

# Exotische Exzitonen

Besondere energiereiche Exzitonen bewirken Quanteninterferenzeffekte in atomar dünnen Halbleitern.

Torsten Stiehm und Ursula Wurstbauer

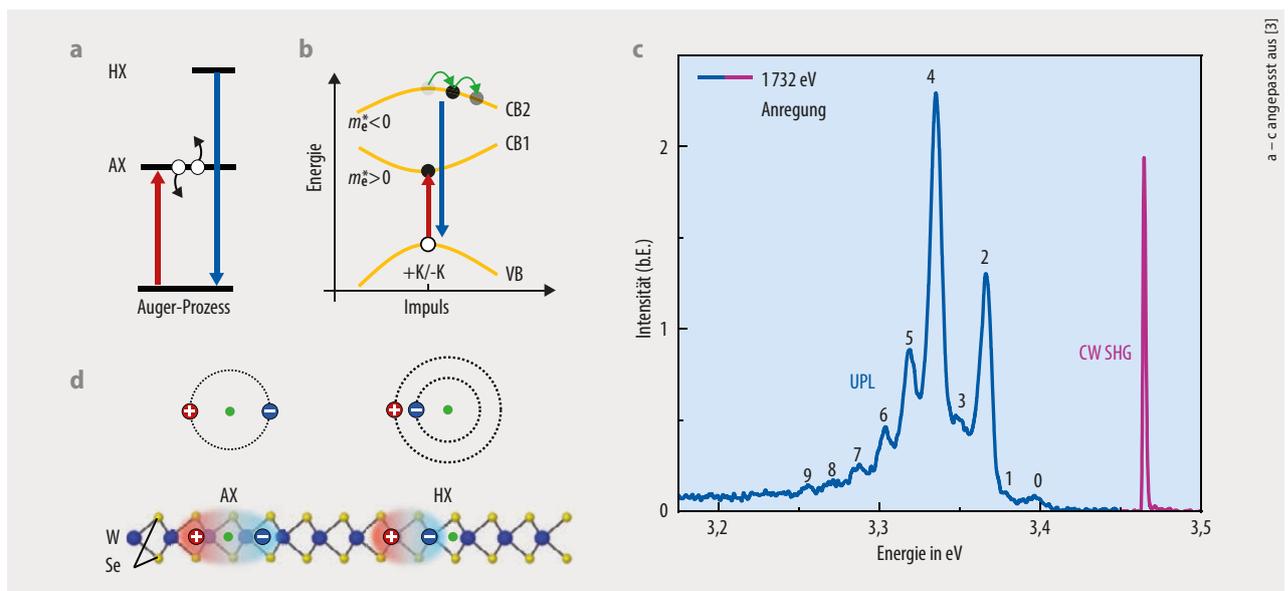
Werden Quantenzustände über unterschiedliche Anregungspfade adressiert, kann es aufgrund des Welle-Teilchen-Dualismus – analog zum Doppelspalt-Experiment – zu Quanteninterferenzen kommen. Eines der wenigen Festkörpersysteme, das Quanteninterferenz zeigt, sind Übergänge zwischen den quantenmechanischen Energieeigenwerten im Quantentrog (Intersubband-Übergänge innerhalb eines Bandes). Technologisch interessant ist unter anderem die Tatsache, dass in diesen Systemen optische Verstärkung ohne Besetzungsinversion auftreten kann. Dies ist die Grundlage, um die mittlerweile weit verbreiteten Quantenkaskadenlaser zu realisieren [1]. Bislang sind diese jedoch auf den Infrarot- und Terahertz-Spektralbereich beschränkt. Insbesondere bei größeren Energien und höheren Temperaturen sind Quanteninterferenzeffekte in Festkörpersystemen aufgrund inho-

mogener Verbreiterung elektronischer Zustände, beispielsweise durch thermische Effekte und Imperfektionen im Gitter, unterdrückt [2].

Quanteninterferenzeffekte im UVA-Spektralbereich zeigten sich erstmals vor wenigen Jahren im atomar dünnen, zweidimensionalen Halbleiter  $\text{WSe}_2$  [2]. Sie gehen darauf zurück, dass atomartige Anregungszustände im Festkörper – sogenannte Exzitonen – eine hohe Oszillatorstärke besitzen und so die Inhomogenitäten im Festkörper ausgleichen. Kürzlich ist es Forschenden aus Regensburg, Dresden, Cambridge (Großbritannien), Tsukuba (Japan), Berkeley und Yale (USA) unter Leitung von John Lupton in Regensburg gelungen, die Existenz exotischer hochenergetischer Exzitonen mit signifikanter Emissionsstärke weit oberhalb der fundamentalen Bandlücke in diesen zweidimensionalen Halbleitern

nachzuweisen [3]. Sie können unter anderem die bereits beobachteten Quanteninterferenzeffekte erklären.

