

Photoemission von organischen Molekülfilmen

Projektnummer: P27649-N20

Die letzten Jahre haben ein gestärktes Interesse an winkelaufgelöster Photoemissionsspektroskopie (ARPES) an organischen Molekülfilmen gezeigt, eine Entwicklung, die von zwei Umständen angetrieben wurde. Zum einen, konnte gezeigt werden, dass für organische Molekülfilme die Näherung einer ebenen Welle für den Endzustand des Photoemissionsprozesses überraschend gute Ergebnisse liefert. Diese einfache Näherung bietet den Vorteil, dass das Übergangsmatrixelement als Fouriertransformation des Anfangszustandes verstanden werden kann, was aufgrund der einfachen Interpretierbarkeit der experimentellen Ergebnisse eine Vielzahl von Anwendungen erlaubt. Auf experimenteller Seite wiederum, kam es zu Verbesserungen und Neuentwicklungen in der Instrumentierung, die eine effizientere Messung des winkelaufgelösten Photostroms über einen sehr großen Winkelbereich erlauben (werden). In Kombination mit Synchrotronstrahlungsquellen werden in Zukunft damit auch systematische Untersuchungen der Abhängigkeit des Photostroms von der Photonenenergie sowie des Polarisationszustandes des anregenden Lichtes möglich. Das vorliegende Projekt baut auf den Ergebnissen der Vorgängerstudie FWF-P23190-N16 "Understanding photoemission of organic molecular films" auf. In diesem Projekt wurde die Auswertung des Übergangsmatrixelements für den Photoemissionsprozess an mehreren Stellen vereinfacht. Zum einen wurde der Anfangszustand durch Kohn-Sham Orbitale mit einer semi-lokalen Näherung für das Austausch-Korrelationspotential genähert. Zum anderen wurde die Polarisation des einfallendes Lichtes als linear polarisiert angenommen, und schließlich wurde der Endzustand des emittierten Elektron als ebene Welle approximiert. Das vorliegende Projekt setzt sich zum Ziel, eine quantitative Beschreibung der winkelaufgelösten Photoemission zu erreichen, indem die oben erwähnten Limitierungen in der theoretischen Behandlung überwunden werden. Das bedeutet, dass (A) die Beschreibung des Anfangszustandes in Bezug auf Bandenergien und Wellenfunktionen verbessert wird, (B) Streueffekte beim Endzustand berücksichtigt werden, und (C) die Abhängigkeit des Matrixelements vom Polarisationszustandes des anregenden Lichts genauer untersucht wird. Zu Punkt (A) werden zum einen Hybridfunktionale zum Einsatz kommen, und zum anderen, auch Quasiteilchenkorrekturen berechnet werden, um eine verlässliche Beschreibung der Anfangsenergien zu gewährleisten. Darüber hinaus wird auch untersucht, wie sich unterschiedliche Austausch-Korrelationsfunktionale bzw. selbst-konsistent berechnete Quasiteilchen Korrekturen auf die räumliche Form der Wellenfunktionen von organischen Molekülschichten auswirken, die wiederum die Übergangswahrscheinlichkeiten beeinflussen. Für den Endzustand der Photoemission (B) werden Streueffekte berücksichtigt, indem die Lippmann-Schwinger Gleichung bis zur 1. Ordnung gelöst wird. Durch die Berücksichtigung des Streupotentials werden Resonanzen im Endzustand und somit dynamische Effekte beschrieben, und auch eine quantitative Behandlung der Winkelabhängigkeit des Photostroms ermöglicht. Bezüglich der Polarisationsabhängigkeit (C) wird das Projekt insbesondere die theoretische Beschreibung auf zirkular polarisiertes Licht erweitern, wodurch der zirkulare Dichroismus in der Winkelverteilung, der sogenannte CDAD-Effekt, untersucht werden kann. Dieser CDAD-Effekt ist in besonderem Maße dazu geeignet, Endzustandseffekte herauszustreichen, die über den Ebene-Wellen-Ansatz hinausgehen. Darüber hinaus wurde kürzlich vorgeschlagen, dass CDAD-Untersuchungen dazu geeignet sind die volle Phaseninformation des Anfangszustandes experimentell zu bestimmen.