

# Разогрев пучков металлических углеродных нанотрубок в режиме проводимости жидкости Латтинжера

Б.А. Данильченко, Н.А. Трипачко, Е.А. Войциховская, И.А. Обухов, И.И. Ясковец

*Институт Физики НАН Украины, пр. Науки, 46, г. Киев, 03028, Украина*  
E-mail: danil@iop.kiev.ua

B. Sundqvist

*Department of Physics, Umea University, SE-901 87 Umea, Sweden*

Статья поступила в редакцию 7 декабря 2010 г.

Исследована проводимость пучков углеродных одностенных нанотрубок с металлической проводимостью (металлических нанотрубок) в широком температурном интервале 4,2–330 К и в электрических полях до 50 В. Использование коротких электрических импульсов, длительностью 10 нс позволило исключить влияние разогрева исследуемых структур на характеристики вольт-амперных зависимостей. Показано, что зависимость проводимости от температуры описывается степенной функцией  $G \propto T^\alpha$ . Асимптотическая зависимость тока от приложенного напряжения при гелиевых температурах близка к  $J \propto V^{1+\alpha}$ , причем  $\alpha = 0,45$ . Путем сравнения полученных результатов измерений с расчетами показано, что проводимость пучков нанотрубок хорошо описывается в рамках теории проводимости по механизму жидкости Латтинжера для одномерных проводников. Разогрев пучков углеродных нанотрубок наблюдался в случае измерений в режиме постоянного тока. Предложен метод определения температуры разогрева пучков нанотрубок в зависимости от приложенного электрического поля. Выше некоторого порогового напряжения наблюдалась степенная зависимость температуры разогрева от напряжения  $T \propto V^p$  с показателем степени  $p = 2,1$  в интервале температур 4,2–200 К, выше 200 К показатель степени уменьшался до значения  $p = 1,35$ .

Досліджено провідність пучків вуглецевих одностінних нанотрубок з металевою провідністю (металевих нанотрубок) у широкому температурному інтервалі 4,2–330 К та в електричних полях до 50 В. Використання коротких електричних імпульсів тривалістю 10 нс дозволило виключити вплив розігріву структур, які досліджуються, на характеристики вольт-амперних залежностей. Показано, що залежність провідності від температури описується степенною функцією  $G \propto T^\alpha$ . Асимптотична залежність струму від прикладеної напруги при гелієвих температурах близька до  $J \propto V^{1+\alpha}$ , причому  $\alpha = 0,45$ . Шляхом порівняння отриманих результатів вимірів з розрахунками показано, що провідність пучків нанотрубок добре описується у рамках теорії провідності по механізму рідини Латтінжера для одновимірних провідників. Розігрів пучків вуглецевих нанотрубок спостерігався у разі вимірів в режимі постійного струму. Запропоновано метод визначення температури розігріву пучків нанотрубок залежно від прикладеного електричного поля. Вище за деяку порогову напругу спостерігалася степенева залежність температури розігріву від напруги  $T \propto V^p$  з показником степеня  $p = 2,1$  в інтервалі температур 4,2–200 К, вище 200 К показник степеня зменшувався до значення  $p = 1,35$ .

PACS: 71.10.Pm Фермионы уменьшенной размерности;

73.53.–b Электронный перенос в наномасштабных материалах и структурах;

81.07.De Нанотрубки.

Ключевые слова: углеродные нанотрубки, проводимость, жидкость Латтинжера, температура нанотрубок.

## 1. Введение

Углеродные нанотрубки (УНТ) с момента их открытия [1] стали объектом интенсивных исследований.

Электронные свойства УНТ обуславливаются их одномерностью, характером химической связи и геометрическим строением. Так, в работах [2,3], наблюдались

особенности ван Хофа в начале одномерных зон энергии, подтверждающие одномерный характер проводимости УНТ. В интересующих нас металлических одностенных углеродных нанотрубках, как и в графене, имеет место дираковский закон дисперсии [4]. Эффективная масса носителей становится равной нулю, в этом случае говорят о безмассовом переносе заряда в таких структурах. В силу одномерности возникает степенная особенность плотности состояний вблизи энергии Ферми  $n(q) \propto (q - q_F)^\alpha$ , где  $q_F$  — волновой вектор Ферми. Это состояние электронной подсистемы описывается как жидкость Латтинжера [5–8], проводимость которой характеризуется неуниверсальным параметром Латтинжера  $\alpha$ . При этом кондактанс трубок  $G$  зависит степенным образом от температуры  $G \propto T^\alpha$ , а дифференциальный кондактанс и вольт-амперные зависимости подчиняются универсальным свойствам скейлинга [9–11]. Авторы [10] показали, что величина параметра  $\alpha$  зависит от характера контактов между нанотрубками. Свойства переноса, характерные для жидкости Латтинжера, наблюдались не только на отдельных трубках, но и на связках одностенных УНТ [10], а в работах [11,12] на пересекающихся пучках нанотрубок.

Механизм транспорта носителей тока в одностенных УНТ во многом определяется взаимодействием электронов с колебаниями решетки. Это взаимодействие проявляется по-разному в зависимости от температуры и приложенных электрических полей. В слабых полях наблюдается баллистический перенос заряда на расстояния порядка микрометра даже при комнатных температурах. Это обусловлено слабым взаимодействием носителей с акустическими колебаниями в нанотрубках, что было показано путем расчетов [13].

При высоких напряжениях, порядка 0,1 В, приложенных к нанотрубкам, перенос носителей определяется процессами генерации оптических фононов с энергией  $\hbar\omega_{\text{opt}} \cong 160$  мэВ. Длина свободного пробега электронов уменьшается до 15 нм [14]. Эта точка зрения принята в [15] при интерпретации экспериментальных результатов. В результате взаимодействия горячих носителей с оптическими фононами наблюдалась область отрицательной дифференциальной проводимости (ОДП). Было показано, что эффект существенно зависит от характера отвода тепла из нанотрубок. ОДП наблюдалась в случае ограниченного отвода тепла в свободно взвешенных нанотрубках. В нанотрубках, расположенных непосредственно на подложке, область ОДП не наблюдалась [15].

Эффект существования ОДП открывает новые возможности использования УНТ с металлической проводимостью в качестве нелинейного элемента в нанoeлектронных устройствах. По этой причине детальное изучение температуры разогрева УНТ и ее зависимости от приложенного электрического поля является

важным аспектом исследований кинетики носителей в нанотрубках. Результат, очевидным образом, должен зависеть от многих факторов, таких как структурное и физическое состояние образца, метода измерений и условий отвода тепла.

В настоящей работе приведены результаты исследований проводимости пучков углеродных одностенных металлических нанотрубок в температурном интервале 4,2–330 К и приложенных импульсных, длительностью 10 нс, электрических полях до 50 В. Показано, что проводимость пучков нанотрубок до температуры 195 К описывается в рамках теории жидкости Латтинжера для одномерных проводников. Для исследования разогрева пучков углеродных нанотрубок использовали измерения в режиме постоянного тока. Сопоставление результатов импульсных измерений вольт-амперных характеристик (ВАХ) с таковыми в режиме постоянного тока наглядно продемонстрировало эффект разогрева. Предложен метод определения температуры разогрева пучков нанотрубок в зависимости от приложенного постоянного электрического поля. Показано, что температура разогрева является степенной функцией приложенного напряжения и рассеиваемой мощности.

