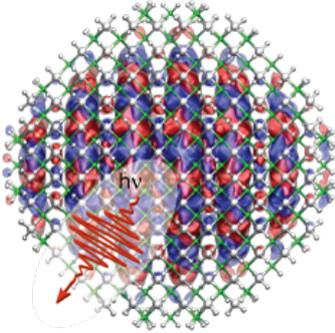


Simulation von legierten kolloidalen Quantenpunkten

AK Gabriel Bester - Theory of Nanoscopic Systems



Ansprechpartner:

Gabriel Bester

gabriel.bester@chemie.uni-hamburg.de

Hintergrund

Halbleiter-Nanokristalle sind kolloidale Quantenpunkte (QP), d.h. Strukturen, in welchen die Beweglichkeit von Ladungsträgern (Elektronen und Löchern) in allen drei Raumdimensionen auf ein Gebiet der Größenordnung nm^3 eingeschränkt ist. Durch den Einschluss ergibt sich in Abhängigkeit von Größe, Form und Material eine gegenüber dem Volumenmaterial vergrößerte Energielücke. Diese QP haben ein sehr breites Anwendungspotential und dienen beispielsweise als Alternative zu organischen Molekülen/Farbstoffen in LEDs, Solarzellen und bei der Markierung von organischem Gewebe.

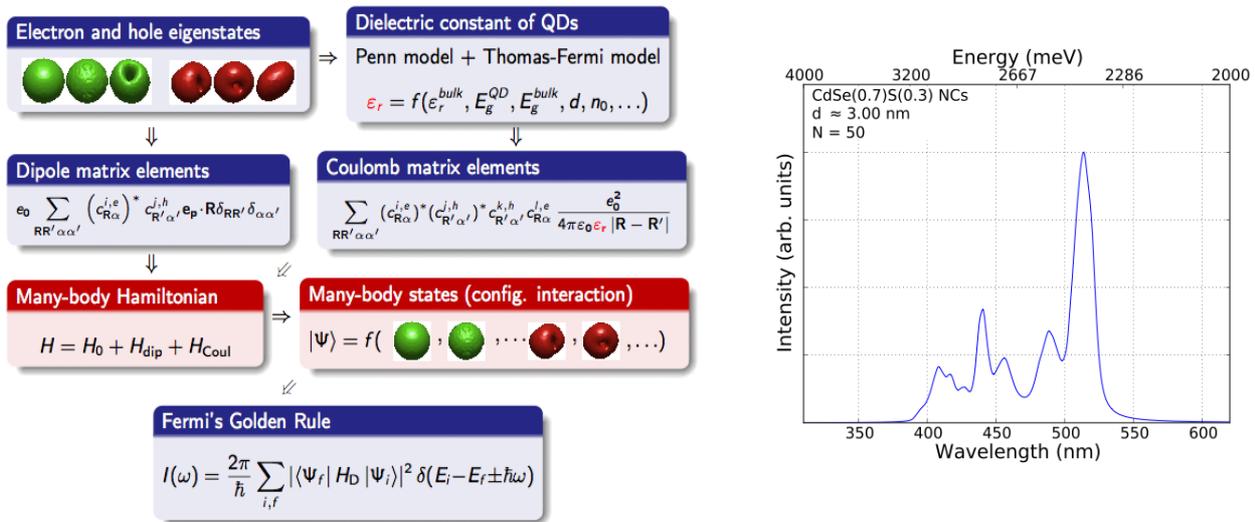
Um Lichtemission im Bereich kürzerer Wellenlängen (ca. 400 bis 500 nm) z.B. mit konventionellen CdSe-QP zu erzielen, muss der Durchmesser dieser Strukturen sehr klein gewählt werden. Dann allerdings ist sowohl die notwendige Passivierung der Oberfläche als auch eine genaue Größenkontrolle sehr schwierig, und man muss sich mit einer geringen Lichtausbeute zufrieden geben. Geht man zu Materialien mit einer größeren Bandlücke wie ZnSe oder CdS über, muss der Durchmesser erhöht werden und die Effizienz ist dann durch den schwachen Einschluss der Ladungsträger begrenzt.

