

金属电极与分子中非弹性电流的理论研究*

张 元 王鹿霞[†]

(北京科技大学物理系, 北京 100083)

(2009 年 11 月 4 日收到; 2009 年 11 月 19 日收到修改稿)

考虑分子的振动能级, 在简正反应坐标下研究了通过“金属/分子/金属”所组成系统的非弹性电流. 研究发现非弹性电流传输过程中分子不同带电态的能量的相对位形对 Franck-Condon 阻滞有较强的影响, 进而在理论上分析了分子的稳定态与 Franck-Condon 阻滞的关系, 以及分子内部的振动能量分布、分子与金属电极的相对位置与系统的电流-电压曲线的关系.

关键词: Frank-Condon 阻滞, 非弹性电流, 电流-电压关系

PACC: 3370, 7290, 3450

1. 引 言

分子电子学是近几十年来都十分活跃的一门学科, 其核心问题包括在分子水平上化学物理的基本原理、信号传输热力学、分子开关、逻辑及存储以及分子尺度上的光电子学、磁电子学、生物电子学、分子材料在计算电子学中的应用等, 其中分子中电子的响应问题一直是分子电子学的一个重要组成部分^[1]. 本文将针对“金属/单分子/金属”的纳米结构中的电子传输问题展开讨论. 众所周知, 影响这种电子传输的一个重要因素是电子与分子运动的耦合, 即电子态与分子振动态的耦合^[2,3]. 电子与分子的耦合效应曾在研究场效应管的电流-电压效应的实验中提出^[4,5], 在利用扫描隧道显微镜测量通过吸附在超薄金属膜上单分子电流的实验中进一步证实了考虑分子振动态的重要性^[6]. 从理论角度上来说, 若不考虑分子的振动态与传导电子的相互作用, 意味着电子在传导过程中能够保持能量与相守恒, 称之为弹性电流, 在该过程中电子被电子态散射. 如果分子的振动态参与到电子传输过程中, 我们称其传导电流为非弹性电流. 在这个过程中, 一定电压下单电子通过分子时将部分能量沉积于分子的量子振动态上. 最初的在“金属/单分子/金属”系统中, 关于通过单分子电流的理论研究曾

完全忽略了分子的振动态, 考虑分子振动态来研究通过分子电流的理论方法有非平衡 Green 函数方法^[7-12]以及基于主方程的理论描述^[13-15], 如文献^[14]给出了通过单分子的非弹性电流的扩展主方程描述, 文献^[15]给出了在弹性电流传输过程中的光激发效应, 其研究发现没有外场作用下当电子的电离能高于电极的费米能时在低电压范围内没有电流通过分子, 即所谓的 Franck-Condon 阻滞, 这一理论结果与其他方法得到的结果相符合^[16,17]. 文献^[15]指出在具有共振频率的光激发作用下, 电子被激发到分子的激发态, 激发态上的电子参与到电子转移过程, 因此在小电压作用下也有电流通过, 从而克服了 Franck-Condon 阻滞. 然而在以前的理论描述中仅仅考虑分子电中性态和带一个负电荷的分子电离态, 将中性分子的电子振动态(含电极的能量)认为是电子转移的初态, 带一个负电荷的分子电离态认为是电子转移的终态, 即考虑单通道电子传输, 且同时假设单电子正电电离态的能量远高于电中性态和负电电离态的能量. 然而单分子的量子化学计算证实在某些单分子中单电子正电电离态和负电电离态能量大致相同, 如卟吩镁 magnesium porphine^[18]. 这样可以将带一个正电荷的分子电离态(含电极的能量)认为是电子转移的另一个初态, 电中性分子作为其相应的电子转移的终态, 形成电子转移的另一个通道. 在本文中我们沿用文献

* 国家自然科学基金(批准号:10604004)资助的课题.

[†] 通讯联系人. E-mail: luxiwang@ sas. ustb. edu. cn

[13—15]的理论模型,并在模型中加入了单电子正电电离态,在不同能级位形下考虑电极和分子的双通道电子传输,考虑电子传输过程中分子的非平衡振动过程,从而研究了在不同带电能量下的电流-电压特性曲线及与 Franck-Condon 阻滞间的关系.

