

碳纳米管冷阴极脉冲发射特性及仿真模型研究*

袁学松^{1)†} 张宇²⁾ 孙利民¹⁾ 黎晓云¹⁾ 邓少芝²⁾ 许宁生²⁾ 鄢扬¹⁾²⁾

1) (电子科技大学物理电子学院, 成都 610054)

2) (中山大学理工学院, 光电材料与技术国家重点实验室, 广州 510275)

(2012年5月2日收到; 2012年5月15日收到修改稿)

针对碳纳米管场致发射冷阴极在微波、毫米波电真空辐射源器件中的应用需求, 采用 $2\ \mu\text{s}$, $20\ \text{kV}$ 的脉冲高压对碳纳米管场致发射冷阴极的脉冲发射特性进行了实验研究. 通过改变阴阳极间距, 对碳纳米管冷阴极发射电流特性及发生脉冲高压打火后的碳纳米管冷阴极发射特性进行了测试研究. 在直径为 $4\ \text{mm}$ 的圆形平面碳纳米管冷阴极上获得最大发射电流 $16\ \text{mA}$, 电流密度为 $127\ \text{mA}/\text{cm}^2$. 以实验测试数据为基础, 结合粒子模拟软件建立碳纳米管冷阴极场致发射仿真模型, 给出了该仿真模型的相关参数, 为下一步设计研制碳纳米管冷阴极电子光学系统及相关辐射源器件奠定基础.

关键词: 碳纳米管, 冷阴极, 场致发射, 仿真模型

PACS: 61.48.De, 79.70.+q, 41.85.-p

1 引言

微波、毫米波电真空辐射源器件作为雷达、电子对抗、空间通信等军事电子系统不可缺少的核心器件一直受到广泛重视. 在上述电真空器件中阴极和电子光学系统则占有举足轻重的地位, 传统器件一般采用热发射阴极系统, 经过几十年的发展, 热发射阴极工艺已非常成熟, 被广泛应用于各类电真空器件中. 但热发射阴极存在以下显著缺点: 结构复杂, 成本高, 阴极系统由多种金属和陶瓷部件构成, 由于热阴极工作在上千度的高温环境, 阴极中加热用的灯丝容易断裂或短路, 导致器件损坏, 因而阴极系统损坏是电真空器件失效的主要原因; 另一方面由于需要加热功率, 增加了系统的复杂性, 降低了系统效率, 需要较长时间才能达到工作温度, 尤其对于大功率器件, 其启动时间往往长达几分钟, 给使用带来很大不便. 场发射冷阴极是解决上述问题的最佳方案. 场致发射是在金属或半导体等表面

施加高强度的电场、通过隧道效应使电子进入真空中形成电子注, 从而可除去热阴极系统所必不可少的加热组件, 大幅度简化了阴极结构. 与热电子发射相比, 场发射冷阴极具有功耗低、响应速度快、电流密度大、尺寸小、效率高等一系列优点, 有望成为新一代电真空器件的理想电子发射源.

碳纳米管作为优良的场发射冷阴极, 具有长径比大、强度高、功函数低、工作电压低、发射电流大、使用寿命长、可靠性高、可以大面积地生长和移植等特点^[1], 目前已在场致发射显示器^[2-4]、X射线管^[5]、阴极射线管^[6]等领域广泛应用, 但在微波、毫米波器件方面的应用仍受到限制. 主要原因是微波、毫米波器件需要大电流、高密度的电子束源, 碳纳米冷阴极材料在微观下发射密度可以高达 $10^9\ \text{A}/\text{cm}^2$ ^[7], 但发射电流密度却随着发射面积的增大而迅速减小. 目前尽管采用强流脉冲工作方式的碳纳米冷阴极已可以产生 $200\ \text{A}/\text{cm}^2$ 以上的电流发射密度且电流达到 $5\ \text{kA}$ 以上^[8], 但由于其采用场致爆炸式发射的

* 国家自然科学基金 (批准号: U1134006, 61101041) 和中山大学光电材料与技术国家重点实验室开放课题 (批准号: KF2010-ZD-06) 资助的课题.

