

多层纳米 AlGa<sub>N</sub> 薄膜制备及其场发射性能

沈震 陈程程 王如志 王波 严辉

Preparations and field emission properties of multilayer AlGa<sub>N</sub> nanofilm

Shen Zhen Chen Cheng-Cheng Wang Ru-Zhi Wang Bo Yan Hui

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 65, 236803 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.236803

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.236803>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2016/V65/I23>

---

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

基底表面纳米织构对非晶四面体碳膜结构和摩擦特性的影响研究

Effect of ion-beam surface modification technology on the variation of surface texture

物理学报.2015, 64(3): 036801 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.036801>

高速率沉积磁控溅射技术制备 Ge 点的退火生长研究

Study on the annealing growth of Ge dots at high deposition rate by using magnetron sputtering technique

物理学报.2014, 63(15): 156802 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.156802>

硅油基底上受限金属薄膜自组装褶皱的原子力显微镜研究

Atomic force microscopy studies on self-organized wrinkles in constrained metallic films deposited on silicone oil substrates

物理学报.2014, 63(11): 116801 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.116801>

氢气引入对宽光谱 Mg 和 Ga 共掺杂 ZnO 透明导电薄膜的特性影响

Influence of H<sub>2</sub> introduction on wide-spectrum Mg and Ga co-doped ZnO transparent conductive thin films

物理学报.2014, 63(3): 036801 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.036801>

# 多层纳米 AlGa<sub>N</sub> 薄膜制备及其场发射性能\*

沈震<sup>1)</sup> 陈程程<sup>1)2)</sup> 王如志<sup>1)†</sup> 王波<sup>1)</sup> 严辉<sup>1)</sup>

1)(北京工业大学材料科学与工程学院, 北京 100124)

2)(北京市产品质量监督检验院, 北京 101300)

(2016年4月21日收到; 2016年8月28日收到修改稿)

本文采用激光脉冲沉积系统在 SiC 基底上制备了 GaN/AlN/GaN 多层纳米结构薄膜, 探索了多层纳米薄膜量子结构增强场发射性能. X 射线衍射和扫描电子显微镜结果表明, 已成功制备出了界面清晰、结晶良好的 GaN/AlN/GaN 多层纳米薄膜. 场发射测试结果表明: 多层纳米薄膜结构相对于 GaN 和 AlN 单层纳米薄膜, 其场发射性能得到显著提升. 其开启电场低至 0.93 V/μm, 电流密度在 5.5 V/μm 时已经能够达到 30 mA/cm<sup>2</sup>. 随后进一步分析了纳米结构增强场发射机理, 电子在 GaN/AlN/GaN 多层纳米薄膜结构中的量子阱中积累使其表面势垒高度显著下降, 并通过共振隧穿效应进一步提高电子的透过概率, 从而使场发射性能极大提高. 研究结果将为应用于高性能场发射器件的纳米薄膜材料的制备提供一种好的技术方案.

**关键词:** 铝镓氮 (AlGa<sub>N</sub>), 多层纳米薄膜, 量子结构增强场发射, 共振隧穿效应

**PACS:** 68.55.-a, 77.55.hd, 79.70.+q, 73.40.GK

**DOI:** 10.7498/aps.65.236803

## 1 引言

近年来 III-V 族氮化物材料一直是半导体领域中的研究热点. 其中氮化镓 (GaN) 和氮化铝 (AlN) 等由于具有直接带隙宽、击穿电场大、热导率高、电子亲和势小 (甚至为负) 等<sup>[1-4]</sup> 特殊的性质, 在新一代真空微电子<sup>[5,6]</sup> 设备领域有着巨大的应用潜力和广阔的市场前景, 引起人们的极大兴趣和广泛研究. 目前, 大量的研究集中在 AlN 和 GaN 的一维结构上, 如纳米线<sup>[7,8]</sup>、纳米棒等<sup>[9,10]</sup>. 然而有报道称一维纳米结构材料的热导率相较体材料要小很多<sup>[11,12]</sup>. 在大电流和大功率器件运行中, 无效的热耗散会导致场发射性能的降低以及缩短设备使用寿命<sup>[13]</sup>. 因此, 研究稳定高性能的薄膜场发射阴极材料是很有需要的.

