

强流碳纳米管阴极快脉冲重频发射特性

向飞 吴平 曾凡光 王淦平 李春霞 鞠炳全

Fast-pulse repetitive frequency emission characteristic of high current carbon nanotubes cathode

Xiang Fei Wu Ping Zeng Fan-Guang Wang Gan-Ping Li Chun-Xia Ju Bing-Quan

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 64, 164103 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.164103

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.164103>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2015/V64/I16>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

相对论速调管中间腔与调制电子束间的非线性相互作用

Nonlinear interaction between modulated electron beam and the intermediate cavity of RKA

物理学报.2013, 62(10): 104104 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.104104>

激光加速电子束放射照相的模拟研究

Simulation study of radiography using laser-produced electron beam

物理学报.2012, 61(23): 234102 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.234102>

基于库仑定律的二极管空间电荷限制效应研究

Investigations of space charge limited effects in diode with Coulomb's law

物理学报.2012, 61(16): 165204 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.165204>

1THz 回旋管双阳极磁控注入电子枪的分析及设计

Analysis and design of a double-anode magnetron injection gun for 1THz gyrotron

物理学报.2012, 61(7): 074104 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.074104>

强流碳纳米管阴极快脉冲重频发射特性*

向飞^{1)†} 吴平²⁾ 曾凡光³⁾ 王淦平¹⁾ 李春霞¹⁾ 鞠炳全¹⁾

1)(中国工程物理研究院应用电子学研究所, 高功率微波技术重点实验室, 绵阳 621900)

2)(西北核技术研究所, 高功率微波技术重点实验室, 西安 710024)

3)(郑州航空管理技术学院, 郑州 450015)

(2014年12月24日收到; 2015年3月25日收到修改稿)

在Cu基底上, 采用催化热解生长法制备了石墨化程度较高的碳纳米管阴极. 当电子束能量达到1 MeV、梯度约为60 kV/ns时, 发射束流强度达到15 kA, 相应密度约为1 kA/cm², 束压、束流响应快, 波形间几无延时. 以50 Hz重复频率、约15 GW束功率强流发射时, 波形稳定, 随着频率增高, 稳定性降低. 发射炮次达1000后, 表面形貌保持完整、界面无脱附; 束压与束流基本满足空间电荷限制定律, 发射机理属闪络型等离子体发射, 等离子体速度约为3.9 cm/μs.

关键词: 碳纳米管阴极, 重复频率, 场致发射, 等离子体速度

PACS: 41.75.Ht, 52.59.Sa

DOI: 10.7498/aps.64.164103

1 引言

随着电子对抗技术发展, 高微波驱动源功率、能量水平、重复频率、装置的紧凑程度等要求不断提高, 重复频率高、束流密度大、发射均匀且稳定的长寿命冷阴极技术成为高功率微波技术发展的关键技术之一. 碳纳米管(carbon nanotube, CNT)长径比极大, 为层状结构, 具有特殊的结构、出众的机械强度、良好的导电性能和化学稳定性^[1]. 通常情况下, 分单壁与多壁结构, 常用阴极为多壁碳纳米管, 被应用于扫描探针显微镜、真空微电子、微波放大管、电子显微镜、场发射显示器等诸多领域^[2-4], 目前报道的场致发射束流密度可达10² A/cm²量级束流. 美国Shiffler等^[5]研究了CNT阴极强流发射稳定性, 在250 kV, 1 μs脉冲束压下、每隔10 min、以1 Hz重复频率连续运行了1 h, 束流强度超过2 kA, 发射稳定. 所以CNT阴极具备强流发射能力, 但强流发射机理、稳定特性和重复频率能力需要

重点研究.