† E-mail: yuanxs@uestc.edu.cn

方式, 电子发射过程中会释放大等离子体气体, 导致电真空器件真空度下降影响器件工作^[9-12], 且脉冲宽度通常都在纳秒量级、高压脉冲通常大于 100 kV, 因此上述工作方式用于电真空微波、毫米波封装器件还存在一定的问题. 为了克服上述问题应考虑采用非爆炸式发射方式的碳纳米冷阴极, 对于非爆炸式发射的碳纳米冷阴极, 通常发射电流要低得多, 文献 [13] 中在面积为 0.92 mm^2 碳纳米冷阴极上获得发射电流为 3.6 mA, 电流密度 400 mA/cm^2 . 文献 [14] 中采用垂直排列的蜂窝网状碳纳米管阵列, 并在 16 mm^2 的面积上获得发射电流密度可达 1.5 A/cm^2 , 该结构对碳纳米管制造工艺要求较高, 不仅需要垂直生长, 还要满足规则的六边形蜂窝网状, 成本也高. 另一方面对于研制碳纳米管冷阴极微波、毫米波电真空辐射源器件, 建立适合碳纳米管冷阴极发射模型也是至关重要的, 准确的仿真模型能够指导实验设计, 并在很大程度上缩短研制器件的周期和减少成本. 目前微观碳纳米管的发射模型已能够与实验取得一致^[15-17], 但对于宏观大面积碳纳米管冷阴极还没有一种发射模型能够较真实地反映实验结果.

本文针对上述问题对大面积多层碳纳米管冷阴极开展了实验测试研究, 该结构制造工艺简单, 成本低. 采用微秒脉冲的高压电源对其非爆炸式场致发射能力进行研究, 对不同间距下碳纳米管冷阴极发射能力以及微波管中常见打火现象发生后的碳纳米管冷阴极的发射性能进行了测试. 并以实验测试数据为基础结合粒子模拟软件建立碳纳米管冷阴极场致发射等效仿真模型, 为下一步研制碳纳米管冷阴极电子光学系统和相关微波、毫米波电真空辐射源器件提供技术基础.

2 碳纳米管冷阴极场致发射实验系统

实验中测试的碳纳米冷阴极材料由中山大学光电材料与技术国家重点实验室制备. 采用的是高温化学气相沉积的制备工艺^[18,19], 在直径为 4 mm 的圆面不锈钢基底上生长碳纳米管. 生长过程中以不锈钢上的铁、镍成分作为催化剂, 在氩气氛下升温至 $750 \text{ }^\circ\text{C}$, 通入氢气对催化剂进行还原和激活, 再通入乙炔气体, 乙炔在催化剂表面裂解生成碳纳米管, 生长时间为 10 min, 最后在氩气氛下降温至室温. 图 1 为扫描电镜 (SEM) 碳纳米管的表面形貌图.

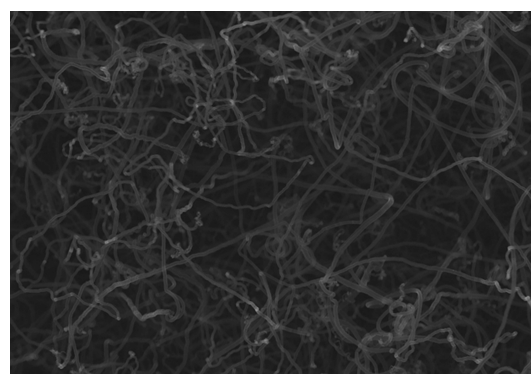


图 1 碳纳米管冷阴极的表面形貌

测试系统采用的是电子科技大学太赫兹科学技术研究中心的动态真空实验平台, 相关照片及系统框图如图 2 所示. 采用 20 kV , $2 \mu\text{s}$ 脉冲高压调制器对碳纳米冷阴极进行测试. 具体通过将碳纳米管冷阴极与阳极组成的二极管并联到高压调制器的负载上, 并在二极管电路中串联两个电阻 R_1 , R_2 , 其中 $R_1 = 10 \text{ k}\Omega$ 在阴阳极打火时起保护作用,

