiesen werden. Durch den Feldemissionsbeitrag von vielen verschiedenen Emitterradien verschlechterte sich allerdings geringfügig die Stabilität des Emissionsstroms im Vergleich zu Spitzenarrays. Da bei einem Ausfall einzelner Emitters einfach viele weitere Emissionsspots die Elektronenemission übernehmen können, ist dieser Feldemitter allerdings auch bei einem höheren Umgebungsdruck von beispielsweise 10^{-5} mbar einsetzbar. Zusätzlich konnte dieser Kathodentyp mit einem mikrotechnologisch hergestellten Abstandhalter aus Benzocyclobutene mit einer Schichtdicke von nur $5\ \mu\text{m}$ kombiniert werden, was dazu führte, dass die Betriebsspannung für einen Emissionsstrom von $1\ \mu\text{A}$ auf unter $250\ \text{V}$ reduziert werden konnte.

Eine weitere Verringerung des Elektrodenabstands konnte durch eine integrierte Gate-Elektrode um die konische Emittergeometrie erreicht werden. Durch den geringen Abstand zwischen Spitze und Gate-Elektrode von nur $2\ \mu\text{m}$ wurde eine signifikante Reduzierung der Spannungen auf unter $100\ \text{V}$ für Emissionsströme im μA -Bereich möglich. Aufgrund der schnellen Emittersaktivierung durch die nahe und konzentrische Gate-Elektrode waren keine aufwändigen Konditionierungsschritte notwendig und es konnte ein sehr reproduzierbares Emissionsverhalten für p-dotierte Spitzenarrays demonstriert werden. Durch die begrenzte Ladungsträgnachführung, auch aufgrund der starken Feldeindringung durch die nahe Gate-Elektrode, wurde bei p-dotierten Spitzenarrays eine ausgeprägte spannungsunabhängige Stromsättigung ab ca. $100\ \text{V}$ festgestellt. Bei dieser Spannung wurde bei p-dotierten 4×4 Spitzenarrays eine ausgezeichnete Stromstabilität mit Fluktuationen von $\pm 1\ \%$ bei zeitabhängigen Messungen beobachtet, die sonst nur bei thermischen Emitters erreicht werden können. Allerdings sind durch den geringen Elektrodenabstand elektrische Überschlüge möglich, sodass nur eine eingeschränkte Betriebszeit von sechs Stunden erreicht werden konnte.

Um die grundsätzliche Machbarkeit einer Röntgenerzeugung mit der Feldemissionselektronenquelle aufzuzeigen, wurde ein größerer Röntgenmessplatz bei unserer Kooperationsfirma Ketek GmbH aufgebaut. Der Aufbau besteht neben der transferierten Elektronenquelle aus einem Röntgentarget aus Kupfer und einem Siliziumdriftdetektor zur Messung der Photonenzählrate. Für eine hohe Elektronentransmission aus der Quelle verbunden mit einem ausreichenden Signal am Detektor wurde ein undotiertes Spitzenarray mit einem hohen emittierenden Elektronenstrom und ein Extraktionsgitter mit einer großen Gitterkonstante verwendet, was jedoch zu einem stark fluktuierenden Emissionsstrom aufgrund des inhomogenen elektrischen Feldes in der Quelle und zu einem starken Rauschen der Photonenzählrate von $10\ \%$ führte. Mit einem p-dotierten Spitzenarray mit Gate-Elektrode konnte ohne Verwendung eines Extraktionsgitters die Elektronenemission über das Gate gesteuert werden. Jedoch stellte sich bei $100\ \text{V}$ (im Sättigungsbereich) kein stabiles Emissionsverhalten mit Schwankungen von $5\ \%$ ein, wodurch allerdings die Schwankungen der Photonenzählrate, ohne die Beeinträchtigung des Gitters, auf ebenfalls $5\ \%$ verbessert werden konnten. Besonders die zeitliche Stabilität des Emissionsstroms

