



WECHSELSPIEL VON LICHT UND MATERIE

Trifft Licht auf Materie, dann löst dies eine Reihe von Prozessen aus, an denen Elektronen und Atome beteiligt sind. Diese Prozesse lassen sich mithilfe von Computersimulationen quantitativ verstehen.

Solarzellen finden sich auf vielen Dächern und wandeln die Energie der Sonnenstrahlung in elektrischen Strom um. Obwohl sie technisch immer besser werden, können sie niemals die gesamte Sonnenenergie in elektrische Energie umwandeln: Ihr Wirkungsgrad hat eine physikalische Grenze. Um diese Grenze zu verstehen, muss man die Prozesse, die bei der Umwandlung von Licht in Strom auf atomarer Ebene stattfinden, entschlüsseln.

LICHTABSORPTION IN HALBLEITERN

Lichtteilchen (Photonen) können ihre Energie nur dann an die Elektronen im Solarzellenmaterial abgeben, wenn diese einen passenden Wert hat: Sie muss groß genug sein, um Elektronen aus dem un-

teren Energiezustand im „Valenzband“ in den hohen Energiezustand des „Leitungsbandes“ zu bringen. Der Unterschied zwischen beiden Bändern ist die „Bandlücke“. Damit die Photonen ihre Energie an die Elektronen abgeben können, muss ihre Energie also größer als die Bandlücke sein.

Eine zentrale Erkenntnis der Quantenphysik ist, dass jedes Photon eine genau festgelegte Energie hat, die einzig von seiner Wellenlänge beziehungsweise Frequenz abhängt.

Nicht alle Photonen von der Sonne sind kurzwellig – also energiereich – genug, um die Bandlücke zu überwinden (etwa Infrarotlicht und noch langwelligere Strahlung). Bei Photonen hingegen, deren Energie größer ist als die Bandlücke, ist nicht ihre gesamte Energie elektrisch nutzbar. Ein von

einem besonders energiereichen Photon hoch angeregtes Elektron gibt die überschüssige Energie an die Atome des Festkörpers ab: Das Material erwärmt sich.

Das bedeutet: Lichtteilchen aus dem niederenergetischen Teil des Sonnenspektrums können gar nicht, und solche aus dem hochenergetischen Teil nicht vollständig zur Stromerzeugung genutzt werden. Diese beiden Effekte begrenzen den Wirkungsgrad einer Solarzelle.

Die beschriebenen Vorgänge können in ähnlicher Weise auch bei der Absorption von Strahlung in einem Metall auftreten. Im Unterschied zum Halbleiter hat ein Metall allerdings keine Bandlücke. Somit können bereits Photonen niedrigster Energie absorbiert werden. Allerdings wird deren Energie dann nahezu vollständig an das Kristallgitter abgegeben und führt so zur Erwärmung.

ENERGIEVERLUSTE IN FESTKÖRPERN

Ein Elektron gibt seine Energie im Festkörper im Wesentlichen durch zwei Prozesse ab: Durch Stöße mit anderen Elektronen oder durch Anregung von Schwingungen von Atomen um ihre Position im Kristall. Die Energie dieser Schwingungen ist durch die Quantenmechanik festgelegt. Die Energiequanten dieser Schwingungen heißen Phononen – in Anlehnung an die Lichtquanten, die Photonen. Ihre Energie ist in der Regel sehr viel kleiner als die des beteiligten angeregten Elektrons. Gibt das Elektron seine Energie ab, entstehen somit viele Phononen, sodass dieser Prozess praktisch nicht umkehrbar ist. Die den Elektronen verloren gegangene Energie verbleibt im Kristallgitter und führt zur Erwärmung des Materials.

In den Arbeitsgruppen der Theoretischen Physik beschäftigen wir uns mit der Modellierung der

STATISCHE UND ZEITABHÄNGIGE DICHTEFUNKTIONALTHEORIE

Um die Energiebänder der Elektronen zu berechnen, verwenden wir die Dichtefunktionaltheorie (DFT), die sich als sehr erfolgreich in der Modellierung von Materialien erwiesen hat. Man geht dabei davon aus, dass durch die Dichteverteilung aller Elektronen an allen Orten im Material bereits alles Wissenswerte über die Elektronenenergie eindeutig festgelegt ist. Zeitaufgelöste Berechnungen dieser

