

# 金属颗粒调制的复合碳纳米管电子器件的构建和特性测量

彭练矛<sup>1,2</sup> 陈 清<sup>1</sup> 梁学磊<sup>2</sup> 车仁超<sup>2</sup> 夏 洋<sup>3</sup> 薛增泉<sup>1</sup> 吴全德<sup>1</sup>

(1 北京大学电子学系, 北京 100871)

(2 中国科学院物理研究所电子显微镜实验室, 北京 100080)

(3 中国科学院微电子中心, 北京 100029)

摘要: 利用传统微电子加工与纳米组装技术构建出了金属颗粒调制的复合碳纳米管场效应及单电子器件. 电子输运性能测量结果表明这类复合碳纳米管电子器件具有一些不同于一般碳纳米管电子器件的独特性能.

关键词: 纳米电子学; 纳米电子器件; 单电子器件; 纳米科技

EEACC: 2560

中图分类号: TN32 文献标识码: A 文章编号: 0253-4177(2003)S0-0170-05

碳纳米管具有极其优异的导电、导热以及力学特性, 是构建纳米电子学器件的理想材料<sup>[1]</sup>. 近年基于碳纳米管的纳米电子学器件的研究取得了突破性进展. 纳米碳管场效应晶体管<sup>[2,3]</sup>和纳米碳管单电子晶体管<sup>[4,5]</sup>先后问世. 2001 年荷兰 Delft 大学 Dekker 研究组制备出了纳米碳管室温单电子器件<sup>[6]</sup>和基于纳米碳管场效应晶体管的逻辑单元器件和震荡器<sup>[7,8]</sup>, 将纳米电子学向实用化方向的发展大大地推进了一步.

纳米单电子器件的研究是纳米电子学器件研究的一个重要方面. 单电子器件具有耗能小, 无散热问题等优点, 主要问题之一是一般只能在低温下工作. 一个最简单的孤立的单电子器件就是一个孤立的量子或“库仑岛”<sup>[9]</sup>, 其工作温度可通过其库仑充电能  $E_c = e^2/2C$  来估算, 要求满足  $E_c \gg k_B T$  ( $T$  为工作温度). 其中最关键的参数是有效电容  $C$ , 有效电容  $C$  越小其充电能  $E_c$  越高, 工作温度也就越高. 构建高工作温度单电子器件的关键在于减小其有效电容. 在一定的制约条件下, 减小器件尺度是最为有效和常用的提高其工作温度的方法.

一根长度为  $L$  的纳米碳管的电容可近似地通过下式来估算<sup>[10]</sup>:

$$C \approx 2\pi\epsilon_0 L / \ln(2L/d)$$

其中  $d$  为纳米管的直径. 对于一根  $1\mu\text{m}$  长直径为  $1.4\text{nm}$  的碳管,  $E_c$  约为  $10\text{meV}$ . 为了观察到室温单电子效应, 我们需有  $E_c \gg 23\text{meV}$ , 要求作为“库仑岛”的有效纳米碳管的长度不超过几十  $\text{nm}$ . 在一般的实验条件下这个条件是很难满足的.

在 Dekker 等人的实验中<sup>[6]</sup>, 作为“库仑岛”的有效纳米碳管是制约在两个位垒中的一小段碳管. 位垒是通过在一根较长(微米数量级)的碳管上通过原子力显微镜人为地引入 2 个缺陷来实现的. 缺陷导致局域位垒的形成, 在 2 个缺陷间形成了一段孤立的有效长度约为  $25\text{nm}$  的碳纳米管线段. 在室温情况下整个纳米碳管晶体管的单电子效应主要是由这段有效电容最小的纳米管产生, 即这段  $25\text{nm}$  长的碳管就是有效的库仑岛.

虽然 Dekker 等人通过这种方法构建成功了室温下工作的单电子纳米碳管器件, 从实际应用的角度来讲这种方法是不现实的. 在我们的实验中我们通过引入原子团簇到纳米碳管内部. 这些原子团簇和碳管相互作用形成局域位垒. 每两个局域位垒之间的碳管都可视为孤立的库仑岛. 因而原子团簇的间距基本决定了有效的库仑岛的尺寸. 在我们的实验中纳米碳管是采用化学气相沉积 (CVD) 的方法来制备的. 在碳管生长过程中通过定

时提供过量的金属元素(在我们的实验中是铁元素)可以定时可控地向碳管填充原子团簇. 在生长过程中一定程度上控制了碳管中原子团簇的间距, 原则上讲也就是控制了单电子器件的工作温度.