Shi 等<sup>[14]</sup> 在 SiC 衬底上制备出的 Si 掺杂 AlN 薄膜, 其开启电场低至 6.7 V/μm, 在电场强度为 34.65 V/μm 时得到最大发射电流密度

154 mA/cm<sup>2</sup>, Evtukh 等<sup>[15]</sup> 通过对 AlGa<sub>N</sub> 薄膜表面处理降低表面势垒从而达到提高场发射性能的目的. 虽然目前在 GaN, AlN 以及 AlGa<sub>N</sub> 单层薄膜方面有大量的研究, 但是依然很难达到一维结构的较低的开启电场和较大的电流密度. 与此同时, 在多层纳米薄膜结构调控场发射方面的研究取得一定进展, 1996 年 Kryuchenko<sup>[16]</sup> 从理论上模拟了 SiO<sub>2</sub>/Si/SiO<sub>2</sub> 量子势阱系统, 研究表明量子阱产生的局域能级将导致电子的共振隧穿效应, 该效应可能有助于电子发射性能的增强. 我们小组进一步提出了基于纳米多层薄膜量子结构场发射增强思想, 选用合适半导体材料, 构造出量子势阱/势垒交替结构的纳米多层超薄膜, 发现量子结构调控可实现场发射性能的极大增强<sup>[17]</sup>. 在此基础上, 我们从实验方面通过构建 AlN/GaN 多层量子结构详细地研究了其场发射性能, 并用我们之前提出的量子自洽模型很好地解释了其中的量子增强机理<sup>[18]</sup>. 但是之前的研究重点仅限于 AlN/GaN 双层量子结构, 因此本文在前面工作基础上, 采用脉冲激光沉

\* 国家自然科学基金 (批准号: 11274029, 11074017) 和北京工业大学京华人才支持计划 (批准号: 2014-JH-L07) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: wrz@bjut.edu.cn

积(pulsed laser deposition, PLD)系统在SiC基底上制备了GaN/AlN/GaN三层纳米薄膜,详细地研究了多层薄膜中共振隧穿对场发射性能的影响.

## 2 实验

实验前先清洗基底SiC片,具体过程如下:依次在甲苯、丙酮、乙醇中超声清洗15 min.每次超声后用去离子水反复冲洗10—15次.随后在一号液( $\text{NH}_3 \cdot \text{H}_2\text{O} : \text{H}_2\text{O}_2 : \text{H}_2\text{O} = 1 : 2 : 5$ ) 75 °C水浴15 min,然后用去离子水反复冲洗10—15次.

纳米薄膜的制备采用PLD系统,在n型SiC基底上先沉积一层GaN薄膜,接着沉积一层AlN薄膜,最后再沉积一层GaN薄膜.具体工艺参数如下:脉冲激光能量350 mJ/mm<sup>2</sup>,脉冲频率为10 Hz, KrF准分子激光器的发射波长为248 nm,脉冲宽度为10 ns,靶基距为6.5 cm,靶和基底自转速率为10 r/min.腔体背底真空度达到10<sup>-4</sup> Pa,沉积前通入纯度为99.99%的高纯氮气并调节工作气压到1 Pa.在沉积过程中,保持基底温度为875 °C.沉积结束后,退火15 min.在沉积过程中,为制备不同厚度的多层Ga<sub>2</sub>N/AlN/GaN薄膜,控制沉积时间为3 min/8 min/3 min.

样品物相和形貌分别使用X射线衍射仪(BRUKER D8 ADVANCE XRD)、场发射扫描电子显微镜(Hitachi S-4800, SEM)与原子力显微镜(Park NX10, AFM)进行测试和表征.场发射阳极采用低阻Si片(0.001 Ω·cm),阴极为尺寸为0.7 × 0.7 cm<sup>2</sup>表面长有纳米薄膜的SiC片.阳极和阴极间以108 μm的绝缘丝隔开,室温高真空(1.0 × 10<sup>-6</sup> Pa以下)环境中,将数字源表(Keithley 2410)接入场发射测试回路中用于提供直流电压和测量其场发射电流,重复多次测量消除误差并保证测试可靠性.