ist aber das wichtigste Kriterium für die Applikation, da damit maßgeblich die Photonen-zählrate und somit das Ausgangssignal gesteuert wird. Die erkennbare Korrelation zwischen emittierten Feldemissionsstrom und Photonen-zählrate ohne Extraktionsgitter führte dazu, dass der Einfluss des Gitters auf das Ausgangssignal mit einer externen Regelung des Emissionsstroms mit einem n-dotierten b-Si Array genauer untersucht wurde. Mit der Regelschaltung konnten die Fluktuationen des Kathodenstroms auf 0,01 % stabilisiert werden, wobei allerdings nur eine geringe stabilisierende Wirkung auf die Photonen-zählrate mit Fluktuationen von 4 % festgestellt wurde. Dies konnte auf den Einfluss von Gitterschwankungen zurückgeführt werden, sodass für eine stabile Photonen-zählrate der transmittierte Elektronenfluss aus der Quelle indirekt durch eine Subtraktion des Gitterstroms vom Kathodenstrom stabilisiert wurde. Mit Hilfe dieser erweiterten externen Regelschaltung konnte eine Stabilisierung der Zählrate mit Fluktuationen von < 1 % selbst bei einem erhöhten Restgasdruck von ca. 10^{-5} mbar erreicht werden. Aufbauend auf den Ergebnissen dieser Dissertation konnte bei unserem Kooperationspartner Ketek GmbH ein erster Demonstrator einer miniaturisierten Feldemissionsröntgenröhre für spektroskopische Materialuntersuchungen im Rahmen der Röntgenfluoreszenzanalyse realisiert werden.

Abstract

In this dissertation, a compact and reliable electron source based on silicon structures was developed, which led to the realization of a miniaturized X-ray source. The Si-based micro- and nanoelectronic technology enables the fabrication of different emitter types with tip radii of a few nanometers. The emission of electrons from these sharp-edged cathodes at high electric fields is generally referred to as cold emission or field emission. In addition to the cathode, the three-part electron source consists of a dielectric spacer made of mica and an extraction electrode placed on it. The extraction grid was also realized by a microtechnological fabrication process based on silicon, leading to a further miniaturization of the entire electron source, due to the hybrid setup and the high integration capability of the Si-based components.

Field emission measurements of conical tips with a emitter height of $3\ \mu\text{m}$ showed low emission currents in the range of $10\ \text{nA}$ at high operational voltages of about $1\ \text{kV}$. However, the height of the emitters was increased with an additional depth etching step to $8\ \mu\text{m}$, resulting in a higher field enhancement factor and a significant reduction of the operational voltages to approx. $600\ \text{V}$ (for the same emission current). The flexible lateral arrangement of the emitter positions allows the fabrication of field emission arrays with a different number of silicon tips, e.g. 4×4 , 10×10 and 32×32 . Thereby, the emission properties of silicon tips were influenced by the type of doping and the doping concentration, which led to a voltage-independent current saturation for a moderate p-silicon substrate, due to a limited charge carrier supply and the penetration of the electric field into the semiconductor. Measurements of 4×4 tip arrays showed for this type of doping a stable electron emission with low current fluctuations of only $\pm 5\ \%$ in the saturation regime. Silicon emitters with a local metal layer on the tip apex still revealed a saturation range, because the electric field penetrated into the substrate as before. In contrast, a metallization on the bulk silicon suppressed the penetration of the electric field into the semiconductor, providing an emission mechanism similar to n-type silicon. In addition to p-type silicon, weakly n-type silicon tip arrays were realized, which delivered high emission currents of $\approx 20\ \mu\text{A}$, low current fluctuations of $\pm 4\ \%$ due to the averaging effect and a stable electron emission over a longer period of 80 hours without geometric destructions of the tips.

In contrast to the precise geometric control and the exact positioning of the tips at a defined distance, a modification of the silicon surface was realized by means of a roughening etching. The resulting silicon grass was fabricated with a simple self-masking etching and passivation process and exhibited a high emitter density with many potential emission spots. The shielding of the electric field was minimized by a depth etching process, so that the silicon grass was placed on exposed pillars with a height of over $20\ \mu\text{m}$. Low operational voltages of $< 300\ \text{V}$ respectively high emission currents of about $20\ \mu\text{A}$ were found for p-type or rather n-type arrays of silicon grass on 32×32 pillars. However, the stability of the emission current decreased slightly, due to the field emission contribution of many different emitter radii. A big advantage of this field emitter is the possibility to use it at a higher ambient pressure of 10^{-5} mbar, due to the fact, that further emission spots can simply take over the electron emission in the case of a failure of individual

emitters. In addition, this type of cathode was combined with a microtechnologically fabricated spacer made of benzocyclobutene with a layer thickness of only 5 μm , leading to a reduction of the operational voltages to ≈ 250 V for an emission current of 1 μA .