图 1 为利用 CVD 方法在硅衬底上制备的多壁碳纳米管膜的低倍扫描电镜照片. 图 2(a)为在同一台扫描电镜中利用透射样品台所得到的低倍的扫描透射电子显微镜(STEM)照片. 图 2(b)为单根碳管的高分辨透射电镜照片. 这些结果以及详细的成分分析表明铁原子团簇已被填充到了纳米碳管的内部, 而且这些铁原子团簇对碳管的外部型貌产生了相当大的影响. 可能的影响是通过两个途径所造成的: 首先值得强调的是铁原子团簇进入碳管和碳管的生长基本是同时发生的. 铁原子团簇可以直接影响碳管的生长; 另一个值得注意的事实是铁和碳的热膨胀系数是不一样的. 高分辨电镜结果分析表明一些铁金属团簇或颗粒是紧贴着碳纳米管壁生长的. 由于不同的热膨胀系数, 变化温度铁金属颗粒不

可避免地要对外部的碳管壁产生应力. 当应力足够大时可以将局部的碳管从金属性的转变为绝缘性的, 在金属颗粒之间形成一系列串联着的孤立库仑岛.

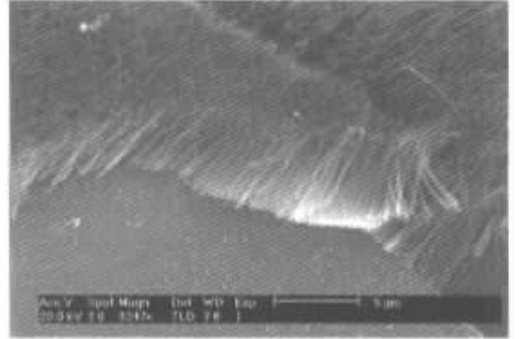


图 1 通过多步热分解 CVD 方法制备的多壁碳纳米管薄膜的扫描电子显微镜照片

Fig. 1 Scanning electron microscopy image showing the multi-walled carbon nanotube made by CVD method

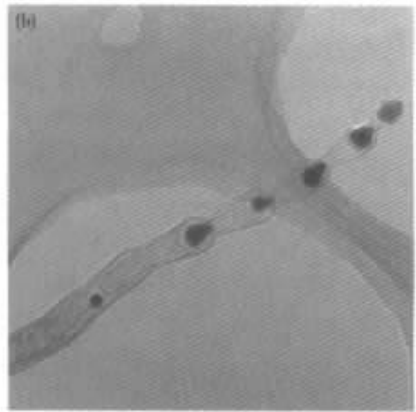
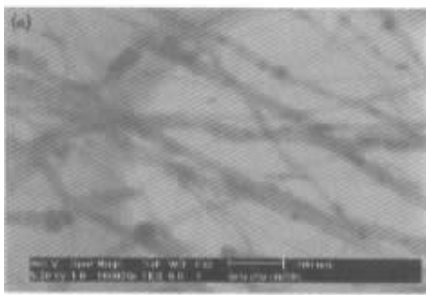


图 2 (a) 低倍扫描透射电子显微镜照片; (b) 填充了纳米铁颗粒的单根多壁碳纳米管的高分辨透射电镜照片

Fig. 2 Low magnification scanning transmission electron microscopy image (a) and a high resolution transmission electron microscopy image (b) showing the carbon nanotube filled with nano iron particles

本文用的微电极结构如图 3 所示. 首先在掺杂的半导体 Si 基底上生长一层厚度为 100~200nm 的  $\text{SiO}_2$  绝缘层. 在这个绝缘层上再采用传统的光刻方式制备出约 60nm 厚的 TiN/AlSi 电极结构. 图 4 (a)所示为扫描电镜中观察得到的电极结构像. 图中衬度较暗的区域为 TiN/AlSi 电极, 衬度较亮的区域为裸露在外面的  $\text{SiO}_2$  绝缘层. 图中所显示的最细的电极线宽约为 300nm.