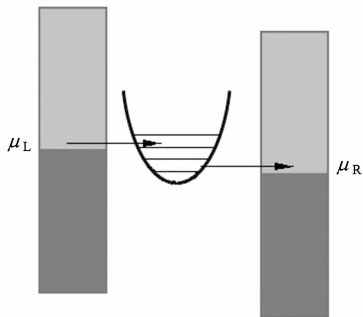


图1 在一定电压下金属电极与分子间的电子转移示意图

2. 理论模型及相关参数

我们所讨论的“金属/单分子/金属”系统,如图1所示. 该系统中的电子转移是指在弱耦合条件下电子的顺序转移(不包括电子的共振隧穿过程),并且采用单电子模型. 这样除了电中性分子外,还需考虑带一个负电电荷及带一个正电电荷的分子电离态. 由于不考虑光激发作用下从基态到激发态的电子跃迁,并且在外加电压范围内各带电状态的分子激发态的能量与分子基态的能量差远大于电极的化学势,这样可以将不同带电态的分子能量用其基态能来表征,分子电中性基态能,带负电分子的基态能及带正电分子的基态能可以分别表示为 E_{0g} , E_{1g} 和 E_{-1g} . 金属电极实际的电子分布与接触点的具体原子结构相关,这里我们引入有效电子气温度 T_{el} ,并用 Fermi 分布来描述电极的电子分布. 当金属电极两端有电压时,且金属电极的化学势高于分子的能量时,电子转移发生. 在模型中,电子转移发生在分子的反应坐标中,这样可以把从电极到分子的电子转移模型转化为从电中性分子到带负电电离态的电子转移及带正电电离态到中性分子的电子转移. 这样若带一个负电分子电离态的能量等于电中性分子能量加上电极上在 Fermi 面上的电子能量时,电极上的电子会转移到分子,即 $E_{1g} - E_{0g} - \mu = 0$, 其中 $E_{1g} - E_{0g}$ 为所谓的电子亲和势. μ 为电极上的实际的化学势,在没有外加电压条件下金属电极的平衡化学势为 μ_0 . 为简单起见我们设两个金属

电极具有相同的平衡化学势. 定义

$$E_{10} = E_{1g} - E_{0g} - \mu_0, \quad (1)$$

若 $E_{0g} - E_{-1g} - \mu = 0$ 的条件满足时,电极上的电子转移到分子上(与上述过程同向,形成电子转移的第二个通道),这样,我们可以定义

$$E_{0-1} = E_{0g} - E_{-1g} - \mu_0, \quad (2)$$

由于只考虑单电子传输过程,因此可以认为 $E_{2g} - E_{1g} > \mu$ 和 $E_{-1g} - E_{-2g} < \mu$ (E_{2g} 和 E_{-2g} 分别为带两个负电的分子电离态和带两个正电的分子电离态的基态能). 两电极的实际化学势与所加电压 V 及分子所在的位置有关,若单分子位于两电极的中央,则左电极和右电极的化学势分别为 $\mu_L = \mu_0 + \frac{1}{2}|e|V$ 和 $\mu_R = \mu_0 - \frac{1}{2}|e|V$, 电压对称地加在两个金属电极上.

在弱耦合近似下,可以用微扰论处理以保证非弹性电子传输过程^[13]. 电子转移的产生是分子和金属间具有耦合作用,这样电子注入效率一方面决定于电极的电子态密度及其性质,另一方面决定于电极和分子的耦合强度. 对于电极采用宽带近似模型描述,这样可以用 \bar{N} 表示电极的平均态密度,用电子耦合平均值 \bar{V} 表示电极与分子的耦合强度,这样用

$$\hbar\Gamma = \frac{2\pi}{\hbar}\bar{N}\bar{V}, \quad (3)$$

来表示电子的注入效率. 在以下的计算中我们取 $\hbar\Gamma = 1$ meV, 并将 $\hbar\Gamma$ 作为衡量能量的单位. 我们设电中性分子基态电子波函数为 ϕ_0 , 带一个负电荷和带一个正电荷的分子基态的电子波函数分别为 ϕ_1 和 ϕ_{-1} , 这些电子态所对应的势能面为

