BRENNPUNKT

Parameter des Mikroskops (Abb. 1b). Danach optimierten sie die Atompositionen. Die Varianz der Intensitätswerte beträgt etwa ein Zehntel des Wertes, der bei Hinzufügen eines weiteren Atoms zu erwarten wäre. Simulationsrechnungen zeigten zudem, dass sich nicht nur die Anzahl der Atome in einer Säule, sondern auch ihre Reihenfolge (Mg-O-Mg-O bzw. O-Mg-O-Mg) anhand der Intensitätsverläufe im Bild unterscheiden lassen. Die quantitative Auswertung der Daten liefert ein Strukturmodell, das zusätzlich zu den *x*-*y*-Positionen der Atomsäulen auch die atomare Struktur der Oberflächen zeigt (Abb. 2). Dabei sind Positionen mit halber Besetzungswahrscheinlichkeit zu erkennen, die sich aufgrund weiterer Rechnungen als Kohlenstoffkontaminationen erwiesen [2].²⁾

Für die Anwendung der neuen Methode ist es erforderlich, dass die Unterschiede zwischen Bildern für verschiedene mögliche Strukturen größer sind als das "Rauschen" in jedem einzelnen Bild, das von der Statistik der detektierten Elektronenzahl in den einzelnen Bildpunkten herrührt. Die Annahme, dass sich alle Atome auf einem diskreten Gitter befinden, erlaubt es, zwischen unterschiedlichen Atomen auf den Gitterplätzen zu unterscheiden. Dafür ist neben einem aberrationskorrigierten Elektronenmikroskop und einem guten Kamerasystem auch ein Mindestunterschied der Ordnungszahlen der beteiligten Elemente erforderlich. Wie sich nun gezeigt hat, reicht der Unterschied zwischen Mg (Z=12) und O (Z=8) aus [2].

Mit der Entwicklung neuer Techniken, wie Elektronenmikroskopie bei niedrigen Beschleunigungsspannungen und gekühlten Proben, sollten weitere Verbesserungen des neuen Verfahrens möglich sein. Besonders interessant ist die neue Methode für die Untersuchung der zeitlichen Veränderungen von Probenstrukturen, deren Rekonstruktion aus mehreren Aufnahmen naturgemäß nicht möglich ist.

Helmut Kohl

- [1] S. van Aert et al. Nature 470, 374 (2011)
- [2] C. L. Jia et al., Nature Materials 13,
- [3] A. Thust, Phys. Rev. Lett. 102, 220801
- [4] K. Urban, Physik. Blätter, März 1990, S. 77
- [5] H. Rose, M. Haider und K. Urban, Physik. Blätter, Mai 1998, S. 411
- [6] C. L. Jia, L. Houben, A. Thust und J. Barthel, Ultramicr. 110, 500 (2010)

schuss in Kohlenstoff umwandeln. Darüber hinaus liegen die Proben auf dünnen Kohlenstoff-Filmen

2) Auf den Proben lagern sich beim Transport

durch die Luft und im

Vakuum (kein Ultrahochvakuum) Kohlen-

unter Elektronenbe-

wasserstoffe ab, die sich

- 1044 (2014)
- (2009)

Prof. Dr. Helmut Kohl, Physikalisches Institut, Universität Münster, Wilhelm-Klemm-Str. 10, 48149 Münster

Perfektion aus Namibia

In einem natürlichen Cu₂O-Kristall ließen sich ausgedehnte Materieanregungen, sog. Rydberg-Exzitonen, mit bislang unerreichter Klarheit und Perfektion nachweisen.

