

文章编号: 2095-4980(2015)04-0529-04

热累积效应对碳纳米管场发射特性的影响

严飞^{a,b}, 李男男^{a,b}, 金大志^a, 陈磊^a, 向伟^{a,b}

(中国工程物理研究院 a.电子工程研究所; b.微系统与太赫兹研究中心, 四川 绵阳 621999)

摘要: 为进一步提高碳纳米管阴极的场发射能力, 分析了不同条件下碳纳米管的场发射测试结果, 研究了热累积效应对碳纳米管场发射性能的影响。实验结果表明, 通过抑制场发射测试过程中阳极的热累积, 可获得更大的发射电流和发射电流密度。该研究为进一步提高碳纳米管阴极场发射能力提供了参考。

关键词: 热累积; 碳纳米管; 场发射性能; 发射电流

中图分类号: TN101

文献标识码: A

doi: 10.11805/TKYDA201504.0529

Field emission characteristics of the carbon nanotubes by controlling thermal accumulation

YAN Fei^{a,b}, LI Nannan^{a,b}, JIN Dazhi^a, CHEN Lei^a, XIANG Wei^{a,b}

(a.Institute of Electronic Engineering; b.Microsystems and Terahertz Research Center, Chinese Academy of Engineering Physics, Mianyang Sichuan 621999, China)

Abstract: Since the field emission properties were reported in 1995, the carbon nanotubes have been regarded as the most promising material for the cathode. The field emission properties of the carbon nanotubes are measured under different conditions in order to improve the field emission abilities of carbon nanotube. The effects of thermal accumulation of the anode on the field emission properties are studied. The results show that higher-current and higher-current density could be acquired by suppressing the thermal accumulation.

Key words: thermal accumulation; carbon nanotubes; field emission properties; field emission current

1991年, 日本电气股份有限公司(Nippon Electric Company, NEC)的Iijima在氩气氛围直流电弧放电后的阴极碳棒沉积碳墨中, 通过透射电子显微镜(Transmission Electron Microscope, TEM)发现了碳纳米管^[1]。此后, 碳纳米管因其一系列优越的性能, 如低密度、高强度、高导电性、低的电子亲和势、良好的导热性等, 受到了科学工作者们的广泛关注。特别是在场致发射器件阴极材料研究领域, 碳纳米管以易加工, 制备成本低, 阈值场强低等诸多优点而成为近年来的研究热点^[2-5]。1995年, Rinzler等首次报道了关于碳纳米管在场致发射方面的研究成果^[6]。同年瑞典的Heer等人研究了碳纳米管的场发射特性, 提出将碳纳米管作为场发射电子源的可行性, 引起了学术界的轰动^[2]。国内外大量研究表明, 碳纳米管场发射阵列理论上可提供非常高的发射电流和发射电流密度。但实际研究中发现, 碳纳米管场发射阵列阴极总的电流提供能力受到了很大的限制^[7], 从而限制了其电子枪^[8]在X射线管^[9]、微波管等方面的应用。

本文提出碳纳米管场发射过程中阳极的热累积效应是影响发射电流和发射电流密度增大的因素之一。抑制热累积效应, 有利于获得更大的发射电流和发射电流密度, 可进一步提高碳纳米管阴极的场发射能力。

1 实验设计

实验所使用碳纳米管采用热化学气相沉积法(Chemical Vapor Deposition, CVD)制备。热CVD法是指在基板

收稿日期: 2014-09-17; 修回日期: 2014-12-13

基金项目: 中国工程物理研究院太赫兹科学与技术基金资助项目(T2014-07-0305); 中国工程物理研究院超精密实验室基金资助项目(426010402); 国家自然科学基金资助项目(No.11375155)

上预先铺上一层催化剂,在一定温度下通入碳源气体,从而生长碳纳米管阵列的方法,它非常适用于实验室制备。实验中,750℃下通入碳源气体乙炔,气源流量为60 sccm,时间为20 min,使用厚度3 nm、直径1 mm的镍为催化剂,获得的碳纳米管呈聚团状排列,其形貌见图1。