A further minimization of the electrode distance was achieved by an integrated gate electrode around the conical emitter geometry. The small distance of 2 μm between tip apex and gate led to a further significant reduction of the voltages to approx. 100 V for emission currents in the μA -range. Due to the fast emitter activation by the near gate electrode no extensive conditioning steps were necessary and a reproducible emission behaviour was demonstrated for p-type silicon tip arrays. The charge carrier limitation and the strong field penetration through the near gate-electrode caused a pronounced voltage-independent current saturation. At voltages of around 100 V, a distinguished current stability was observed for p-type 4×4 Si tip arrays with current fluctuations of ± 1 % in time-dependent measurements, which otherwise can only be achieved with thermal emitters. However, the small gap between the electrodes can lead to electrical flashovers, so that the stable electron emission was limited to only six hours of continuous operation.

In order to demonstrate the feasibility of the X-ray generation with the field emission electron source, a measurement setup was built up at our cooperation company Ketek GmbH. The setup consists of the developed electron source, a copper X-ray target and a silicon drift detector for measuring the photon count rate. A weakly n-type silicon tip array with a high emitting electron current and an extraction grid with a large grid constant were used in the electron source for a high electron transmission combined with a sufficient signal at the detector. However, measurements showed a strongly fluctuating emission current due to the inhomogeneous electric field between tip cathode und extraction grid leading to a strong noise of the photon count rate of 10 %. By using a p-type tip array with a gate-electrode (without extraction grid) the cathode emission current was controlled via the gate at an applied gate voltage of 100 V. No stable emission behaviour was investigated in this current saturation regime, but the current fluctuations of 5 % improved the photon count rate fluctuations to 5 % as well. Especially the temporal emission current stability is the most important criterion for the application, as it controls the photon count rate and thus the output signal. The correlation between emitted current and photon count rate without extraction grid led to a more detailed investigation of the grid influence on the output signal. This was done by an external control circuit of the cathode emission current by using a n-type Si array with silicon grass on pillars. The fluctuations of the cathode current were stabilized to a value of 0,01 %, with the control circuit, whereby only a small stabilizing effect on the photon count rate with fluctuations of 4 % was determined. This effect was attributed to the influence of grid fluctuations, so that the transmitted electron current from the electron source was indirectly stabilized by a subtraction of the grid current from the cathode current. With this extended external control circuit, a stabilization of the photon count rate with fluctuations of < 1 % was achieved even at an increased residual gas pressure of about 10^{-5} mbar. Based on the results of this dissertation, a first demonstrator of a miniaturized field emission X-ray source was realized at our cooperation partner Ketek GmbH for spectroscopic material investigations in the context of X-ray fluorescence analysis.

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	1
1.1. Vakuum-Nanoelektronik	1
1.2. Emissionsmechanismen	2
1.3. Einsatz von Feldemissionskathoden	5
1.4. Materialien für Feldemissionskathoden	6
1.5. Aufbau einer miniaturisierten Feldemissionskathodenquelle	7
1.6. Aufbau einer miniaturisierten Feldemissionsröntgenquelle	9
1.7. Einsatz der Röntgenquelle für die Röntgenfluoreszenzanalyse	10
1.8. Ziele der Arbeit	12
2. Theoretische Grundlagen	16
2.1. Tunneleffekt	16
2.1.1. Quantenmechanische Betrachtung einer Potentialschwelle	16
2.1.2. Tunneleffekt an einer dreieckigen Potentialbarriere	18
2.2. Feldemission	20
2.3. Feldemission aus Silizium	23
2.3.1. Feldemission aus n-dotiertem Silizium	24
2.3.2. Feldemission aus p-dotiertem Silizium	25
2.4. Prinzip der Feldüberhöhung	30
2.5. Ermittlung der Feldemissionsparameter	33
2.6. Simulationen zur Elektronenquelle	35
2.6.1. Einfluss des Gitterabstands auf die Feldhomogenität	36
2.6.2. Einfluss der Gitterkonstanten auf die Feldverteilung	37
3. Mikrotechnologische Herstellung der Feldemissionskathoden	38
3.1. Herstellungsmöglichkeiten Si-basierter Feldemitter	38
3.2. Materialparameter und Layout	41
3.3. Realisierung von Spitzenarrays	42
3.3.1. Spitzenarrays mit konischer Geometrie	42
3.3.2. Spitzenarrays mit einem hohem Aspektverhältnis	44
3.3.3. Spitzenarrays mit lokal definierter Metallbeschichtung	47
3.4. Realisierung von Säulenstrukturen mit Siliziumgras	51
3.4.1. Herstellung von aufgerauten Siliziumgras	51
3.4.2. Herstellung von Siliziumgras auf Säulenstrukturen	54
3.4.3. Säulen mit Siliziumgras und integriertem Abstandshalter	56
3.5. Realisierung von Spitzenarrays mit integrierter Gate-Elektrode	58
3.5.1. Charakterisierung der Isolationsschicht	58
3.5.2. Integration der Gate-Elektrode	60
3.5.3. Freilegen der Emmitter	63