## 3 微结构特性

图1为GaN及AlN单层纳米薄膜与多层Ga<sub>2</sub>N/AlN/GaN纳米薄膜的XRD图谱.对比GaN和AlN粉体的晶体衍射标准图谱(JCPDS 50-0792和65-0841),从图中可以看出,多层Ga<sub>2</sub>N/AlN/GaN和单层GaN图谱中均有六方纤锌矿Ga<sub>2</sub>N(002)面的衍射峰,多层Ga<sub>2</sub>N/AlN/GaN

和单层AlN图谱中均有立方闪锌矿的AlN的(111)和(004)面的衍射峰.说明所制备的多层Ga<sub>2</sub>N/AlN/GaN薄膜样品中既生长了六方Ga<sub>2</sub>N结

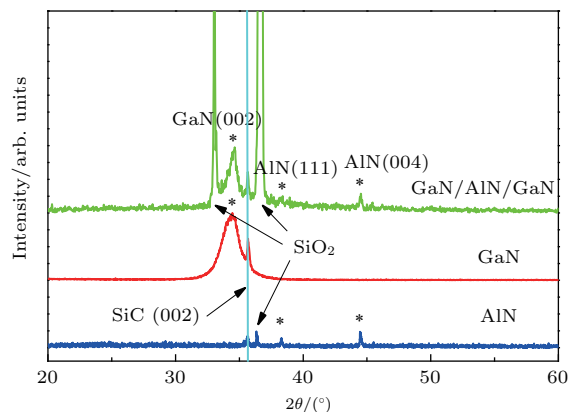


图1 铝镓氮纳米薄膜的XRD图谱

Fig. 1. XRD patterns of AlGaIn NFs.

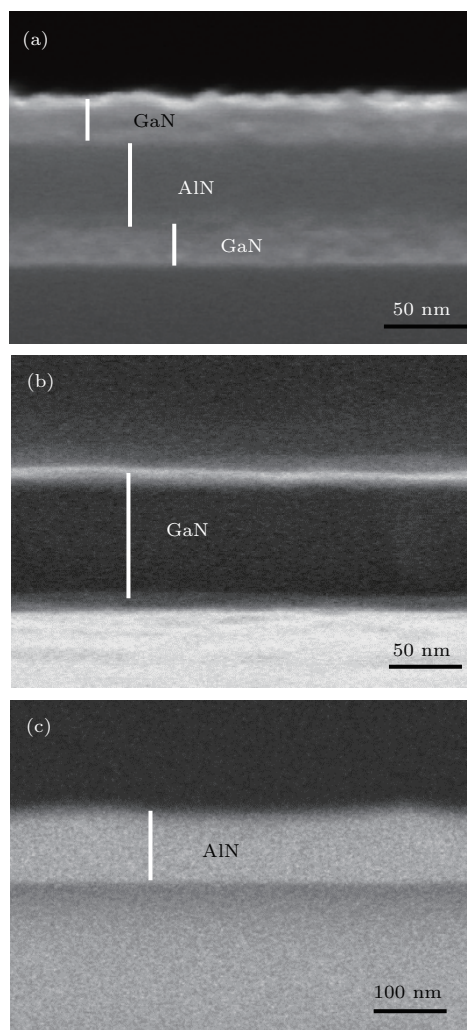


图2 铝镓氮纳米薄膜的SEM断面图 (a) 样品a; (b) 样品b; (c) 样品c

Fig. 2. Surface morphology SEM images of AlGaIn NFs: (a) Sample a; (b) sample b; (c): sample c.

构又生长了立方 AlN 结构的纳米薄膜. 另外在 35.6° 出现了衬底 SiC 的峰, 引入的 SiO<sub>2</sub> 是由于制备过程中氧化造成的.

样品 a, b 和 c 的 SEM 断面如图 2 所示, 从图中可以看出, 样品 a 中包含了三层厚度均匀的纳米薄膜, 且层与层之间具有清晰的界面, 根据薄膜沉积顺序我们可以认定基底上薄膜次序为 GaN/AlN/GaN. 样品 b 和样品 c 为厚度均匀的单层膜. 由此断面图, 通过标尺比对, 可以直接获得样品 a 中每一层薄膜的厚度为 25 nm/50 nm/25 nm, 而样品 b 和 c 的薄膜厚度分别为 90 和 100 nm.

