

SCHWAPPENDE ELEKTRONEN IN GRAPHEN

Elektronen lassen sich in hauchdünnen Graphenstrukturen zu kollektiven Schwingungen anregen. Wie genau diese Schwingungen aussehen und wie sich darüber die optischen Eigenschaften des Kristalls steuern lassen, haben wir in Theorie und Experiment untersucht.

Graphen ist ein spannendes Material, das ein komplett neues Forschungsfeld im Bereich der Physik eröffnet hat. Der Kohlenstoffkristall besteht nur aus einer einzigen Atomlage. Während in herkömmlichen Materialien die Geschwindigkeit der Elektronen von ihrer Energie abhängt, bewegen sich die Elektronen in Graphen mit einer konstanten Geschwindigkeit und verhalten sich damit wie relativistische Teilchen. Dadurch entstehen viele quantenmechanische Effekte, die in anderen Materialien nicht zu beobachten sind und die Graphen seine einzigartigen optoelektronischen Eigenschaften verleihen.

Sind genügend Elektronen im Graphen frei beweglich – beispielsweise durch *Dotierung* –, ermöglicht dies kollektive Schwingungen, sogenannte Plasmonen. Schneidet man das Graphen in Strukturen mit der richtigen Abmessung, lassen sich die Elektronen darin mithilfe von Licht zu solchen Schwingungen anregen. Dabei schwappt das Elektronenkollektiv im Graphen wie Wasser in einer Badewanne hin und her und verändert so die optischen Eigenschaften des Materials.

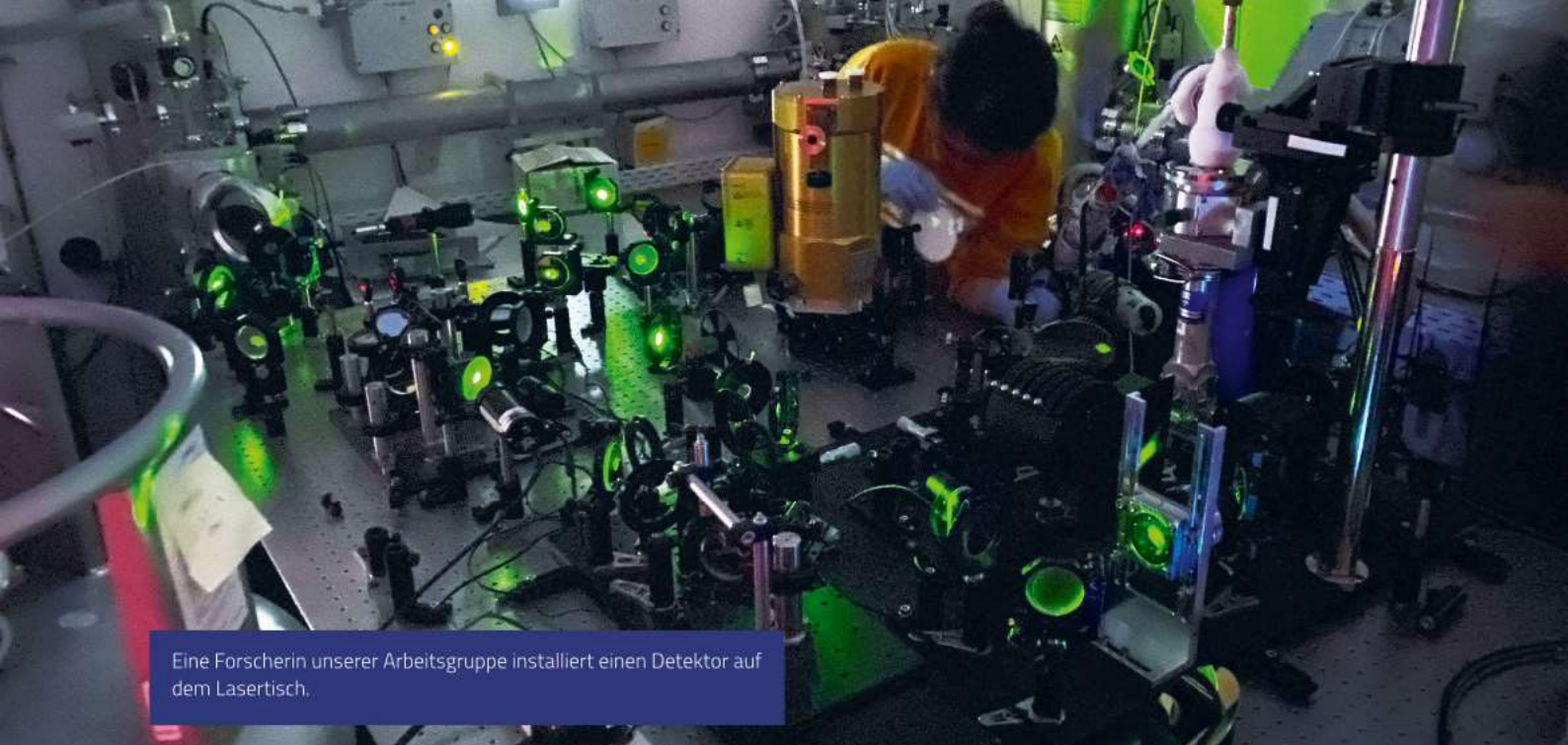
Mit Dotierung wird die Einbringung von Fremdatomen in ein Material bezeichnet. Diese haben eine andere Zahl an Elektronen und stellen so freie Ladungsträger zur Verfügung. In diesem Fall genügt es, dass das Graphen mit der Oberfläche eines anderen Materials in Kontakt ist, um genügend freie Elektronen zu erreichen: Auf Siliciumcarbid werden dadurch etwa 10^{13} Elektronen pro Quadratzentimeter erzielt.