$$U_{Ng}(Q) = E_{Ng} + \frac{\hbar\omega_{vib}}{4}(Q - Q_{Ng})^2, \quad (4)$$

其中 Q 为谐振子简正坐标, Q_{Ng} 为各个态的基态平衡位置, ω_{vib} 为谐振子的振动频率. 在我们以下的计算中如不特殊说明, $Q_{0g} = 0$, 并设带正负电荷分子的势能面具有相同的平衡位置 $Q_{\pm 1g} = 6$, 谐振子的频率为 $\omega_{vib} = 10\Gamma$. 这个势能面相对应的各个电离态的基态重组能为

$$\lambda_{M,N} = \frac{\hbar\omega_{vib}}{4}(Q_{Mg} - Q_{Ng})^2, \quad (5)$$

在我们所考虑的3个带电电离态中,电极与分子间的总电流可以分为两部分,即

$$I_t = I_{cha} + I_{dis}, \quad (6)$$

其中 $I_{cha} = I_{0g \rightarrow 1g} + I_{-1g \rightarrow 0g}$, $I_{dis} = I_{1g \rightarrow 0g} + I_{0g \rightarrow -1g}$ 分别

表示电子注入分子的电流和流出分子的电流. 其各分量的具体表达式可以表示为

$$I_{N \rightarrow N+1} = |e| \sum_{\mu\nu} k_{N\mu \rightarrow N+1\nu}^{(\text{mol-L})} P_{N\mu}^{(\text{stat})}, \quad (7)$$

和

$$I_{N+1 \rightarrow N} = -|e| \sum_{\mu\nu} k_{N+1\mu \rightarrow N\nu}^{(\text{mol-L})} P_{N+1\mu}^{(\text{stat})}, \quad (8)$$

其中 $k^{(\text{mol-L})}$ 表示相应的电子态从分子到一个电极 (这里假设左边电极) 的电子转移率, $P_{N\mu}^{(\text{stat})}$ 为在第 N 个带电态和第 μ 个振动态上的稳定的电子占据, μ 和 ν 为振动态量子数. 分子和电极间的电子转移率可以表示为

$$k_{N\mu \rightarrow N+1\nu}^{(\text{mol-L})} = 2\Gamma |\langle \chi_{N\mu} | \chi_{N+1\nu} \rangle|^2 \times \sum_{X=L,R} f_F(\hbar\epsilon_{N+1\nu, N\mu} - \mu_X), \quad (9)$$

$$k_{N+1\mu \rightarrow N\nu}^{(\text{mol-L})} = 2\Gamma |\langle \chi_{N+1\mu} | \chi_{N\nu} \rangle|^2 \times \sum_{X=L,R} [1 - f_F(\hbar\epsilon_{N+1\mu, N\nu} - \mu_X)], \quad (10)$$

其中 $|\langle \chi_{N\mu} | \chi_{N+1\nu} \rangle|$ 和 $|\langle \chi_{N+1\mu} | \chi_{N\nu} \rangle|$ 表示相应带电态和振动量子态之间的 Franck-Condon 因子, $\hbar\epsilon_{N+1\nu, N\mu} - \mu_X$ 可以写为 $E_{N+1g} - E_{Ng} + \hbar\omega_{\text{vib}}(\nu - \mu) - \mu_X$, $f_F(E)$ 为相应能量下的 Fermi 函数, 在我们的计算中考虑低温下的电子传输, 取 $k_B T$ 为 $0.5 \hbar\Gamma$, $X = L, R$ 分别表示左边电极和右边电极. 在非弹性电子传输过程中, 分子内的振动能量弛豫过程也对电流产生影响, 我们应用简正反应坐标 (Q) 与热浴次级坐标的双线形耦合模型^[14]. 在这个模型下, 这部分电子转移率有如下形式:

$$k_{N\mu \rightarrow N\nu}^{(\text{IVR})} = 2\pi J_N(\omega_{\text{vib}}) \{ \delta_{\nu, \mu+1}(\mu+1)n(\omega_{\text{vib}}) + \delta_{\nu, \mu-1}\mu[1 + n(\omega_{\text{vib}})] \}, \quad (11)$$

这里 n 为 Bose-Einstein 分布, J 为与连续次级模相耦合的谱密度, 这个量与主坐标的振动频率 ω_{vib} 相关.