### 4 场发射性能研究

图 3 所示为样品 a, b, c 的场发射性能数据, 图 3(a) 为场发射  $J-E$  关系曲线, 对应的  $F-N$  关系曲线如图 3(b) 所示. 根据  $F-N$  方程<sup>[10]</sup>, 场致电子发射对应  $F-N$  曲线为一条直线, 因此我们将  $F-N$  曲线开始变为一条直线时所加电场定义为样品的开启电场. 将阈值电场定义为场发射电流密度达到 1 mA/cm<sup>2</sup> 时所加的场强大小. 薄膜结构以及场发射特性的相关数据见表 1. 由表 1 可以看出, GaN 和 AlN 单层纳米结构薄膜所对应的开启电场分别为 5.41 和 26.43 V/μm, 与他们相比 GaN/AlN/GaN 多层纳米结构薄膜具有低至 0.93 V/μm 的开启电场. 且从多层薄膜的  $J-E$  曲线可以看出, 最后的电流已经达到了 Keithley 2410 的最高保护电流值, 说明这个样品的性能还会更好. 而其阈值电场为 2.07 V/μm, 结果表明所制备的多层薄膜已经可与具有优异场发射性能的金刚石薄膜阴极性能相媲美<sup>[19-22]</sup>.

表 1 不同样品的相关参数

Table 1. Experimental parameters and properties of GaN NFs.

样品编号	样品组成结构	$E_{ON}/$ V·μm <sup>-1</sup>	$E_{th}/$ V·μm <sup>-1</sup>	$J_{max}/$ μA·cm <sup>-2</sup>
a	GaN/AlN/GaN	0.93	—	≥ 5.0 × 10 <sup>4</sup>
b	GaN	5.41	2.07	503.15
c	AlN	26.43	—	189.04

可以通过简化 (1) 式来表示  $F-N$  关系<sup>[10]</sup>,

$$J = (AE^2/\phi) \exp[-B\phi^{3/2}/(\beta E)], \quad (1)$$

其中常数  $A$  和  $B$  分别为  $1.56 \times 10^{10}$  A·eV/V<sup>2</sup> 和  $6.83 \times 10^3$  V/eV<sup>3/2</sup>·μm.  $J$  表示电流密度,  $E$  表示所加电场,  $\phi$  表示表面有效势垒高度,  $\beta$  是场增强因子. 如图 3(b) 所示,  $F-N$  曲线中在高场时都可以拟合成一条直线, 说明他们的电子都是通过量子隧道发射的. 但是单层 GaN 和 AlN 薄膜的斜率变化较多层薄膜陡峭很多, 表明单层薄膜与多层薄膜的场发射机理可能不同, 下面我们将分析他们具体的电子发射机理.

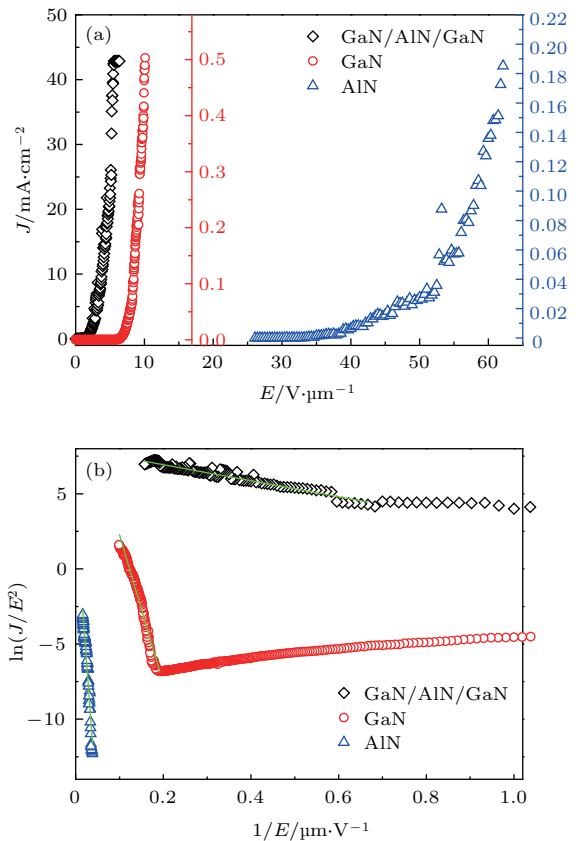


图 3 AlGaN 纳米薄膜的场发射特性 (a) 场发射  $J-E$  关系曲线; (b) 场发射  $F-N$  关系曲线

Fig. 3. FE characteristics of AlGaN NFs: (a) The  $J-E$  characteristics; (b) the corresponding  $F-N$  plots.

