

Alessio Gagliardi, *Theoretische Modellierung und Simulation von Elektron–Phonon Streuprozessen in Molekularelektronischen Bauteilen*. Dissertation (in englischer Sprache), Department Physik, Fakultät für Naturwissenschaften, Universität Paderborn (2007).

Kurzfassung

Das Gebiet der Molekularelektronik beruht auf einem einfachen Konzept: Ein einzelnes oder eine dünne Schicht organischer Moleküle verbindet zwei metallische Kontakte. Das Anlegen einer Spannung induziert einen Strom von einem Kontakt zum anderen. Die Grundidee ist, dass der Strom wesentlich von den chemischen Eigenschaften des Moleküls zwischen den Kontakten abhängt und dass diese elektronische Charakteristik leicht mit Hilfe einer äußeren Störung gestimmt werden kann, um einen Schalter zu realisieren. Trotz intensiver Untersuchungen warten jedoch viele Aspekte noch immer auf ihre eingehende Behandlung. Einer davon ist die Dissipation, welche im Molekül durch die Kopplung zwischen den vibronischen Moden und den Ladungsträgern verursacht wird. Durch die Größe des Bauteils muss diese Wechselwirkung quantenmechanisch durch einen Elektron–Photon Streuprozess beschrieben werden. Die quantitative Auswertung der Dissipation ist fundamental für das gesamte Feld der Molekularelektronik, insbesondere in Hinblick auf die industrielle Anwendungen.

Der Autor dieser Arbeit und Dr. Alessandro Pecchia von der Universität von Rom “Tor Vergata” haben einen Code implementiert, der auf dem Nichtgleichgewichts–Green–Funktionen–Formalismus basiert, um Elektron–Phonon Streuung in molekularen Bauteilen zu untersuchen. Die erste Anwendung ist die Berechnung der Dissipation in Oktanthiolat eingebettet zwischen zwei Goldkontakten, die zeigt, welches die relevantesten Moden bei der Elektronenstreuung sind, eine fundamentale Frage für die Stabilität des Bauteils. Die inelastische Streuung umfasst jedoch weitaus mehr als eine Untersuchung des “Quantenwiderstands” des Bauteils. Die inelastisch gestreuten Elektronen können direkt als Sensor für die Geometrie und Elektronenstruktur des Bauteils verwendet werden. Diese spektroskopische Technik wird als Inelastische Elektronen–Tunnel–Spektroskopie (IETS) bezeichnet. Obwohl bereits recht alt, ist die IETS auf dem Gebiet der Molekularelektronik neu, und viele Eigenschaften müssen erst noch verstanden werden.

Der Elektron–Photon Code wurde verwendet, um die Eigenschaften der IETS zu untersuchen, zunächst durch direkte Simulation des IETS in Oktanthiol–Systemen, später, um das Problem der Auswahlregeln anzugehen. Tatsächlich ist es bekannt, dass die Selektivität der IETS sehr verschieden von der anderer, konventionellerer Techniken wie Infrarot oder Raman ist. Das Fehlen einer genauen Kenntnis über die Auswahlregeln in der IETS gestaltet eine klare Zuordnung der Spektren schwierig. Die Definition von Auswahlregeln erfordert zwei Schritte. Zuerst muss die Punktgruppe des Systems festgelegt werden. Auch wenn das Molekül in der Gasphase hochsymmetrisch ist, ist es offensichtlich, dass die Symmetrie durch Anwesenheit der Elektroden und strukturelle Verzerrungen verringert wird. Dennoch bleibt das Molekül das wesentliche Merkmal der IETS Messungen. Unter Berücksichtigung des wesentlichen Effekts der Elektroden, können wir die Punktgruppe des Systems eindeutig definieren als diejenige des ungestörten Moleküls, abzüglich aller End–End–Symmetrieoperationen. Das zweite Problem besteht darin, einen geeigneten Basisatz zu finden. Es ist wohl bekannt, dass kanonische Molekülorbitale nicht die beste Wahl sind, wegen der starken Interferenzeffekte zwischen ihnen während des Transports. Der Strom kann jedoch in eine Summe voneinander unabhängiger “Kanäle” zerlegt werden, die man durch Diagonalisierung der Matrix des Transmissionsoperators (nicht des Hamiltonians) erhält. Die Wahl dieser Menge von Kanälen ist nicht eindeutig, jede Wahl ermöglicht es jedoch, Interferenz zu vermeiden. Die Interpretation des Stromes mit Hilfe unabhängiger Kanäle liefert auch Informationen darüber, wo die Elektronen gestreut werden, was zu einem tiefer gehenden Verständnis führt, wo die Dissipation stattfindet und welche chemischen Substitutionen am Bauteil die Leistungsfähigkeit des Bauteils erhöhen können.