由于我们考虑的是分子与电极间的稳定电流, 需要求解以下平衡方程,

$$\frac{\partial}{\partial t} P_{N\mu}^{(\text{stat})} = -P_{N\mu}^{(\text{stat})} \sum_{M\nu} k_{N\mu \rightarrow M\nu} + \sum_{M\nu} P_{M\nu}^{(\text{stat})} k_{M\nu \rightarrow N\mu}, \quad (12)$$

这里 k 对应于分子和电极的电子转移率及分子内振动能量弛豫转移率.

在计算中电压以 V_0 为单位, 其中 $V_0 = \hbar\Gamma/e$, 电流以 I_0 为单位, $I_0 = |e|\Gamma$. 若 $\hbar\Gamma$ 取 1 meV , 则 $V_0 = 10^{-3} \text{ V}$, $I_0 = 240 \text{ nA}$, 由于实验上加在同类系统上的电压最高为 $1.6\text{--}6 \text{ V}$, 电流为 100 nA 左右, 计算时电压取 $300V_0$ 以内, 电流不高于 $0.6I_0$.

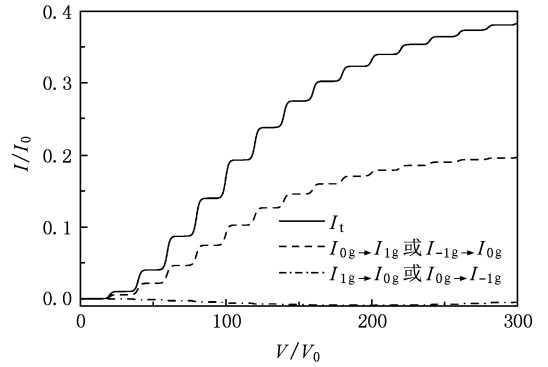


图2 在 $E_{10} = E_{0-1}$ 条件下在电极和分子间的总电流及各分电流与所加电压的关系曲线

3. 结果和讨论

在讨论三个带电分子态存在条件下的双通道电流-电压关系之前, 首先回顾一下在只有电中性态和带一个负电分子电离态存在的电流-电压关系及系统稳定后的电子占据情况. 当金属电极的能量与电中性态的基态能和带一个负电荷分子电离态的能级简并 ($E_{10} = 0$) 时, 且不存在光激发, Franck-Condon 阻滞的截止电压在 $\frac{|e|V}{2} < \lambda_{1g,0g}$ 的范围内, 若加在电极上的能量高于电子转移的重组能时, 电流开启, Franck-Condon 阻滞消失. 在系统稳定后, 中性态分子和带负电的分子电离态上具有相同的电子占据. 而在 $E_{10} > 0$ 条件下, Franck-Condon 阻滞的截止电压增加, 因为加在电极上的电压需要克服 $E_{10} + \lambda_{1g,0g}$ 的能量才能有电流通过分子^[15]. 如果考虑带正电分子的电离态的能量与其它两个态的能量相当的情况下, 由于各个带电态的能级关系, 使得系统稳定时电子占据的状况发生改变, Franck-Condon 阻滞不再依赖于不同带电态的重组能而直接与三个带电态的能级结构相关. 首先考虑双通道电子转移条件同时满足的下 ($E_{10} = E_{0-1} = 0$) 的电流-电压关系, 如图 2 所示. 在所加电压范围内分电流 $I_{0g \rightarrow 1g}, I_{-1g \rightarrow 0g}$ 以及通过分子的总电流 I_t 均在 $V = 20V_0$ 处开启, Franck-Condon 阻滞的电压范围相对于只考虑电中性态和带负电分子电离态的情况较小. 在此能量简并情况下, 若所加电压范围内各个分子态上电子占据相等, 均占 $1/3$, 则加在电极上的电压只需克服分子振动态能级的能量 $\frac{|e|V}{2} = \hbar\omega_{\text{vib}}$, 即

有电流发生,并且在假设 $Q_{1g} = Q_{-1g}$ 的条件下, $I_{0g \rightarrow 1g}$ 与 $I_{-1g \rightarrow 0g}$ 相等,同时在所加电压范围也存在少量的反向电流 $I_{1g \rightarrow 0g}$ 和 $I_{0g \rightarrow -1g}$ 出现,在此对称位形下,两个反向电流大小相等.