上述结果表明多层 GaN/AlN/GaN 纳米薄膜场发射性能相比单层 GaN 以及 AlN 薄膜明显增强. 根据  $F-N$  方程, 场发射性能主要由场增强因子  $\beta$  和表面有效势垒高度  $\phi_{eff}$  决定. 使用 AFM 测试样品表面形貌如图 4 所示, 得到样品 a, b 和 c 的表面粗糙度值分别为: 0.78, 0.84 和 1.56 nm, 由于  $\beta$  的大小与薄膜表面形貌的粗糙度有直接关系, 假设  $\beta = \beta_0 \times R$ , 其中  $\beta_0$  是薄膜表面结构系数,  $R$  为测试样品的表面粗糙度<sup>[23]</sup>. 仅考虑场增强因子的影响的话, 样品 a, b, c 的场发射性能应该依次增大,



而实际情况则是样品 a 比样品 b 和样品 c 的最大电流密度大了好几个数量级. 因此表面形貌的影响可以忽略不计, 主要取决于表面有效势垒高度  $\phi_{\text{eff}}$ . 也就是说多层 GaN/AlN/GaN 纳米薄膜的表面有效势垒高度降低可能是导致其场发射性能增强的主要原因.

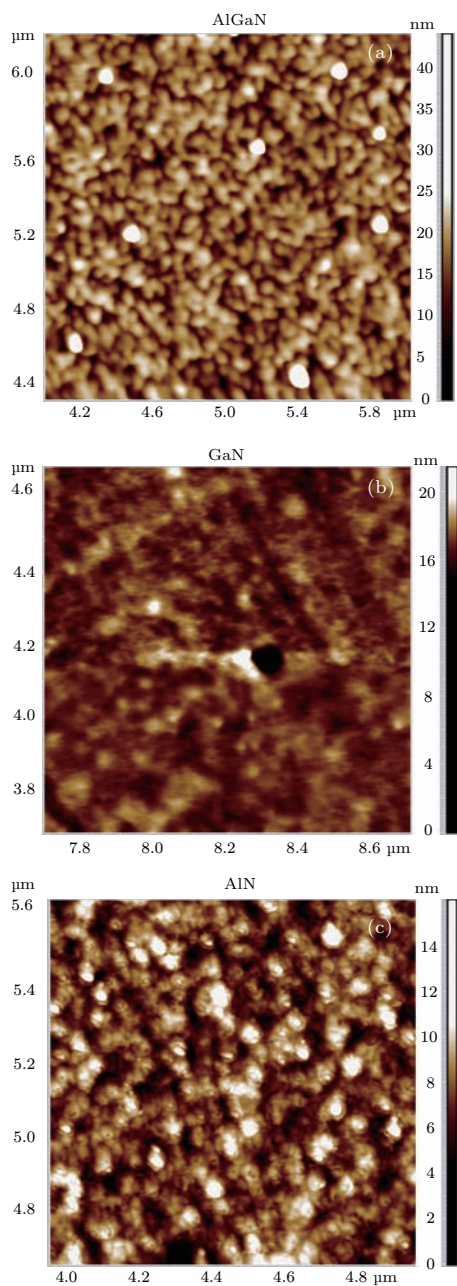


图 4 (网刊彩色) AlGaIn 纳米薄膜的 AFM 图 (a) 样品 a; (b) 样品 b; (c) 样品 c  
 Fig. 4. (color online) AFM images of AlGaIn NFs: (a) Sample a; (b) sample b; (c) sample c.

对于 GaN 和 AlN 单层纳米结构薄膜, 电子发射机理是电子从电子源输运至阴极表面后隧穿单一真空势垒完成的, 即通常的场发射过程. 且  $F-N$

曲线中出现两条直线是由于热电子发射到场电子发射的转变. 同时, 对于薄膜型场发射阴极来说, 较低的场增强因子导致了单层 GaN 和 AlN 纳米薄膜较小的场发射电流密度以及较大的开启及阈值电场.