## 2. Образцы и техника эксперимента

Исследования явления переноса заряда в структурах, состоящих из пучков металлических углеродных нанотрубок, выполнены с использованием образцов, изготовленных путем приложения одноосного давления. Исходный порошок был спрессован при комнатной температуре и давлении 1 ГПа. Согласно результатам работы [16], при таком давлении формируется структура с пучками, преимущественно ориентированными в плоскости, перпендикулярной к оси приложенного давления. Нанотрубки связываются между собой слабыми силами Ван дер Ваальса. Использовали исходный порошок, содержащий 90% одностенных углеродных нанотрубок. Длина пучков таких нанотрубок составляла 5–30 мкм. После прессования порошка структура полученного образца представляла собой совокупность многократно пересекающихся и скрученных пучков. Они образуют множество контактов на пересечениях трубок, как видно на рис. 1, иллюстрирующем фрагменты структуры, полученные с помощью электронного микроскопа высокого разрешения.

Рамановская спектроскопия образцов из спрессованных нанотрубок показала наличие дыхательных мод колебаний (RBM-mode) в низкочастотной области спектра. Измерения были выполнены при комнатной температуре с использованием лазера с длиной волны 830 нм. Фрагмент спектра в интервале волновых чисел 100–350  $\text{см}^{-1}$  приведен на рис. 2. Здесь видны два наиболее интенсивных пика при  $\omega_1 = 234,6 \text{ см}^{-1}$  и  $\omega_2 = 147 \text{ см}^{-1}$ . Для таких

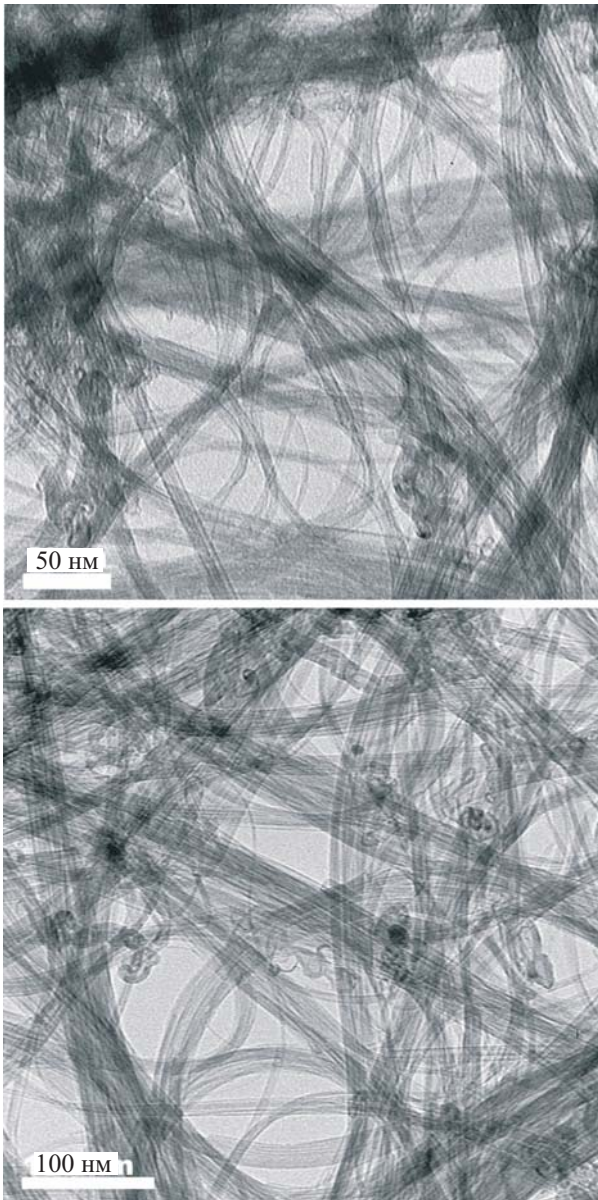


Рис. 1. Различные фрагменты структуры образца, состоящего из спрессованных пучков углеродных нанотрубок, наблюдаемые в электронном микроскопе.

значений волновых чисел можно рассчитать диаметры нанотрубок  $d$ . При расчете необходимо принять во внимание, что нанотрубки объединены в пучки. Они удерживаются вместе силами Ван дер Ваальса.

Для случая взаимодействующих в пучке углеродных нанотрубок выражение, связывающее волновое число  $\omega$  с диаметром  $d$ , записывается в виде [17–21]

$$\omega_{RBM}(\text{см}^{-1}) = C_1/d(\text{нм}) + C_2. \quad (1)$$

Для констант  $C_1$  и  $C_2$  в литературе используют два набора данных  $C_1 = 224$  и  $C_2 = 14$  [19,20],  $C_1^* = 239$ ,  $C_2^* = 8,5$  [18]. Константа  $C_2$  учитывает взаимодействие между нанотрубками в пучке. Используя приведенный набор констант, с помощью (1) рассчитаны

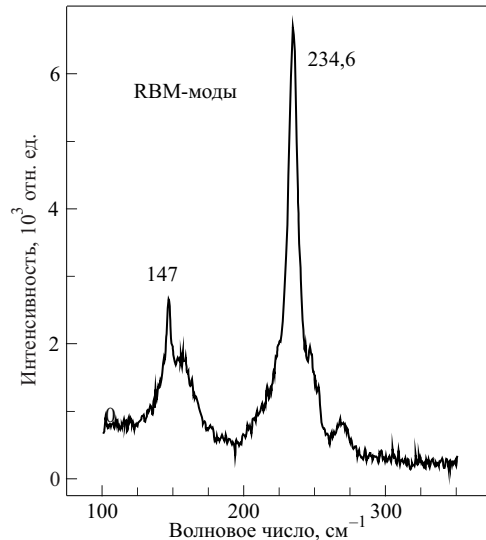


Рис. 2. Фрагмент рамановского спектра в интервале волновых векторов, присущих дыхательным модам колебаний одиночных углеродных нанотрубок.

диаметры нанотрубок. Показано, что волновому числу  $\omega_1 = 234,6 \text{ см}^{-1}$  соответствуют диаметры  $d = 1,015 \text{ нм}$  и  $d^* = 1,057 \text{ нм}$ . Полученные данные близки к рассчитанным значениям диаметров  $d = 1,02 \text{ нм}$  с хиральностью  $(n = 6, m = 9)$  и  $d^* = 1,059 \text{ нм}$  с хиральностью  $(n = 1, m = 13)$ . В обоих случаях разница  $(m - n)$  кратна 3, что указывает на металлический характер проводимости нанотрубок.

Аналогичные расчеты для  $\omega_2 = 147 \text{ см}^{-1}$  дали значения диаметров  $d = 1,68 \text{ нм}$  и  $d^* = 1,726 \text{ нм}$ , которые близки к рассчитанным диаметрам  $d = 1,69 \text{ нм}$  с хиральностью  $(n = 6, m = 18)$  и  $d^* = 1,73 \text{ нм}$  с хиральностью  $(n = 8, m = 17)$ . Разница хиральностей, как и в предыдущем случае, кратна 3, следовательно, этот тип трубок также проявляет металлическую проводимость.