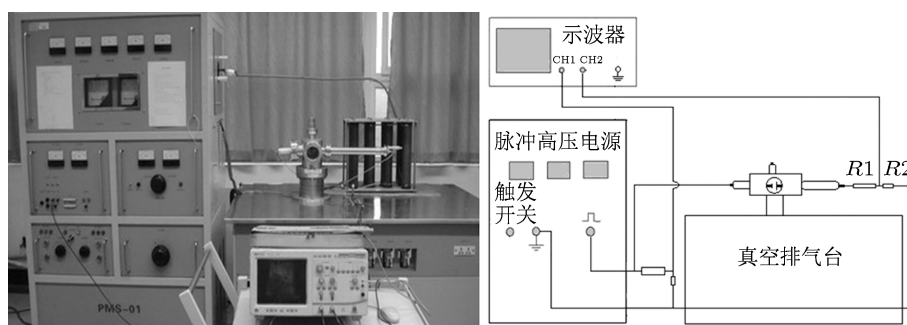


图 2 碳纳米管冷阴极测试系统照片及框图

$R_2 = 950 \Omega$ 为取样电阻用于测试碳纳米管冷阴极发射电流产生的电压信号. 通过示波器同时观测两路信号, CH1 通道检测高压脉冲信号, CH2 通道检测发射电压信号. 测试系统中为了更好观测阴阳极间距对碳纳米管冷阴极发射特性, 阴极被固定, 阳极则可以左右移动, 从而改变阴阳极的间距.

3 碳纳米管冷阴极场致发射电流测试结果

在实验测试过程中为了保证碳纳米管冷阴极发射电流测试结果的可靠性, 我们首先采用直流高压电源对碳纳米管冷阴极的直流发射特性进行研究, 相关测试结果如图 3 所示. 图 3 中给出碳纳米管冷阴极在 1 mm 间距下的直流发射特性. 由图可知在直流情况下, 碳纳米管冷阴极能够获得较好的发射特性, 5 μA 发射电流对应工作电压在 2.5 V/ μm 以下.

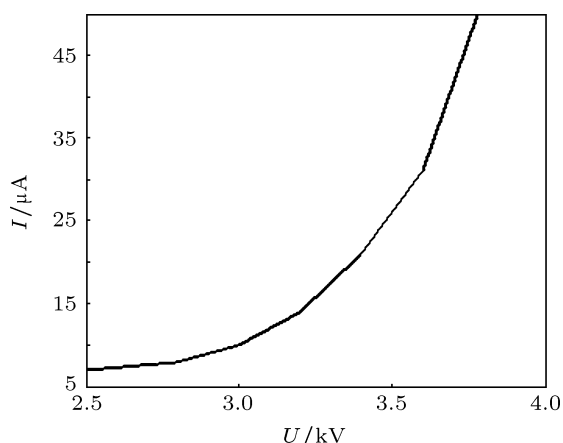


图 3 间距为 1 mm 时碳纳米管冷阴极直流发射特性

为了获得较大的发射电流, 在脉冲高压工作方式下, 我们对 0.5, 0.75 及 0.85 mm 三种情况进行了测试. 图 4 中给出 0.85 mm 间距情况下的典型示波器测试曲线, 由图可知脉冲高压脉冲宽度约为 2.4 μs , 高压脉冲平顶非常平整, 阴极发射电流对应的电压波形在上升沿较缓, 分析原因可能是由于阴阳极之间距离较近, 存在电容效应, 当电子注被拉出后, 两电极导通、电容消失, 实验测试中发现脉冲上升沿随阴阳极间距减小而变缓.

