

有限长双壁碳纳米管的电子输运性质

陈将伟^{1,2)} 杨林峰^{1,3)}

¹⁾ 南京大学物理系, 南京 210093)

²⁾ 南京炮兵学院, 南京 211132)

³⁾ 中原工学院, 郑州 450007)

(2004 年 5 月 17 日收到, 2004 年 9 月 26 日收到修改稿)

基于 Landauer 公式, 研究了有限长的非公度和公度双壁碳纳米管的电子输运性质. 结果表明, 双壁管的几何结构对其电子输运性质有显著的影响. 非公度的双壁碳管的电导随能量的不同, 既可以是弹道型的, 也可以是非弹道型的; 由 armchair 管组成的公度的双壁碳管的电导随能量变化呈现快速的电导振荡, 并且此快速振荡叠加在背景慢振荡上, 而 zigzag 管组成的公度双壁管的电导随能量变化只有快速振荡、没有规则的慢振荡背景.

关键词: 碳纳米管, 电子输运性质

PACC: 6148

1. 引言

电子器件小型化趋势为纳米科技的发展提供了强劲的动力. 碳纳米管由于其完美的、纳米尺寸的几何结构和丰富的电子性质, 成为制备纳米电子器件的理想材料^[1-19]. 单壁碳纳米管的电子输运表现与几何结构密切相关的量子干涉输运特征^[3-6]. 更进一步地, 多壁碳纳米管和碳纳米管束等可以看作是由单壁碳纳米管组合而成, 这些组合系统显现出了许多独特的物理性质, 其复杂的几何结构导致了电子性质的复杂性^[7-19]. 直到现在, 人们还未能很好地理解这些系统的性质, 甚至还有争议. 一些实验发现多壁碳纳米管的电子输运是扩散型的^[10,11], 而另一些试验则表明其电子输运是弹道型的^[12,13].

研究显示在多壁碳纳米管中电子输运主要由最外层单壁碳纳米管决定^[10-13]. 因此为了简化理论模型, 理论研究通常选取双壁碳纳米管为代表来揭示多壁碳纳米管的电子输运性质. 根据组成双壁碳纳米管的两单壁碳管的轴向周期长度之比是否为有理数, 双壁碳纳米管可分为公度的和非公度的. 许多可能的因素, 如碳纳米管与电极的接触、电子-电子相互作用、结构缺陷和无序^[11-15], 以及管间相互作用^[16,18,19]等都会对多壁碳纳米管的输运性质产生影响. 在理论研究上 Sanvito 等^[16]研究了公度的多壁碳纳米管的电子输运性质, 发现管间相互作用可阻塞

部分量子通道. 对非公度纳米碳管, Roche 等人^[18]基于波函数的传输性质指出其电子输运性质将是非弹道型的. 近来, Ahn 等^[19]分析了非公度碳纳米管的能级分布特征, 发现在电中性管的费米面附近, 电导是量子化的, 如把费米面移到高能量区域, 电子输运将符合弱局域化理论. 然而, 为了更好地理解多壁碳纳米管的电子输运性质, 直接计算它们的电导仍然是必要的, 因为电导涉及到哈密顿中非对角项的影响, 因而对波函数的大小和相位变化都很敏感^[20]; 另外, 在电子局域化的标度理论中, 电导还是唯一的参量^[21].

2. 模型和计算方法

我们知道实验测量的都是有限长的碳管, 因此我们在实空间计算有限长的、同时也是足够长的双壁碳管的电导. 另外, 实验中电极主要与最外层碳管接触^[10]. 为了简化, 计算中采用的系统的模型如图 1 所示. 左、右两电极均为与最外层碳纳米管同种类型的半无限长碳纳米管. 该模型相当于在理想的、无限长的纳米碳管内加上有限长的碳纳米管, 计算结果与单独的、无限长的外层碳纳米管的电导的差异, 直接反映了两管间的相互作用对系统的电导的影响, 而无需考虑由于电极的长度带来的影响.