4. Realisierung einer Feldemissionselektronenquelle	67
4.1. Aufbau einer miniaturisierten Elektronenquelle	67
4.2. Materialien für den Abstandshalter	69
4.3. Realisierung des Extraktionsgitters	69
4.3.1. Herstellung eines grobmaschigen Gitters	70
4.3.2. Herstellung eines feinmaschigen Gitters	72
5. Charakterisierung der Feldemitter	75
5.1. Experimenteller Messaufbau	75
5.2. Feldemissionsmessungen eines Spitzenarrays	78
5.2.1. Konditionierung des Spitzenarrays	78
5.2.2. Einfluss der Emittierhöhe	80
5.2.3. U-I-Charakteristik und Ermittlung der FE-Parameter	80
5.2.4. Einfluss von lokalen Metallbeschichtungen auf das Emissionsverhalten von p-dotierten Spitzenarrays	83
5.2.5. Emissionsverhalten von undotierten Spitzenarrays sowie mit integriertem pn-Übergang	85
5.2.6. Stabilität des Emissionsstroms und Langzeitmessung	87
5.2.7. Schlussfolgerungen	89
5.3. Feldemissionsmessungen mit Siliziumgras auf Säulenstrukturen	90
5.3.1. Aufgerautes Siliziumgras	90
5.3.2. Konditionierung	92
5.3.3. Einfluss der Emittiergeometrie und der Emittierhöhe	92
5.3.4. U-I-Charakteristik und Ermittlung der FE-Parameter	93
5.3.5. Einfluss der Dotierung auf das Emissionsverhalten	95
5.3.6. Kurz- und Langzeitstabilität des Emissionsstroms	96
5.3.7. Säulen mit Siliziumgras und integriertem Abstandshalter	98
5.3.8. Schlussfolgerungen	99
5.4. Spitzenarrays mit integrierter Gate-Elektrode	101
5.4.1. Konditionierung der Emittier	101
5.4.2. Einfluss der Gate- und Gitterspannung auf das Emissionsverhalten .	103
5.4.3. Zusammenhang zwischen Spitzenradius und Emissionsverhalten .	104
5.4.4. U-I-Charakteristik und Ermittlung der FE-Parameter	106
5.4.5. Emissionsverhalten von n-dotierten Spitzenarrays	109
5.4.6. Kurz- und Langzeitstabilität	110
5.4.7. Schlussfolgerungen	113
6. Realisierung einer Feldemissionsröntgenquelle	115
6.1. Stand der Technik bei miniaturisierten Röntgenquellen	115
6.2. Versuchsaufbau	119
6.3. Erzeugung von Röntgenstrahlung	120
6.4. Charakterisierung der FE-Röntgenquelle	123
6.4.1. Röntgenmessung mit einem Spitzenarray	123
6.4.2. Röntgenmessung mit einem Spitzenarray mit Gate-Elektrode	125
6.4.3. Röntgenmessungen mit Siliziumgras auf Säulen	127
6.5. Externe Regelungsmechanismen	128
6.5.1. Regelung des Emissionsstroms	128
6.5.2. Regelung des transmittierten Elektronenflusses	132

7. Miniaturisierte Feldemissionsröntgenquelle	136
8. Ausblick	138
A. Abkürzungen und Formelverzeichnis	142
A.1. Abkürzungsverzeichnis	142
A.2. Formelverzeichnis	143
B. Prozessparameter	145
B.1. Siliziumspitzen	145
B.2. Siliziumgras auf Säule	148
B.3. Siliziumgras auf Säule mit BCB-Abstandshalter	151
B.4. Siliziumspitzen mit integrierter Gate-Elektrode	155
B.5. Grobmaschiges Gitter	159
B.6. Feinmaschiges Gitter	162
C. Publikationsliste	165
Abbildungsverzeichnis	177
Tabellenverzeichnis	179
Literaturverzeichnis	179
Danksagung	193
Erklärung	194