

6. Transport durch Einzelmoleküle

Die Größenverhältnisse charakteristischer Energien bestimmen den Transport durch einen molekularen Kontakt. Betrachtet werden sollen hier die Confinement-Energie Δ (Teilchen im Potentialkasten), die Ladungsenergie E_C , die thermische Energie $k_B T$ und die Verbreiterung der Molekülorbitale Γ .

- Was erwarten Sie qualitativ für die folgenden drei Regime?
 - Schwache Kopplung: $\Gamma \ll \Delta, E_C, k_B T$
 - Mittlere Kopplung: $\Gamma, k_B T \lesssim \Delta, E_C$
 - Starke Kopplung: $\Gamma, k_B T > E_C, \Delta$
- Für tiefe Temperaturen ($k_B T \ll \Gamma$) kann man den Strom durch den molekularen Kontakt im Landauer-Büttiker-Modell

$$I = \frac{e}{\hbar} \int \frac{dE}{2\pi} T(E) [f_S(E) - f_D(E)]$$

mit

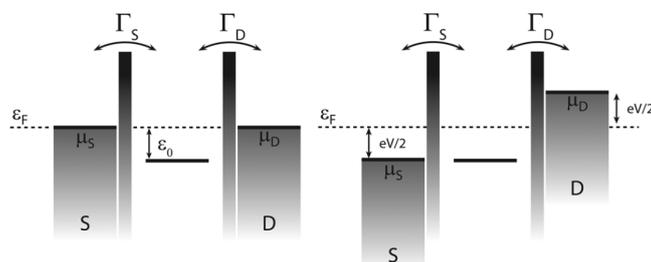
$$T(E) = \frac{4\Gamma_S \Gamma_D}{(E - \epsilon_0)^2 + (\Gamma_S + \Gamma_D)^2}$$

bei einer angelegten Spannung U wie folgt nähern:

$$I(U) = \frac{4G_0}{e} \frac{\Gamma_S \Gamma_D}{\Gamma_S + \Gamma_D} \left[\arctan\left(\frac{eU/2 - \epsilon_0}{\Gamma_S + \Gamma_D}\right) + \arctan\left(\frac{eU/2 + \epsilon_0}{\Gamma_S + \Gamma_D}\right) \right]$$

Dabei beschreibt ϵ_0 die Lage des nächsten Molekülorbitals in Bezug auf die Fermienergie der Kontakte (siehe Abbildung). Wie sehen $T(E)$ und $I(U)$ für folgende Parameter aus?

- $\Gamma_S = \Gamma_D = 10 \text{ meV}$ und $\epsilon_0 = -0,2 / -0,5 \text{ eV}$
- $\Gamma_S = \Gamma_D = 1/5/20 \text{ meV}$ und $\epsilon_0 = -0,2 \text{ eV}$



Transport über ein Molekülorbital (nach Perrin et al., Chem. Soc. Rev. 2015)

7. Vergleiche von Leitfähigkeitsmessungen

Der Leitwert eines Spirobifluoren-Moleküls soll wie in A) gezeigt in einem Bruchkontakt bestimmt werden (Karimi et al, Nanoscale, 2016).

- Wieso nimmt man die im Modell gezeigte Lage des Moleküls im Bruchkontakt an? Welche Größenordnung für E_C und erwarten Sie? Wie könnte man ϵ_0 und Γ bestimmen?
- Die Leitwertkurven mit Molekül (rot) unterscheiden sich deutlich von denen ohne Molekül (schwarz). Vergleichen Sie die Breite der Leitwertplateaus mit der Länge des Moleküls. Was ist bei diesem Vergleich zu berücksichtigen? Bestimmen Sie den Leitwert aus dem Histogramm.

Nun wird der Leitwert von zwei ähnlichen Spirobifluorene-Molekülen wie in B) gezeigt untersucht.

- Der experimentell bestimmte Leitwert G_{exp} ist angegeben. Wodurch könnte der Unterschied zwischen den experimentell bestimmten Leitwerten in A) und B) (a,b und e,f) erklärt werden? Die Angabe welches experimentellen Parameters fehlt?
- DFT-Rechnungen reproduzieren relativ gut die experimentellen Leitwerte für den Bruchkontakt in A) und die Variante e,f in B). Der Leitwert der Variante a,b kann aber nicht reproduziert werden. Nur wenn das gezeigte Modell (a,b) revidiert wird, ergeben die DFT-Rechnungen passende Leitwerte (Transmissionskurven c,d). Welche Annahme in B) könnte falsch sein?