本文用的纳米碳管场效应晶体管是通过在如图

3 所示的电极结构上组装碳纳米管来制备的. 首先将纳米碳管原材料放入合适的溶液中, 例如 dichloroethane 中, 然后将含有纳米碳管的溶液进行若干小时的超声处理, 其目的是将混在一起的碳管束分散并截成合适的长度. 将超声处理过的含有纳米碳管的溶液滴到电极结构上既可得到如图 4(a)所示的结构(图的两边可见两根横跨电极的纳米碳管). 通过控制碳管在溶液中的密度可以在一定程度上控制组装到电极结构上的碳管的数目. 通过实践,

我们基本可以做到在每个有效的电极对上仅组装上一根纳米碳管。

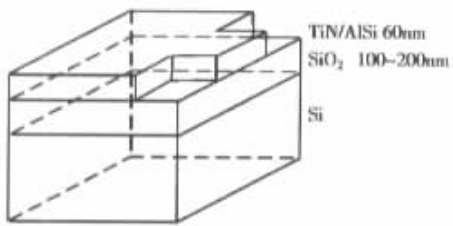


图 3 采用传统的光刻技术制备的电极结构的垂直结构示意图

Fig. 3 Schematic drawing of the electrodes' structure made by microelectronic technique

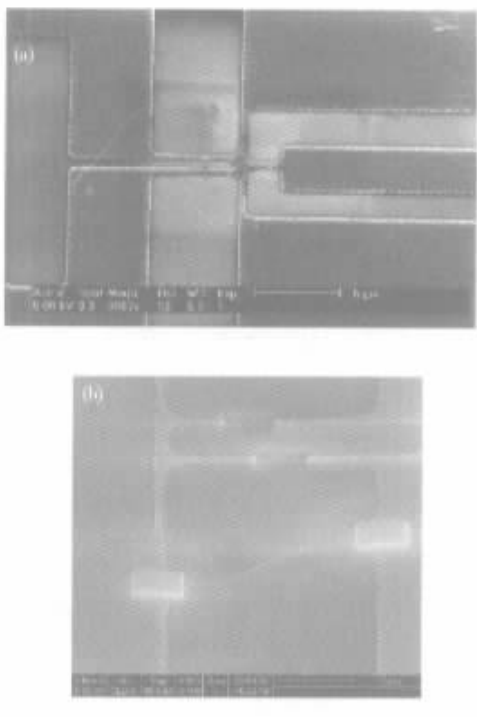


图 4 没有处理过的组装了纳米碳管的电极结构(a)和通过聚焦离子束工作站加工所得的纳米碳管晶体管(b)的扫描电镜照片

Fig. 4 Scanning electron microscopy images showing the electrodes patterned with carbon nanotubes without (a) and with FIB modification (b)

仔细观察图 4(a)就会发现纳米碳管所跨的电极对实际上是连通的. 此外直接组装到电极上的碳管和电极的接触不可靠且电阻较大, 可达  $10^9 \Omega$ . 通过对电极、纳米碳管和电极的接触点用聚焦离子束工作站进行定域加工, 可以得到如图 4(b)所示的电

极加纳米碳管结构, 实际上这也就是一个最简单的纳米碳管场效应晶体管. 图左边的电极可以作为三极管的源, 图右边的电极可以作为漏.  $\text{SiO}_2$  绝缘层下面的 Si 基底可以做门级.

图 4(b)所示的纳米碳管场效应晶体管的电学特性是通过 Keithley 4200 系统测量的. 我们的结果表明纳米碳管可以表现出明显不同的两类电学特性. 一类碳管的  $I$ - $V$  曲线如图 5 所示, 其源漏电流随源漏电压的变化基本呈线性关系(图 5(a)), 且基本不随门电压变化(5(b)). 这种电学特征表明相应的主要导电管壁是金属型的. 图 6 所示为另一类特征. 图 6(a)显现了明显的电压随电流变化的非线性关