我们采用的紧束缚哈密顿量已经成功地被用来描述多壁碳纳米管的电子结构和电子输运性

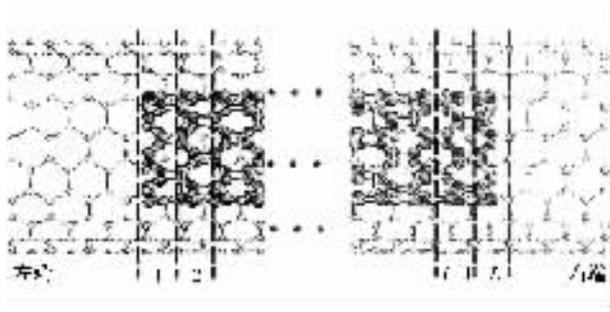


图1 计算中采用的模型, 1, 2, ..., L 用来标记外层碳纳米管的轴向周期数, 相应地也给出了所计算的双壁管的长度

质^[18,19]. 在这个模型中, 考虑每个碳原子的 π 轨道, 管内最近邻原子间的跃迁系数为常数, 最近邻的层间相互作用也被计及. 哈密顿量写为

$$H = \gamma_0 \sum_{ijn} (c_{in}^+ c_{jn} + \text{H.c.}) - \beta \sum_{ijnm} (\cos(\theta_{ij}) e^{i(a-d_{ij})\delta}) c_{in}^+ c_{jm} + \text{H.c.},$$

其中 c_{in}^+ (c_{in}) 为电子的产生(湮没)算符, γ_0 是管内最近邻原子间的跃迁系数, β 是管间相互作用强度, 其切断距离为 0.39nm, θ_{ij} 是相邻管上两个 π 电子间的夹角. 具体的值为 $\gamma_0 = -2.9\text{eV}$, $\beta = \gamma_0/8$, $a = 0.334\text{nm}$ 和 $\delta = 0.045\text{nm}$. 计算表明, 切断距离对计算结果影响甚微, 增大 β 会使得反共振(见图 2)处电导下降区域的能量范围变宽, 但不影响系统电导的主要特征.

我们采用 Landauer 公式来求双壁碳纳米管的电导^[22]

$$C = \frac{J}{V} = \frac{2e^2}{h} \text{tr} [G^a \Gamma^R G^r \Gamma^L] = \frac{2e^2}{h} T,$$

其中

$$\Gamma_{n,m}^{(R)} = iV_{n, \mu(R)} ([g_{\mu(R)}^r]_0 - [g_{\mu(R)}^a]_0) V_{\mu(R), m},$$

$$G_{n,m}^{(a)} = (\omega \pm i\eta - H_C - \sum_{ia, ja \in L, R} V_{n, ia} [g_{ia}^{(a)}]_0 V_{ja, m})^{-1},$$

$[g_{\mu(R)}]_0$ 为与中间样品近邻的、作为电极的半无限长碳纳米管的格林函数, 用 Lopez-Sancho 等人^[23]发展的方法来求得.

3. 计算结果和讨论

首先讨论有限的非公度双壁碳纳米管的电子输运性质. 我们计算了 $(9,0)@(10,10)$, $(8,1)@(10,10)$, $(8,2)@(10,10)$, $(7,3)@(10,10)$, $(6,4)@(10,10)$ 和 $(5,5)@(18,0)$ 双壁碳纳米管的电导, 发现它们有类似的电子输运性质. 因此下面将以 $(9,0)$

$@(10,10)$ 管为例来研究非公度碳纳米管的电子输运性质.

不同长度的非公度的 $(9,0)@(10,10)$ 管的计算结果如图 2 所示. 显然, 系统的电导在不同的能量区域表现出不同的特征. 在 -0.9eV 至 0.9eV 的能量范围(即 $(10,10)$ 管的两个第一 van Hove 奇点之间)除了极少数点外, 双壁碳纳米管 $(9,0)@(10,10)$ 的电导和单壁的 $(10,10)$ 管的电导相同, 然而在其他能量范围, 此系统的电导小于 $(10,10)$ 管的电导且剧烈地振荡.