碳纳米管的场发射测试系统由真空系统和测试电路系统组成。真空系统由机械泵和分子泵抽气获得高真空,系统的真空度由电离计测量,实验中保持测试过程在真空度高于 10^{-5} Pa下进行。真空腔室中测量采用二极管方式进行,其中二极管的阳极为铜板,碳纳米管样品放置在阴极上并与阴极保持良好接触,阴阳极间距约为250 μm 。

测试电路是一个简单的串联回路,包括电源、取样电阻和示波器。实验中分别利用直流电源和脉冲电源进行场发射测试。示波器用于精确显示阳极电压和取样电阻两端的电压以获得 $I-U$ 曲线。



Fig.1 SEM micrograph of the carbon nanotubes
图1 碳纳米管图

2 理论模型

场发射的定量方程是由Fowler和Nordheim首先推导出来的^[10]。他们假定:考虑一个简单能带的电子,其分布按费米-狄拉克统计;考虑金属平板表面光滑;考虑经典镜像力;考虑逸出功分布均匀。在这样的假定下,推导出金属的场发射定量方程为:

$$J = 6.2 \times 10^{-6} \frac{\mu^{1/2}}{(\phi + \mu)^{1/2} \phi^{1/2}} E^2 \exp(-2.1 \times 10^8 \phi^{3/2} / E) \quad (1)$$

式中: J 为场发射电流密度; μ 为表面势垒; E 为发射表面电场强度; ϕ 为功函数。

由式(1)可知,发射体表面的发射电流密度与发射体材料的功函数和表面电场强度有关。对上面的方程作对数处理,可得F-N关系:

$$\ln(J/E^2) = a - 2.1 \times 10^8 \phi^{3/2} / E \quad (2)$$

式中:发射表面电场强度 $E = U/d$; U 为阴阳极之间的电压; d 为阴阳极之间的间距;场发射电流密度 $J = I/A$, I 为场发射电流, A 为场发射面积。

因此可由式(2)F-N关系变化得到,

$$\ln(I/U^2) = a - b/U \quad (3)$$

由式(3)可知,对场发射曲线而言,其 $\ln(I/U^2)$ 与 $1/U$ 应呈线性关系。

3 实验测试与分析

图2为采用直流电源测试获得的场发射测试结果,图2(a)为场发射 $I-U$ 曲线,图2(b)为其对应的F-N曲线。在直流测试中,0.8 kV的电压下获得了最大发射电流,约1.4 mA。继续增大阳极电压时,发现阴阳极之间持续出现火星,对碳纳米管造成损坏。当阳极施加一定的电压时,在外加电场的作用下,碳纳米管的表面势垒高度降低且宽度变窄,当势垒宽度窄到可以与电子波长相比拟时,电子穿透势垒逸出,轰击到阳极表面。大量电子的不断轰击造成热量的不断累积,使阳极及其附近的温度不断升高。而阳极温度的升高造成阳极释放气体,释放的气体可使阳极附近真空度急剧降低。电子的继续轰击使气体电离,产生的离子回轰至阴极,造成碳纳米管损坏,且阳极电压无法进一步增大而获得更大的场发射电流。

图2中,测得的场发射 $I-U$ 曲线并不光滑,F-N曲线并不是绝对的线性。这是因为在阳极电压比较低的情况下,发射电流主要来自于相对离阳极更近碳纳米管的电子发射,相对离阳极较远的碳纳米管的电子发射微乎其微,可忽略不计。随着电压的不断增大,电场强度不断增大,碳纳米管的场发射电流增大,碳纳米管的微小突起被熔化,且在少量残余气体粒子的轰击下变得平滑,同时相对离阳极较远的碳纳米管渐渐开始参与场发射,贡献的场发射电流变大,两者的共同作用导致测得的场发射 $I-U$ 曲线并不光滑,F-N曲线并不是绝对的线性。

在图3中采用脉冲测试获得了场发射曲线,图3(a)为场发射 $I-U$ 曲线,图3(b)为其对应的F-N曲线,所使用的脉冲电源脉冲宽度为50 μs ,重复频率为100 Hz,占空比为5%。由图3知,在1.65 kV的电压下获得了最大发射电流,约9.2 mA。