2 强流CNT阴极

碳纳米管阴极为薄膜阴极, 表面附着性能决定真空性能、寿命、稳定性、重复能力等. 目前, 制作CNT阴极常用方法有两种, 即表面沉积催化金属纳米膜的原位生长法和使用固化材料将CNT附着在表面的固化层法. 原位生长法工艺流程为: 先在基底沉积催化金属纳米层, 待金属纳米层在高温下形成纳米催化颗粒后, CNT从纳米颗粒上生长. 固化层法主要有电泳法和丝网印刷法, 通常将CNT混合在不同金属微粒与非金属固化材料中, 沉积在基底表面经高温烧结而成, 在大面积阴极的制备上有较大优势.

受制备工艺限制, 薄膜阴极或多或少存在一些固有缺陷. 若CNT通过固化材料或过渡金属与表面结合, 长期工作中在焦耳加热、脉冲冲击等作用下, 固化层会干裂、松动甚至脱落, 使电子发射

* 高功率微波技术重点实验室资助的课题.

† 通信作者. E-mail: xiangfeiyang_2004@163.com

性能严重退化,引起真空恶化、器件电弧甚或毁坏 CNt 表面; CNt 与过渡金属或固化材料间的多重接触为热耗散源,降低了器件的导电性能,能量耗散还会使局部温度升高而加速 CNt 膜的老化,影响阴极发射寿命;过渡金属、固化材料或碳管与基底一般具有不同的热膨胀系数,由于热环境冲击可能致使 CNt 薄膜脱落,影响真空性能和发射寿命.因此,界面热效应是制约流强、重复频率、发射稳定性提高的重要因素,在低发射场强下,表现为静电张力、界面阻尼热效应;而在高场强、大束流条件下,接触点由于电子传输造成的阻尼效应是直接体现^[6].其实对强流阴极,在金属基底上直接生长 CNt 是一种简洁有效的手段.在适当的工艺条件下, CNt 从金属体内长出,与基底可以有机结合,提高了阴极导电性能,利于降低热耗散、优化发射性能;同时,牢固、简洁的阴极表面减少了杂质材料的脱落,改善了器件的真空特性并提高重复频率发射寿命.

综上所述, CNt 阴极要满足当前高功率微波源重复发射强流要求,需降低阻尼效应.重点考虑以下三个方面:首先,薄膜基底可以直接选用导电、导热性能好的金属材料;继而,碳管本体石墨化程度尽可能高,提高本体导电、导热特性;最后,减少中间界面,尽量不采用过渡、固化材料,于基底上直接生长碳管.总之,既要充分考虑材料结合性又要兼顾电与热的传导能力.

3 强流发射机理

快脉冲微波驱动源启动快、转换效率高,一般要求电子能在室温发射.通常强流条件下,场致发射阴极是较好的选择.其电子发射原理可以由量子隧穿理论来描述:当有外加垂直界面的电场存在时,阴极表面的势垒降低、变窄,当势垒宽度降至与电子费米波长相当时,电子的隧道效应开始起作用,阴极内部的电子遵循量子力学规律按一定的概率穿过表面势垒形成电子束. Fowler 和 Noedbeim^[7]在假设电子从金属电极发射及表面势为三角势的基础上,对普朗克常量采用幂近似将薛定谔方程转化为常微分方程,得到了广为引用的场致电子发射公式,认为发射束流密度 J 与表面电场 E 呈指数关系,即

$$J = \frac{AE^2}{\phi t^2(y)} \exp\left(-\frac{Bv(y)\phi^{3/2}}{E}\right), \quad (1)$$

其中, ϕ 为逸出功, E 需考虑表面电场的增强效应, A, B 是常数, $t(y), v(y)$ 是 Nordheim 椭圆函数.在场致电子发射技术的发展中,场发射阵列是一个重要概念,相比单锥尖阴极,其发射束流和发射束压等性能有了本质性的改善.与其他单纯场发射源相比, CNt 长径比大,场增强系数高,发射阈值(发射 10 mA/cm^2 束流的场强)可以低至 $1\text{--}2 \text{ V}/\mu\text{m}$,单根 CNt 可发射 μA 量级的束流^[8].所以,强流发射时辅以定向控制,直接于基底生长具较好指向性的 CNt 薄膜,可以够成阵列场,有能力发射很高的束流强度.