这种能量依赖关系可归因子在电中性碳纳米管的费米面附近, 反向散射是禁成的^[24]. 因此在 $(9,0)@(10,10)$ 管中, 虽然电子受到内管的散射, 但费密面附近的能量范围内其电导仍几乎与单根单壁 $(10,10)$ 管的电导一样. 然而在其他能量范围, 非公度导致的非周期散射在决定系统的电导方面起到了非常重要的作用, 导致电导减小并且随能量变化尖锐地振荡, 这与准晶体系的电导相似^[20]. 有趣的是在电中性费米面处 (0.0eV) 系统的电导为 0, 这是由于系统的有限尺寸使得在费密面附近系统的界面的局域电子态密度为 0^[19], 这可从图 2(a) 插图的上半部分清楚地看出. 显然我们的计算结果与文献 [19] 的结果是相符的.

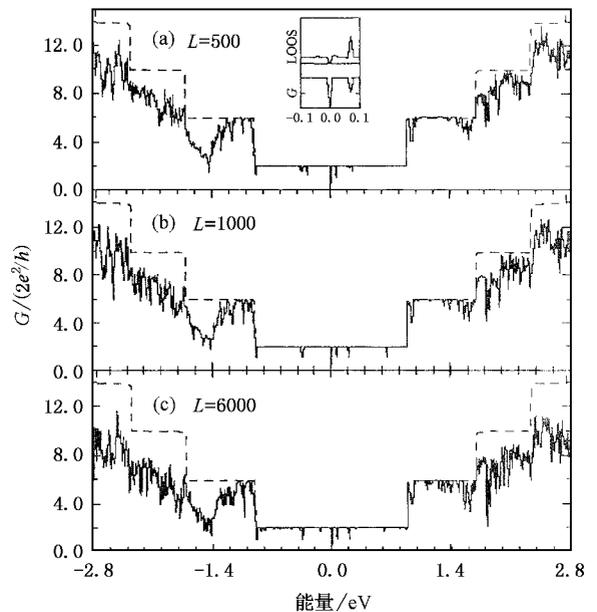


图2 不同长度的 $(9,0)@(10,10)$ 管的电导 (a) $L=500$ 对应长度为 $0.123\mu\text{m}$, 插图上半部分为双壁管边界处的局域态密度, 下半部分为放大的从 -0.1eV 到 0.1eV 的电导-能量曲线 (b) $L=1000$ 对应长度为 $0.246\mu\text{m}$, (c) $L=6000$ 对应长度为 $1.476\mu\text{m}$

我们的研究表明电导与系统长度有明显的依赖关系.从图 2(c) 我们发现在 -0.9eV 到 0.9eV 的能量区域,除了极少数点外电导都为 $2G_0$.这清楚地表明,即使管长达到 $1.4\mu\text{m}$,在这个能量范围电子输运还是弹道型的;另一方面,在该能量范围,图 2(a), (b) 和 (c) 中显示的极少数的值为 $1G_0$ 的电导是由于管间耦合而在对应的能量处形成的准束缚态引起的^[25,26].这可从图 2(a) 的插图看出:在 0.09eV 附近电导为 $1G_0$,在该能量位置存在相应的(准)束缚态.我们的计算表明内管为半导体型的非公度双壁管如 $(8,1)@(10,10)$, $(7,3)@(10,10)$ 和 $(6,4)@(10,10)$ 也有这种(准)束缚态和对应的电导下降.

进一步地,我们研究在这个能量区域的、更长的非公度双壁管的电子输运性质.长度分别为 $2.36\mu\text{m}$, $23.6\mu\text{m}$ 和 $36.9\mu\text{m}$ 的 $(9,0)@(10,10)$ 管的电导的计算结果如图 3 所示.

可以清楚地看到当碳管的长度为 $23.6\mu\text{m}$ 时,在 -0.9eV 到 0.9eV 的能量范围,更多能量处的电导趋于 $1G_0$,同时也有少数地方电导变得比 $1G_0$ 还小.当管长为 $36.9\mu\text{m}$ 时,在一些能量处,特别是从 0.6eV 到 0.9eV ,电导趋于 0.但在其他能量处电子输运仍然是弹道型的.