图 5 中给出了三种间距下碳纳米管冷阴极发射电流随高压脉冲的变化图, 由图可知当间距变大

后, 碳纳米管冷阴极发射特性明显下降, 测试环境在真空度为 $3 \times 10^{-5} \text{ Pa}$ 下进行的, 测试过程中还发现随着高压脉冲电压的提高碳纳米管冷阴极与阳极之间会出现打火现象. 打火现象是高压脉冲电真空器件中常见的现象, 也是研制微波、毫米波电真空辐射源器件过程中必须考虑的问题, 对于碳纳米管冷阴极而言则更加重要, 因为碳纳米管冷阴极场致发射主要是利用纳米量级的碳管表面电场增强效应产生场致电子发射, 在碳纳米管冷阴极表面必然存在大量尖端、毛刺等突起结构, 同时阴阳极间还需较高电压, 这些特性均使得脉冲高压下打火现象发生的可能性加大. 对于传统热阴极轻微的打火现象发生后阴极表面的一些突起就会消失, 但对发射性能影响不大, 然而对碳纳米管冷阴极而言, 打火现象则会破坏碳纳米管冷阴极结构, 导致冷阴极失去发射特性. 因此研究打火现象对碳纳米管冷阴极损坏程度或者碳纳米管冷阴极耐高压性能是我们研制微波、毫米波辐射源器件所必须关注的. 图 6

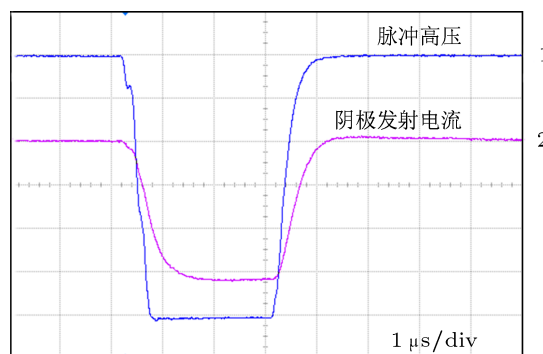


图 4 碳纳米管冷阴极示波器测试曲线

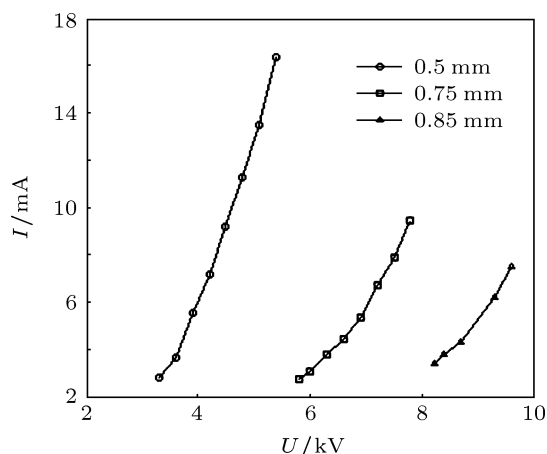


图 5 不同间距实验测试结果

中给出碳纳米管冷阴极在 0.5 mm 间距时多次轻微打火后的发射电流图. 由图可知碳纳米管冷阴极虽具有一定的耐打火特性, 但电子发射的性能下降比较明显, 因此在制管过程中必须避免.

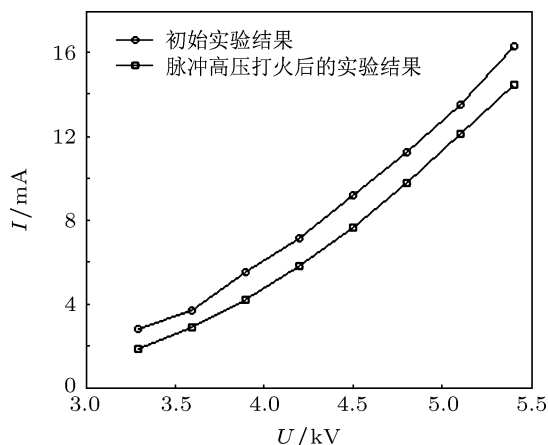


图6 碳纳米管冷阴极多次脉冲打火后发射性能对比

4 碳纳米管冷阴极场致发射仿真模型

碳纳米管冷阴极场致发射仿真模型对于研究碳纳米管冷阴极微波、毫米波辐射源器件至关重要, 作为现代微波管设计研制过程中的关键步骤, 计算机仿真、模型的建立是其仿真工作的第一步. 只有建立准确的碳纳米管冷阴极场致发射仿真模型才能够通过计算机较真实地反映碳纳米管冷阴极场致发射电流以及注波相互作用等. 目前现有的一些粒子模拟软件如 MAGIC, CST, CHIPIC 等通常只有金属场致发射模型, 该模型通常都是依据 Fowler-Nordheim (F-N) 公式:

