

# 公度双壁碳纳米管层间耦合对其场发射特性 影响的研究<sup>\*</sup>

刘兴辉<sup>1,2)†</sup> 朱长纯<sup>2)</sup> 曾凡光<sup>2)</sup> 贺永宁<sup>2)</sup> 保文星<sup>2)</sup>

1) 辽宁大学物理系, 沈阳 110036)

2) 西安交通大学电子与信息工程学院, 西安 710049)

(2005 年 9 月 18 日收到, 2005 年 11 月 7 日收到修改稿)

采用紧束缚能带理论, 利用所提出的考虑卷曲效应的紧束缚能量哈密顿量, 建立了公度双壁碳纳米管(DWNT)的能带结构模型. 基于碳纳米管(CNT)发射电流与其能带结构的相关性, 定量分析了公度 DWNT 的层间耦合作用对其场发射电流的影响. 结果表明, 在层间耦合作用下, DWNT 的带结构中部分简并能级发生劈裂, 同时使禁带宽度发生改变. 前一个因素增加了电子发射的通道, 后一个因素改变价带中参与发射的电子数量, 导致在一定外电场下, DWNT 与其外层的 SWNT 相比, 场发射电流有一定程度的增加, 且半导体性管发射电流增幅比金属性管大. 在 5V/ $\mu\text{m}$  电场下, 扶手椅型(6,6)和(12,12)锯齿型(10,0)和(20,0)手性管(8,2)和(16,4)发射电流增幅分别为 3%, 10%, 4% 左右. 本研究揭示了层间耦合在 DWNT 的电子输运与发射过程中所起的作用, 对认识和理解 DWNT 乃至 MWNT 的场发射机理有较大的帮助.

关键词: 公度双壁碳纳米管, 能带结构, 层间耦合作用, 卷曲效应

PACC: 6148

## 1. 引言

碳纳米管(CNT)作为准一维纳米材料, 自被发现以来, 以其独特的几何结构, 优异的物理、化学性质掀起了全世界范围的研究热潮<sup>[1,2]</sup>. 尤其, 因具有较大的长径比、纳米级的尖端曲率半径, 较好的热力学稳定性及较高的机械强度, CNT 表现出理想场发射电子源的特点<sup>[3]</sup>, 成为倍受青睐的场发射阴极材料.

在 CNT 场发射实验中, 经常观察到基于 Fowler-Nordheim 发射模型所不能解释的现象, 例如, 非线性 F-N 特征图<sup>[4]</sup>, 多峰电子发射谱<sup>[5]</sup>等. 这些独特的现象反映出 CNT 具有与通常的金属发射体不同的场发射特性, 需要人们从另外的角度<sup>[6-9]</sup>进行分析与解释. 然而, 到目前为止, 研究都是针对单壁碳纳米管(single-walled carbon nanotube, SWNT)的, 关于多壁碳纳米管(multi-walled carbon nanotube, MWNT)场

发射机理的研究几乎处于空白状态. 与 SWNT 相比, MWNT 可看成是由几层 SWNT 同轴套构而成, 它的一个显著特点是相邻层间存在着耦合作用(inter-wall coupling interaction, ICI), 导致能带结构复杂, 从而影响对其电子发射规律的认识. MWNT 相邻层的手性缺少必然的关联<sup>[10]</sup>, 使存在于 SWNT 中的平移对称性和旋转对称性遭到破坏, 导致内外层晶格失配. 这种结构的复杂性极大地限制了人们对其场发射机理的深入研究, 因而导致认识上出现一些分歧, 有研究者简单地认为电子只在 MWNT 的最外层传输, 因而认为可用 SWNT 场模型来描述<sup>[6]</sup>; 但也有报道, MWNT 中电子输运存在多层传输<sup>[11]</sup>.

为研究 MWNT 层间耦合作用对其场发射特性的影响, 揭示 MWNT 中电子输运与发射的本质, 本文以双壁碳纳米管(double-walled carbon nanotube, DWNT)为研究对象, 从紧束缚能带理论的角度做了尝试. DWNT 是最简单的 MWNT, 它既可体现出 MWNT 的层间耦合的特点, 又可使模型简化, 具有可

<sup>\*</sup> 国家自然科学基金重点项目(批准号: 60036010)和教育部博士点基金(批准号: 2000069823)资助的课题.

<sup>†</sup> E-mail: liuxinghuijtu@sohu.com

操作性. 根据组成的两层 SWNT 的轴向周期长度之比是否为有理数, DWNT 可分为可公度的和不可公度的. 本文采用紧束缚理论, 提出了含有卷曲效应的紧束缚能量哈密顿量, 依此对可公度的 DWNT 的电子结构进行了研究; 在此基础上, 基于 CNT 场发射电流与其能带结构的相关性, 定量计算了公度 DWNT 的场发射电流, 并同其外层管的场发射电流进行了比较, 以发射电流的差值揭示 ICI 对 DWNT 场致电子发射的影响程度. 所提出的模型和研究方法对理解 DWNT 以至 MWNT 的场致发射机理提供了一种可行的手段.