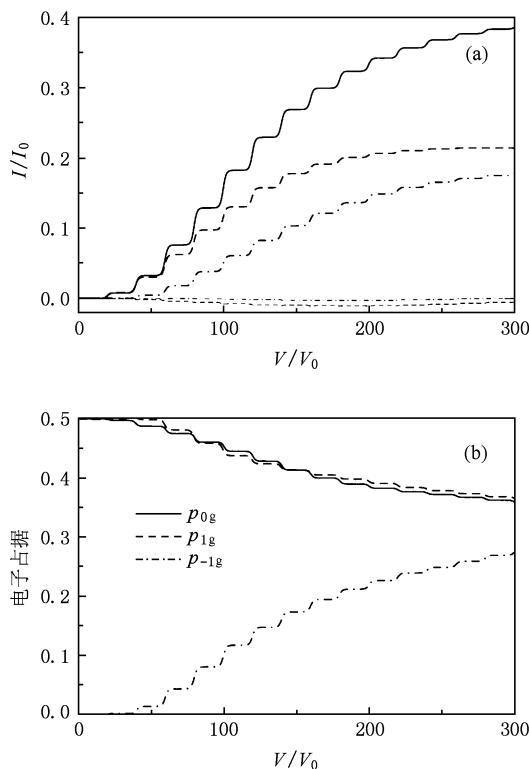


图3 在 $E_{10} = 0$ 且 $E_{0-1} = -40\hbar\Gamma$ 条件下电流和电子占据率与电极间所加电压的关系 (a) 电极和分子间的总电流及各分电流; (b) 参与导电各个分子电离态的电子占据率

以下讨论在 $E_{10} \neq E_{0-1}$ 的条件下,系统的特性. 我们发现当 $E_{10} = 0$ 且 $E_{0-1} < 0$ 时,即在无电压时电中性分子的能量与电极的平衡化学势之和等于带负电分子电离态的能量,而带正电分子电离态的能级与电极的平衡化学势之和低于电中性分子的基态能级时,在截止电压为 $V = 20V_0$ 范围内的 Franck-Condon 阻滞依然出现(如图3所示). 从图3的电流-电压关系我们看到在所加电压范围内, $I_{0g \rightarrow 1g}$ 和 $I_{-1g \rightarrow 0g}$ 同时在 $V = 20V_0$ 处开启, $I_{0g \rightarrow 1g}$ 始终大于 $I_{-1g \rightarrow 0g}$. 由于我们采用的是低温近似,两个分电流及总电流均呈阶梯状增加(见方程(9), (10)), 其台阶的宽度为 $20V_0$, 当所加电压从0增加到 $20V_0$, 分子的第一振动能级上的电子被激发,有电流产生, Franck-Condon 阻滞消失,随着电极间的电压的进一步增加,每增加 $\frac{2\hbar\omega_{\text{vib}}}{|e|}$, 分子振动能级上的