等离子体阴极是另外一种重要强流冷阴极,是高功率微波源常用阴极.由于电子是从等离子体层中抽取,发射能力无须置疑,主要受空间电荷力的影响,其束流密度与二极管束压 V 、阴阳极距离 d 有关,满足 Child-Langmuir 定律(“ $3/2$ ”律),即

$$J = \frac{4\epsilon_0\sqrt{2e}V^{3/2}}{9\sqrt{md^2}}, \quad (2)$$

其中, e, m 分别为电子电量与质量; ϵ_0 为真空介电常数.因为金属、介质阴极表面一般都存在着被称为晶须的微观凸起,电场增强系数高,所以增强型尖端场致发射是等离子体猝发常见机理.脉冲急剧上升期间,阴极在脉冲电场激励下,表面晶须顶端场强可以增加到宏观场强的数百至上千倍,以至场致电子发射,发射束流密度随场强上升迅速增大,当增加到一定程度,受到空间电荷的影响,逐渐向空间电荷限制区过渡.期间,由于发射束流对阴极表面晶须的欧姆热作用,使其接近熔点温度,阴极尖端材料的原子(分子)向空间蒸发,随即又被发射的电子电离并形成正离子抵消电子的空间电荷作用,促使束流进一步增大、晶须进一步加热,最后造成阴极尖端熔化、爆炸,把大量原子抛向空间.在电离作用下,形成局部等离子体猝发(即阴极亮斑)并由于不断膨胀、合并,很快形成一个覆盖阴极表面的等离子体壳层,从而增大电子有效发射面积,产生高强度电子束流.该过程等离子体温度高达数千 K,因此其膨胀扩散速率较大,易导致波形不稳定.

等离子体另外一种猝发机理是表面闪络.表面闪络机理包含以下几个阶段:当加载在阴极表面的电场强度超过电子发射域值时,产生表面闪络现象,形成柱状稠密冷等离子体;在外加的电场作用下,等离子体柱中的电子被拉向阳极,流经等离子体柱的电流对气体进行欧姆加热,等离子体柱以正

比于气体电子温度平方根的速度进行扩散; 最终, 等离子体鞘层不断膨胀、扩散至电子到达阳极为止. 该种发射方式电子温度相对较低, 等离子体膨胀在一定程度上受到抑制.

综上所述, CNt 阴极可以场致发射或等离子体发射方式获得强流电子束. 在等离子体发射机理中, 等离子体膨胀容易引起发射波形不稳定甚至导致二极管间隙闭合, 等离子体点火方式影响阴极发射性能. 其实, 阴极表面气体及杂质吸附也参与到等离子体发射过程. 当电子从等离子体层中拉出后, 剩余正离子会在阴极表面附近起一定电中和作用, 而离子在外电场作用下向阴极区运动, 最终轰击阴极导致二次电子发射. 随着温度的不断升高, 更多的气体被释放, 从而增大发射束流、加热阴极微点. 所以, 杂质及气体吸附加剧了等离子体扩张.

4 发射实验研究

4.1 实验装置与阴极样品

实验平台为 Tesla 型快脉冲加速器, 输出电子能量最大可达 1 MeV, 重复频率最大可达 100 Hz, 束压脉冲宽度约为 45 ns, 束压梯度约为 60 kV/ns, 采用径向绝缘平面二极管结构测试阴极强流发射特性, 用阴极屏蔽环降低绝缘子表面及三相(真空、绝缘子与金属)点的电场强度, 减小回流电子轰击, 提高输出束流的稳定性; 分别利用电容分压器和罗科夫斯基线圈测量二极管电子束束压和束流, 腔体真空度维持在 mPa 级, 电子收集极强制水冷.