Im ELBE-Zentrum für Hochleistungs-Strahlenquellen am Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf steht die Laserquelle FELBE zur Verfügung.

TRANSMISSION NACH ANREGUNG

Um besser zu verstehen, was genau dabei passiert, haben wir in internationaler Zusammenarbeit mit Universitäten und Forschungseinrichtungen in Deutschland, den USA und Indien verschiedene Graphenproben am Freie-Elektronen-Laser FELBE am Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf (HZDR) untersucht. FELBE erzeugt sehr kurze und intensive Laserpulse, die Anrege-Abfrage-Experimente ermöglichen. Damit haben wir geprüft, wie sich die optischen Eigenschaften von Graphen durch Anregung verändern. Bei unseren ersten Messungen standen vor allem thermische Effekte im Mittelpunkt: Die freien Elektronen im Graphen haben, anders als das Atomgitter, eine sehr niedrige Wärmekapazität. Das bedeutet, dass schon eine kleine Menge zu- beziehungsweise abgeführter Wärmeenergie die Elektronen merklich aufheizt beziehungsweise abkühlt. Bestrahlt man das Graphen mit moderater Intensität, lassen sich so kurzzeitig Temperaturen von über 1000 Kelvin erreichen. Durch die hohen Temperaturen streuen die Ladungsträger stärker, bildlich gesprochen stoßen sie aneinander. Hierdurch



Eine Forscherin unserer Arbeitsgruppe installiert einen Detektor auf dem Lasertisch.

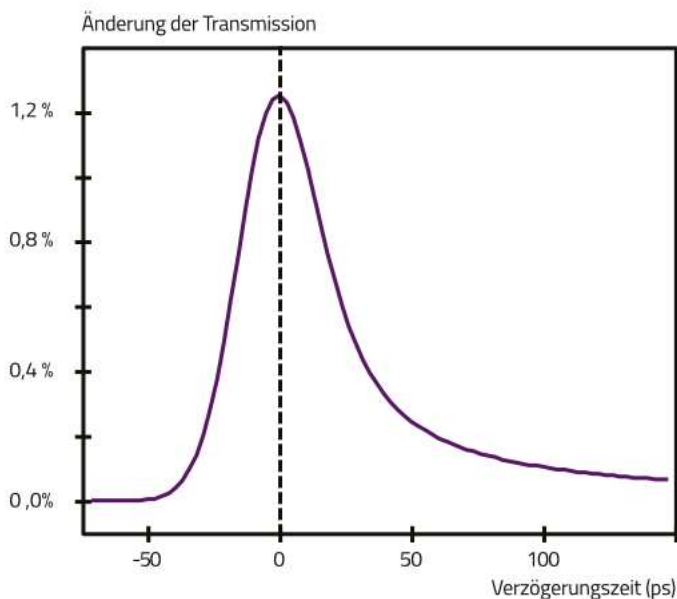
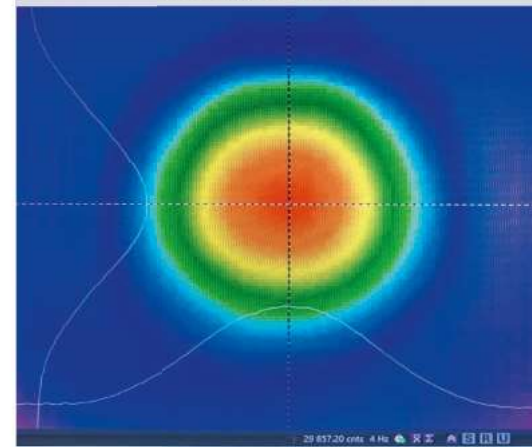
wird die Absorption verringert und mehr Licht kann durch die angeregte Probe dringen – in unserem Fall bis zu zehn Prozent mehr, was für eine einzelne Atomlage ein ausgesprochen starker Effekt ist.