电子被逐级激发使电流随之增加. 为了进一步定量地分析分电流,我们需要研究系统稳定后的能级的电子占据(方程(12)),如图3(b)所示,由于 $E_{10} = 0$ 且 $E_{0-1} < 0$ (我们这里取 $E_{0-1} = -40\hbar\Gamma$), 在这种情况下,电中性分子与带负电分子电离态的稳定性高于带正电分子电离态的稳定性,在所加电压为0时,系统处于双稳态结构,因此在电压为0时电中性态分子与带负电分子的电子占据各占1/2,而带正电分子电离态的电子占据为0. 随着电极间所加电压的增加,这种双稳态结构被逐渐破坏,电极上的电子注入分子,由于 $I_{0g \rightarrow 1g}$ 和 $I_{-1g \rightarrow 0g}$ 分别与电中性分子的电子占据 P_{0g} 和带正电分子的电子占据 P_{-1g} 相关,如(7)和(8)式,而在我们所加的电压范围 $P_{0g} > P_{-1g}$, 这样在图3(a)中 $I_{0g \rightarrow 1g}$ 始终大于 $I_{-1g \rightarrow 0g}$ 的现象得以解释. 值得一提的是若只考虑电中性态和带正电荷分子电离态,在能级结构位形 $E_{0-1} = -40\hbar\Gamma$, 电极上的电压需要加到 $80V_0$ 以上,分子上才有电流通过,而在我们现在考虑的双通道电子转移,一旦系统的稳定态打破, $I_{0g \rightarrow 1g}$ 和 $I_{-1g \rightarrow 0g}$ 同时发生. 由于我们采用的对称结构($Q_{1g} = Q_{-1g}$)那么在 $E_{-10} = 0$ 且 $E_{10} > 0$ 条件下, Franck-Condon 阻滞的截止电压也为 $V = 20V_0$ (电流-电压关系与能级电子占据与图3中类似,此处略).

下面以 $E_{10} = 40\hbar\Gamma$ 且 $E_{0-1} = 40\hbar\Gamma$ 为例,讨论 Franck-Condon 阻滞的电压范围与不同带电分子态的能量位形的关系. 在加电压之前, $E_{10} = 40\hbar\Gamma$ 使分子的电中性态为稳定态,而 $E_{0-1} = 40\hbar\Gamma$ 使正电电离态为稳定态,这样系统的稳定态为分子的正电电离态,其电子占据数为1,电中性态分子和带负电荷分子的分子电离态的电子占据为0. 如图3(b)所示,当电极间的电压加到 $\frac{|e|V}{2} = 40\hbar\Gamma$ 时,系统的稳定平衡破坏,电极与分子间有发生电子转移,因此 Franck-Condon 阻滞的电压局域范围决定于 E_{0-1} , 在 $V = 80V_0$ 范围内,随着电压的增加,分子振动态上的电子被逐级激发,在 $V = 300V_0$ 附近,电流近似达到饱和,各个能态上的电子占据约为1/3,详见图4. 从上面的分析看到, Franck-Condon 阻滞与系统的稳定态有密切关系,一旦稳定关系破坏,有电流发生, Franck-Condon 阻滞消失. 其他的能量位形这里不再分析.

在所有前面的计算中,假设分子位于两个电极的中央,然而在实验中“金属/分子/金属”系统往往不是对称分布. 如用扫描隧道显微镜测量在金属衬

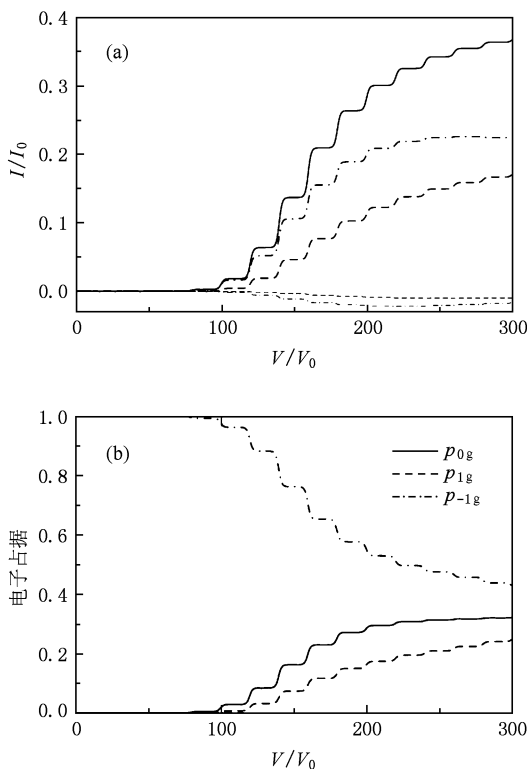


图4 在 $E_{10} = 40$ 且 $E_{0-1} = 40\hbar\Gamma$ 条件下, 电流与电子占据率与电极间所加电压的关系 (a) 电极和分子间的总电流及各分电流; (b) 参与导电各个分子电离态的电子占据率