而对于多层 GaN/AlN/GaN 纳米薄膜, 其电子发射机理并不是通常的 FN 隧穿, 而是伴随着共振场发射隧穿过程进行的 [16]. 共振隧穿除了和势垒高度及宽度有关外, 还和势阱中能级的分布有关, 而势阱中能级的分布则取决于势垒/势阱的结构. 而共振隧穿的特点在于, 当能量  $E$  与势阱中分立亚能级对准时透射概率达到最大值, 理想情况下该最大值接近于 1, 即电子全部透射, 因而远大于电子隧穿单势垒时的透射率. 另外, 双势垒共振隧穿会在近发射表面势阱中积累电子, 进一步降低有效势垒高度. 在之前的工作中, 我们采用能带弯曲模型和量子自治理论成功地解释了多层半导体纳米薄膜的结构增强场发射机理, 即多层半导体薄膜的结构效应是源于电子局域能级位置的改变以及有效表面势垒高度的降低 [17].

同时在我们小组之前的工作中系统地研究了 SiC 衬底上 GaN 单层薄膜沉积时间与薄膜场发射性能之间的关系, 研究结果表明沉积时间为 1 min 时, GaN 单层薄膜厚度为 10 nm, 具有最低的开启电场  $0.66 \text{ V}/\mu\text{m}$  (电流密度为  $1 \mu\text{A}/\text{cm}^2$ ), 在  $4.18 \text{ V}/\mu\text{m}$  时达到最大电流密度  $1.1 \text{ mA}/\text{cm}^2$  [24]. 本文中制备的 GaN/AlN/GaN 三层薄膜与之相比, 开启电场相差不大 (本文中三层样品由于在开启附近变化十分快, 故而定义开启电场为:  $F-N$  曲线开始变为一条直线时所加电场), 而最大电流密度有显著的提升.

基于上面的分析, 多层纳米 GaN/AlN/GaN 薄膜较单层 AlN 和 GaN 薄膜性能提升很大的原因在于共振隧穿场致电子发射, 这是由于形成了量子势垒/势阱的结构, 使得积累电子增多及表面有效发射势垒降低造成的.

## 5 结 论

本文采用 PLD 系统在 SiC 基底上成功制备了 GaN/AlN/GaN 多层纳米结构薄膜, 并探索了其场发射性能. 场发射测试结果表明 GaN/AlN/GaN 多层薄膜结构场发射阴极相比 GaN 和 AlN 单层薄

膜场发射性能得到显著提升. 其场发射显著提升应归功于电子在 GaN/AlN/GaN 多层纳米薄膜结构中的量子阱中的积累使其表面势垒高度显著下降, 并通过共振隧穿效应进一步提高电子的透过概率, 从而使场发射性能极大提高. 多层 AlGaIn 纳米薄膜具有优异的场发射性能, 将为高功率、大电流的薄膜场发射器件的发展和应用提供可行技术方案.