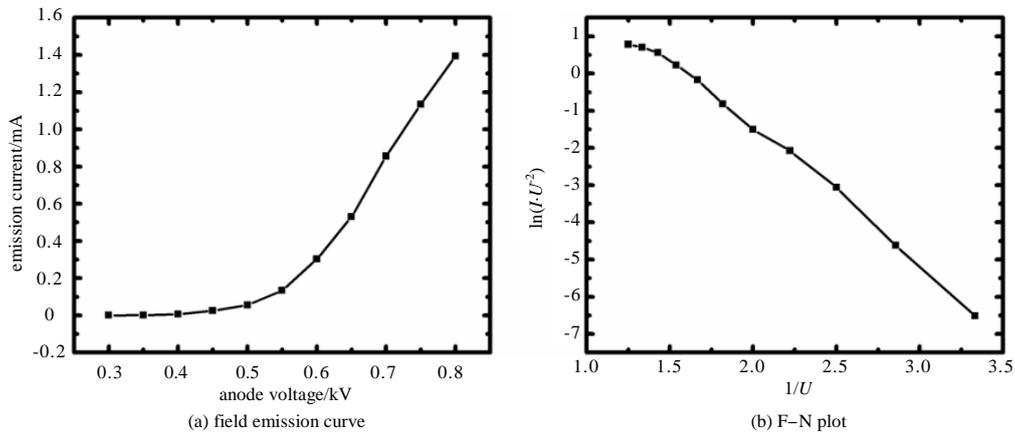


Fig.2 Field emission characteristics under DC test

图 2 直流测试场发射特性

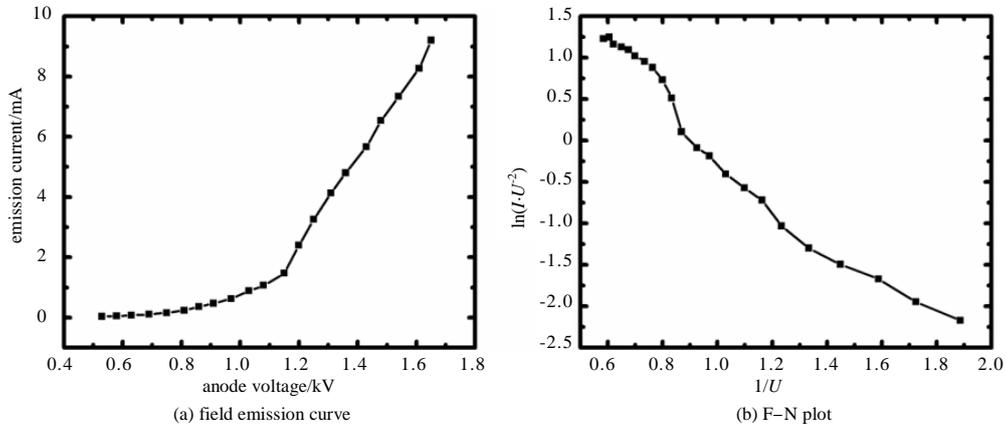


Fig.3 Field emission characteristics under pulse voltage(50 μ s,100 Hz) test

图 3 脉冲测试场发射特性(脉宽 50 μ s, 重复频率 100 Hz)

相比直流测试而言，同样阳极电压下，脉冲测试过程中由于热累积较小，阳极及其附近的温度升高相对较缓，阳极释放气体的速度较缓，更易于及时被真空系统抽离，阳极附近的高真空度得到维持，最大阳极电压可进一步增大，获得的最大发射电流值得到了很大的提高。

为进一步验证这一想法，在图 3 实验的基础上，采用阳极油冷的方式对阳极进行实时冷却，获得的场发射曲线如图 4 所示。最大阳极电压进一步增大至 2.38 kV，最大发射电流约 13.2 mA。同时用温度计测得所使用的油温度从 17 $^{\circ}$ C 升高至 36 $^{\circ}$ C，证明了阳极热累积的减小有利于场发射最大电流的进一步提高。