Как будет видно из результатов наших исследований, изложенных ниже, проводимость структур действительно имеет металлический характер с особенностями, присущими одномерным металлам.

Электрические измерения таких структур выполнялись на образцах с двумя контактами. Образцы изготавливали в форме гантели, которая имела внутри перетяжку с характерным сечением  $100 \times 100 \text{ мкм}$  и длиной примерно  $200 \text{ мкм}$ . На рис. 3 приведено схематическое изображение образца с массивными электрическими контактами на краях гантели. Электрические контакты готовили с использованием проводящей пасты из порошка серебра. Такие контакты были омическими во всем температурном интервале  $4,2\text{--}330 \text{ К}$  и оставались стабильными при многократных процессах охлаждения и нагрева образца в ходе эксперимента. В указанном интервале температур изучали проводимость в режиме постоянного напряжения. Прикладываемые к

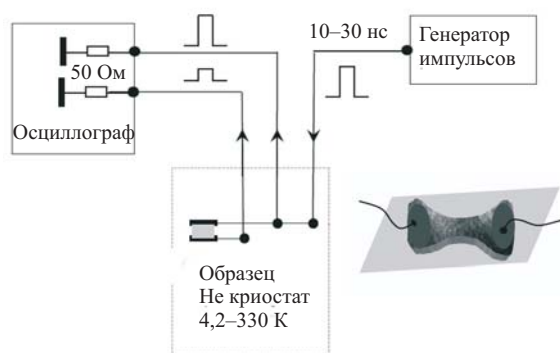


Рис. 3. Основные элементы электрической схемы импульсных измерений ВАХ. Схематическое изображение образца с контактами.

образцу напряжения были достаточно малы для того, чтобы электрическое сопротивление образца не зависело от приложенного напряжения при заданной температуре.

Новым методическим решением при исследовании ВАХ структур, состоящих их пучков углеродных нанотрубок, было использование коротких электрических импульсов. Такой метод исследований впервые был использован авторами настоящей работы [11] для изучения проводимости пучков углеродных нанотрубок в широком интервале температур и приложенных напряжений.

Результаты измерений импульсных ВАХ существенно отличаются от измерений на одном и том же образце в режиме постоянного напряжения, что будет продемонстрировано ниже. Принципиальная схема измерений ВАХ в импульсном режиме представлена на рис. 3. В качестве генератора электрических импульсов использовали ртутное реле, которое разряжало коаксиальный кабель, заряженный до заданного напряжения. Электрические импульсы длительностью 10–30 нс от генератора прикладывались непосредственно к образцу в криостате и одновременно подавались на вход одного из каналов цифрового запоминающего осциллографа. Время разрешения осциллографа — 1 нс. Второй канал осциллографа регистрировал сигнал, величина которого пропорциональна току через образец. Оба сигнала позволяли получать значения напряжения на образце и протекающий через него ток.

### 3. Результаты измерений и их обсуждение

Результаты измерений проводимости  $G$  от температуры  $T$  представлены на рис. 4. Измерения проведены в режиме постоянного напряжения, величина которого выбиралась такой, что не влияла на сопротивление образца. Видно, что результаты измерений, представленные в двойном логарифмическом масштабе в интервале температур 25–330 К, хорошо описываются степенной зависимостью  $G \propto T^\alpha$  с показателем степени 0,45 (на

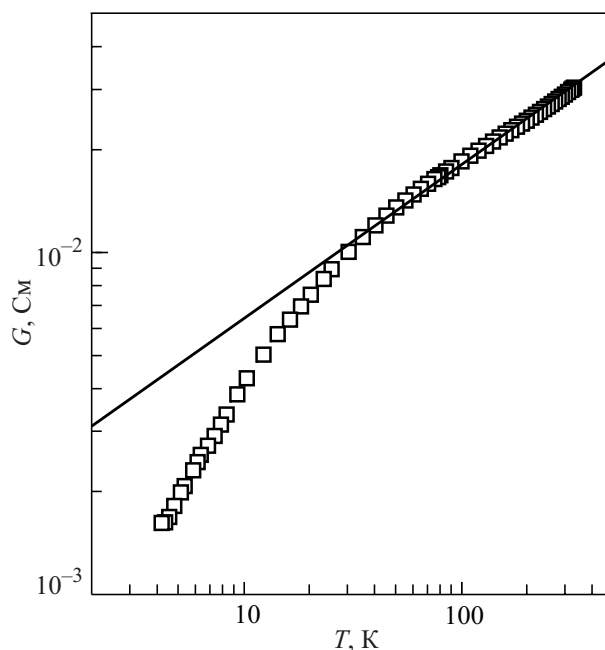


Рис. 4. Зависимость проводимости пучков углеродных нанотрубок  $G$  от температуры в двойных логарифмических координатах. Сплошная линия соответствует степенной функции  $G \propto T^{0,45}$ .

рисунке сплошная линия). Степенная зависимость проводимости от температуры в слабых электрических полях характерна для случая проводимости одномерных систем по механизму жидкости Томонага–Латтинжера. Такое поведение проводимости является следствием степенной зависимости,  $n(q) \propto (q - q_F)^\alpha$ , плотности одночастичных состояний вблизи уровня Ферми. Здесь  $q$  — волновой вектор,  $q_F$  — волновой вектор Ферми. В модели жидкости Томонага–Латтинжера величина не универсального показателя степени  $\alpha$  определяется силой электрон-электронного взаимодействия в пределах одной нанотрубки, которое, в свою очередь, характеризуется параметром взаимодействия Латтинжера  $\beta$  [9]. Этот параметр изменяется от  $\beta \ll 1$ , что соответствует сильному электрон-электронному отталкиванию, до  $\beta = 1$ . В этом случае взаимодействие отсутствует, и условие для существования классической жидкости Ферми удовлетворяется. В общем случае величина показателя степени  $\alpha$ , полученная из транспортных измерений, определяется условиями на границах контактов так же, как и взаимодействием между ближайшими нанотрубками в пучках и связках нанотрубок. При исследованиях фотоэмиссионных спектров аналогичных структур, состоящих из пучков углеродных нанотрубок, получено значение  $\alpha = 0,43$  при фиксированной температуре 35 К [22]. Эта температура попадает в интервал значений, при которых, по данным наших измерений, условия существования жидкости Томонага–Латтинжера выполняются. В указанной работе вклад

внешних контактов нанотрубок с металлом исключался и значение величины  $\alpha$  определялось только вкладом от внутренних контактов между нанотрубками. В пределах точности измерений наш результат совпадает с полученным значением в [22]. Таким образом, при выбранной нами геометрии образца и с учетом структурных исследований (рис. 1) электронные свойства изучаемой системы определяются многочисленными контактами пересекающихся пучков нанотрубок.