Ein neutrales Exziton ist ein Quasiteilchen, das durch eine Coulomb-Wechselwirkung gebundenes Elektron-Loch-Paar gebildet wird. Exzitonen lassen sich analog zum Wasserstoffatom beschreiben. Ihre Bindungsenergie hängt von der Dimensionalität, der dielektrischen Umgebung und den aus der Krümmung der Bänder resultierenden effektiven Massen der beteiligten Elektron- und Lochzustände ab. Aufgrund der reduzierten Dimensionalität und dielektrischen Abschirmung haben Exzitonen in atomar dünnen 2D-Halbleitern eine besonders große Bindungsenergie von etwa 0,5 eV. Dies übertrifft die Bindungsenergie von Exzitonen in konventionellen 3D-Halbleitern um ein bis zwei Größenordnungen [4]. Dadurch lassen



**Abb. 1** Die HX-Exzitonen werden ähnlich wie in einem Auger-Prozess aufkonvertiert (a). Hierbei sind Valenz- (VB) und Leitungsbänder (CB1 und CB2) mit positiver (CB1) und negativer Krümmung (VB, CB2) beteiligt (b). Das resonante Pumpen von VB zu CB1 fördert die impulsselektive Anregung in das höhere Leitungsband CB2. Im Emissionsspektrum (c), das unter resonanter Dauerstrichanregung mit 1,73 eV entsteht, zeigen sich die aufkonvertierte Photolumineszenz (UPL) mit HX-Linie (0), die Phononenreplika (1 bis 9) sowie die zweite Harmonische (CW SHG). Die gebundenen Elektron-Loch-Paare im zweidimensionalen Kristallgitter (d) bestehen aus einem Elektron mit positiver effektiver Masse (AX) und mit negativer effektiver Masse (HX).

sich in 2D-Halbleitern und daraus aufgebauten Schichtstrukturen viele exzitronische Phänomene ergründen, beispielsweise geladene Exzitonen, Einzelphotonenemitter oder korrelierte Exzitonenensemble [5].

Die neuartige Exzitonen-Gattung zeigte sich in einer Monolage  $\text{WSe}_2$ , die in dünnem hexagonalen Bornitrit eingekapselt ist. Das Exziton besitzt mit 3,4 eV etwa die doppelte Energie des Bandkanten-Exzitons (AX). Daher ist die Rede von einem hochgelegenen Exziton (High-lying Exciton, HX) [2], das mehrere Besonderheiten aufweist:

- Das hochgelegene Exziton entsteht durch resonante optische Anregung eines Elektrons bei 1,73 eV nahe dem AX-Übergang. Das angeregte Elektron wird vom Leitungsband CB1 in ein höhergelegenes Leitungsband CB2 konvertiert, ähnlich dem Auger-Prozess. Das aufkonvertierte Elektron rekombiniert mit dem freien Loch-Zustand im Valenzband unter Emission eines UV-Photons (**Abb. 1a,b**). Da die gemessene Lichtpolarisation nicht von der Kristallrichtung abhängt und aufgrund der Stärke der nichtlinearen Beziehung zwischen Emissions- und Anregungsintensität, kommen die Erzeugung der zweiten Harmonischen (Second Harmonic Generation) und die Zwei-Photonen-Absorption nicht als ursächliche Prozesse für die beobachtete Lichtemission infrage.

- Die hochgelegenen Exzitonen zeichnen sich durch prominente Phononen-Replika aus (**Abb. 1c**). Bei kryogenen Temperaturen sind bis zu zehn Phononen-Replika klar erkennbar, die aus einem mehrstufigen Streuprozess zwischen dem Exziton und Phononen resultieren. Diese Schwingungsmoden des Gitters tragen jeweils eine Energie von  $15,5 \pm 0,1$  meV. Die starke Wechselwirkung zwischen longitudinalen akustischen Phononenmoden und Exzitonen ist eine Besonderheit der HX und zeigt sich nicht im Emissionsverhalten der Exzitonen an der fundamentalen Bandlücke. Das Resultat dieser starken Kopplung könnte die Entstehung von Polaronen sein, also hybrider Quasiteilchen aus einem Exziton und einem Phonon.

- Analog zum AX ist der Dipol des hochgelegenen Exzitons in der Ebene

des 2D-Kristalls orientiert (**Abb. 1d**). Die HX-Emissionslinie ist ähnlich scharf wie die des AX. Das ist erstaunlich, da die Linienbreite höherliegender Emissionskanäle aufgrund vermehrter nichtstrahlender Relaxationskanäle meist zunimmt.