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

式中 φ 是逸出功, E 是金属表面场强, $t(y)$ 和 $v(y)$ 是 Nordheim 椭圆函数, $y = 3.79 \times 10^{-5} \sqrt{E}/\varphi$, A 和 B 是 Fowler-Nordheim 常数, $A = 1.541434 \times 10^{-6} \text{ AeV} \cdot \text{V}^{-2}$, $B = 6.830888 \times 10^9 \text{ eV}^{-3/2}/\text{V} \cdot \text{m}^{-1}$. 对于上述模型其显然不能适用于碳纳米管场致发射冷阴极, 因为在微观结构上, 纳米量级的碳管表面电场会被大幅增强, 从而导致在宏观上场致发射电场可以大幅降低. 文献 [16] 中通过引入电场增强因子 γ 较好地解决了单根碳纳米管发射模型并与实验测试结果取得了一致, 其中

$$\gamma = A_0 + A_1 d + A_2 d^2, \quad (2)$$

A_0, A_1, A_2 可由 F-N 的斜率曲线得出, d 是阴极与阳极之间的间距. 但上述模型用于宏观大面积碳纳米管冷阴极又出现了问题, 因为在大面积碳纳米管冷阴极表面碳管的方向性可能不一致, 同时均匀性也不同, 在宏观仿真中无法考虑微观细节, 因此上述电场增强因子难以解决宏观发射模型问题. 我们考虑基于实验测试结果建立仿真模型, 再根据仿真模型去指导制管设计来解决上述问题. 首先基于 2.5 维粒子模拟软件 MAGIC 的金属场致仿真模型将 F-N 公式形式变换如下:

$$J = \frac{A'}{\varphi} E^2 \exp\left(-\frac{B'\varphi^{3/2}}{E}\right), \quad (3)$$

其中 A' 为碳纳米管冷阴极场致发射线性因子, 单位为 AeV/V^2 , B' 为碳纳米管冷阴极场致发射指数因子, 单位为 $\text{eV}^{-3/2} \text{ V}/\text{m}$, φ 逸出功取 4.5 eV [20]. MAGIC 软件作为一种全电磁粒子模拟软件, 采用时域有限差分结合 PIC 方法实现, 可用于电真空放大器、振荡器、加速器元件、束流传输、等离子体及离子源等的仿真研究.

采用文献 [16] 相同二阶多项式对其进行数据拟合:

$$\begin{aligned} A' &= A'_0 + A'_1 d + A'_2 d^2, \\ B' &= B'_0 + B'_1 d + B'_2 d^2. \end{aligned} \quad (4)$$

具体通过实验测试三组不同阴阳极间距的场致发射电流数据, 采用粒子模拟软件对三组实验模型进行仿真. 由于研究的模型是轴对称结构, 因此仿真中可以采用二维结构, 如图 7 所示. 图中右边为阳极, 电子在阳极高压的作用下由图中左边半径为 2.5 mm 的阴极表面发射出来, 阴阳极间距为 0.75 mm, Z 轴为对称轴, 阴阳极间为开放边界条件. 由于实验中半径为 2 mm 的碳纳米管阴极是嵌套在金属圆桶基座中的, 所以仿真中可以将其作为一个整体考虑, 阴极发射体半径 2.5 mm, 电子发射面半径为 2 mm. 图 7 中还给出了电子运动轨迹, 电子由阴极表面发射出来后运动速度较低, 电子与电子距离较近, 图中显示为直线状, 随着电子向阳极运动, 其速度不断增大, 在阳极附近电子与电子之间开始出现间隙.