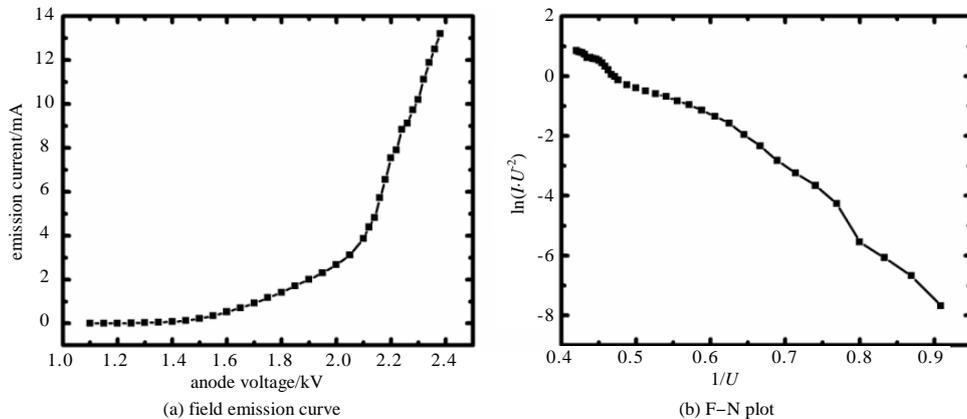


Fig.4 Field emission characteristics under pulse voltage(50 μ s,100 Hz) test with the anode cooling by oil

图 4 实时阳极油冷下脉冲测试场发射特性(脉宽 50 μ s, 重复频率 100 Hz)

4 结论

针对碳纳米管阴极电流供给能力受限制的问题,研究了热累积效应对碳纳米管的场发射特性的影响,分析直流测试、脉冲测试及脉冲同时油冷测试条件下碳纳米管的场发射测试曲线。实验结果表明,通过抑制场发射测试过程中阳极的热累积,可减小阳极温度的升高,从而减小阳极放气,有利于获得更大的发射电流和发射电流密度。

参考文献:

- [1] Iijima S. Helical microtubules of graphitic carbon[J]. Nature, 1991,354(3):56-58.
- [2] Heer W A D,Chatelain A,Ugarte D. A carbon nanotube field emission electron source[J]. Science, 1995,270(5239):1179-1180.
- [3] Choi W B,Chung D S,Kang J H,et al. Fully sealed,high-brightness carbon-nanotube field emission display[J]. Applied Physics Letters, 1999,75(20):3129-3132.
- [4] Ulisse G,Brunetti F,Tamburri E,et al. Carbon nanotube cathodes for electron gun[J]. IEEE Electron Device Letters, 2013, 34(5):698-700.
- [5] HAO H Y,LIU P,TANG J,et al. Secondary electron emission in a triode carbon nanotube field emission display and its influence on the image quality[J]. Carbon, 2012,50(11):4203-4208.
- [6] Rinzler A G,Hafner J H,Nilolaev P,et al. Unraveling nanotubes:field emission from an atomic wire[J]. Science, 1995,269(5230): 1550-1553.
- [7] WANG Z L,GAO R P,Heer W A D,et al. In situ imaging of field emission from individual carbon nanotubes and their structural damage[J]. Applied Physics Letters, 2002,80(5):856-860.
- [8] 刘京,陈心全,王琦龙,等. 碳纳米管冷阴极电子枪的电子光学设计[J]. 太赫兹科学与电子信息学报, 2014,12(3):339-344. (LIU Jing,CHEN Xinquan,WANG Qilong,et al. Electron optical design of cold cathode based on carbon nanotubes[J]. Journal of Terahertz Science and Electronic Information Technology, 2014,12(3):339-344.)
- [9] YUE G Z,QIU Q,GAO B,et al. Generation of continuous and pulsed diagnostic imaging X-ray radiation using a carbon-nanotube-based field emission cathode[J]. Applied Physics Letters, 2002,81(2):355-357.
- [10] Folwer R H,Nordheim L. Electron emission in intense electric fields[J]. Royal Society of London Proceedings, 1928,119:173-181.

作者简介:



严 飞(1988-),女,湖北省荆州市人,研究实习员,主要研究方向为冷阴极材料及器件.
email:376174148@qq.com.

李男男(1986-),女,吉林省松原市人,博士,主要研究方向为冷阴极材料及器件.

金大志(1970-),男,四川省绵阳市人,研究员,主要研究方向为微纳电真空技术研究.

陈 磊(1985-),男,四川省绵阳市人,副研究员,主要研究方向为微纳电真空技术研究.

向 伟(1967-),男,四川省绵阳市人,研究员,主要研究方向为微纳电真空技术研究.