最近, Urbina 等^[13] 测量发现当多壁管的长度约为 $1.4\mu\text{m}$ 时,电导为 $2G_0$.同时也发现一些测量值明显地偏离 $2G_0$,并且当碳管长度变长时此现象更为显著,这些偏离不能仅仅归因于噪声的影响;另一方

面, Frank 等^[12] 发现多壁碳纳米管的电导为 $1G_0$,他们测量的多壁管是镶嵌在长约为 1mm 的碳纳米管纤维中的.显然我们的计算结果给上述两个实验提供了可能的理论解释.

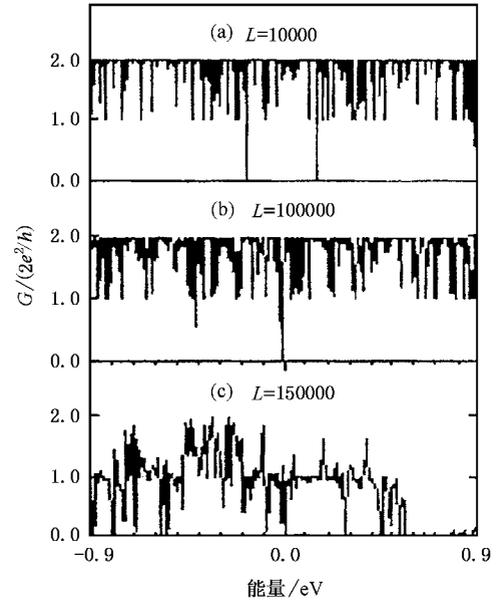


图 3 更长的 $(9,0)@(10,10)$ 管的电导 (a) $L=10000$, 对应长度为 $2.46\mu\text{m}$ (b) $L=100000$, 对应长度为 $24.6\mu\text{m}$ (c) $L=150000$, 对应长度为 $36.9\mu\text{m}$

现在来看看其他能量区域的电导与管的长度的关系.比较图 2(a) (b) 和 (c), 我们看到在 -0.9eV 至 0.9eV 的能量范围之外,电导是非量子化的,并且

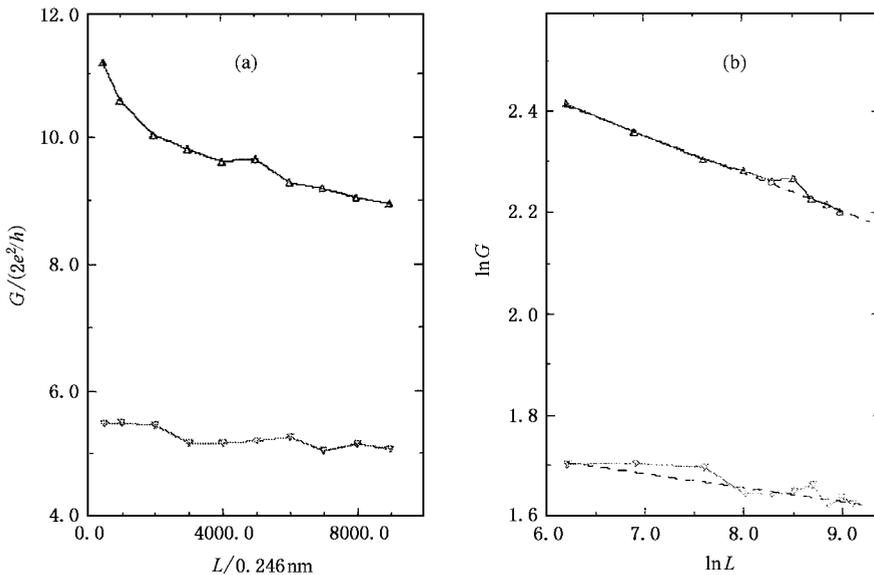


图 4 不同能量位置 (a) 电导的长度依赖关系和 (b) 它们的对数关系 (\triangle 为对应能量为从 -2.75eV 到 -2.65eV ; ∇ 为对应的能量区域为从 -1.65eV 到 -1.55eV). (b) 中虚线为拟合关系式 $g(L) \sim aL^{-b}$

随长度的增加而趋于单调地下降. 因此可以预期在这些能量区域电子是局域化的, 电子输运变为非弹道型的. 进一步地, 我们求得了不同能量位置电导的长度依赖关系和它们的对数关系(为避免电导的强烈振荡, 我们取了很小能量范围内的电导的平均值作为研究对象)如图 4 所示, 可见随长度增加系统的电导以幂率减小, 并且在不同能量区域幂率指数不同.