通过不断优化碳纳米管冷阴极场致发射因子 A', B' 使仿真数值能够与实验数据相符合, 再根据 A', B' 具体数值计算出相关系数 $A'_0, A'_1, A'_2, B'_0, B'_1, B'_2$. 对应三种不同间距 0.5, 0.75, 0.85 mm 的粒

子模拟结果与实验数据对比如图 8 所示. 图 8(a) 为 0.5 mm 间距对比结果对应的 $A' = 1.46 \times 10^{-10}$, $B' = 1.30 \times 10^6$; 图 8(b) 为 0.75 mm 间距对比结果对应的 $A' = 3.08 \times 10^{-10}$, $B' = 2.73 \times 10^6$; 图 8(c) 为 0.85 mm 间距对比结果对应的 $A' = 4.54 \times 10^{-10}$, $B' = 4.03 \times 10^6$. 将上述三组数据代入方程 (4) 求解获得 $A'_0 = 6.92 \times 10^{-10}$, $A'_1 = -2.252 \times 10^{-6}$, $A'_2 = 2.32 \times 10^{-3}$, $B'_0 = 6.24 \times 10^6$, $B'_1 = -2.028 \times 10^{10}$, $B'_2 = 2.08 \times 10^{13}$. 选择上述三组间距的数据主要是考虑到后期利用栅网在阴极表面产生强电场, 距离太远栅网与阴极之间容易打火, 距离太远要求电压

高, 耐压问题又会出现.