В подавляющем числе работ по изучению проводимости одиночных нанотрубок или их пучков анализ полученных в эксперименте значений  $\alpha$  основывается на расчетах, в которых взаимодействие между самими нанотрубками не учитывается. Вместе с тем для  $N$  слабо взаимодействующих нанотрубок предложено простое выражение для показателя  $\alpha$  [23]:

$$\alpha = \frac{2(1-\beta)}{N}. \quad (2)$$

Параметр Латтинжера  $\beta$  хорошо известен из расчетов. Для одиночных углеродных нанотрубок этот параметр равен 0,2–0,25 [13–15], тогда как значение  $\beta = 0,18$  получено из экспериментальных данных [22]. Используя выражение (2), можно оценить эффективное число взаимодействующих в пучке нанотрубок. Для значения  $\alpha = 0,45$  при  $\beta = 0,18$  величина  $N = 3,6$ , тогда как при  $\beta = 0,25$ ,  $N = 3,3$ . Из этих оценок следует, что электронные свойства структуры, состоящей из пучков пересекающихся нанотрубок, обусловлены преимущественно фрагментами из трех или четырех взаимодействующих ближайших нанотрубок.

Как уже отмечалось, в системе углеродных нанотрубок типичное значение для параметра взаимодействия между электронами  $\beta \approx 0,2$ . Это говорит о сильном отталкивающем взаимодействии, которое может привести к разрушению металлического состояния и образованию моттовской щели в плотности состояний в одномерном проводнике. В работе [24] рассмотрена фазовая диаграмма для системы взаимодействующих углеродных нанотрубок. В зависимости от температуры и параметра обмена носителями между трубками можно было ожидать появления переходов между состояниями изолятора Мотта–жидкость Латтинжера и фазами жидкости Ферми–Латтинжера.

На рис. 4 видно, что ниже 25–30 К проводимость отклоняется от степенной зависимости и быстро падает при понижении температуры. В интервале 4,2–25 К проводимость носит хорошо выраженную экспоненциальную зависимость  $G \propto \exp[-(T_0/T)^{0,25}]$  со значением  $T_0 = 1950$  К (см. рис. 5). Полученный результат явно демонстрирует наличие прыжковой проводимости с переменной длиной прыжка, что следовало ожидать для диэлектрической фазы Мотта [24,25]. Таким образом, мы экспериментально наблюдали ожидаемый переход

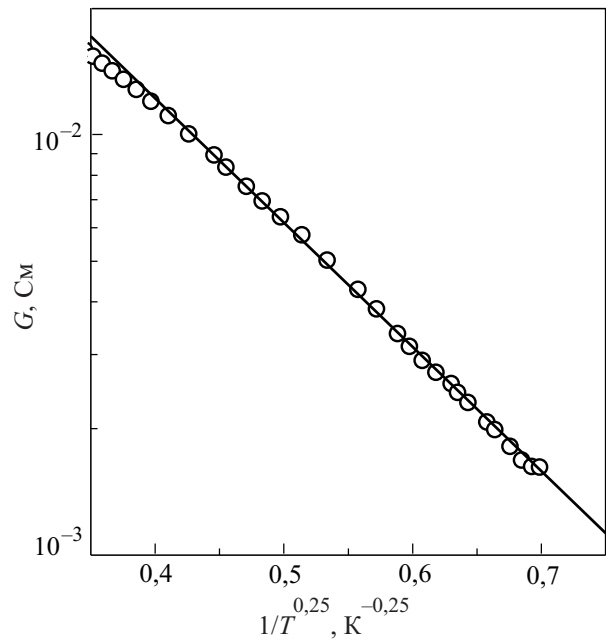


Рис. 5. Зависимость проводимости  $G$  от обратной температуры в степени 0,25. Прямая линия соответствует функции  $G \propto \exp[-(T_0/T)^{0,25}]$ .

из состояния жидкости Латтинжера в изолирующую фазу Мотта в системе пучков взаимодействующих углеродных нанотрубок.

Вольт-амперные характеристики в импульсном режиме исследовали с использованием коротких электрических импульсов длительностью 10–30 нс с частотой следования импульсов 100 Гц. Такой метод исследования позволял избежать неконтролируемого разогрева образца в больших электрических полях. Эффект разогрева должен быть существенным для образца, представляющего собой сетку из нанотрубок и их пучков, особенно при температурах вблизи гелиевых. В результате исследования ВАХ с использованием коротких электрических импульсов нам удалось существенно расширить интервал напряжений. Исследования этих характеристик были выполнены при нескольких фиксированных температурах, лежащих в интервале 4,2–195 К. На этом этапе исследований изучены два образца с практически одинаковыми сопротивлениями при комнатной температуре и близкими характеристиками зависимости проводимости от температуры, представленными на рис. 4 и 5. Результаты измерений ВАХ для этих образцов приведены на рис. 6. Видно, что электрический ток в исследуемых структурах существенно зависит от температуры.

Проведем анализ полученных результатов в рамках теории проводимости жидкости Латтинжера. Универсальное соотношение для зависимости тока от электрического поля и температуры в модели жидкости Латтинжера имеет вид [26,27]



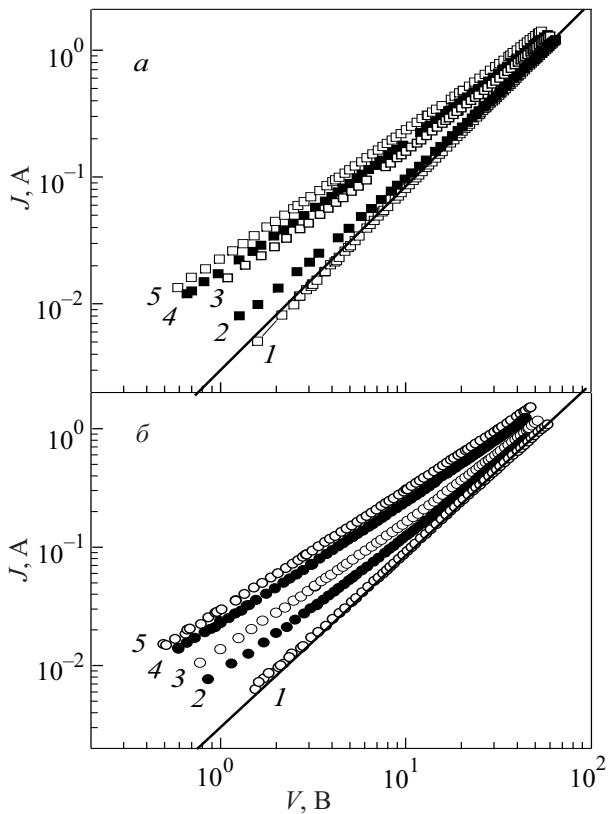


Рис. 6. Вольт-амперные характеристики в двойном логарифмическом масштабе, измеренные в импульсном режиме на образцах при  $T$ , К: 4,2 (1), 12,5 (2), 50 (3), 78 (4), 160 (5) (а); 4,2 (1), 12 (2), 25 (3), 78 (4), 194 (5) (б). Сплошные линии — асимптотическая функция  $J \propto V^{1,45}$ .

$$J = I_0 T^{\alpha+1} \operatorname{sh} \left( \frac{eV_s}{2k_B T} \right) \left| \Gamma \left( 1 + \frac{\alpha}{2} + i \frac{eV_s}{2\pi k_B T} \right) \right|^2. \quad (3)$$

В этом выражении  $I_0$  — константа,  $e$  — заряд электрона,  $k_B$  — постоянная Больцмана,  $\Gamma(x)$  — гамма-функция,  $V_s$  — падение напряжения на концах одиночной нанотрубки. При выбранной геометрии исследуемых образцов расстояние между внешними контактами  $L$ , на котором сосредоточено электрическое поле, намного больше среднего расстояния между контактами самих пучков нанотрубок  $l_{\text{eff}}$ , которое определяется структурой пересекающихся пучков в образце после прессования порошка, см. рис. 1. Таким образом, выражение для  $V_s$  следует записать в виде

$$V_s = \frac{l_{\text{eff}}}{L} V = \gamma V, \quad (4)$$

где  $V$  — падение напряжения на образце, измеряемое экспериментально.