## 参考文献

- [1] Benjamin M C, Wang C, Davis R F, Nemanich R J 1994 *Appl. Phys. Lett.* **64** 3288
- [2] Wu C I, Kahn A, Hellman E S, Buchanan D N E 1998 *Appl. Phys. Lett.* **73** 1346
- [3] Wu C I, Kahn A 1999 *Appl. Phys. Lett.* **74** 1433
- [4] Tang Y B, Bo X H, Xu J, Cao Y L, Chen Z H, Song H S, Liu C P, Hung T F, Zhang W J, Cheng H M, Bello I, Lee S T, Lee C S 2011 *Acs Nano* **5** 3591
- [5] Lin M C, Huang K H, Lu P S, Lin P Y, Jao R F 2005 *J. Vac. Sci. Technol. B* **23** 849
- [6] Liang F, Chen P, Zhao D G, Jiang D S, Liu Z S, Zhu J J, Yang J, Liu W, He X G, Li X J, Li X, Liu S T, Yang H, Zhang L Q, Liu J P, Zhang Y T, Du G T 2016 *Chem. Phys. Lett.* **651** 76
- [7] Zhao J W, Zhang Y F, Li Y H, Su C H, Song X M, Yan H, Wang R Z 2015 *Sci. Rep.* **5** 17692
- [8] Chen F, Ji X, Zhang Q 2015 *J. Alloys Compd.* **646** 879
- [9] Nabi G, Cao C, Hussain S, Khan W S, Sagar R R, Ali Z, Butt F K, Usman Z, Yu D 2012 *Cryst. Eng. Comm.* **14** 8492
- [10] He J H, Yang R S, Chueh Y L, Chou L J, Chen L J, Wang Z L 2006 *Adv. Mater.* **18** 650
- [11] Westover T, Jones R, Huang J Y, Wang G, Lai E, Talin A A 2009 *Nano Lett.* **9** 257
- [12] Boukai A I, Bunimovich Y, Tahir-Kheli J, Yu J K, Goddard Iii W A, Heath J R 2008 *Nature* **451** 168
- [13] Zhao W, Wang R Z, Song X M, Wang H, Wang B, Yan H, Chu P K 2010 *Appl. Phys. Lett.* **96** 092101
- [14] Shi M, Chen P, Zhao D G, Jiang D S, Zheng J, Cheng B W, Zhu J J, Liu Z S, Liu W, Li X, Zhao D M, Wang Q M, Liu J P, Zhang S M, Yang H 2015 *Chin. Phys. B* **24** 057901
- [15] Evtukh A, Yilmazoglu O, Litovchenko V, Semenenko M, Gorbanyuk T, Grygoriev A, Hartnagel H, Pavlidis D 2008 *Phys. Stat. Sol. C* **5** 425
- [16] Kryuchenko Y V 1996 *J. Vac. Sci. Technol. B* **14** 1934
- [17] Wang R Z, Ding X M, Wang B, Xue K, Xu J B, Yan H, Hou X Y 2005 *Phys. Rev. B* **72** 125310
- [18] Zhao W, Wang R Z, Song X M, Wang H, Wang B, Yan H, Chu P K 2011 *Appl. Phys. Lett.* **98** 152110
- [19] Wang C S, Chen H C, Cheng H F, Lin I N 2009 *Diam. Relat. Mater.* **18** 136
- [20] Chen H C, Palnitkar U, Pong W F, Lin I N, Singh A P, Kumar R 2009 *J. Appl. Phys.* **105** 083707
- [21] Liu K F, Chen L J, Tai N H, Lin I N 2009 *Diam. Relat. Mater.* **18** 181
- [22] Tiwari R N, Chang L 2010 *J. Appl. Phys.* **107** 103305
- [23] Chen C C, Liu L Y, Wang R Z, Song X M, Wang B, Yan H 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 177701 (in Chinese) [陈程程, 刘立英, 王如志, 宋雪梅, 王波, 严辉 2013 物理学报 **62** 177701]
- [24] Chen C C, Wang R Z, Liu P, Zhu M K, Wang B B, Yan H 2014 *J. Appl. Phys.* **115** 153705

# Preparations and field emission properties of multilayer AlGa<sub>N</sub> nanofilm\*

Shen Zhen<sup>1)</sup> Chen Cheng-Cheng<sup>1)2)</sup> Wang Ru-Zhi<sup>1)†</sup> Wang Bo<sup>1)</sup> Yan Hui<sup>1)</sup>

1) (*College of Materials Science and Engineering, Beijing University of Technology, Beijing 100124, China*)

2) (*Beijing Products Quality Supervision and Inspection Institute, Beijing 101300, China*)

( Received 21 April 2016; revised manuscript received 28 August 2016 )

## Abstract

We report on the electron field emission (FE) from multi-layer AlGa<sub>N</sub> nanofilm grown by pulsed laser deposition, and the investigation of the multi-layer quantum structure effect on the field emission performance. The results show that the as-grown film has a good crystallinity, and the thickness values of GaN, AlN, and GaN film are 25 nm, 50 nm, and 25 nm, respectively. The FE measurement indicates that compared with single layer, the multilayer film has a low turn-on field and large threshold current. The turn-on field is found to be 0.93 V/μm, and the electric current density reaches to 30 mA/cm<sup>2</sup> at 5.5 V/μm. The improvement of the FE performance is attributed to resonant tunneling in the quantum well structure, and the accumulated electrons lower the effective surface barrier. The outstanding performance of multi-layer field emission film should provide a feasible technical solution for large current and high power density thin film field emission device.

**Keywords:** AlGa<sub>N</sub>, multilayer nanofilm, quantum structure enhanced field emission, resonant tunneling

**PACS:** 68.55.-a, 77.55.hd, 79.70.+q, 73.40.GK

**DOI:** [10.7498/aps.65.236803](https://doi.org/10.7498/aps.65.236803)

---

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11274029, 11074017) and the Jing-Hua Talents Project of Beijing University of Technology, China (Grant No. 2014-JH-L07).

† Corresponding author. E-mail: [wrz@bjut.edu.cn](mailto:wrz@bjut.edu.cn)