## 2. 模型和计算方法

### 2.1. 场致发射模型

计算单根 DWNT 的  $I$ - $V$  特性, 通常是将其竖直放置在匀强宏观电场中, CNT 与阴极板良好接触, 阴阳极板间所加电压为  $V$ , DWNT 的长度为  $h$ , 半径  $r$  取为外层管的半径. 在外电场下, CNT 的电子发射过程可概括成两部分: 电子从阴极电极向管的尖端输运过程及管尖端附近的电子隧穿进入真空的过程. 其场发射公式可表示成<sup>[6,7,12]</sup>:

$$I = \frac{e}{\pi \hbar} \int_{\text{FBZ}} \mathcal{J}(E(k)) \frac{\partial E(k)}{\partial k} D(E(k), F) dk, \quad (\partial E(k) / \partial k > 0) \quad (1)$$

其中 FBZ 表示第一布里渊区;  $e$  为电子电量;  $\mathcal{J}(\epsilon)$  为费米统计分布函数;  $E(k)$  为 CNT 的一维色散关系;  $k$  为沿 CNT 轴向的波矢;  $\frac{1}{\hbar} \frac{\partial E(k)}{\partial k}$  为电子沿管轴方向逆着电场运动的群速度;  $D(E(k), F)$  为透射系数, 它与能带结构、真空势垒的形状及管尖端的局域电场  $F$  有关. 方程(1)给出了 CNT 场发射电流与其能带结构的相关性.

### 2.2. 可公度型 DWNT 的能带结构

我们采用紧束缚方法研究公度 DWNT 的能带结构. 紧束缚方法计算固体的能带结构比较直观, 计算的工作量比赝势方法小, 通过求解久期方程即可得到能量本征值, 同时它又不像有效质量近似只能计算导带底或价带顶附近的电子态, 而是能够计算在整个布里渊区内的色散关系. 对于描述 CNT 因区域折叠所导致的量子化能级, 紧束缚方法有其优越性. 简单而不失普遍性. 本研究选取外管和内管的轴

向周期长度比为 2 的 DWNT 作为研究对象, 对于周期长度比大于 2 的情况, 可作类似处理. 为明确给出公度比为 2 的 DWNT 的内外层原子之间的相对位置关系, 图 1 给出了其几何结构示意图(清楚起见, 未给出管帽部分), 其中图 1(a)为侧视图, 图 1(b)为俯视图.

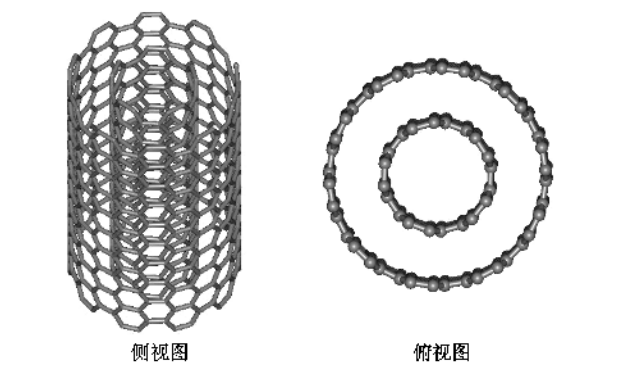


图1 公度 DWNT 的几何结构示意图 (a)侧视图 (b)俯视图

基于  $\text{pp}\pi$  近似的紧束缚能量哈密顿量可表示为

$$H = \gamma \sum_{ij} (c_{il}^{\dagger} c_{jl} + \text{h.c.}) - \beta \sum_{i'j' l \neq l'} (c_{i'l}^{\dagger} c_{j'l'} + \text{h.c.}), \quad (2)$$

其中  $c^{\dagger}$  和  $c$  分别为产生和湮没算符,  $\gamma$  为单层石墨平面内成键碳原子间波函数的交叠积分,  $\beta$  为层间耦合作用能量,  $i, j$  分别表示同一层内互为最近邻的碳原子,  $i', j'$  表示位于不同碳层的互为最近邻的碳原子,  $l, l' = 1, 2$  分别对应于内层管和外层管.