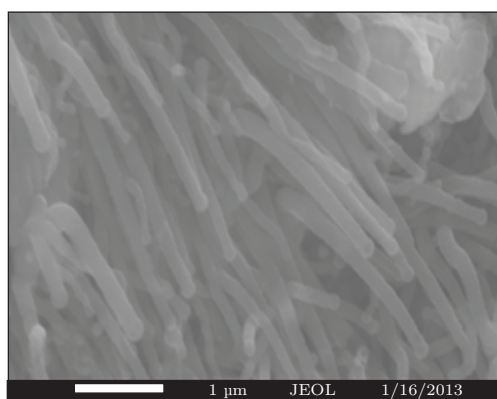


图1 CNt 阴极 SEM 图像

Fig. 1. CNt cathode SEM images.

以表面打磨后的铜板作基, 用催化热解沉积法生长石墨化程度较高的纳米碳管^[8]. 所得碳纳米管阴极场发射电镜扫描 (SEM) 图像及 Raman 谱图分

别如图 1 和图 2 所示, 可见 CNt 长度约 10—20 μm, 直径约 20—50 nm, 扎根性好, 但生长密度不太均匀, 局部存在催化剂残余沉积; Raman 谱图中, 波数 1000—2000 cm^{-1} 之间有两个明显的峰, 其中位于 1600 cm^{-1} 处为 G 峰, 位于 1352 cm^{-1} 处为 D 峰, 该图中 D 峰积分强度与 G 峰积分强度的比值小于 1, 所以薄膜的石墨化程度较高.

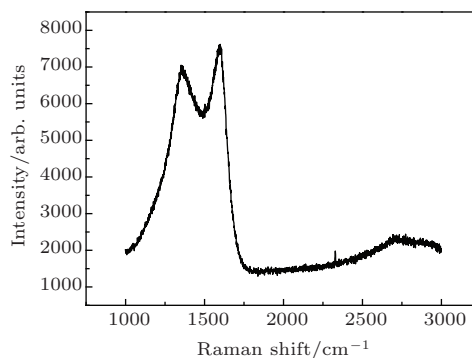


图2 CNt 阴极 Raman 谱线

Fig. 2. CNt cathode Raman spectra.

4.2 发射特性

实验时, 阴阳极间隙为 5 cm, 束压在线调节, 实现场强的变化. 典型实验波形如图 3 所示. 其中上列为二极管束压波形, 下列为束流波形, 时间间隔为每格 20 ns, 重复频率 Hz 数定义为每秒等间隔发射脉冲个数, 炮次数为该重复频率连续发射的次数. 实验结果可见: 电子最大能量约为 1 MeV, 峰值束流密度约为 1 kA/cm^2 ; 束压、束流响应极快, 两者之间几无时间延迟, CNt 阴极强流发射阈值低; 随着重复频率的增加, 其发射稳定性逐渐降低, 当重复频率达到 100 Hz 时, 束压、束流几乎被分成了两段, 且延迟时间明显有异, 打开腔体后发现其实是能量过于集中, 阳极薄板来不及散热致使靶斑局域气化回轰到阴极表面并沉积造成, 并非出于碳管脱落以至基底暴露.

束流在等离子体发射与场致发射中的差异突出体现在随束压变化的增长速度不同: 间距不变时, 场致发射束流随束压呈指数增长; 等离子体发射机理时, 束流主要受电荷空间效应抑制, 束流与束压满足 Child-Langmuir 定律所描述的“3/2”次幂关系; 场致发射强到一定程度也可成为空间电荷限制模式, 此时差别就是二极管有效间距是否缩短. 实验中, CNt 阴极束压、束流关系表现如图 4 所示, 其中数据点为实验结果, 实线为拟合趋势线, 函