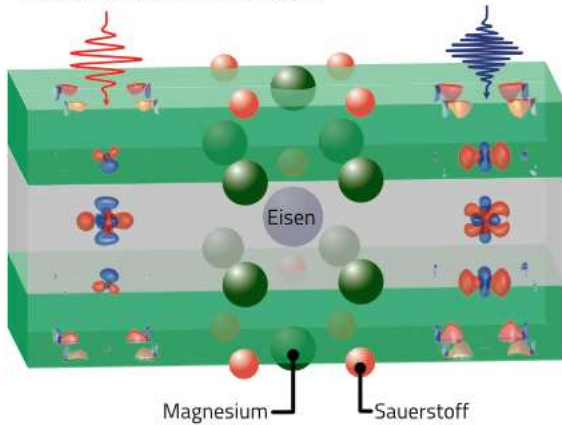
Dichte erlauben es uns, das zeitlich schwingende elektrische Feld eines Lasers und die daraus resultierende zeitliche Veränderung des Systems zu berechnen. Damit lassen sich alle wichtigen Größen aus der zeitlich veränderlichen Dichte der Elektronen berechnen, beispielsweise auch die mikroskopische Verteilung der elektrischen Ströme.

Zunächst berechnen wir den elektronischen Grundzustand einer Einheitszelle des Materials, also des periodisch wiederkehrenden Grundbausteins eines Kristalls. Dann betrachten wir den Einfall des Lichts, indem wir die Auswirkung elektromagnetischer Felder zusammen mit den Wechselwirkungen jedes Elektrons mit den anderen Elektronen und Atomkernen berechnen – insgesamt haben wir bis zu 19 Atome mit 270 Elektronen berücksichtigt. Durch den Vergleich des sich zeitlich verändernden Elektronenzustands mit dem Grundzustand können wir nachweisen, an welcher Stelle der Struktur und in welchem quantenmechanischen Zustand Energie deponiert wurde.

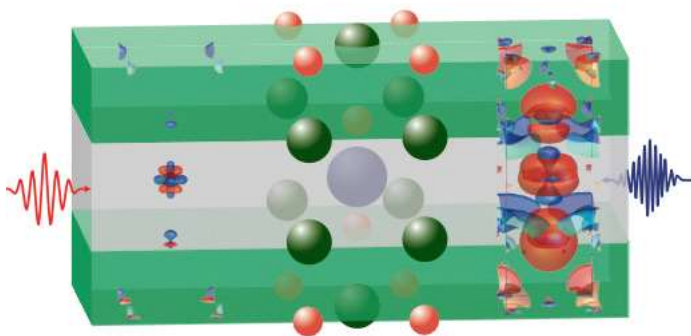
Diese Berechnungen sind sehr rechenintensiv und profitierten stark vom Einsatz hochentwickelter Software und von großen, parallel arbeitenden Hochleistungsrechnern wie dem Supercomputer MagnitUDE an der Universität Duisburg-Essen (Foto oben). In unseren Simulationen haben wir sehr viele einzelne DFT-Berechnungen gemacht, von denen jede mehrere Tage dauerte.



Polarisation parallel zu den Lagen



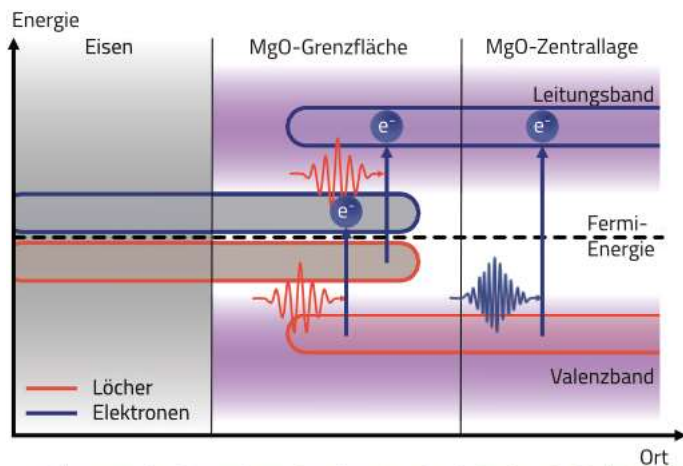
Polarisation senkrecht zu den Lagen



Oben: Laseranregung mit Polarisation des elektrischen Feldes parallel zu den Lagen. Die Auswirkung auf die Ladungsverteilung direkt nach Abklingen des Laserpulses ist für niedrige Anregungsenergie (links) und für hohe Anregungsenergie (rechts) gezeigt.

Unten: Polarisation senkrecht zu den Lagen, ebenfalls für niedrige (links) und hohe Energie der anregenden Photonen (rechts).

