

1. Strategien zur Verbesserung der Transporteigenschaften von Nanomaterialien

Es ist erwiesen, dass die Verkleinerung von Materialien auf die Nanoskala ihre elektronischen, thermischen und thermoelektrischen Eigenschaften im Vergleich zu ihren massiven Gegenständen verbessern kann. [1] Neben den Vorteilen, die die Implementierung von niedrigdimensionalen Systemen bieten kann, sind zusätzliche Strategien zur Verbesserung ihrer Leistung, auch über diesen Punkt hinaus, von Interesse.

2. Induzierter Magnetismus in Phosphoren durch chemische Funktionalisierung

Phosphoren, ein 2D-Material ohne intrinsischen Magnetismus, erhält nach chemischer Funktionalisierung ein lokales magnetisches Moment. Der Ursprung der Magnetisierung liegt in der Bildung einer baumelnden Bindung nach dem Bruch der P-P-Bindung, wobei eines der Phosphoratome als Funktionalisierungsstelle dient und das andere mit dem baumelnden Elektron verbleibt.

3. Beeinflussung der elektronischen und magnetischen Eigenschaften von Phosphoren

Durch Veränderung der Richtung der Gitterfunktionalisierung und des Bedeckungsgrads der Funktionalisierung können die elektronische Bandstruktur, der magnetische Grundzustand und die Gesamtmagnetisierung des Systems manipuliert werden. Mehrere Parameter der elektronischen Bandstruktur, wie Energie und Richtung der Bandlücke sowie die Degeneration in der Bandlücke, können durch die molekulare Anordnung und den Bedeckungsgrad der funktionalisierten Moleküle moduliert werden. Es wurde festgestellt, dass die Gesamtmagnetisierung proportional zur Anzahl der funktionalisierten Moleküle in Phosphoren ist, auch wenn erwartet wird, dass dieser Trend nach Überschreiten einer Schwelle abnimmt.

4. Mögliche Anwendung von funktionalisierten Phosphorsystemen als BMS

Funktionalisierte Phosphoren-Systeme können für die Entwicklung von bipolaren magnetischen Halbleitern (BMS) eingesetzt werden, einer Klasse von spintronischen Bauelementen, die den elektronischen Spin durch Steuerung einer elektrischen Spannung manipulieren können. Durch Modulation der Gitterrichtung, der Bedeckung oder der Wahl des Molekültyps lassen sich die Parameter, die BMS charakterisieren, nachweislich verbessern.

5. Strukturelle Eigenschaften von Phosphoren-Korngrenzensystemen unter uniaxialer Belastung

Korngrenzen sind eine in der Natur häufig anzutreffende Art von Defekten, die durch die Verschmelzung zweier Kristalle entstehen, die entlang unterschiedlicher Gitterrichtungen wachsen. Das Entstehen dieser Überschneidung verändert die Eigenschaften im Vergleich zu seinem ursprünglichen Gegenstück. Der Ausgangspunkt für die Analyse und das Verständnis des

Zusammenhang zwischen den Korngrenzen und der Abweichung ihrer Eigenschaften liegt in der Strukturanalyse um die Korngrenze herum. Die strukturelle Analyse von Phosphorkorngrenzen unter uniaxialer Dehnung zeigt, dass es eine Abhängigkeit zwischen dem Korngrenzentyp und dem Dehnungsverhältnis der in-plane oder out-of-plane Bindungen gibt. [2]

6. Elektronische und thermische Reaktion von Phosphorkorngrenzen unter Dehnung

Die elektronischen und thermischen Eigenschaften von Phosphoren werden durch die Einführung von Korngrenzen und Dehnung beeinflusst. Die Bildung von Korngrenzen vergrößert die elektronische Bandlücke in unterschiedlichem Ausmaß für jeden Korngrenzentyp, aber die angewandte Dehnung verringert die Lücke allmählich. Darüber hinaus wird die Wärmeübertragung durch die Korngrenzen beeinflusst, entweder im gesamten Spektrum oder in einem Bereich des Frequenzspektrums, der dann durch die Dehnung stärker beeinflusst wird.