利用  $\text{pp}\pi$  紧束缚近似研究较大半径 CNT 能带的结果很准确<sup>[13]</sup>, 但对半径小于 1nm 的 SWNT 能带计算的结果与更精确的第一性原理的计算方法相比有一定的误差, 导致针对同一拓扑结构的碳管会得出不同的导电类型<sup>[14,15]</sup>, 这是由于碳平面的卷曲导致碳-碳键长和键角发生改变,  $\gamma$  不再满足各向同性所致. 对于 DWNT 来讲, 其内、外层因卷曲的曲率半径不同,  $\gamma$  也会有所区别. 鉴于此, 为改善紧束缚能带计算的准确性, 应在哈密顿量中引入卷曲效应. 为此, 方程(2)中  $\gamma$  应写成  $\gamma_{ij}^{(l)} = \gamma \cos \alpha_{ij}^{(l)}$ , 并需要移入方程(2)的求和号内, 形成新的紧束缚哈密顿量.  $\alpha_{ij}^{(l)}$  为卷曲后内、外层碳-碳键与卷曲前石墨平面的夹角<sup>[15,16]</sup>, 即

$$\alpha_{ij}^{(l)} = 0.5 K^{(l)} r_{ij}^{(l)} \quad (l = 1, 2) \quad (3)$$

其中,  $r_{ij}^{(l)} (l = 1, 2)$  为 DWNT 卷曲前石墨层中的一个碳原子与其 3 个最近邻原子间的相对位置矢量, 由于碳六边形网格的特殊对称性,  $r_{ij}^{(l)} (l = 1, 2)$  只存在 3

种不同的取值,分别为:  $\mathbf{R}_1 = \left( \frac{a}{\sqrt{3}}, 0 \right)$ ,  $\mathbf{R}_2 = \left( -\frac{a}{2\sqrt{3}}, \frac{a}{2} \right)$ ,  $\mathbf{R}_3 = \left( -\frac{a}{2\sqrt{3}}, -\frac{a}{2} \right)$ ;  $\mathbf{K}^{(l)}$  是沿 CNT 轴向的倒格子矢量,对于内、外层碳管分别为

$$\mathbf{K}^{(l)} = \frac{2\pi}{a} \frac{1}{N_l d_{Rl}} (\sqrt{3}(n_l + m_l)\mathbf{i} + (n_l - m_l)\mathbf{j}), \quad (l = 1, 2) \quad (4)$$

其中  $a = 0.246 \text{ nm}$ , 为石墨平面的晶格常数;  $N_l = \frac{2L^{(l)}}{a^2 d_{Rl}}$  为第  $l$  层 SWNT 所含的单位原胞数;  $L^{(l)}$  分别为第  $l$  层碳管的周长;  $d_{Rl}$  为  $(2n_l + m_l, 2m_l + n_l)$  的最大公因子. 将含有卷曲效应的能量哈密顿矩阵对角化, 可求得能量久期方程如下:

$$E^4(k) - c_2 E^2(k) - c_1 E(k) + c_0 = 0, \quad (5)$$

其中

$$c_2 = 4\beta^2 + \sum_{l=1}^2 \left( \sum_{i=1}^3 \gamma_i^{(l)^2} \right) + 2\gamma_1^{(l)} \gamma_2^{(l)} \cos(f_2^{(l)}) + 2\gamma_2^{(l)} \gamma_3^{(l)} \cos(f_3^{(l)}) + 2\gamma_3^{(l)} \gamma_1^{(l)} \cos(f_1^{(l)}) \quad (6)$$

$$f_1^{(l)} = \frac{\sqrt{3}a^2}{2L^{(l)}} m_l k + \frac{\pi a^2}{L^{(l)}} (2n_l + m_l) q^{(l)}, \quad (7)$$

$$f_2^{(l)} = -\frac{\sqrt{3}a^2}{2L^{(l)}} n_l k + \frac{\pi a^2}{L^{(l)}} (n_l + 2m_l) q^{(l)}, \quad (8)$$

$$f_3^{(l)} = \frac{\sqrt{3}a^2}{2L^{(l)}} (n_l + m_l) k + \frac{\pi a^2}{L^{(l)}} (n_l - m_l) q^{(l)}, \quad (9)$$

其中  $-\frac{\pi}{T} \leq k \leq \frac{\pi}{T}$  为 CNT 沿管轴方向的波矢,  $T = \sqrt{3}L^{(l)}/d_{Rl}$  为平移矢量  $\mathbf{T}$  的模, 对于公度型 DWNT, 内、外层碳管  $T$  相同. 量子数  $q^{(l)} = 0, 1, \dots, N_l - 1$  分别为内、外层的 SWNT 的能带指数. 方程(5)中的一次项和常数项分别为

$$c_1 = 4\beta^2 \sum_{l=1}^2 \left( \gamma_1^{(l)}, \gamma_2^{(l)}, \gamma_3^{(l)} \right) \begin{pmatrix} 1 + \cos(f_1^{(l)}) + \cos(f_2^{(l)}) \\ 1 + \cos(f_2^{(l)}) + \cos(f_3^{(l)}) \\ 1 + \cos(f_1^{(l)}) + \cos(f_3^{(l)}) \end{pmatrix}, \quad (10)$$