EIN SIMPLES, ABER ERFOLGREICHES MODELL

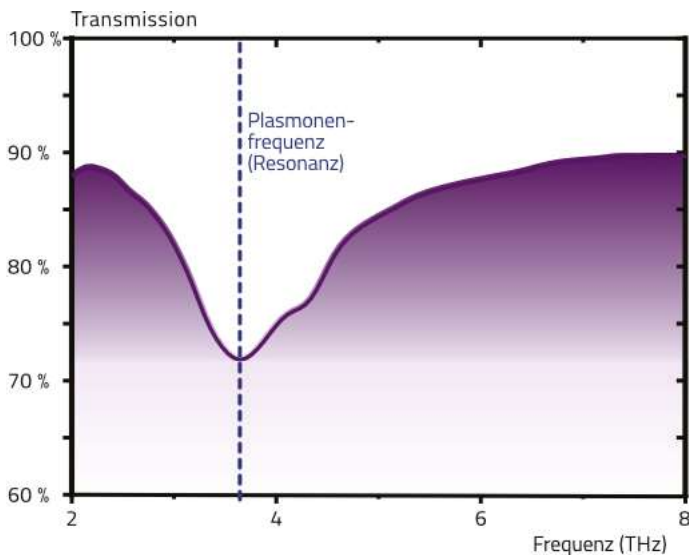
Um die experimentellen Daten besser zu verstehen, haben wir ein numerisches Modell entwickelt. Es basiert auf zwei Temperaturen: Während die Elektronen ihre Temperatur durch Anregung beziehungsweise Abkühlung ändern können, wird das Atomgitter – entsprechend seiner höheren Wärmekapazität – als Reservoir mit konstanter Temperatur angenommen. Indem wir minimale Annahmen zur Abkühlungsgeschwindigkeit der

Elektronen gemacht haben, konnten wir die experimentellen Daten sehr gut reproduzieren. Insbesondere die Abhängigkeit der Signalstärke von der Anregungsintensität konnten wir bestätigen: Die maximale Änderung der Transmission verhält sich in Modell und Experiment proportional zur Wurzel der Anregungsintensität. Trotz seiner Einfachheit erlaubt dieses Modell also abzuschätzen, wie sich die plasmonische Absorption – und damit die Lichtdurchlässigkeit der Probe – durch die Anregung ändert.

Querschnittsprofil des Laserstrahls, mit dem die Graphenproben am FELBE angeregt wurden (Falschfarbendarstellung der Intensität).



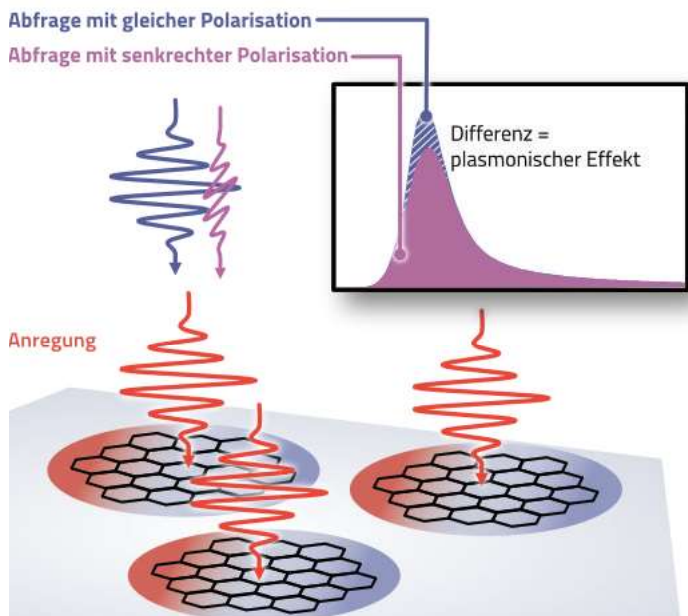
Durch das Aufheizen der Elektronen verringert sich die Frequenz der Plasmonen. Dies hat zur Folge, dass das Anrege-Abfrage-Signal abhängig von der Wellenlänge des Lasers ist. Wird bei Resonanz gemessen – haben also die Laser-Photonen die gleiche Frequenz wie die Plasmonen – sind die Änderungen am deutlichsten zu detektieren. Ist die Photonenfrequenz höher als die der Plasmonen, so sagt das Modell eine Verringerung des Signals voraus. Wenn jedoch die Photonenfrequenz unterhalb der Plasmonenfrequenz liegt, ergibt sich im Modell sogar ein Wechsel des Vorzeichens: Nach der Anregung nimmt in diesem Fall die Transmission nicht zu, sondern ab!