n Halbleitern treten Anregungen auf, bei denen ein Elektron im Leitungsband mit einem unbesetzten Zustand im Valenzband ("Loch") über das attraktive Coulomb-Feld ein neues Quasiteilchen bildet. In Analogie zu einem Wasserstoffatom lässt sich ein solches Exziton mit dem Bohrschen Atommodell (beziehungsweise einer analogen Schrödinger-Gleichung) beschreiben. Hierbei nimmt das Loch die Rolle des Atomkerns ein. Jakow Frenkel diskutierte das Konzept des Exzitons bereits 1930 für stark lokalisierte Zustände [1]. Die Lichtemission in vielen organischen Polymeren oder Kristallen basiert auf diesen Frenkel-Exzitonen, die in der Regel bis weit über Raumtemperatur thermisch stabil sind. Gregory Wannier und Nevill Mott erweiterten 1937/38 das Konzept auf ausgedehnte Zustände, wie sie meist in anorganischen Halbleitern vorliegen [2, 3]. Diese Wannier-Mott-Exzitonen wurden 1952 von Evgenii Gross und Nury Karryjew erstmals experimentell in

Cu₂O nachgewiesen [4]. Aufgrund der modifizierten Massen der Ladungsträger im Kristall ("effektive Massen") sowie der dielektrischen Umgebung ist die Bindungsenergie von Wannier-Exzitonen im Vergleich zum Wasserstoffatom deutlich reduziert und liegt typisch im Bereich von einigen wenigen bis 100 meV (verglichen mit 13,6 eV im H-Atom). Deshalb sind diese für anorganische Halbleiter typischen Wannier-Exzitonen über viele Gitterplätze delokalisiert und oft nur bei tiefen Temperaturen zu beobachten.

In Analogie zum Wasserstoffatom hat auch ein Exziton nicht nur einen gebundenen Grundzustand, sondern - zumindest theoretisch – eine physikalisch reiche Schalenstruktur mit sukzessive abnehmenden Energieabständen. Hierbei sind Zustände mit großen Hauptquantenzahlen n von besonderem Interesse: Sie haben zum einen eine sehr große Lebensdauer im Nanosekundenbereich und sind zum anderen räumlich stark ausgedehnt. Diese beiden Eigenschaften machen es möglich, ausgeprägte nichtlineare Effekte bereits auf der Skala von einzelnen Exzitonen zu beobachten. Will man exzitonische Zustände in diesem Rydberg-Regime mit großen *n* sehr genau vermessen, ergeben sich jedoch sehr schnell Limitierungen: Anders als atomare Übergänge, deren spektrale Breite nahezu ideal nur durch ihre Lebensdauer gemäß der Energie-Zeit-Unschärfe gegeben ist ($\Delta E \cdot \Delta \tau \gtrsim \hbar$), sind exzitonische Emissions- und Absorptionslinien in der Regel stark verbreitert. Neben Inhomogenitäten in der Kristallzusammensetzung liegt das an der Wechselwirkung mit Gitterschwingungen (Phononen), die das Potential der Exzitonen "stören" und somit zu schnellen Energieschwankungen führen, sowie an der Wechselwirkung mit anderen Ladungsträgern im Kristall. Da sich die räumliche Ausdehnung von Wannier-Mott-Exzitonen im Rydberg-Regime über eine große Zahl von Gitterplätzen (bis zu meh-



Im Absorptionsspektrum des Cu₂O-Kristalls ließen sich exzitonische Resonanzen bis zur Hauptquantenzahl n = 25 auflösen. Angesichts der Reinheit des Kristalls sind die Linienbreiten der Resonanzen nahezu durch die strahlende Lebens-

reren zehn Milliarden) des Festkörpers erstreckt, können somit selbst kleinste Verunreinigungen die Sichtbarkeit der exzitonischen Signale signifikant verschlechtern.

Einem Forscherteam aus Dortmund und Rostock ist es nun gelungen, beide Limitierungen hinter sich zu lassen und Exzitonen in einem Cu₂O-Kristall bis hin zur 25. Hauptschale nachzuweisen (Abb.) [5]. Dies ist besonders beeindruckend angesichts der Tatsache, dass bislang in Cu₂O bei n = 12Schluss war und sich in GaAs, dem Halbleiter-Modellsystem in der Optoelektronik, Exzitonen lediglich bis n = 3 beobachten ließen.