$$c_0 = (ab + a^* b^*) \beta^2 + \sum_{l=1}^2 \left( \left( \sum_{i=1}^3 \gamma_i^{(l)^2} \right) + 2\gamma_1^{(l)} \gamma_2^{(l)} \cos(f_2^{(l)}) + 2\gamma_2^{(l)} \gamma_3^{(l)} \cos(f_3^{(l)}) + 2\gamma_3^{(l)} \gamma_1^{(l)} \cos(f_1^{(l)}) \right), \quad (11)$$

$$a = \left( \gamma_1^{(1)}, \gamma_2^{(1)}, \gamma_3^{(1)} \right) \begin{pmatrix} 1 + \exp(-if_1^{(1)}) + \exp(-if_2^{(1)}) \\ 1 + \exp(if_2^{(1)}) + \exp(-if_3^{(1)}) \\ 1 + \exp(if_1^{(1)}) + \exp(if_3^{(1)}) \end{pmatrix}, \quad (12)$$

$$b = \left( \gamma_1^{(2)}, \gamma_2^{(2)}, \gamma_3^{(2)} \right) \begin{pmatrix} 1 + \exp(if_1^{(2)}) + \exp(if_2^{(2)}) \\ 1 + \exp(-if_2^{(2)}) + \exp(if_3^{(2)}) \\ 1 + \exp(-if_1^{(2)}) + \exp(-if_3^{(2)}) \end{pmatrix}, \quad (13)$$

轴向波矢  $k$  在第一布里渊区内取值, 对所取的每一个  $k$  值, 求解久期方程(5), 解的集合构成公度 DWNT 的色散关系, 它是由一系列的能量子带组成, 子带的数目取决于  $q^{(l)}$  以及层间相互作用的大小. 当不考虑耦合作用时,  $\beta$  为零, 此时对方程(5)求解, 可分别得到内、外两层碳管的能带结构.

### 2.3. 电子隧穿及透射系数

根据场发射隧穿理论, 发射体尖端的电子透射系数决定于尖端与真空界面处势垒  $W(x, F)$  的形

状,  $W(x, F)$  除与外电场有关外, 还与发射尖端的形状有关. 本文以末端带有半球形管帽的闭口可公度 DWNT 为研究对象. 此种尖端没有悬挂键, 表面原子不会自扩散. 对于具有半球形管帽的发射尖端, Filip 等采用球形势垒对透射系数进行过数值计算, 并与三角形势垒所确定的透射系数作了对比, 发现即使对于纳米级曲率半径的发射尖端, 只要当阳极电压在 100V 以上时两者透射系数的偏差可以忽略<sup>[6]</sup>, 前提是球形发射体尖端的局域电场应区别于平面模型

的宏观电场. 将 CNT 与真空界面处的势垒取为三角形<sup>[6,7]</sup>, 即

$$W(x, F) = \varphi - eFx, \tag{14}$$

其中  $\varphi$  是 DWNT 的功函数, 则管尖端的电子透射系数可表示为

$$D(E(k), F) = \exp\left[-\frac{4}{3} \frac{\sqrt{2m^*}}{\hbar} \frac{(\varphi - E(k))^{3/2}}{eF}\right],$$
$$\varphi > E(k)$$
$$D(E(k), F) = 1, \quad \varphi < E(k) \tag{15}$$

3. 结果与讨论

3.1. 能带结构分析

计算中取  $\gamma$  值为  $2.7\text{eV}^{[15]}$ ;  $\beta$  随层间距的增加而减小, 对于层间距为  $0.344\text{nm}$  的石墨,  $\beta_G = 0.35\text{eV}$ ; 对于 DWNT 来讲, 其层间距一般在  $0.33\text{--}0.41\text{nm}$  之间<sup>[17]</sup>, 层间相互作用  $\beta_D$  可根据  $\beta_D = d_G\beta_G/d_D$  来求出,  $d_G, d_D$  分别为石墨和 DWNT 的层间距. 本文选取公度双壁扶手椅型  $(6, 6)$  和  $(12, 12)$  锯齿型  $(10, 0)$  和  $(20, 0)$  手性螺旋管  $(8, 2)$  和  $(16, 4)$  作为研究对象, 计算在 PentiumIII800 计算机上进行. 运行总机时为  $13.2\text{h}$ , 其中手性管由于子能级数量多耗费机时最多, 为  $8.3\text{h}$ . 计算所得能带结构分别如图 2—4 所示, 作为对照, 同时给出了忽略层间耦合作用情况下 (即  $\beta = 0$  时) 该 3 种 DWNT 的能带结构 (如图 2(b), 图 3(b), 图 4(b) 所示). 当忽略层间耦合因素时, 对 DWNT  $(n_1, m_1)$  和  $(2n_1, 2m_1)$  的计算表明: 内层的每一个子能级  $m_{in} = p$  ( $p = 0, 1, 2, \dots, N_{in}$