7. Thermoelektrische Leistung von Phosphoren-Korngrenzen-Systemen

Reines Phosphoren ist ein anisotropes Material, d. h., es weist je nach Gitterrichtung unterschiedliche Eigenschaften auf. Die thermoelektrische Leistung von Phosphoren ist entlang der Armchair-Richtung besser als entlang der Zickzack-Richtung. Obwohl die Korngrenze und die angewendete Dehnung für das System in Zickzackrichtung eine größere Verbesserung als für das System in Sesselrichtung zeigten, blieb die thermoelektrische Leistung des zweiten Systems mit einem besseren Ergebnis, wobei die Wärmeleitfähigkeit des ersten Systems der Hauptnachteil für die Entwicklung thermoelektrischer Geräte ist.

8. Strukturelle Veränderung von CNT nach Fullereneinkapselung

Kohlenstoffnanoröhren (CNT) sind eine Hybridstruktur, bei der Fullerenmoleküle in einer periodischen Anordnung entlang des inneren Hohlraums einer CNT eingekapselt sind. Ihre Eigenschaften hängen von der Wechselwirkung zwischen den Atomen der CNT und den Fullerenen ab. Experimentelle Studien zeigten eine Verbesserung der thermoelektrischen Eigenschaften, aber die Ursache dafür war noch nicht vollständig geklärt. [3] Mit DFTB durchgeführte Computersimulationen eines CNT(8,8)@C60 zeigten, dass die CNT-Struktur durch das Vorhandensein der Fullerene verzerrt wird und eine periodische Verformung entlang des CNT entsteht. Diese strukturelle Verformung nimmt ab, wenn der CNT-Durchmesser zunimmt. [4]

9. Grundlegende Ursache für die Veränderung der elektronischen und thermischen Übertragung in CNT-Peapoden

Eine starke Veränderung der elektronischen Leitfähigkeit im Niederenergiebereich wird durch die Anwesenheit von Fullerenen verursacht, wobei der Abstand zwischen CNT-C60 und C60-C60 eine Rolle spielt und sowohl eine Unterdrückung der Leitfähigkeit als auch eine Erhöhung der Leitfähigkeit im Vergleich zu unveränderten CNT zeigt. In Bezug auf die thermische Übertragung wird eine Unterdrückung bei niedrigen und hohen Frequenzen durch die Hybridisierung lokaler C60-Moden mit akustischen Moden verursacht und bildet auch die periodische Knickung entlang der CNT-Oberfläche.

10. Verbesserung der thermoelektrischen Leistung von CNT durch Fullereneinkapselung

Die verbesserten Energiefenster im elektronischen Übertragungsspektrum und die allgemeine Unterdrückung der thermischen Übertragung im CNT-Peapod erhöhen die thermoelektrische Leistung im Vergleich zur ursprünglichen CNT-Form um den Faktor 2,2.

Referenzen

- [1] Dresselhaus, M. S., Dresselhaus, G., Sun, X., Zhang, Z., Cronin, S. B., and Koga, T. (1999). Low-dimensional thermoelectric materials. In *Phys. Solid State*, volume 41, pages 679–682.
- [2] Rodríguez Méndez, A., Medrano Sandonas, L., Dianat, A., Gutierrez, R., and Cuniberti, G. (2022). Electronic and thermal signatures of phosphorene grain boundaries under uniaxial strain. *Phys. Rev. Mater.*, 6:114003. doi:10.1103/PhysRevMaterials.6.114003.
- [3] Kodama, T., Ohnishi, M., Park, W., Shiga, T., Park, J., Shimada, T., Shinohara, H., Shiomi, J., and Goodson, K. E. (2017). Modulation of thermal and thermoelectric transport in individual carbon nanotubes by fullerene encapsulation. *Nat. Mater.*, 16(9):892–897. doi:10.1038/nmat4946.
- [4] Rodríguez Méndez, A., Medrano Sandonas, L., Dianat, A., Gutierrez, R., and Cuniberti, G. (2021). An atomistic study of the thermoelectric signatures of cnt peapods. *The Journal of Physical Chemistry C*, 125(25):13721–13731. doi:10.1021/acs.jpcc.1c02611.