Die erste Beobachtung dieser Festkörperanregungen mit extrem hohen Quantenzahlen, die in Analogie zur Atomphysik als Rydberg-Exzitonen bezeichnet werden, setzte mehrere "Zutaten" voraus: Ein Abkühlen der Probe auf 1,2 Kelvin konnte den Einfluss von Phononen minimieren. Außerdem ermöglichte es ein Laser mit einer extrem kleinen spektralen Linienbreite dauer limitiert. Um die Resonanzen mit großem *n* spektral fein auflösen zu können, wurden Absorptionsmessungen bei Tieftemperatur mit einem schmalbandigen kontinuierlich verstimmbaren Laser durchgeführt.

von fünf Nanoelektronenvolt, der die Resonanzen selektiv anregte, selbst schwache, eng beieinanderliegende Signale spektral aufzulösen. Schließlich war die Probe eine besondere: Der Cu₂O-Kristall stammt aus der Tsumeb-Mine (wörtlich: "Ein großes Loch in den losen Boden gegraben") in Namibia und ist von einer deutlich besseren Qualität als künstlich gezüchtete Kristalle.

Aufgrund des riesigen Bohrschen Radius der Rydberg-Exzitonen von rund einem Mikrometer eignen sich diese Quantenobjekte hervorragend, um Wechselwirkungseffekte zu untersuchen. Die Autoren studierten die Leistungsabhängigkeit der Exzitonresonanzen in dem Cu₂O-Kristall und machten eine verblüffende Entdeckung: Die Absorptionssignale werden mit zunehmender Anregungsstärke schwächer. Eine schlüssige und quantitative Erklärung des Phänomens liefern die Autoren gleich mit: Die Ursache ist in der starken Dipol-Dipol-Wechselwirkung der Rydberg-Exzitonen zu suchen.

Sobald ein Exziton angeregt ist, lässt sich bei dieser Energie wegen der durch die Wechselwirkung verursachten Energieverschiebung kein weiteres in der unmittelbaren Umgebung anregen. Bei konventionellen Exzitonen ist dieser Effekt kaum beobachtbar, da diese im Kristall lediglich ein Volumen von wenigen Kubiknanometern einnehmen. Aufgrund des riesigen Volumens der Rydberg-Exzitonen tritt diese Blockade jedoch sehr dominant in den Vordergrund, wie das durchgeführte Experiment eindrucksvoll zeigt.

Außer Frage steht, dass die Arbeit von Kazimierczuk et al. aufgrund der Klarheit und der Einprägsamkeit der Ergebnisse als ein Paradebeispiel der modernen Festkörperspektroskopie und der Physik im Allgemeinen gelten kann. Die erstmalige Identifikation von Rydberg-Exzitonen in einem Festkörper rückt nun eine Reihe weiterführender, aufregender Experimente in den Bereich des Möglichen: Die Rydberg-Blockade könnte beispielsweise direkt zum optischen Schalten eingesetzt werden. Da Exzitonen Bosonen sind, könnte man zudem im gleichen Kristall ein Bose-Einstein-Kondensat aus Exzitonen erzeugen [6], das an das Rydberg-Exziton koppelt. Somit könnte man Wechselwirkungsmechanismen zwischen Quantenfluiden und diskreten Quantensystemen [7] direkt im Halbleiter untersuchen.

Christian Schneider und Sven Höfling

- [1] J. Frenkel, Phys. Rev. 37, 1276 (1931)
- [2] G. H. Wannier, Phys. Rev. 52, 191 (1937)
 [3] N. F. Mott, Trans. Faraday Soc. 34, 500
- (1938)
 [4] E. F. Gross und N. A. Karryjew, Dokl.
- Akad. Nauk SSSR **84**, 471 (1952)
- [5] *T. Kazimierczuk*, Nature **514**, 343 (2014)
- [6] H. Stolz, New Journal of Physics 14, 105007 (2012)
- [7] J. B. Balewski et al., Nature 502, 664 (2013)