$-1$ ) 都与外层相应的子能级  $m_{out} = 2p$  简并, 此时  $(n_1, m_1)$  和  $(2n_1, 2m_1)$  DWNT 的能带结构与其外层的能带结构相同. 对于  $(6, 6)$  和  $(12, 12)$   $(10, 0)$  和  $(20, 0)$  禁带宽度分别为  $0\text{eV}$  和  $0.512\text{eV}$ , 此两种碳管分别表现为金属性和半导体性; 而手性螺旋 DWNT  $(8, 2)$  和  $(16, 4)$ , 禁带宽度为  $0.0187\text{eV}$ . 有文献指出<sup>[18, 19]</sup> 与  $\text{pp}\pi$  近似的计算结果不同, 考虑卷曲效应的  $(n, m)$  DWNT 除扶手椅型和锯齿型  $(6, 0)$  管为金属性的, 其余  $n-m$  为 3 的整数倍的 CNT 成为禁带宽度为毫电子伏量级的半导体. 本研究结果印证了这个结论, 同时也说明能带模型的正确性.

当考虑层间耦合作用后, 扶手椅型 DWNT  $(6, 6)$  和  $(12, 12)$  的导带和价带在费米能级处不再交叠, 成为禁带宽度为  $0.0286\text{eV}$  的小带隙半导体, 而锯齿型 DWNT 管  $(10, 0)$  和  $(20, 0)$  的禁带宽度由  $0.512\text{eV}$  下降为  $0.446\text{eV}$ ; DWNT  $(8, 2)$  和  $(16, 4)$  的禁带宽度从  $0.0187\text{eV}$  增加为  $0.0198\text{eV}$ , 即层间耦合使金属性管的禁带宽度略微增加, 而使半导体性管的禁带宽度减小 (金属性和半导体性的说法, 来自  $\text{pp}\pi$  近似, 此处是沿用). 层间耦合对 DWNT 能带的另一个显著影响是使原简并的一些能级发生劈裂, 产生很多新的能级, 如图 2—4 (图中纵坐标的  $E$  表示电子能级), 导致系统的电子输运通道增加. 我们也研究了耦合作用对公度的 DWNT 能带结构对称性的影响, 发现在仅考虑层间最近邻原子相互作用的条件下, 公度 DWNT 的能带关于波矢  $k = 0$  对称, 而关于费米能级的对称性却遭到一定程度的破坏, 这体现在导带的极小值与价带极大值的绝对值并不完全相同.