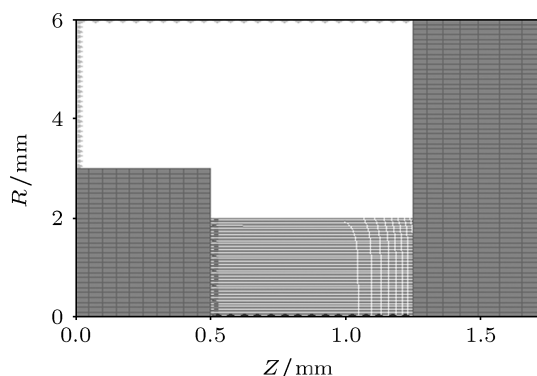


图 7 碳纳米管冷阴极粒子模拟电子轨迹图

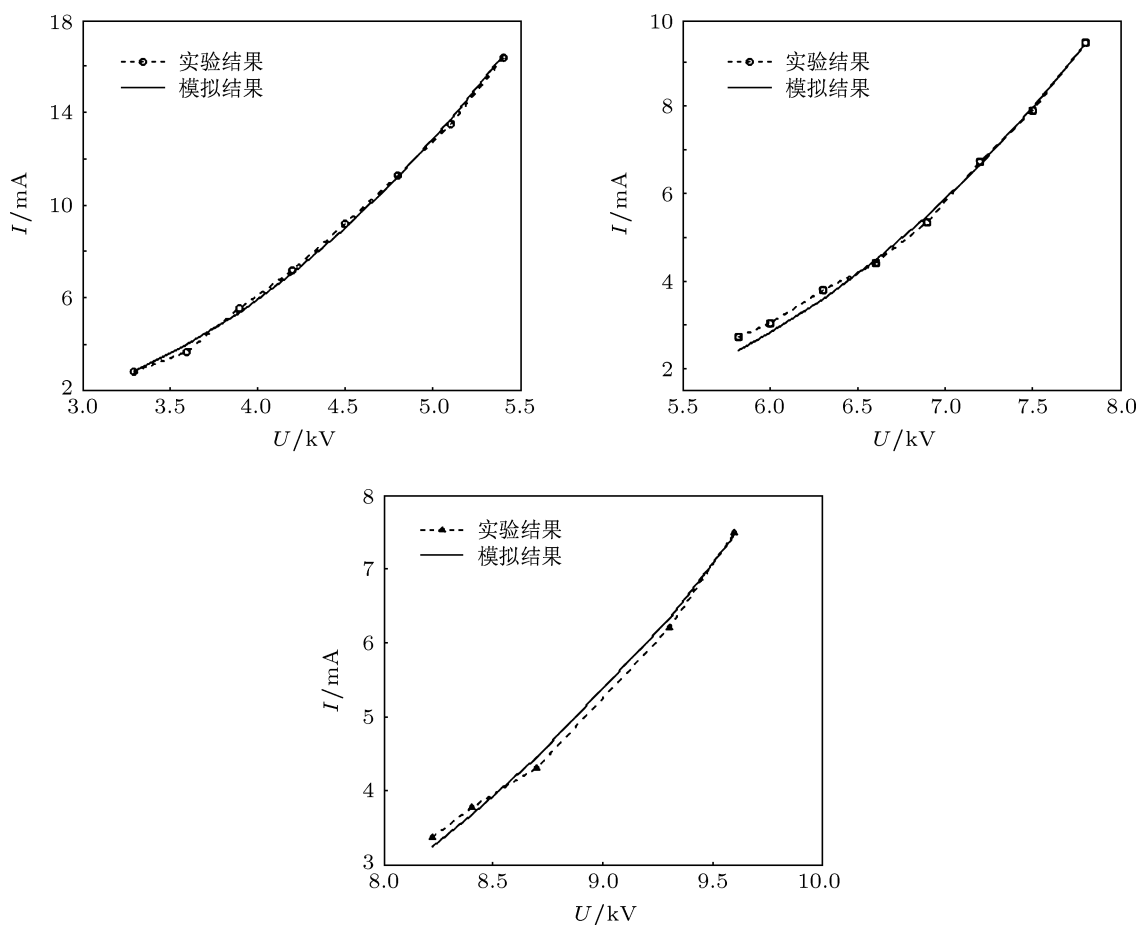


图 8 不同间距粒子模拟结果与实验结果对比

5 结论

碳纳米管作为场致发射冷阴极材料是微波、毫米波电真空辐射源器件的一个新的发展方向. 本文首先围绕现有大面积碳纳米管冷阴极材料能否在微波、毫米波器件中的应用开展研究, 对一种制

作工艺简单的多层碳纳米管冷阴极的脉冲发射特性及耐高压打火特性进行实验研究. 结果表明, 该阴极能够产生 100 mA/cm^2 以上的非爆炸式场致发射电流密度的电子注, 这使下一步研制碳纳米管冷阴极聚束电子光学系统并用于微波、毫米波辐射源器件成为可能. 与此同时, 为了使计算机仿真能

够校准确地反映碳纳米管冷阴极的发射特性, 解决大面积碳纳米管冷阴极无宏观发射模型可用问题, 文中提出了一种研究方法, 即通过实验测试结果指导建立碳纳米管冷阴极仿真模型, 再通过仿真模型

去设计优化碳纳米管冷阴极电子光学系统及整管的方法, 为下一步研制碳纳米管冷阴极微波、毫米波电真空辐射源器件奠定基础.