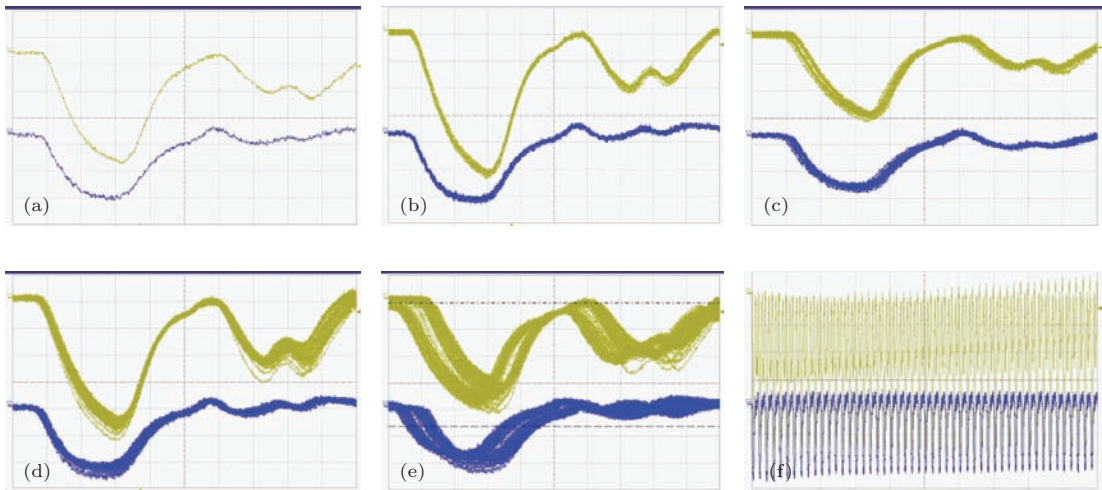


图3 (网刊彩色) 实验典型波形 (a) 单次; (b) 10 Hz/10 炮; (c) 20 Hz/20 炮; (d) 50 Hz/50 炮; (e) 100 Hz/100 炮; (f) 50 Hz/50 炮波形序列图

Fig. 3. (color online) Typical waveform of the experiment: (a) single; (b) 10 Hz/10 shots; (c) 20 Hz/20 shots; (d) 50 Hz/50 shots; (e) 100 Hz/100 shots; (f) the 50 Hz/50 shots sequence diagram.

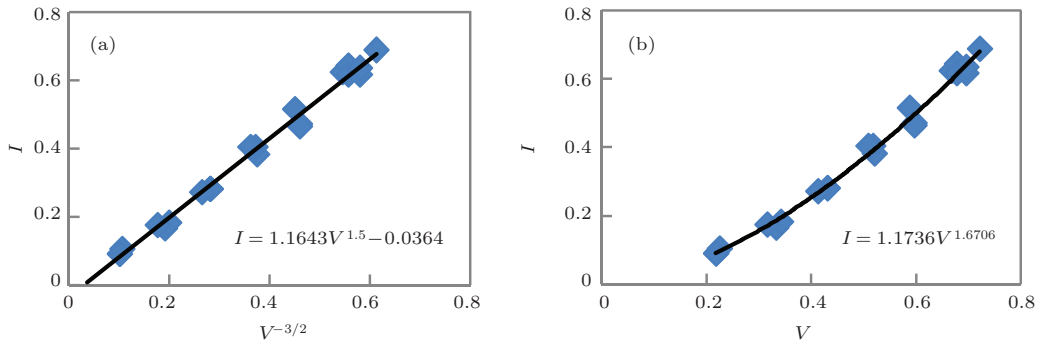


图4 (网刊彩色) 发射实验数据分析 (a) 空间电荷限制; (b) 间隙缩短

Fig. 4. (color online) Analysis of the experimental data: (a) space charge limited; (b) gap shorten.

数为趋势线拟合函数; 因为“3/2”定律束流密度仅由二极管间隙与阴阳极电势决定, 余皆表现为常量, 所以二极管束压 V 、二极管束流 I 均可做无量纲处理. 显然, $V^{3/2}$ 与束流近乎线性关系, 但幂数稍大于 1.5, 所以需要考虑等离子体膨胀影响. 若等离子体膨胀速度为 v , 等离子体鞘层形成时间为 t , 阴极圆片半径为 r , 则由于等离子体鞘层的扩张, 阴极有效发射面前移, 表现为二极管有效间隙缩短, 导流系数 κ 可以表达成

$$\kappa \propto \frac{V^{3/2}(r + v_r)^2}{(d - v_z t)^2}, \quad (3)$$

其中, v_r , v_z 分别为径向与轴向膨胀速度, 一般情况下可认为两者相等 [9]. 可见, 该强流情况下只有存在等离子体膨胀行为, 幂数才能符合“3/2”次定律描述. 从发射特征波形可以知道: 电子几乎在束压伊始发射, 在束压平顶阶段依然在上升, 而在束