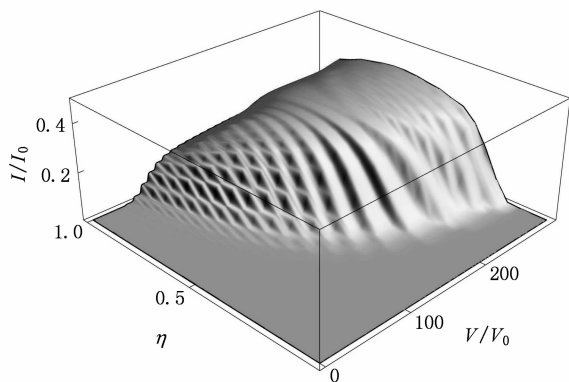


图5 在 $E_{10} = 40$ 且 $E_{0-1} = 40\hbar\Gamma$ 条件下在电极和分子间的总电流与电极间所加电压的关系及分子的位置参数 η 的关系

底上的单分子时, 金属探针与分子的距离往往与衬底与分子的距离不同, 这就需要就分子的位置展开讨论. 设分子的位置参数 η ($0 \leq \eta \leq 1$), 这样在所加电压为 V 条件下, 左电极和右电极的化学势分别为 $\mu_L = \mu_0 + \eta|e|V$ 和 $\mu_R = \mu_0 - (1 - \eta)|e|V$. 图5给出了在 $E_{10} = 40\hbar\Gamma$ 和 $E_{0-1} = 40\hbar\Gamma$ 的能量位形下电流、电压与位置参数 η 的关系. 图5 我们看到在

$\eta < 0.15$ 范围内, 在所加电压范围内几乎没有电流通过 ($\eta|e|V < 40\hbar\Gamma$), 随着 η 增加 Franck-Condon 阻滞的电压范围逐渐减小, $\eta = \frac{1}{3}$ 时, 在 $V = 120V_0$ 时有电流通过, $\eta = \frac{2}{3}$ 时, 弗兰克-康登阻滞的电压范围在 $60V_0$ 内, 而在 $\eta = 1$, 阻滞范围在 $40V_0$ 内. 这种不对称结构是由我们所选取的能量位形所决定的.

在前面的讨论中没有考虑在电流传输过程中的分子内振动能的重新分布 (intra molecular vibrational energy redistribution, 简记为 IVR) 过程, 在电子传输过程中若电子的注入时间与电子在分子的驻留时间可比时, 或者电子的注入时间小于非平衡态时间时, 需要考虑 IVR 效应. 在方程 (11) 中引入了 IVR 参数 J , 如图6所示, 随着 J 的增加电流在较低电压范围内减小明显, 而在高电压范围内电流有所增加, 这是因为随着 IVR 的增加, 电子的分布几率更多地分布在分子的振动基态上. 由方程 (9) 我们看到由于在较低电压下 ($V < 200V_0$), 非平衡态 $\mu > 0$ 的通道开启. 相对于在瞬间非平衡态条件下, 这些电子通道的开启使得电流较大, 而在高电压下, 由于振动基态 Franck-Condon 因子 $\langle \chi_{N,0} | \chi_{N+1,0} \rangle$ 的贡献相对较大, 振动态的瞬间平衡分布获得较大的电流.

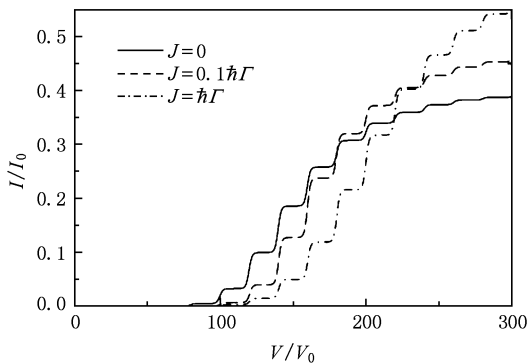


图6 在 $E_{10} = 40, E_{0-1} = -40\hbar\Gamma$ 条件下在电极和分子间的总电流在不同 IVR 参数下与电极间所加电压的关系