Выражение для тока (3) имеет два асимптотических предела:

– предел низких электрических полей, при которых  $eV_s/k_B T < 1$ , и выражение (3) переходит в степенную функцию  $J/V \propto G \propto T^\alpha$ ;

– предел высоких электрических полей  $eV_s/k_B T > 1$ , который легко реализуется при достаточно низких температурах. В этом случае зависимость тока от приложенного напряжения описывается степенной функцией  $J \propto V^{1+\alpha}$ .

В обоих случаях параметр  $\alpha$  должен быть одинаковым и может быть получен в независимых экспериментах, выполненных при этих предельных условиях. В пределе малых электрических полей результаты исследований температурной зависимости проводимости представлены на рис. 4.

Результаты, представленные на рис. 6, показывают, что в пределе больших электрических полей асимптотическая зависимость  $J \propto V^{1+0,45}$  наблюдается при температурах 4,2 и 12 К. Достижение асимптотики при более высоких температурах требовало высоких полей, недостижимых в наших экспериментальных условиях. Тем не менее видно, что при высоких температурах все вольт-амперные характеристики стремятся к предельной зависимости.

Из выражения (3) следует, что в универсальных координатах  $J/T^{1+\alpha}$  в зависимости от  $eV_s/k_B T$  вольт-амперные характеристики, измеренные при различных температурах, должны сходиться к одной универсальной кривой. Действительно, на рис. 7 видно, что в этих координатах все зависимости, представленные на рис. 6, схо-

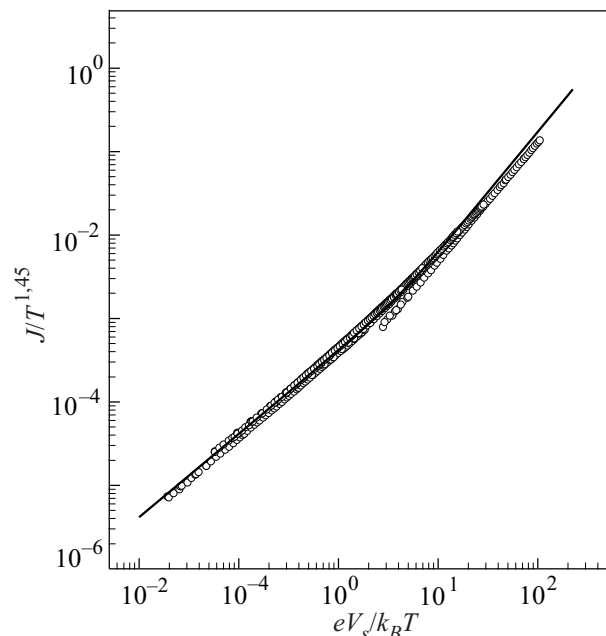


Рис. 7. Данные ВАХ, представленные в двойном логарифмическом масштабе, в универсальных координатах. Все экспериментальные точки, соответствующие данным рис. 6, в температурном интервале 4,2–195 К сходятся к единой кривой, описываемой выражением (3) (сплошная линия).

дятся к единой кривой. Причем, данные для обоих образцов совпадают, поскольку они имеют очень близкие исходные характеристики. Экспериментальные результаты, представленные в универсальных координатах со значением свободного параметра  $\gamma \approx (7-10) \cdot 10^{-4}$ , полностью совпадают с аналитическим выражением (3) (представлено на рис. 7 сплошной линией). Совпадение наблюдается в широком интервале значений  $eV_s/k_B T$  от  $10^{-2}$ , что соответствует измерениям ВАХ при 160–194 К, до  $10^2$ , достигаемого при гелиевых температурах. Универсальное скейлинговое соотношение для тока, напряжения и температуры вытекает из модели проводимости по механизму жидкости Латтинжера для одномерного металла. Наши экспериментальные результаты, представленные на рис. 4 и рис. 7 в полной мере описываются соотношением (3). Следовательно, проводимость сетки пучков одностенных металлических нанотрубок до температур 195 К осуществляется по механизму жидкости Томонага–Латтинжера.

Как уже отмечалось, все ранее выполненные исследования проводимости нанотрубок проведены в режиме постоянного тока. С целью выяснения вопроса, насколько использование такого метода оправдано в интервале больших электрических полей, мы провели сравнительные измерения ВАХ для разных методов: импульсного и постоянного напряжений. Измерения выполнены для одного и того же образца при температуре жидкого гелия. Результаты этих сравнительных исследований ВАХ приведены на рис. 8. Видно, что результаты измерений при низких напряжениях совпадают для обоих методов. При некотором напряжении, в

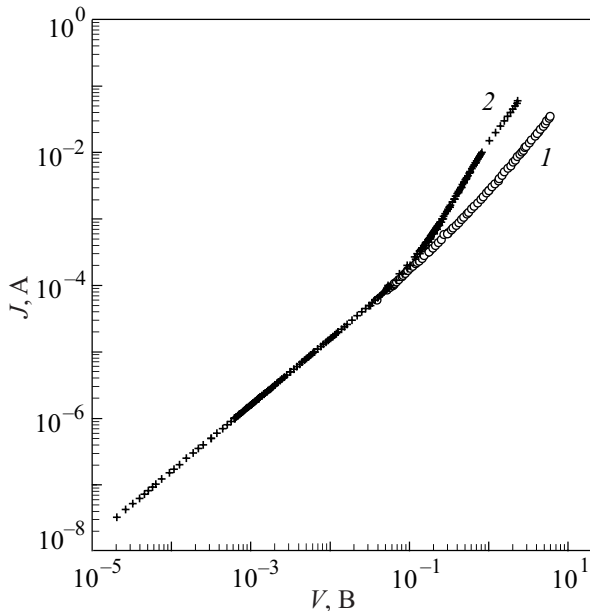


Рис. 8. Зависимости тока от приложенного напряжения, полученные в режимах постоянного тока (кривая 2), и при импульсных измерениях (кривая 1), выполненных при температуре жидкого гелия.

нашем случае вблизи  $V = 0,1$  В, ток в постоянном режиме резко возрастает по сравнению с импульсным режимом измерения. Это наглядно демонстрирует влияние разогрева пучков нанотрубок на измеряемые характеристики. Очевидно, в зависимости от условий проведения эксперимента и конфигурации расположения нанотрубок, разогрев может в различной степени сказаться на результатах исследований ВАХ.