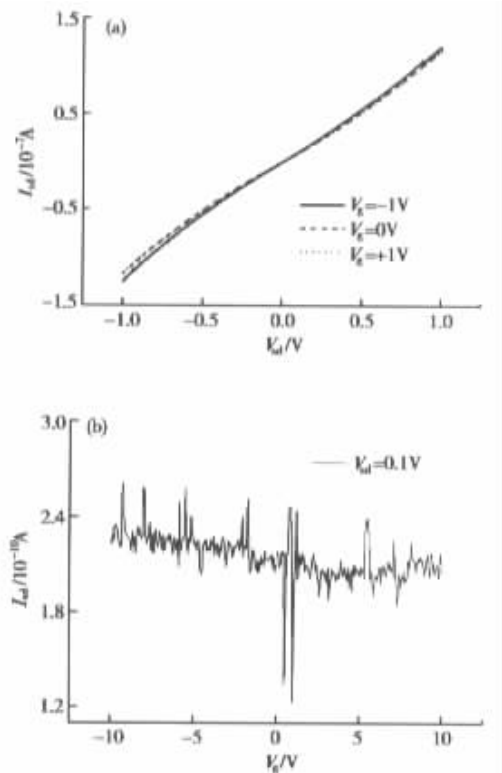


图 5 通过一根金属型的纳米碳管的电流随(a)源-漏电极间的电压和(b)门级电压的变化

Fig. 5 Current change of a metallic carbon nanotube as a function of source-drain voltage (a) and gate voltage (b)

系, 而且其源漏电流明显地受到了门电压的调制. 这种电压电流特性表明相应的主要的导电碳纳米管壁是半导体型的, 基本特征与传统的场效应晶体管基本相同. 我们的结果还表明在弱场条件下多壁碳纳米管主要是通过最外层的一层管壁来传输电流的,

并非所有管壁都参与导电过程. 导电的管壁可以是金属性的也可以是半导体性的. 通过加载较大的偏压, 我们可以人为可控地烧掉最外层有效的导电管壁, 用同一根纳米碳管实现从例如图 5 至图 6 所示的电学特性的转换.

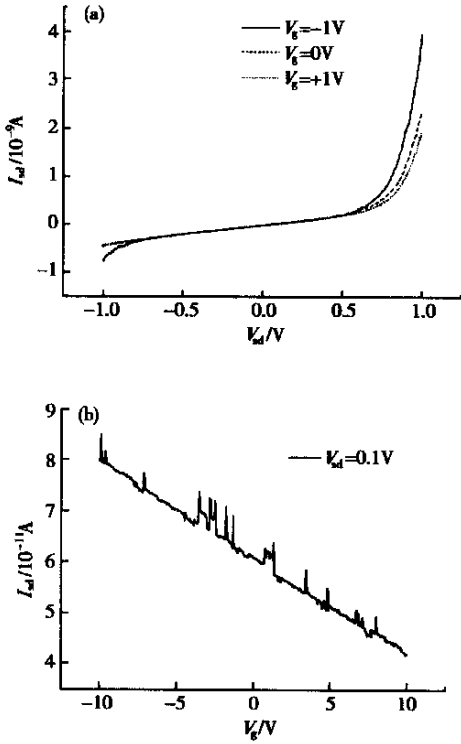


图 6 通过一根半导体型的纳米碳管的电流随(a)源-漏电极间的电压和(b)门级电压的变化  
Fig. 6 Current change of a carbon nanotube as a function of the source-drain voltage (a) and the gate voltage (b)

图 7(a)为对一根典型的金属型的纳米碳管在低温 4.8K 时测量所得的  $I-V$  曲线. 这条  $I-V$  曲线在零偏压附近显现出了一个非常清晰的单电子平台. 随着温度升高, 这个平台逐渐变小, 但直至室温 (见图 7(b))其特征尚未完全消失. 图 8 所示为另一根纳米碳管测量所得的更为复杂的  $I-V$  曲线, 若干间距不等的平台隐约可见, 相应的电导曲线更清晰地表明存在有若干个电导峰.

由于我们的纳米碳管晶体管的源漏电极间的有效碳管长度一般为一个微米以上, 一般情况下在室温是不应该观察到单电子效应的. 但如我们前面所讲, 真正起决定作用的有效单电子库仑岛实际上是位于两个原子团簇间的一段碳管. 如图 2 所示, 在我