基于我们的计算, 可以认为在文献 [11] 和 [12] 的电导测量中, 费米面已移到了弹道型运输的能量区域, 因为有许多因素, 如与金属电极接触、门电压等都可改变费密面的位置 [27, 28].

作为对比, 下面研究有限长的公度双壁碳管的电子输运性质. $(5, 5)@(10, 10)$ 管和 $(9, 0)@(18, 0)$ 管的电导如图 5 所示. 显然, 有限长 $(5, 5)@(10, 10)$ 管的电导的显著特征是随能量的变化在慢振荡的背景上呈现快振荡, 并且随长度增加, 快、慢振荡的周期都变小. 其中, 快振荡的周期与双壁管的长度之间的关系符合 $\Delta E = \frac{hV_F}{2L} \approx \frac{1.68\text{eV} \cdot \text{nm}}{L}$, 其中 $V_F \approx 8 \times 10^5 \text{m/s}$ 为费米速度, L 为纳米碳管的长度. 因此, 快振荡可归因于有限长纳米碳管的硬箱式边界条件导致的能级分裂, 以及由此引起的电子的共振投射 [4-6]. 但慢振荡的起因尚不清楚.

类似的, 实验还发现了单壁碳纳米管的电导随门电压的变化呈现快、慢振荡特征 [4]. 理论研究表明, 考虑接触电阻的影响, 快振荡可归因于碳纳米管在费米面附近的能量色散关系的线性项, 而慢振荡则与能量色散关系的非线性项相关 [5, 6]. 同时, 文献 [5, 6] 指出, 快、慢振荡与管的类型有关, zigzag 管的电导没有慢振荡. 我们的计算表明, 由 zigzag 管组成的公度双壁管的电导随能量变化也没有规则的慢振

荡. 因此, 基于文献 [5, 6] 可能给出公度双壁管的电导特征的合理解释.

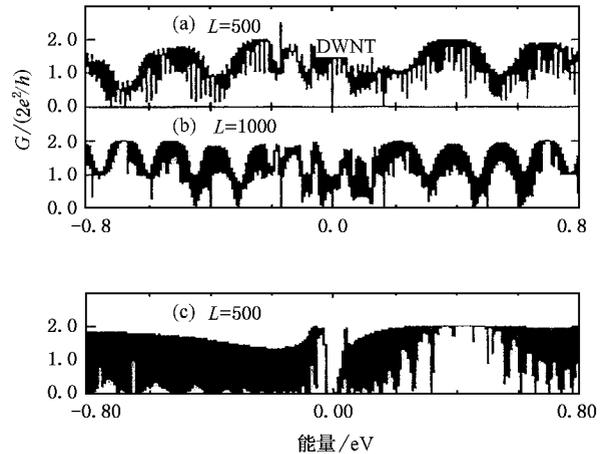


图 5 $(5, 5)@(10, 10)$ 管和 $(9, 0)@(18, 0)$ 管的电导

4. 结 论

总之, 基于 Landauer 方程直接的电导计算表明, 双壁管的几何结构对其电子输运性质产生显著的影响. 非公度双壁碳管的电导随能量的不同, 既可以是弹道型的, 也可以是非弹道型的; 且弹道型运输与长度有明显的依赖关系, 具有 $10 \mu\text{m}$ 量级长度的非公度管在低能量区域电导仍是量子化的, 其值可由 $2G_0$ 跃变为 $1G_0$. 这与现有的实验结果是相符的. 由 armchair 管组成的公度双壁碳管的电导随能量变化呈现快、慢振荡, 而 zigzag 管组成的公度双壁管的电导随能量变化没有规则的慢振荡. 必须指出的是由于多种因素如杂质、电子-电子相互作用等都可能对多壁碳纳米管的电子输运性质产生影响, 因此, 进一步的实验和理论研究仍然是十分需要的.