- [1] Jonge N D, Bonard J M 2004 *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A* **362** 2239
- [2] Zhang Y, Deng S Z, Duan C Y, Chen J, Xu N S 2008 *J. Vac. Sci. Technol. B* **26** 106
- [3] Zhang Y, Deng S Z, Xu N S, Chen J 2008 *J. Vac. Sci. Technol. B* **26** 1033
- [4] Zheng X, Chen G H, Li Z B, Deng S Z, Xu N S 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 106803
- [5] Zhang J, Yang G, Cheng Y, Gao B, Qiu Q, Lee Y Z, Lu J P, Zhou O 2005 *Appl. Phys. Lett.* **86** 184104
- [6] Niels D J, Yann L, Koen S, Tjerk H O 2002 *Nature* **420** 393
- [7] Hozumi Y, Ohsawa S, Sugimura T, Ikeda M 2004 *Proceedings of LINAC Lübeck, Germany, August 16–20, 2004* p652
- [8] 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]
- [9] Liao Q L, Zhang Y, Huang Y H, Qi J J, Gao Z J, Xia L S, Zhang H 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 1778 (in Chinese) [廖庆亮, 张跃, 黄运华, 齐俊杰, 高战军, 夏连胜, 张篁 2008 物理学报 **57** 1778]
- [10] Chen Y, Zhang H, Yang A M, Xia L S, Liu X G 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 072901 (in Chinese) [谌怡, 张篁, 杨安民, 夏连胜, 刘星光 2012 物理学报 **61** 072901]
- [11] Qian L, Wang Y Q, Liu L, Fan S S 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 028801 (in Chinese) [潜力, 王昱权, 刘亮, 范守善 2011 物理学报 **60** 028801]
- [12] Yuan X S, Yan Y, Liu S G 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 014102 (in Chinese) [袁学松, 鄢扬, 刘盛纲 2011 物理学报 **60** 014102]
- [13] Calderon C X, Geng H Z, Gao B, An L, Cao G H, Zhou O 2009 *Nanotechnology* **20** 325707
- [14] Li C, Zhang Y, Mann M, Hasko D, Lei W, Wang B P, Chu D P, Pribat D, Gehan A J A, William I M 2010 *Appl. Phys. Lett.* **97** 113107
- [15] Zhong D Y, Zhang G Y, Liu S 2002 *Appl. Phys. Lett.* **80** 3 506
- [16] Berdinsky A S, Shaporin A V, Yoo J B, Park J H, Alegaonkar P S, Han H J, Son J H 2006 *Appl. Phys. A* **83** 377
- [17] Zhu Y B, Wang W L, Liao K J 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 2335 [朱亚波, 王万录, 廖克俊 2002 物理学报 **51** 2335]
- [18] Zhang Y, Du J L, Tang S, Liu P, Deng S Z, Chen J, Xu N S 2012 *Nanotechnology* **23** 015202
- [19] Zhang Y, Du J L, Xu J H, Deng S Z, Xu N S, Chen J 2011 *Ultra-microscopy* **111** 426
- [20] Bonard J M, Dean K A, Coll F C, Klinke C 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 197602

Study of pulsed field emission characteristics and simulation models of carbon nanotube cold cathodes*

Yuan Xue-Song^{1)†} Zhang Yu²⁾ Sun Li-Min¹⁾ Li Xiao-Yun¹⁾
Deng Shao-Zhi²⁾ Xu Ning-Sheng²⁾ Yan Yang¹⁾²⁾

1) (*School of Physical Electronics, University of Electronic Science and Technology of China, Chengdu 610054, China*)

2) (*State Key Laboratory Optoelectronic Materials and Technologies, Sun Yat-Sen University, Guangzhou 510275, China*)

(Received 2 May 2012; revised manuscript received 15 May 2012)

Abstract

For the application requirement of a carbon nanotube cold cathode (CNCC) used in the microwave and millimeter wave electric vacuum radiation source devices, pulsed field emission characteristics of CNCC are experimentally investigated by a 2 μ s/20 kV high-voltage modulator in this paper. The pulsed field emission currents for different distances between anode and cathode and those of CNCC after the pulsed high-tension arc has occurred many times are studied. A maximal emission current of 16 mA is tested for CNCC with a 4 mm diameter emission disk, and the emission current density is achieved to be 127 mA/cm². Based on the experimental results, the field emission simulation model of CNCC is established by PIC simulation software. Simulation results show that this simulation model is suited for describing the experimental results and laying the foundation for the development of CNCC electron optical system and radiation source devices.

Keywords: carbon nanotubes, cold cathode, field emission, simulation model

PACS: 61.48.De, 79.70.+q, 41.85.-p

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. U1134006, 61101041), and an open-project fund from State Key Laboratory of Opto-Electronic Material and Technologies (Sun Yatsen University, Guangzhou, China) (Grant No. KF2010-ZD-06).

† E-mail: yuanxs@uestc.edu.cn