压的下降阶段随着下降. 可以认为: 等离子体在束流快速上升阶段为等离子体鞘层成形时间, 此时场致发射做出了重要贡献; 当束流梯度与束压梯度相比明显变化的时间为等离子体快速膨胀期时, 波形反应时间约为 35 ns. 所以, 等离子体膨胀速度与束压大小有关, 根据图 4(b) 拟合趋势函数可计算出 CNT 阴极在电子能量达 1 MeV 时, 等离子体膨胀速度约为 3.9 cm/ μ s, 该值小于文献 [10] 报道的 8.17 cm/ μ s. 其原因可能是阴极表面吸附情况不同, 比如丝网印刷型 CNT 阴极气体及杂质吸附量甚至比天鹅绒阴极更多 [11].

等离子体猝发机理很难通过束压、束流分析, 就阴极微观结构表征而言, 场致爆炸发射容易导致晶体尖端炸裂以生成新的发射体, 闪络发射则相对稳定, 对 CNT 阴极, 场增强系数大, 便于闪络. 实验中 50 Hz 多次发射后, 阴极如图 5 所示(其

中, 图5(a)和图5(b)分别为未发射以及1000炮后CNT阴极SEM图像, 前者为俯视图, 后者为侧视图). 发射前后形貌对比表明: 多达1000炮次时, 阴极表面形貌完整, 表面球头清晰可见, 晶体根部未脱附. 所以CNT阴极强流发射时, 其发射机理为闪络型等离子体发射, 具有一定的重复发射寿命.

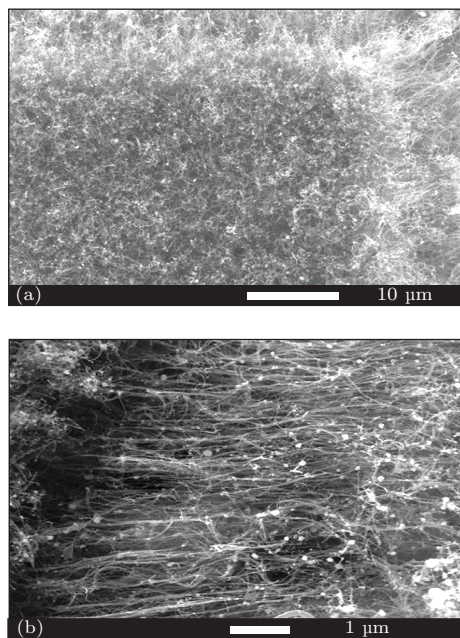


图5 阴极表面新貌 (a) 发射前; (b) 发射1000炮后
Fig. 5. Cathode surface morphologies: (a) before the launch; (b) after 1000 shots.

5 结 论

采用高温热解方法可以制备快脉冲强流CNT阴极, 当基底选用导热、导电性能好的金属材料, 本体石墨化程度较高时, 可以作为高功率重复频率

发射阴极应用. 当电子能量达到1 MeV时, 束流密度超过1 kA/cm², 稳定发射重复频率超过50 Hz. 此时, 其发射机理为闪络型等离子体机理, 等离子体速度约为3.9 cm/μs. 以50 Hz发射1000炮次后, CNT形态依然完整, 界面无脱附现象发生. 所以强流CNT在重频高功率微波源研究领域具有广阔应用前景.