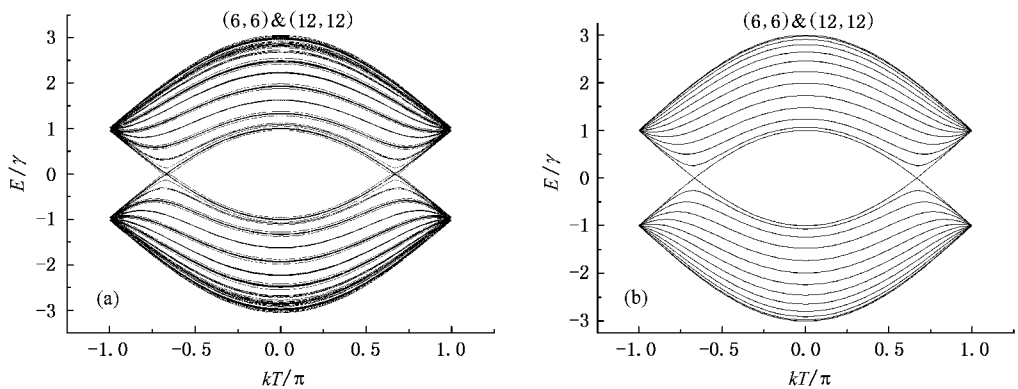


图2 扶手椅型 DWNT  $(6, 6)$  和  $(12, 12)$  的能带结构 (a) 考虑层间耦合 (b) 忽略层间耦合作用

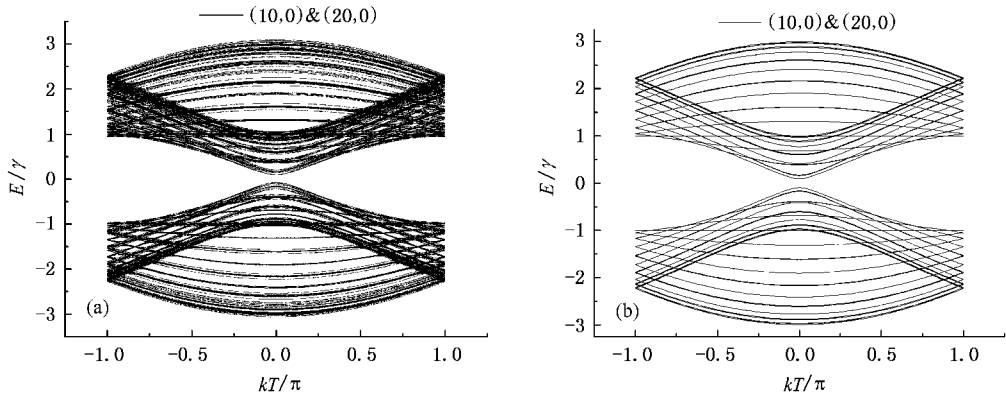


图3 锯齿型 DWNT(10,0)和(20,0)的能带结构 (a)考虑层间耦合 (b)忽略层间耦合作用

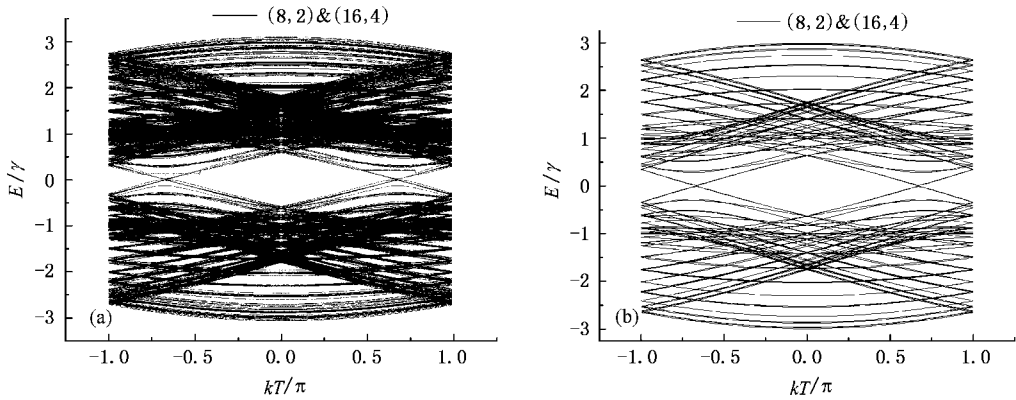


图4 手性螺旋 DWNT(8,2)和(16,4)的能带结构 (a)考虑层间耦合 (b)忽略层间耦合作用

### 3.2. DWNT 场发射特性研究

对于 CNT 的功函数,理论研究<sup>[20]</sup>和实验测量<sup>[21]</sup>的结果有一定的出入,但不是很大. 高瑞平等<sup>[21]</sup>利用原位透射电子显微镜技术对直径在 14—55nm 范围的 MWNT 的测量发现,功函数对直径没有明显的相关性,只与导电性有关,金属性的 CNT 的功函数在 4.6—4.8 eV,半导体管功函数为 5.6eV. Zhao 等<sup>[20]</sup>利用第一原理计算了半径从 0.57—1.63nm 的单根无限长扶手椅( $n, n$ )以及锯齿型( $n, 0$ )( $n = 3l, l$  为整数)CNT 的功函数,发现金属性管的功函数从 4.63—4.77 eV,并随直径的减小而减小,与手性无关,而半导体性 CNT 的功函数比金属性的要高,并随直径的增加而减小. 本文取金属性管的功函数为 4.7eV,半导体管的功函数为 5.0eV,不考虑功函数的直径相关性. 透射系数公式(15)中电场强度  $F$  应计入发射尖端的场致增强因素,场增强因子与发射尖端的表面形状有关,是其长径比的函数<sup>[22-23]</sup>.

在  $5V/\mu\text{m}$ ,  $7.5V/\mu\text{m}$ ,  $10V/\mu\text{m}$  的不同外电场下,公度 DWNT(6,6)和(12,12)(10,0)和(20,0)以及(8,2)和(16,4)的发射电流如表 1 所示,为定量考察层间耦合的影响,表中同时也给出了相应电场下,忽略耦合因素时相应 DWNT 的发射电流. 在  $5V/\mu\text{m}$  时(6,6)和(12,12)管的发射电流为  $7.4532 \times 10^{-6} \mu\text{A}$ ,当忽略掉耦合因素后,发射电流为  $7.2439 \times 10^{-6} \mu\text{A}$ ,即层间耦合对发射电流的贡献在 3%左右;对于(10,0)和(20,0)管,层间耦合的贡献为 10%左右,而对于(8,2)和(16,4)管,层间耦合的因素占 4%左右,说明层间耦合确实对 DWNT 的发射电流产生影响,而层间耦合对半导体性 DWNT 的发射电流的影响要大于对金属性 DWNT 的影响,对于在其他不同电场下的情况也是这样. 电流增加的原因与 DWNT 能带结构的改变有关,层间耦合使简并的某些能级发生劈裂,产生了一些新的能级;另一个因素是耦合改变了 CNT 的禁带宽度,使金属性 CNT 产生一个小的禁带宽度,而使半导体性 CNT 的禁带宽度

减小.在一定外电场下,前一个因素意味着增加了电子发射的通道,其中在费米能级附近的通道,对发射电流有贡献;后一个因素则改变了价带上参与发射的电子数量,总的效果是无论对于金属性还是半导体性 DWNT,发射电流均有不同程度的增加.对于金属性管,禁带宽度增加,会导致价带中提供电子数目略有减少,而半导体性管由于禁带宽度减小,价带中更深能级上的电子能够参与发射,这是导致半导体性管发射电流增幅比金属性管大的原因.从具体数值来看,层间耦合导致发射电流的增幅在总发射电流中占有一定的比例,这一定程度地揭示了 DWNT 中由于内层管的存在,对电子的输运与发射是有一定增强作用的,只是对于半导体性管和金属性管所

起的作用不同,对半导体性管的影响更大一些.