В исследованиях проводимости углеродных нанотрубок часто изучают дифференциальную проводимость  $G = dJ/dV$  в зависимости от прикладываемого к нанотрубкам напряжения. Аналитическое выражение дифференциальной проводимости в случае жидкости Латтинжера имеет вид

$$\frac{dJ}{dV} = AT^\alpha \operatorname{ch}(\gamma Z) \left| \Gamma \left( 1 + \frac{\alpha}{2} + i\gamma \frac{Z}{\pi} \right) \right|^2 \times \left\{ 1 - \frac{2}{\pi} \operatorname{th}(\gamma Z) \operatorname{Im} \left[ \Psi \left( 1 + \frac{\alpha}{2} + i\gamma \frac{Z}{\pi} \right) \right] \right\}. \quad (5)$$

Здесь  $Z = eV / (2k_B T)$  — некоторая константа, и  $\Psi$  — дигамма-функция. Зависимость  $G$  от универсального энергетического параметра  $eV_s/k_B T$  позволяет очень четко выделить два интервала асимптотического поведения выражения (5). Так, при значениях  $eV_s/k_B T \geq 1$

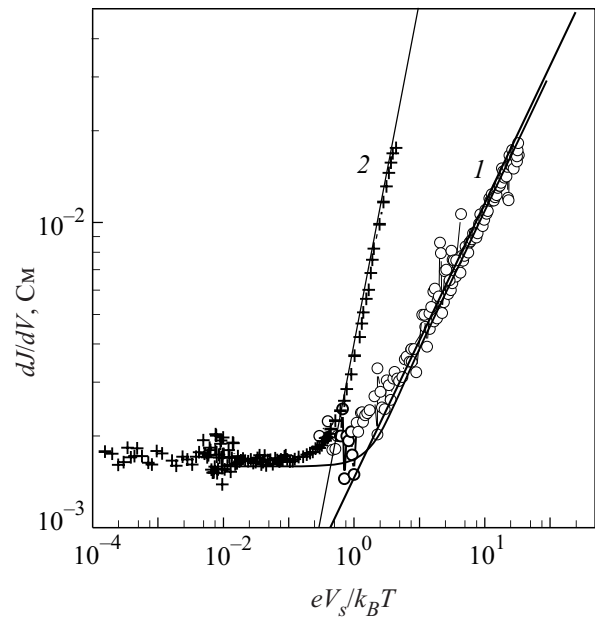


Рис. 9. Дифференциальная проводимость  $dJ/dV$  в зависимости от универсального энергетического параметра. Экспериментальные точки кривой 1 получены на основании импульсных измерений, кривая 2 построена по данным экспериментов в режиме постоянного тока. Толстая сплошная линия соответствует функции (5). Тонкие сплошные линии — асимптотическим функциям  $dJ/dV \propto V^\alpha$ .

функция стремится к степенной зависимости  $dJ/dV \propto V^\alpha$ , где  $\alpha$  есть параметр жидкости Латтинжера, о котором говорилось выше. На рис. 9 приведены зависимости дифференциальной проводимости, построенные на основе данных рис. 8 для двух методов измерений. Видно, что в зависимости от используемого метода исследований получают различные показатели  $\alpha$  для степенной асимптотической функции. Для измерений при постоянном напряжении имеем  $\alpha = 1,12$ , в импульсных измерениях  $\alpha = 0,45$ . Именно последнее значение совпадает с величиной  $\alpha$ , ранее определенной на основе температурной зависимости проводимости (рис. 4) и импульсных исследований (рис. 6). Выражение (5) хорошо описывает ход экспериментальной зависимости  $dJ/dV$  в широком интервале изменения энергетической переменной  $eV_s/k_B T$ , которая получена в измерениях с использованием коротких импульсов. Наилучшее совпадение данных эксперимента с (5) получено при значениях параметра  $\alpha = 0,45$  и  $\gamma = 7 \cdot 10^{-4}$ , как это видно из построения рис. 9. Наблюдаемое расхождение между экспериментальными точками и рассчитанной зависимостью вблизи  $eV_s/k_B T \cong 1$  может быть обусловлено дисперсией эффективной длины нанотрубки  $l_{\text{eff}}$ . Среднее значение этой величины можно получить исходя из соотношения  $\gamma = l_{\text{eff}}/L$ , где  $L$  — расстояние между внешними контактами, на котором сосредоточено приложенное электрическое напряжение  $V$ . В нашем случае эффективная длина образца  $L \approx 200$  мкм, и  $l_{\text{eff}}$  равно примерно 150 нм. Полученная длина хорошо согласуется с данными структурных исследований на рис. 1. Ход зависимости дифференциальной проводимости, измеренной в режиме постоянного напряжения, не описывается выражением (5) для полученного значения параметра  $\gamma$ . Этот параметр должен быть одинаковым в обоих измерениях, поскольку исследования выполнены на одном и том же образце.

Следовательно, различие в поведении токов и дифференциальной проводимости обусловлено эффектом саморазогрева пучков нанотрубок при приложении к образцу постоянного напряжения. В этих условиях температура пучков становится зависящей от приложенного напряжения или вводимой электрической мощности. Ход такой зависимости можно получить из данных рис. 8 и уже установленного факта, что проводимость исследуемых пучков углеродных нанотрубок осуществляется по механизму жидкости Латтинжера. Это значит, что в нашем последующем анализе можно использовать аналитическое выражение (3), связывающее зависимость электрического тока от температуры и напряжения. С использованием (3) построена серия вольт-амперных характеристик при различных температурах. Несколько кривых этой серии приведены на рис. 10 сплошными линиями. Показаны также экспериментальные результаты измерений в режиме постоянного напряжения. При таком построении точка пересечения эксперимен-

тальной кривой и рассчитанной при заданной температуре дает значение напряжения, при котором эта температура устанавливается. Например, кривая 4 на рис. 10, соответствующая температуре 100 К, пересекается с экспериментальной кривой при напряжении 0,7 В. Это означает, что при этом напряжении пучок нанотрубок разогрелся до температуры 100 К. Серия таких построений позволила нам установить зависимость температуры от постоянного напряжения, прикладываемого к пучку углеродных нанотрубок. Результаты приведены на рис. 11. Как видно, существует пороговое напряжение или критическая мощность, выше которой температура резко возрастает. Следует отметить, что электрическую мощность определяли с использованием данных измерений ВАХ, приведенных на рис. 10. В обоих случаях увеличение температуры можно описать степенной функцией  $T \propto V^p$  или  $T \propto W^s$ . В интервале температур 4,2–200 К значения степеней  $p$  и  $s$  равны 2,1 и 0,75 соответственно. Выше температуры 200 К показатели степени  $p$  и  $s$  заметно меньше и становятся равными 1,35 и 0,5. Причин для такого изменения характера разогрева несколько.