[1] Liu H and Chen J W 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 664 (in Chinese) [刘红、陈将伟 2003 物理学报 **52** 664]

[2] Sun J P and Wang T H 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 664 (in Chinese) [孙劲鹏、王太宏 2002 物理学报 **51** 2096]

[3] Wildoer J W G, Venema L C, Rinzler A G, Smalley R E and Dekker C 1998 *Nature* (London) **391** 59

Odom T W, Huang J L, Kim P and Lieber C M 1998 *Nature* (London) **391** 62

[4] Kong J, Yenilmez E, Tomblere T W, Kim W and Dai H 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 106801

[5] Jiang J, Dong J and Xing D Y 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 056802

[6] Yang L F, Chen J W, Yang H T and Dong J M 2004 *Phys. Rev. B* **69** 153407

[7] Delaney P, Choi H J, Ihm J, Louie S G and Cohen M L 1998 *Nature* (London) **391** 466

Delaney P et al 1999 *Phys. Rev. B* **60** 7899

Kwon Y K et al 1998 *Phys. Rev. B* **58** 13314

[8] Ouyang M, Huang J L, Cheung C L and Lieber C M 2001 *Science* **292** 702

[9] Kolmogorov A N and Crespi V H 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 4727

- [10] Langer L *et al* 1996 *Phys. Rev. Lett.* **76** 479
- [11] Bachtold A *et al* 1999 *Nature* (London) **397** 673
- [12] Frank S *et al* 1998 *Science* **280** 1744
- [13] Urbina A *et al* 2003 *Phys. Rev. Lett.* **90** 106603
- [14] Maarouf A A , Kane C L and Mele E J 2000 *Phys. Rev. B* **61** 11156
- [15] Klesse R 2002 *Phys. Rev. B* **66** 085409
- [16] Sanvito S , Kwon Y K ,Tomanek D and Lambert C J 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 1974
- [17] Yoon Y G , Delaney P and Louie S G 2002 *Phys. Rev. B* **66** 073407
- [18] Roche S , Triozon F , Rubio A and Mayou D 2001 *Phys. Rev. B* **64** 121401
- [19] Ahn K H , Kim Y H , Wiersig J and Chang K J 2003 *Phys. Rev. Lett.* **90** 026601
- [20] Tsunetsugu H ,Fujiwara T ,Ueda K and Tokihiro T 1991 *Phys. Rev. B* **43** 8879
- [21] Abrahams E ,Anderson P W ,Licciardello D C and Ramakrishnan T V 1979 *Phys. Rev. Lett.* **42** 673
- [22] Nardelli M B 1999 *Phys. Rev. B* **60** 7828
- [23] Lopez Sancho M P ,Lopez Sancho J M and Rubio J 1984 *J. Phys. F.* **14** 1205
- [24] Ando T ,Nakanishi T and Saito R 1998 *J. Phys. Soc. Jpn.* **67** 2857
- [25] Shao Z A ,Porod W and Lent C S 1994 *Phys. Rev. B* **49** 7453
- [26] Sim H S ,Park C J and Chang K J 2001 *Phys. Rev. B* **63** 073402
- [27] Xue Y and Datta S 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 4884
- [28] Kociak M ,Suenaga K ,Hirahara K ,Saito Y ,Nakahira T and Iijima S 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 155501

Electron transport properties of the finite double-walled carbon nanotubes

Chen Jiang-Wei^{1,2)} Yang Lin-Feng^{1,3)}

¹⁾*Department of Physics ,Nanjing University ,Nanjing 210093 ,China)*

²⁾*Nanjing Artillery Academy ,Nanjing 211132 ,China)*

³⁾*Zhongyuan Institute of Technology ,Zhengzhou 450007 ,China)*

(Received 17 May 2004 ; revised manuscript received 26 September 2004)

Abstract

Based upon the Landauer formula ,we have studied electron transport properties of finite incommensurate and commensurate double-walled carbon nanotubes(DWNTs). The results obtained show that the geometrical structures of the tube may produce significant effects on their electron transport properties .Electron transport of the incommensurate DWNTs may be either ballistic or non-ballistic ,depending on the energy region. The commensurate DWNTs formed by the armchair tubes may display quick and slow oscillation ,however ,those formed by the zigzag tubes have no regular slow oscillation .

Keywords : nanotubes , electron transport properties

PACC : 6148