Rote Strukturen in der Ladungsverteilung in beiden Abbildungen zeigen eine Abnahme der eingeschlossenen Ladung, blaue eine Zunahme. In der Mitte ist zur Zuordnung der Ladungsverteilungen zu den Atomen jeweils eine Einheitszelle der Heterostruktur gezeigt.



Schematische Darstellung der Energie der Orbitale als Funktion der Atomlage (Ort). Die Photonen des Laserpulses regen Elektronen aus besetzten Orbitalen unterhalb der Fermi-Energie in unbesetzte, darüber liegende Orbitale an (violette Pfeile). Angeregte Elektronen (blauer Rahmen) hinterlassen dabei positiv geladene Löcher (roter Rahmen). Während das Metall durch ein Kontinuum an Zuständen um die Fermi-Energie ausgezeichnet ist (graue Fläche), gibt es im Isolator eine Bandlücke (weißer Bereich) zwischen Valenz- und Leitungsband (lila Flächen). In der Grenzflächenlage existieren jedoch hybridisierte Zustände (graue Streifen), die eine Anregung vom Isolator ins Metall und umgekehrt auch für niedrige Photonenenergien erlauben, die für eine direkte Anregung über die Bandlücke nicht ausreichen.

Prozesse bei der Anregung von Materialien mittels Laserpulsen. Wir berechnen dafür Modelle realer Systeme, wie sie von unseren Kolleg:innen aus der Experimentalphysik untersucht werden.

ANREGUNGEN IN EINER HETEROSTRUKTUR

Unsere Modellsysteme sind Materialkombinationen – sogenannte Heterostrukturen –, in denen sich ultradünne Metall- und Isolatorlagen abwechseln. Sie können besondere Eigenschaften aufweisen, etwa eine stark unterschiedliche Leitfähigkeit innerhalb oder senkrecht zu den Lagen. Als Beispielsystem nutzen wir eine Heterostruktur aus einer Eisen-Lage und drei übereinandergestapelten Lagen des Isolatormagnesiumoxid.

In unserer Simulation regen wir diese Strukturen nun mit unterschiedlichen Laserpulsen an – mit Energie unterhalb und oberhalb der Bandlücke von Magnesiumoxid und mit der Ausrichtung des elektrischen Feldes des Lichts parallel und senkrecht zu den Schichten.

Die Verteilung der Elektronen um die Atome verändert sich nach dem Laserpuls abhängig von Energie und Feldrichtung. Bei niedrigen Photonenenergien und einer Polarisation parallel zur Grenzfläche wird hauptsächlich die Eisenschicht angeregt – bei hohen Energien und senkrechter Polarisation des Lichts vor allem die MgO-Schicht. Diese Ergebnisse zeigen, dass wir die Anregung in dieser Heterostruktur mithilfe der Energie und Polarisationsrichtung des Laserpulses gezielt steuern können.

In einem weiteren Schritt konnten wir einen komplexen Mechanismus identifizieren: An der Grenzfläche zwischen Magnesiumoxid und Eisen gibt es zusätzliche besetzbare Energiezustände. Diese beruhen darauf, dass die möglichen Energiezustände von Eisen und Magnesium dort überlappen. So kann ein Elektron aus dem Valenzband des Magnesiumoxids in einen Leitungsbandzustand des Metalls übergehen und sich von dort in das Metall weiterbewegen. Analog kann an der Grenzfläche ein Elektron aus dem Metall in das Leitungsband des Isolatormagnesiumoxids hinein angeregt werden. Da beide Prozesse gleichzeitig ablaufen, bleibt die Zahl der angeregten Elektronen und der fehlenden Elektronen gleich und die Heterostruktur als Ganzes damit ladungsneutral. Dennoch sehen wir eine Umverteilung der Anregungsenergie vom Metall zum Isolator, da die Zustände der Elektronen im Magnesiumoxid einen viel größeren Energieunterschied aufweisen als im Metall.