Eine Alternative ist die Benutzung legierter QP, da dann die Emissionswellenlänge zusätzlich durch Variation der Komposition x verschoben werden kann. Beispielsweise ermöglichen $\text{Cd}_x\text{Zn}_{1-x}\text{Se}$ -QP bei einem Durchmesser von ungefähr 3 nm die Abdeckung des sichtbaren Spektrums. In solch kleinen Systemen machen sich durch die Unordnungs-Effekte stark bemerkbar und stellen eine besondere Herausforderung dar.

Im AK Bester werden ausgereifte theoretische Methoden verwendet, um die optoelektronischen Eigenschaften angeregter nanoskopischer Systeme zu berechnen. Als Alternative zu den vorhandenen ab-initio-basierten Methoden wie *DFT-LDA* und *Pseudopotential-Modellierungen* können einfachere Gittermodelle wie das *empirische Tight-Binding-Modell (ETBM)* benutzt werden, um stochastische Ensembles von legierten QP mit Unordnung auf atomarer Skala zu simulieren.

Kürzlich wurde unsererseits gezeigt, dass die optischen Eigenschaften von $\text{CdSe}_x\text{S}_{1-x}$ -QP sehr gut mit Hilfe eines Modells erklärt werden können, welches die Unordnung auf der mikroskopischen Skala stochastisch simuliert. Entsprechende Experimente wurden von der kollaborierenden Gruppe um Zeger Hens an der Universität Gent in Belgien durchgeführt. Es stellt sich heraus, dass das einfache ETBM sowohl die Konzentrationsabhängigkeit der optischen Anregungslücke als auch das Auftauchen zusätzlicher Absorptionsbanden sehr gut reproduzieren kann.

Abbildung: Vielteilchen-Rechenschema und resultierendes optisches Spektrum



Mögliche Aufgabenstellungen für studentische Projekte / Bachelor- / Masterarbeiten für Studierende der Physik, Chemie oder Nanowissenschaften

Die grundsätzliche numerische Implementierung des Modells ist bereits vorhanden und ausgiebig getestet. Mögliche Aufgabenstellungen, die im Rahmen eines studentischen Projekts / Bachelorarbeit / Masterarbeit nach einer Einarbeitungsphase behandelt werden können:

- **Ausweitung der Simulationen auf weitere legierte Materialsysteme.**
- **Ausweitung der Simulationen auf weitere QP-Größen.** Aktuelle Ergebnisse der Gruppe um Zeger Hens zeigen, dass die zusätzlichen Absorptionsbanden ab einer bestimmten QP-Größe verschwinden.
- **Berechnung von Multi-Exziton-Spektren.** Die bisher durchgeführten Rechnungen behandeln lediglich ein angeregtes Elektron und entsprechend ein Loch im QP („Exziton“). Allerdings sind natürlich auch höhere Anregungen möglich, und die entsprechenden Spektrallinien sollten den Effekt der atomaren Unordnung natürlich ebenso „spüren“.
- **Berechnung von Elektron-Phonon-Kopplungen.** Diese beschreiben, wie die Ladungsträger mit dem unterliegenden Ionengitter wechselwirken. Wenn sich Elektronen durch einen QP bewegen, erzeugen sie eine Polarisation, d.h. benachbarten Elektronen werden abgestoßen und benachbarte positiven Atomrümpfe angezogen. Auch hier sollte sich der Effekt von Unordnung und Legierung bemerkbar machen.
- **Ausweitung auf Core/Shell-Systeme.** In solchen ist eine zusätzliche Hülle aus einem weiteren Material vorhanden.
- **Vergleich mit den Ergebnissen aus DFT-LDA (für kleine Systeme möglich) und Pseudopotential-Rechnungen.** Dies ist hilfreich, um die Gültigkeitsgrenzen des ETBM zu verifizieren.