所建模型的正确性可通过实验来验证. Fransen 等人<sup>[5]</sup>在 CNT 的场发射实验中,测得不同的单根 CNT 在场发射能谱中既有单峰出现的,也有多峰出现的.根据我们所建立的模型,利用电子能量分布与发射电流间的关系  $P(E)=dI(E,F)/dE$ ,研究了 (9,0)和(18,0)及(11,2)和(22,4)公度 DWNT 的场发射电子能谱,同样预测到了不同拓扑结构的 DWNT 有单峰的,也有多峰的,如图 5 所示.这恰好能够解释实验上观察到的既有单峰发射也有多峰发射的现象,从而说明 CNT 的场发射确实包含着能带结构信息.反过来,Fransen 等的测试结果也为我们所建模型的合理性提供了实验依据.

外电场/ $V\cdot\mu\text{m}^{-1}$		考虑的因素	发射电流/ $\mu\text{A}$		
			(6,6)和(12,12)	(10,0)和(20,0)	(8,2)和(16,4)
5	忽略层间耦合		$7.2439\times10^{-6}$	$1.0251\times10^{-6}$	$1.4334\times10^{-4}$
	考虑层间耦合		$7.4532\times10^{-6}$	$1.1401\times10^{-6}$	$1.4893\times10^{-4}$
	绝对增加值		$0.2093\times10^{-6}$	$0.1150\times10^{-6}$	$0.0559\times10^{-4}$
	相对增加值		2.8893 %	10.087%	3.8998%
7.5	忽略层间耦合		$7.0558\times10^{-3}$	$2.6538\times10^{-3}$	$7.1314\times10^{-2}$
	考虑层间耦合		$7.2556\times10^{-3}$	$2.8394\times10^{-3}$	$7.2835\times10^{-2}$
	绝对增加值		$0.1998\times10^{-3}$	$0.1856\times10^{-3}$	$0.1521\times10^{-2}$
	相对增加值		2.8317%	6.9937%	2.1328%
10	忽略层间耦合		0.2550	0.1557	1.8483
	考虑层间耦合		0.2619	0.1639	1.8909
	绝对增加值		0.0069	0.0049	0.0426
	相对增加值		2.7059%	5.2665%	2.3048%

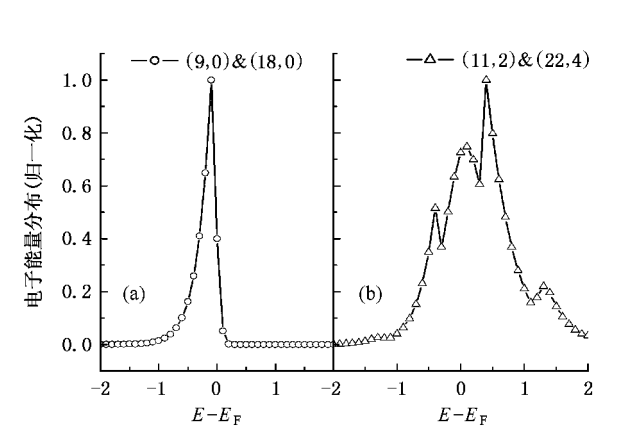


图5 DWNT(9,0)和(18,0)(11,2)和(22,4)的电子发射能谱的计算值 (a)单峰发射 (b)多峰发射

## 4. 结 论

- 1) 基于紧束缚理论,提出一种含卷曲效应的公度 DWNT 的能带结构模型,数值求解表明,层间耦合对能带结构的影响有两方面:一方面体现在使能带中简并的部分能级产生劈裂,产生了一些新的能级;另一方面使金属性 DWNT 的禁带宽度略有增加,使半导体性 DWNT 的禁带宽度减小.
- 2) 层间耦合造成能带结构的改变导致公度 DWNT 场发射电流有一定程度的增加,但对于半导体性管和金属性管增加的程度不同,半导体性管的电流增加要大一些.
- 3) 外电场增加时,层间耦合作用导致电流的增

量略有减小.

本研究揭示了层间耦合在 DWNT 的电子输运

与发射过程中所起的作用 ,对认识和理解 DWNT 乃至 MWNT 的场发射机理有较大的帮助.