Die Transmission durch die Probe verändert sich mit der Frequenz und ist bei der Resonanzfrequenz von rund 3,5 THz am geringsten.

Diesen Vorzeichenwechsel haben wir an einer neuen Probe mit einer höheren Graphenqualität überprüft. Eine höhere Qualität bedeutet in diesem Fall, dass die Elektronen weniger stark streuen, wodurch die Plasmonen stärker werden und damit auch die Anrege-Abfrage-Signale deutlicher zutage treten. Mit einer erneuten Messung am HZDR haben wir diese Probe mit Anrege-Abfrage-Experimenten bei sechs verschiedenen Photonenfrequenzen untersucht: bei Resonanz, bei zwei darüber- und drei darunterliegenden Frequenzen. Das Experiment bestätigte die Vorhersagen des Modells. Wir können mit ihm also die Än-

In Graphenscheiben lassen sich plasmonische und thermische Effekte mithilfe der Polarisation der Laserpulse trennen: Die Abfrage mit gleicher Polarisation ergibt thermische und plasmonische Effekte, die Abfrage mit senkrechter Polarisation nur thermische Effekte.



derung der optischen Eigenschaften von Graphen in Abhängigkeit vom Anregungspuls vorhersagen.

PLASMONISCHE UND THERMISCHE EFFEKTE

Theoretische Studien legten allerdings auch nahe, dass die Absorption in plasmonischen Graphenstrukturen stark nichtlinear ist. Neben den thermischen Effekten gibt es noch plasmonische Effekte wie den sogenannten Kerr-Effekt. Dabei hängt die Leitfähigkeit, und damit die Stärke der Plasmonen, von der Stärke des elektrischen Feldes ab. In den genannten Experimenten, die an Graphenstreifen durchgeführt wurden, war es nicht möglich, thermische von plasmonischen Effekten zu unterscheiden. Dies haben wir in einem dritten Experiment erreicht: Dazu stellten wir wiederum eine Probe her, die auf dem höherwertigen Graphen basierte – diesmal allerdings in der Form von Scheiben statt von Streifen. So ließ sich die *Polarisation* der Laserpulse mit ins Spiel bringen: Im Gegensatz zu Streifen lassen sich in scheibenförmigen Graphenschichten plasmonische Schwingungen in unterschiedlichen Richtungen anregen (bei Streifen nur, wenn das elektrische Feld der Laserpulse senkrecht dazu steht). Die Änderung der Polarisation erlaubt eine Trennung der plasmonischen und der thermischen Effekte: Wenn der Anregepuls die gleiche Polarisation wie der Abfragepuls hat, tragen sowohl die Aufheizung als auch die elektrischen Felder der Plasmonen zu den Signalen bei. Wenn die Polarisationen der beiden Pulse senkrecht zueinander stehen, schwingen die angeregten Elektronen senkrecht zur Polarisation des Abfragepulses und thermische Effekte dominieren die Signale. Der Unterschied zwischen den zwei Signalen ergibt den isolierten plasmonischen beziehungsweise nichtlinearen Effekt.

Die Polarisation beschreibt die Schwingungsrichtung des Lichts. Bei linearer Polarisation ist sie konstant, bei zirkularer Polarisation ändert sie sich mit konstanter Geschwindigkeit.