Во-первых, можно ожидать, что выше 200 К проводимость не полностью описывается моделью жидкости Латтинжера. Следовательно, использование выражения (3) для процедуры определения температуры выше

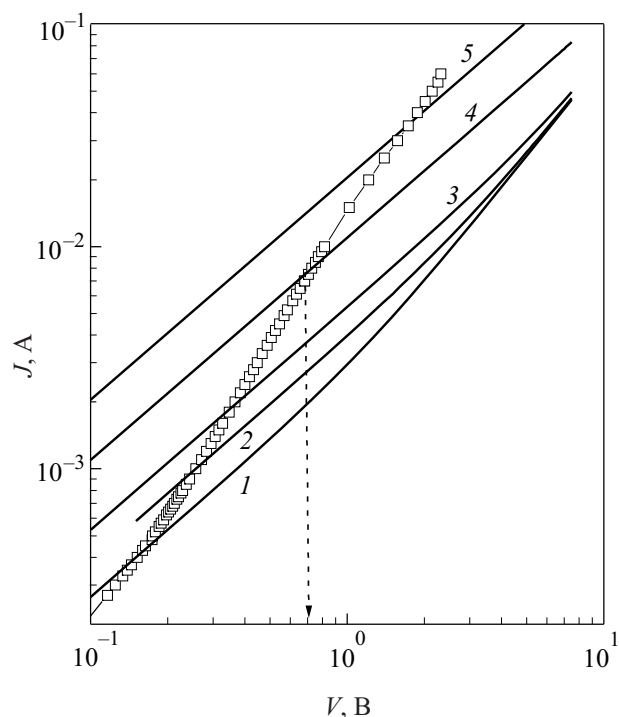


Рис. 10. Фрагмент вольт-амперной характеристики, измеренной в режиме постоянного напряжения (□). Сплошные линии — результат расчета согласно выражению (2) при температурах, К: 4,2 (1), 10 (2), 20 (3), 100 (4) и 400 (5). Пунктирная линия иллюстрирует соответствие напряжения и температуры разогрева образца.



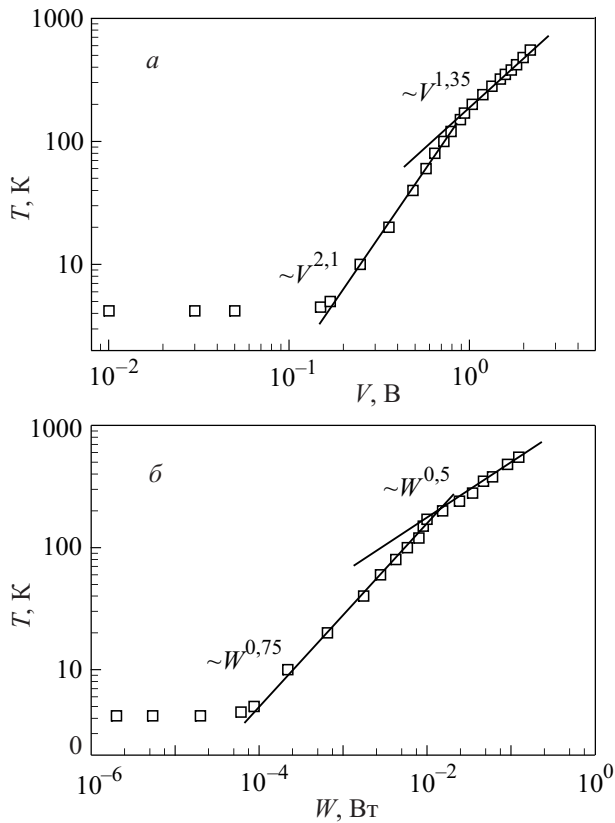


Рис. 11. Зависимости температуры разогрева пучков углеродных нанотрубок от напряжения (а) и вводимой электрической мощности (б).

200 К может дать несколько иную зависимость от электрического поля. Однако это отклонение от модели жидкости Латтинжера, видимо, небольшое, поскольку из данных рис. 4 видно, что в актуальном интервале температур 200–330 К проводимость продолжает изменяться в соответствии с (3), а именно: наблюдаемая зависимость  $G \propto T^\alpha$  может быть аргументом в пользу применимости (3) до комнатных температур и несколько выше.

Второй возможной причиной резкого изменения температуры разогрева может быть изменение условий отвода тепла из пучков нанотрубок или изменение механизма генерации акустических фононов в самих нанотрубках. Тепловое равновесие в структуре из пучков нанотрубок устанавливается за счет баланса вводимой электрической мощности и мощности отвода тепла. Отвод тепла контролируется процессами теплопроводности и теплообменом между пучками нанотрубок с окружающей средой. Этой средой является жидкий гелий. В настоящее время мало что известно об этих тепловых процессах, протекающих в структурах из сетки пересекающихся пучков углеродных нанотрубок. Решение этого вопроса требует дальнейшего детального исследования.

Насколько может измениться характер энергетических потерь носителями тока в таких структурах можно

оценить исходя из следующих соображений. В наших условиях эксперимента максимальное напряжение равнялось 2 В (см. рис. 8). Падение напряжения на эффективной длине равно  $\Delta V = \gamma V$ . Ранее было установлено, что  $\gamma \cong 10^{-3}$ , тогда значение  $\Delta V$  на этой длине  $\sim 2 \cdot 10^{-3}$  В. Это напряжение намного меньше порога эмиссии оптического фона, равного 0,18 эВ для случая изолированной углеродной нанотрубки [13,15]. Для носителей с энергиями ниже этого порога энергетические потери связаны только с эмиссией акустических фононов спектра колебаний нанотрубок. Вычисления, выполненные в работе [13], показали, что длина свободного пробега носителей тока в углеродной нанотрубке достигает 100–160 нм даже при комнатной температуре. Это значение близко к оцененной ранее эффективной длине нанотрубки  $l_{\text{eff}} \cong 150$  нм. Следовательно, при достаточно низких температурах транспорт носителей носит баллистический характер с преимущественным выделением тепла на контактах между проводящими пучками нанотрубок [28]. С повышением температуры длина свободного пробега может стать меньше эффективной длины нанотрубки, и генерация фононов смещается от контактов внутрь нанотрубок. В этом случае должен изменяться и теплообмен с окружающей средой. Такое перераспределение генерации фононов по длине нанотрубок и может быть причиной наблюдаемого изменения показателей степеней  $p$  и  $s$ , характеризующих разогрев пучков углеродных нанотрубок в зависимости от величины приложенного постоянного напряжения или электрической мощности.

Необходимо отметить, что в работах [15,29] изучали эффект разогрева углеродных нанотрубок в сильных электрических полях при различных условиях отвода тепла. Исследовали вольт-амперные характеристики нанотрубок в тепловом контакте с подложкой и взвешенных в вакууме. Эксперименты и расчеты проводили для углеродных нанотрубок с металлической проводимостью, присущей ферми-жидкости. Такой подход оправдан при достаточно высоких температурах — порядка комнатных. Результаты расчета и эксперимент демонстрируют типичную для ферми-жидкости зависимость электрического тока от приложенного напряжения. В малых электрических полях ток линейно растет с полем и стремится к насыщению при напряжениях выше 0,1 В. В случае уменьшения отвода тепла через боковую поверхность нанотрубки наблюдается отрицательная дифференциальная проводимость.

В нашем случае разогрев нанотрубок приводит к нелинейному возрастанию тока в зависимости от приложенного постоянного напряжения. Такое поведение принципиально отличается от приведенных выше литературных результатов. Различие связано с тем, что мы исследовали эффект разогрева пучков углеродных нанотрубок в режиме проводимости жидкости Лат-

тинжера, а не разогрев нанотрубок с проводимостью ферми-жидкости.