[ 1 ] Tang N S , Yan X H , Ding J W 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 333 ( in Chinese ) 唐娜斯、颜晓红、丁建文 2005 物理学报 **54** 333 ]

[ 2 ] Cheng J W , Yang L F 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 2183 ( in Chinese ) [ 陈将伟、杨林峰 2005 物理学报 **54** 2183 ]

[ 3 ] Bonard J M , Dean K A , Coll B F *et al* 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 197602

[ 4 ] Bornard J M , Salvétat J P , Stockli T *et al* 1998 *Appl. Phys. Lett.* **73** 918

[ 5 ] Fransen M. J , Rooy V , Kruit T *et al* 1999 *Appl. Surf. Sci.* **146** 312

[ 6 ] Filip V , Nicolaescu D , Okuyama F. 2001 *J. Vac. Sci. Technol. B* **19** 1016

[ 7 ] Liu X H , Zhu C C , Li Y K 2004 *Physica B* **344** 243

[ 8 ] Han S , Ihm J 2002 *Phys. Rev. B* **66** 241402

[ 9 ] Zheng X , Chen G H , Deng S Z *et al* 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 106803

[ 10 ] Iijima S 1991 *Nature* **354** 56

[ 11 ] Collins P G , Arnold M S , Avouriset P *et al* 2001 *Science* **292** 706

[ 12 ] Obratsov A N , Zakhidov A A 2004 *Diam. Relat. Mater.* **13** 1044

[ 13 ] Wildäöer W G , Venema L C , Rinzler A G 1998 *Nature* **391** 59

[ 14 ] Zhou C W , Kong J , Dai H J 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 5604

[ 15 ] Ouyang M , Huang J L , Cheung CL *et al* 2001 *Science* **292** 702

[ 16 ] Ding J W , Yan X H , Cao J X 2002 *Phys. Rev. B* **66** 073401

[ 17 ] Hutchison J L , Kiselev N A , Krinichnaya E P *et al* 2001 *Carbon* **39** 761

[ 18 ] Saito R , Fujita M , Dresselhaus G *et al* 1992 *Phys. Rev. B* **46** 1804

[ 19 ] Hamada N , Sawada S , Oshiyama A 1992 *Phys. Rev. Lett.* **68** 1579

[ 20 ] Zhao J J , Han J , Lu J P 2002 *Phys. Rev. B* **65** 193401

[ 21 ] Gao R P , Pan Z W , Wang Z L 2001 *Appl. Phys. Lett.* **78** 1757

[ 22 ] Kokkorakis G C , Modinos A , Xanthakis J P 2002 *J. Appl. Phys.* **91** 4580

[ 23 ] Wang X Q , Wang M , Li Z H *et al* 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 1347 ( in Chinese ) 王新庆、王 森、李振华等 2005 物理学报 **54** 1347 ]

# The effect of interwall coupling interaction on the field emission characteristics of commensurate double-walled carbon nanotubes<sup>\*</sup>

Liu Xing-Hui<sup>1,2,†</sup> Zhu Chang-Chun<sup>2)</sup> Zeng Fan-Guang<sup>2)</sup> He Yong-Ning<sup>2)</sup> Bao Wen-Xing<sup>2)</sup>

<sup>1</sup> *Department of Physics, Liaoning University, Shenyang 110036, China*

<sup>2</sup> *School of Electronics and Information Engineering, Xi'an Jiaotong University, Xian 710049, China*

(Received 18 September 2005; revised manuscript received 7 November 2005)

## Abstract

The band structure model of commensurate double-walled carbon nanotube (DWNT) was built by using tight-binding Hamiltonian with curvature effect included. The field emission characteristics of commensurate DWNT were quantitatively investigated basing on its dependence on the band structure. The results indicate that interwall coupling interaction (ICI) can form additional electronic energy level in the band structure of DWNT so as to increase the emitting channel of electrons and at the same time, it can also increase the energy gap of the metallic DWNT and decrease that of the semiconducting DWNT, which will result in a change in the number of electrons emitted from the valence band. At a given applied electric field, the emission current of DWNT has an obvious increase, compared with that of DWNT when ICI is turn off, and the current increment of semiconducting DWNT is larger than that of the metallic one. At an applied electric field of  $5\text{V}/\mu\text{m}$ , the field emission currents of commensurate DWNTs (6,6) & (12,12), (10,0) & (20,0) and (8,2) & (16,4) have an increase of about 3%, 10% and 4%, respectively, compared with those when ICI is turn off. The results reveal that ICI contributes to the transport and electron emission of DWNT, which is helpful for understanding the field emission mechanism of DWNT and hence that of MWNT.

**Keywords:** commensurate double-walled carbon nanotube, band structure, interwall coupling interaction, curvature effect

**PACC:** 6148

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 60036010) and the Doctoral Foundation of the National Education Administration of China (Grant No. 2000069823).

<sup>†</sup> E-mail: liuxinghui@sohu.com