4. 结 论

本文考虑单分子的振动量子态, 采用单电子传输模型研究了“金属/单分子/金属”中的非弹性电流与所加电压的关系, 在理论模型中引入带正负电

荷的分子电离态将电极与分子的电子转移过程转化到在分子的简正反应坐标中进行, 研究发现不同的分子带电态的能级位形决定其稳定性. Franck-Condon 阻滞在没有光激发的条件下均存在; 当两电极间的电压破坏不同带电态的稳定平衡时电流开启, Franck-Condon 阻滞消失. 此外结合实验中可能

出现的分子不在电极中央的情况引入分子位置参数, 讨论了位置参数与电流-电压关系及 Franck-Condon 阻滞的关系. 同时, 由于分子的瞬间非平衡分布可以使电子瞬间沉积于分子的振动基态, 使得分子振动激发态间的电子转移通道关闭, 从而在相同条件下, Franck-Condon 阻滞的电压范围增加.

- [1] Joachim C, Ratne M A 2005 *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* **102** 8800
- [2] Ventra M Di, Pantelides S T, Lang N D 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 046801
- [3] Seideman T 2003 *J. Phys. D: Condens. Matter* **15** R521
- [4] Park H, Park J, Lim A K L, Anderson E H, Alivisatos A P, McEuen P L 2000 *Nature* **407** 57
- [5] Park J, Pasupathy A N, Goldsmith J I, Soldatov A V, Chang C, Yaish Y, Sethna J P, Abrun H D, Ralph D C, McEuen P L 2003 *Thin Solid Film* **438** 457
- [6] Qiu X H, Nazin G V, Ho W 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 20612
- [7] Galperin M, Ratner M A, Nitzan A 2005 *J. Chem. Phys.* **121** 11965
- [8] Galperin M, Nitzan A 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 206802
- [9] Galperin M, Nitzan A 2006 *J. Chem. Phys.* **124** 234709

- [10] Zheng X L, Zheng J M, Ren Z Y, Guo P, Tian J T, Bai J T 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 5709 (in Chinese) [郑新亮、郑继明、任兆玉、郭平、田进寿、白晋涛 2009 物理学报 **58** 5709]
- [11] Xia C J, Fang C F, Hu G C, Li D M, Liu D S, Xie S J 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 4884 (in Chinese) [夏蔡娟、房常峰、胡贵超、李东梅、刘德胜、谢士杰 2007 物理学报 **56** 4884]
- [12] Li Y D, Li H H, Wang C G 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 2349 (in Chinese) [李英德、李红海、王传奎 2002 物理学报 **51** 2349]
- [13] May V, Kühn O 2006 *Chem. Rev. Lett.* **420** 192
- [14] May V, Kühn O 2008 *Phys. Rev. B* **77** 115439
- [15] May V, Kühn O 2008 *Phys. Rev. B* **77** 115440
- [16] Koch J, Oppen F von 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 206804
- [17] Koch J, Oppen F von, Nitzan A 2006 *Phys. Rev. B* **73** 155306
- [18] Welack S, Maddox J B, Esposito M, Harbola U, Mukamel S 2008 *Nano Lett.* **8** 1137

Theoretical study of inelastic current in a single molecule attached to electrode system*

Zhang Yuan Wang Lu-Xia[†]

(Department of Physics, University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China)

(Received 4 November 2009; revised manuscript received 19 November 2009)

Abstract

Considering the effect of molecular vibrational levels, inelastic currents through the “metal/single molecule/metal” in the frame of normal vibrational mode are studied. The results show that the Franck-Condon blockage is strongly dependent on the stable energy configuration of molecule in the charge transmission, thus the relation between stationary state and Franck-Condon blockage and the relations of intra molecular vibrational redistribution as well as the relative position of molecule and electrodes to the current-voltage character of the stationary molecule state are further studied theoretically.

Keywords: Franck-Condon blockage, inelastic current, current-voltage characteristics

PACC: 3370, 7290, 3450

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10604004).

[†] Corresponding author. E-mail: luxiwang@sas.ustb.edu.cn