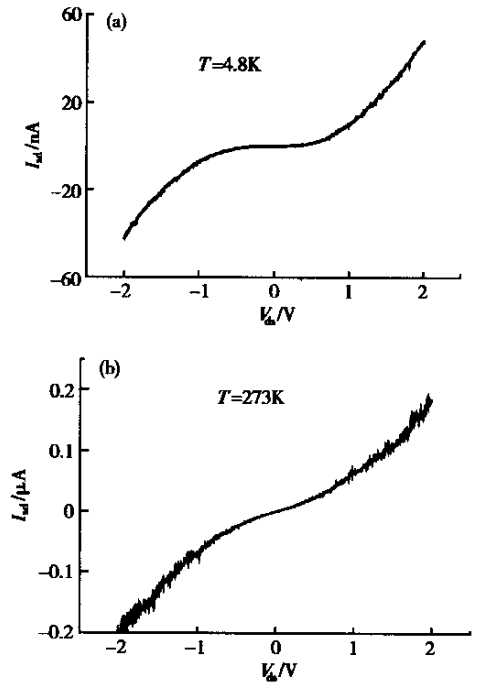


图 7 对一根典型纳米碳管在(a) $T=4.8\text{K}$  和(b)室温  $T=273\text{K}$  下测量所得电压-电流特性曲线  
Fig. 7  $I-V$  characteristics of a typical carbon nanotube measured at 4.8K (a) and 273K (b)

们的纳米碳管中填充进了一系列的金属铁颗粒. 有效的导电通道可以等效为一系列尺寸不等的串联的库仑岛. 整个纳米碳管单电子器件的最高工作温度是由充电能最高或有效尺度最小的库仑岛所决定. 我们的透射电镜结果表明不少碳管都存在有很靠近的原子团簇, 室温单电子效应是完全有可能的. 图 8 表明在相应的纳米碳管中存在不止一个工作温度高于室温的单电子库仑岛.

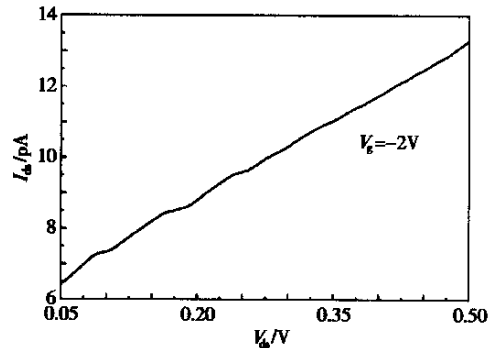


图 8 一根典型纳米碳管在室温测量所得电压-电流特性曲线  
Fig. 8  $I-V$  characteristics of a typical carbon nanotube measured at room temperature

## 参考文献

- [ 1 ] Dekker C. *Physics Today*, 1999, 52:22
- [ 2 ] Martel R, et al. *Appl Phys Lett*, 1998, 73:2447
- [ 3 ] Tans S, et al. *Nature*, 1998, 393:49
- [ 4 ] Bockrath M, et al. *Science*, 1997, 275:1922
- [ 5 ] Tans S, et al. *Nature*, 1998, 394:761
- [ 6 ] Postma H W, Teepe T, Yao Z, et al. *Nature*, 2001, 293:76
- [ 7 ] Derycke V, et al. *Nano Lett*, 2001, 1:453
- [ 8 ] Bachtold A, et al. *Science*, 2001, 294:1317
- [ 9 ] Likharev K. *Proc IEEE*, 1999, 80:606
- [ 10 ] Bezryadin A, Verschueren A R M, Tans S J, et al. *Phys Rev Lett*, 1998, 80:4036

## Fabrication and Characteristics of Metal Particle Modulated Carbon Nanotube Field-effect and Single Electron Transistors\*

Peng Lianmao<sup>1,2</sup>, Chen Qing<sup>1</sup>, Liang Xuelei<sup>2</sup>, Che Renchao<sup>2</sup>, Xia Yang<sup>3</sup>,  
Xue Zengquan<sup>1</sup> and Wu Quande<sup>1</sup>

(1 *Department of Electronics, Peking University, Beijing 100871, China*)

(2 *Beijing Laboratory of Electron Microscopy, Institute of Physics, The Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China*)

(3 *Center of Microelectronics, The Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029, China*)

**Abstract:** Metal particle modulated carbon nanotube devices are fabricated using the conventional lithography and nanotechnologies, and their field-effect and single electron characteristics are measured for varying temperatures.

**Key words:** nanoelectronics; nanoelectronic devices; single electron devices

**EEACC:** 2560

**Article ID:** 0253-4177(2003)S0-0170-05

\* Project supported by the Ministry of Science and Technology (No. 001CB610502), Chinese Academy of Sciences