Im direkten Vergleich stellte sich heraus, dass die Signale bei gleicher Polarisation etwa 30 Prozent stärker sind als bei gekreuzter Polarisation. Dies bedeutet, dass die Signale, die durch die plasmonische Nichtlinearität verursacht werden, etwa halb so groß sind wie die thermischen Signale. Allerdings entstehen und vergehen die plasmonischen Effekte erheblich schneller als die thermischen.

GRAPHENPLASMONEN ALS SCHNELLE OPTISCHE SCHALTER

Diese Schnelligkeit kann man für Anwendungen im Bereich der nichtlinearen Optik ausnutzen, also beispielsweise zur Herstellung von Strahlungsquellen im Terahertz-Bereich oder von schnellen optischen Schaltern. Hierbei wird ein nichtlineares Medium mit intensiver Strahlung angeregt. Je nach Art der Nichtlinearität und der Geometrie des Materials werden dabei elektromagnetische Wellen mit einem Vielfachen der ursprünglich eingestrahlten Frequenz erzeugt. Dazu müssen allerdings die Effekte schnell genug sein, um während einer Lichtschwingung bereits die Eigenschaften zu ändern. Dies ist mit thermischen Effekten kaum zu schaffen. Die neu untersuchten plasmonischen Nichtlinearitäten könnten daher Anwendungen in diesem Bereich ermöglichen.

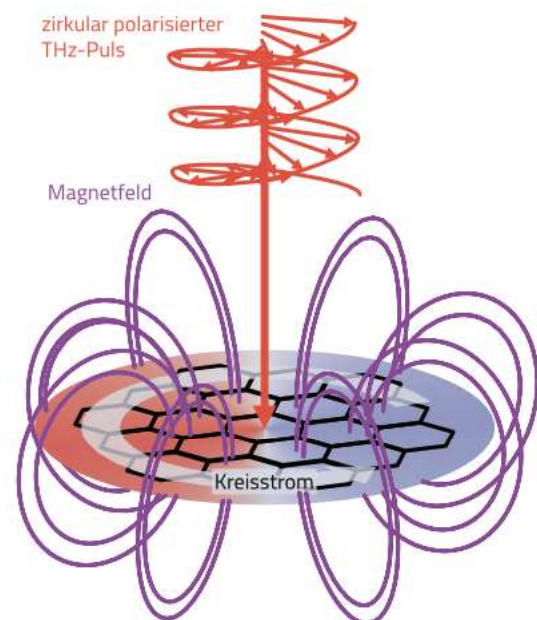
Eine weitere Besonderheit ergibt sich, wenn man die Graphenscheiben mit zirkularer Polarisation bestrahlt. Dann „schwappen“ die Elektronen nicht zwischen zwei Seiten hin und her, sondern bewegen sich im Kreis. Diese zirkularen Plasmonen sind in Graphen mit Kreisströmen verbunden. Dadurch entsteht ein magnetisches Feld, welches sich unterscheidet, je nachdem, ob die Elektronen links- oder rechtsherum laufen. Mit diesem fein einstellbaren Magnetfeld könnte man wiederum Dinge in der Nähe beeinflussen – etwa Quantenpunkte, wie sie beispielsweise auch als Lichtquellen in Fernsehern eingesetzt werden.

Setzt man Graphenscheiben starken Magnetfeldern aus, lassen sich außerdem Magnetoplasmonen beobachten: Dabei folgen die Elektronen nicht mehr nur dem elektrischen Feld des Anregungspulses, sondern werden zusätzlich auf Kreisbahnen abgelenkt. Abhängig von der Ausrichtung des magnetischen Felds verlängert oder verkürzt sich daher der Weg für die Elektronen für einen vollständigen Umlauf um die Scheibe, wodurch die Frequenz dieser sogenannten Magnetoplasmonen sinkt beziehungsweise steigt. Dadurch lässt sich das Magnetfeld nutzen, um die Plasmonenfrequenz in einem weiten Bereich abzustimmen und so auf eine mögliche Anwendung anzupassen.

Projektleitung: Martin Mittendorff



In diesem optischen Magnetkryostat befinden sich die Graphenprobe sowie ein supraleitender Magnet, der mit flüssigem Helium gekühlt wird. Zusätzlich gibt es ein Hitzeschild, das mit flüssigem Stickstoff gekühlt wird. Hier wird dieser gerade nachgefüllt.



Durch einen THz-Puls mit zirkularer Polarisation entstehen Kreisströme und damit verbunden ein Magnetfeld.