参考文献

- [1] Yang D J, Wang S G, Zhang Q, Sellin P J, Chen G 2004 *Phys. Lett. A* **329** 207
- [2] Novak J P, Lay M D, Perkins F K, Snow E S 2004 *Solid-State Elec.* **48** 1753
- [3] Seelaboyina R, Huang J, Choi W B 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 194104
- [4] Bonard J M, Klinke C, Dean K A, Coll B F 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 7602
- [5] Shiffler D 2004 *IEEE Trans. Plasma Sci.* **32** 2152
- [6] Dean K A, Chalamala B R 2000 *Appl. Phys. Lett.* **76** 375
- [7] Fowler R H, Nordheim L 1928 *Electron Emission in Intense Electric Fields* (London: Proceeding of the Royal Society) A119:173
- [8] Ma H L, Huo H B, Zeng F G, Xiang F, Wang G P 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 158801 (in Chinese) [麻华丽, 霍海波, 曾凡光, 向飞, 王淦平 2013 物理学报 **62** 158801]
- [9] Pushkarev A I, Sazonov R V 2009 *IEEE Trans. Plasma Sci.* **37** 1901
- [10] Liao Q L, Zhang Y, Xia L S, Qi J J, Huang Y H, Deng Z Q, Gao Z J, Cao J W 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 2328 (in Chinese) [廖庆亮, 张跃, 夏连胜, 齐俊杰, 黄运华, 邓战强, 高战军, 曹佳伟 2008 物理学报 **57** 2328]
- [11] Chen Y, Zhang H, Liu X G, Xia L S, Yang A M 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 080702 (in Chinese) [谌怡, 张篁, 刘星光, 夏连胜, 杨安民 2011 物理学报 **60** 080702]

Fast-pulse repetitive frequency emission characteristic of high current carbon nanotubes cathode*

Xiang Fei^{1)†} Wu Ping²⁾ Zeng Fan-Guang³⁾ Wang Gan-Ping¹⁾
Li Chun-Xia¹⁾ Ju Bing-Quan¹⁾

1) (Key Laboratory on Technology of High Power Microwave, Institute of Applied Electronics, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China)

2) (Key Laboratory on Technology of High Power Microwave, Northwest Institute of Nuclear Technology, Xi'an 710024, China)

3) (Zhengzhou Institute of Aeronautical Industry Management, Zhengzhou 450015, China)

(Received 24 December 2014; revised manuscript received 25 March 2015)

Abstract

With the development of high power microwave technology, the demands for electron beam repetition frequency, current density, response time and emission uniformity are higher and higher. Carbon nanotube (CNT) cathode has been widely investigated, because of its special structure and excellent field emission characteristics. CNT cathode is regarded as a thin film high current cathode, and the interface bonding will affect vacuum performance, stability, lifetime and repeat ability. The direct growth of CNT is a simple and effective means for preparing cathode. When electron energy reaches 1 MeV and the pulse upward gradient attains approximately 60 kV/ns, for CNT cathode, its the emission beam intensity reaches 15 kA and the peak bundle density attains about 1 kA/cm², the response between beam voltage and current is fast. With the increase of repetition frequency, the emission stability decreases gradually. When the emission power is 15 GW and the emission stability repetitive frequency is 50 Hz, the cathode emission is stable. However with the increase of frequency, the stability becomes weak. When the repetition frequency reaches 100 Hz, voltage and current are almost split into two sections, and the delay time is obviously different. The relation between the voltage and the current meet the exponent law, which is different from the field emission characteristic. After a 1000 shot emission, the morphology of CNT cathode is intact, desorption from the interface of CNT does not happen. So the emission mechanism is flashover plasma emission. Through analyzing the experimental data and considering the plasma expansion effect on diode gap, the plasma speed can be estimated to be about to 3.9 cm/μs.

Keywords: carbon nanotubes cathode, repetitive frequency, field emission, plasma speed

PACS: 41.75.Ht, 52.59.Sa

DOI: 10.7498/aps.64.164103

* Project supported by the Key Laboratory on High Power Microwave Technology, China.

† Corresponding author. E-mail: xiangfeiyang_2004@163.com