#### 4. Выводы

Приведены результаты измерений проводимости структур из пучков углеродных нанотрубок в температурном интервале 4,2–330 К. В интервале температур 25–330 К проводимость изменяется по степенному закону  $G \propto T^\alpha$  с показателем степени  $\alpha = 0,45$ . С использованием коротких электрических импульсов длительностью 10 нс исследованы вольт-амперные характеристики в интервале напряжений 0,5–50 В, в котором при низких температурах наблюдалось асимптотическое поведение  $J \propto V^{1+\alpha}$ .

Все вольт-амперные характеристики, измеренные в интервале 4,2–200 К и построенные в универсальных координатах  $J/T^\alpha$  в зависимости от  $eV_s/k_B T$ , сводятся к единой кривой. Масштабирование наблюдается в широком интервале значений энергетической переменной  $eV_s/k_B T$  от  $10^{-2}$  до  $10^2$  и до температур 200 К.

Полученный результат показывает, что механизм прохождения тока в сетке пучков углеродных нанотрубок соответствует модели жидкости Латтинжера, в которой перенос заряда осуществляется волнами зарядовой плотности.

В температурном интервале 4,2–25 К в этих структурах наблюдалась прыжковая проводимость с переменной длиной прыжка.

Обнаружено сильное различие в поведении ВАХ, а также дифференциальных проводимостей, измеренных при 4,2 К в режимах измерений с использованием постоянного напряжения и коротких электрических импульсов. Наблюдаемое различие связывается с увеличением проводимости жидкости Латтинжера при разогреве пучков углеродных нанотрубок постоянным током. На основании предложенного в работе метода определения температуры пучков установлены зависимости этой температуры от рассеиваемой электрической мощности  $W$  и приложенного напряжения  $V$ , которые носят степенной характер:  $T \propto W^s$  и  $T \propto V^p$ . Обсуждаются возможные процессы, влияющие на изменение показателей степени  $p$  и  $s$  при температуре разогрева выше 200 К.

1. S. Iijima, *Nature* **354**, 56 (1991).
2. J.W.G. Wildöer, L.C. Venema, A.G. Rinzler, R.E. Smalley, and C. Dekker, *Nature* **391**, 59 (1998).
3. S. Ilani, L.A.K. Donev, M. Kindermann, and P.L. McEuen, *Nature Phys.* **2**, 687 (2006).
4. H. Castro Neto, F. Guinea, N.M.R. Peres, K.S. Novoselov, and A.K. Geim, *Rev. Mod. Phys.* **81**, 109 (2009).
5. S. Tomonaga, *Prog. Theor. Phys.* **5**, 544 (1950).
6. J.M. Luttinger, *J. Math. Phys.* **4**, 1154 (1963).
7. F.D.M. Haldane, *J. Phys.* **C14**, 2585 (1981).
8. J. Voit, *Rep. Prog. Phys.* **57**, 977 (1994).

9. C. Kane, L. Balents, and M. P.A. Fisher, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 5086 (1997).
10. M. Bockrath, D.H. Cobden, J. Lu, A.G. Rinzler, R.E. Smalley, T. Balents, and P.L. McEuen, *Nature* **397**, 598 (1999).
11. B.A. Danilchenko, L.I. Shpinar, N.A. Tripachko, E.A. Voitsihovska, S.E. Zelensky, and B. Sundqvist, *Appl. Phys. Lett.* **97**, 072106 (2010).
12. B. Gao, A. Komnik, R. Egger, D.C. Glatthli, and A. Bachtold, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 216804 (2004).
13. M. Lazzeri, S. Piscanec, F. Mauri, A.C. Ferrari, and J. Robertson, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 236802 (2005).
14. Ali Javey, Jing Guo, Magnus Paulsson, Qian Wang, David Mann, Mark Lundstrom, and Hongjie Dai, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 106804 (2004).
15. E. Pop, D. Mann, J. Cao, Q. Wang, K. Goodson, and H.J. Dai, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 155505 (2005).
16. N. Bendiab, R. Almairac, J.L. Sauvajol, S. Rols, and E. Elkaim, *J. Appl. Phys.* **93**, 1769 (2003).
17. H. Kuzmany, W. Plank, M. Hulman, Ch. Kramberger, A. Grüneis, Th. Pichler, H. Peterlik, H. Kataura, and Y. Achiba, *Eur. Phys. J.* **B22**, 307 (2001).
18. A. Kukovecz, Ch. Kramberger, V. Georgakilas, M. Prato, and H. Kuzmany, *Eur. Phys. J.* **B28**, 223 (2002).
19. A.M. Rao, J. Chen, E. Richter, P.C. Eklund, R.C. Haddon, U.D. Venkateswaran, Y.K. Kwon, and D. Tomanek, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 3895 (2001).
20. Z. Yu and L.E. Brus, *J. Phys. Chem.* **B105**, 1123 (2001).
21. S. Bandow, S. Asaka, S. Saito, A.M. Rao, L. Grigorian, J. Richter, and E. Eklund, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 3779 (1998).
22. H. Rauf, T. Pichler, M. Knupfer, J. Fink, and H. Kataura, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 096805 (2004).
23. C. Mora, R. Egger, and A. Alland, *Semicond. Sci. Technol.* **21**, S46 (2006).
24. S. Biermann, A. Georges, A. Lichtenstein, and T. Giamarchi, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 276405 (2001).
25. A.A. Maarouf, C.L. Kane, and E.J. Mele, *Phys. Rev.* **B61**, 11156 (2000).
26. L. Balents, *cond-mat/9906032V* (1999).
27. L. Venkataraman, Yeon Suk Hong, and P. Kim, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 076601 (2006).
28. Michele Lazzeri and Francesco Mauri, *Phys. Rev.* **B73**, 165419 (2006).
29. Marcelo A. Kuroda, and Jean-Pierre Leburton, *Phys. Rev.* **B80**, 165417 (2009).

#### Self-heating of metal carbon nanotube bundles in the regime of Luttinger liquid conductivity

B.A. Danilchenko, N.A. Tripachko, E.A. Voysihovska, I.A. Obukhov, I.I. Yaskovets, and B. Sundqvist

The conductivity of metal single-wall carbon nanotube bundles was investigated in the temperature range 4.2–330 K and electric fields up to 50 V. Short electrical pulses of 10 ns duration, allowed us to exclude

the effect of heating on the current-voltage characteristics. The temperature dependence of conductivity is shown to be given by the power function  $G \propto T^{0.45}$ . At helium temperatures the asymptotic dependence of current on voltage is close to  $J \propto V^{1+\alpha}$  at  $\alpha = 0.45$ . Comparison between the measured and the calculated data demonstrates that our results is well described in the framework of the Luttinger liquid conductivity. The self-heating of the carbon nanotube bundles was observed in the DC regime of measurements. A method for determine a temperature of the self-heating of nanotube bundles as a function of applied electric field was proposed. Above some threshold value of voltage

a power low dependence of self-heating temperature on voltage  $T \propto V^p$  was observed with the exponent  $p = 2.1$  in the range 4.2–200 K and  $p = 1.35$  above 200 K.

PACS: 71.10.Pm Fermions in reduced dimensions;  
**73.53.-b** Electronic transport in nanoscale materials and structures;  
81.07.De Nanotubes.

Keywords: carbon nanotubes, conductivity, Luttinger liquid, nanotube temperature.