- Der Vergleich der experimentellen Ergebnisse mit ab-initio-Berechnungen offenbart eine weitere Besonderheit: Das höherliegende Leitungsband CB2 besitzt eine negative Krümmung (**Abb. 1b**). Aus diesem Grund relaxieren die angeregten Elektronen vom Maximum weg (grüne Pfeile), was die Phononen-Replika erklärt. Die negative Krümmung resultiert in einer negativen effektiven Elektronenmasse, aufgrund derer sich Elektron und Loch des hochgelegenen Exzitons in unterschiedlichen Kreisbahnen um einen gemeinsamen Massenschwerpunkt außerhalb ihrer Verbindungslinie bewegen (**Abb. 1d**). Damit unterscheiden sie sich von „konventionellen“ Exzitonen wie den AX, bei denen sich der Massenschwerpunkt zwischen Elektron und Loch befindet (**Abb. 1d**).

Die Entstehung und die besonderen Eigenschaften hochgelegener Exzitonen sind generisch für die Klasse der halbleitenden Übergangsmetall-dichalkogenide, zu der auch  $\text{WSe}_2$

gehört. Die resonante Anregung des fundamentalen Interbandübergangs beim AX treibt den eingangs beschriebenen Quanteninterferenzeffekt zur Aufkonversion zum HX. Die HX-Energie lässt sich entweder durch die dielektrische Umgebung oder auch durch geschickte Einbettung in Mehrlagensysteme beeinflussen [6]. So könnten exzitronische Multi-Niveau-Strukturen entstehen, die großes Potenzial für die Entwicklung neuartiger zweidimensionaler Laser ohne Besetzungsinversion aufweisen und auch für die Umsetzung optischer Quanteninformationssysteme interessant sind.

- [1] J. Faist et al. *Nature* **390**, 589 (1997)
- [2] K.-Q. Lin et al. *Nat. Phys.* **15**, 242 (2019)
- [3] K.-Q. Lin et al. *Nat. Commun.* **12**, 5500 (2021)
- [4] A. Chernikov et al. *Phys. Rev. Lett.* **113**, 076802 (2014)
- [5] N. Wilson et al. *Nature* **599**, 383 (2021) und L. Sigl et al. *Phys. Rev. Res.* **2**, 042044(R) (2020)
- [6] K.-Q. Lin et al. *Nature Commun.* **12**, 1553 (2021)

## Die Autor:innen

**Dr. Torsten Stiehm** und **Prof. Dr. Ursula Wurstbauer**, Physikalisches Institut, Universität Münster, Wilhelm-Klemm-Str. 10, 48149 Münster

## Kurzgefasst

### Schützende Masken

Forschende des MPI für Dynamik und Selbstorganisation in Göttingen haben die Wirksamkeit medizinischer Masken gegen eine Infektion mit SARS-CoV-2 untersucht. Dazu bestimmten sie experimentell die Dichtheit der Masken und berechneten das Ansteckungsrisiko: OP-Masken reduzieren dieses nur halb so gut wie schlecht sitzende FFP2-Masken. Mit einer optimal sitzenden und fixierten FFP2-Maske liegt das Infektionsrisiko auch in kurzer Distanz zu einer infizierten Person nur im Promillebereich.

G. Bagheri et al., *PNAS* **118**, e2110117118 (2021)

### Revolution in der Bildgebung

Ein internationales Forschungsteam hat an der Neutronenquelle FRM II der TU München ein bildgebendes Verfahren entwickelt, das Neutronen mit dreimal besserer räumlicher Auflösung und siebenmal weniger Rauschen detektiert. Dazu weist das

Team die Photonen, welche die Neutronen im Szintillationsdetektor erzeugen, einzeln nach. Dieses Verfahren könnte auch Röntgenaufnahmen deutlich verbessern.

A. S. Losko et al., *Sci. Rep.* **11**, 21360 (2021)

### Egoistisch optimiert

Forschende aus Düsseldorf, Darmstadt und Garching haben die Gruppendynamik kommunizierender aktiver Teilchen untersucht. Dazu nutzten sie das Verhalten von Pinguinen, die sich in der Antarktis gegenseitig in Gruppen wärmen. Dabei suchen alle egoistisch ihre Wohlfühltemperatur – und optimieren so die Gruppe. Das lässt sich mit Dreikörperkräften beschreiben und trifft auch auf Bakterien zu.

A. V. Zampetaki et al., *PNAS* **118**, e2111142118 (2021)



Adobe Stock / aussieanoux