RATENGLEICHUNGEN

Eine Ratengleichung beschreibt, wie sich die Besetzung eines Zustands mit der Zeit verändert. Wie schnell diese Veränderung erfolgt – also die Rate – wird durch Ratenkonstanten ausgedrückt. Für diese liefert uns die Quantentheorie eine Beschreibung, in die verschiedene Informationen eingehen, die wir durch die Dichtefunktionaltheorie berechnen können – etwa die Form der Energiebänder oder die Kopplungsstärke der Elektronen an die Phononen. Deshalb können wir mit Ratengleichungen ebenfalls konkrete Materialsysteme modellieren. Das erlaubt uns zu bestimmen, wie lange sich ein Elektron im Mittel in einem bestimmten Energieband aufhält, wie sich die Elektronen auf bestimmte Energiebänder verteilen und wie viele und welche Phononen bei der Energieabgabe der Elektronen produziert werden. Dabei berücksichtigen wir auch die Wechselwirkungen zwischen den Elektronen. Zwar geht dem Elektronensystem insgesamt betrachtet nur durch die Streuung an den Atomen Energie verloren, jedoch beeinflussen die Elektron-Elektron-Stöße, wie die angeregten Elektronen auf die Energiebänder verteilt sind. Davon hängt wiederum ab, wie effektiv sie Phononen produzieren können. Darum benötigt man für einen sinnvollen Vergleich mit experimentellen Ergebnissen eine Ratentheorie, die sowohl die Elektron-Elektron-Streuung als auch die Elektron-Phonon-Streuung in geeigneter Weise berücksichtigt.

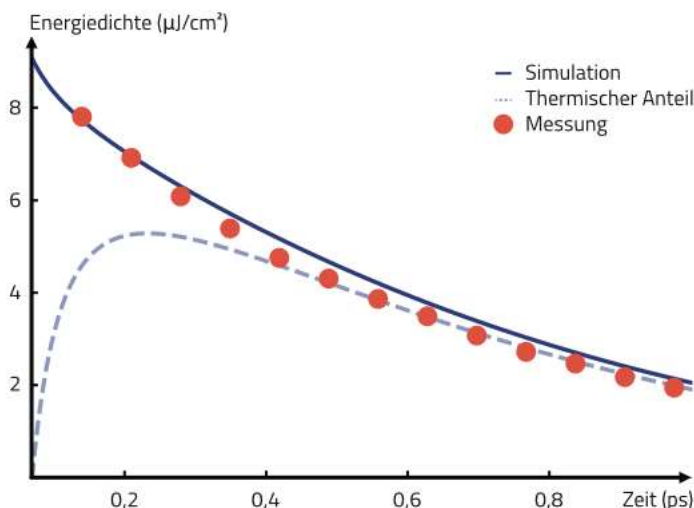
RATENGLEICHUNGEN FÜR LÄNGERE ZEITRÄUME

Um den Verbleib der Energie über – in unserem Kontext – längere Zeiten, also länger als eine Pikosekunde, zu verfolgen, nutzen wir ein weiteres Rechenverfahren, da die Berechnungen der zeitabhängigen Dichtefunktionaltheorie dafür viel zu rechenaufwändig wären. Das Verfahren basiert auf einem System von Ratengleichungen und nutzt zusätzliche Näherungsannahmen.

Solch ein auf Ratengleichungen basierendes Modell haben wir für eine dünne Bleischicht auf Silizium entwickelt und die Simulationsergebnisse mit experimentellen Resultaten verglichen. Dabei bot sich dieses aus fünf Atomlagen bestehende Materialsystem an, weil es sehr kontrolliert hergestellt werden kann und der allmähliche Energieverlust der Elektronen im Blei experimentell gut zu verfolgen ist. Da die Energie des verwendeten

Lichts kleiner als die Bandlücke von Silizium war, konnten weder Elektronen im Silizium angeregt werden, noch konnten die im Blei angeregten Elektronen in das Silizium übergehen. Die Umverteilung der Energie muss daher über die Anregung von Phononen erfolgen, wie sie in den Ratengleichungen beschrieben werden. Deshalb eignet sich dieses Materialsystem sehr gut dazu, Experiment und Theorie zu vergleichen. Es zeigt sich, dass die genauen Berechnungen des Ratenmodells für die Zeit zwischen 0,15 und 0,4 Pikosekunden nach dem anregenden Puls eine verbesserte Übereinstimmung mit den Messwerten liefern. Das bedeutet, dass Elektron-Elektron-Stöße eine kurze, jedoch messbare Zeitspanne benötigen, um ein thermisches Gleichgewicht herzustellen.

Leitung der Projekte:
Markus Gruner, Peter Kratzer, Rossitza Pentcheva



Die berechnete Energiedichte stimmt im Rahmen der Messunsicherheit (angedeutet durch den Radius der Symbole) gut mit den experimentellen Daten überein. Die Energiedichte fällt im Lauf der Zeit ab, weil die Energie über Phononen umverteilt wird.