

Press release**Universität Konstanz****Helena Dietz**

01/03/2022

<http://idw-online.de/en/news786207>Cooperation agreements, Research results
Chemistry, Electrical engineering, Information technology, Materials sciences, Physics / astronomy
transregional, national**Schnappschüsse aus der Quantenwelt****Eine Forschungsk Kooperation mit Beteiligung der Universität Konstanz kann mit neuer Spektroskopie-Methode optisch bislang nicht unterscheidbare Spin-Zustände auslesen**

Der Wechsel zwischen Singulett- und Triplett-Zustand von Elektronenpaaren in ladungsgetrennten Zuständen spielt in der Natur eine wichtige Rolle. Vermutlich kann auch der Kompass von Zugvögeln mit dem Einfluss des Erdmagnetfeldes auf das magnetische Wechselspiel zwischen diesen beiden Spin-Zuständen erklärt werden. Dieser Quantenprozess war bislang optisch nicht direkt verfolgbar und konnte im Endprodukt nur summarisch ausgewertet werden. Eine Forschungsk Kooperation mit Prof. Dr. Ulrich Steiner von der Universität Konstanz sowie Forschenden der Universitäten Würzburg und Novosibirsk (RUS) stellt in der aktuellen Ausgabe des Wissenschaftsjournals Science mit der Pump-Push-Puls-Technik eine Methode vor, mit der es zum ersten Mal möglich ist, den zeitlichen Verlauf der Singulett/Triplett-Einstellungen optisch zu bestimmen. Dies eröffnet neue Wege etwa im Bereich organischer Solarzellen, aber auch für Qubits in Quantencomputern.

Normalerweise besetzen Elektronen in einem Molekül die quantentheoretisch möglichen Bahnen paarweise. Dabei ist die Eigenschaft des Eigendrehimpulses der Elektronen, ihres sogenannten Spins, von entscheidender Bedeutung. Nach dem Pauli-Prinzip der Quantentheorie können zwei Elektronen nur dann auf der gleichen Bahn laufen, wenn ihr Spin antiparallel ist. Dreht sich das eine Elektron rechtsherum, muss sich das andere linksherum drehen. Im molekularen Grundzustand sind in der Regel alle Elektronenspins gepaart. Durch Lichtanregung wird ein einzelnes Elektron aus der Paarkonstellation gelöst und auf ein energetisch höheres Niveau gehoben, wo es allein eine freie Bahn besetzt. Von hier kann es dann weiter auf eine freie Bahn in einem geeigneten Nachbarmolekül überspringen.

Das Ergebnis stellt eine photo-induzierte Elektronübertragung dar. Die beiden vereinzelt Elektronen können nun durch magnetische Wechselwirkung mit ihrer Umgebung ihre Spin-Einstellung unabhängig voneinander verändern, da sie nicht mehr durch das Pauli-Prinzip eingeschränkt sind.

Die beiden verwaisten Elektronen bilden ein Radikalpaar

Eine solche Ladungstrennung durch photo-induzierte Elektronenübertragung findet beispielsweise auch bei der Photosynthese statt. Die Energie des übertragenen Elektrons nimmt bei diesem Schritt nur wenig ab, sodass der größte Teil der anfänglich durch die Lichtanregung aufgenommenen elektronischen Energie noch erhalten ist. Diese ursprüngliche Anregungsenergie ist somit in chemischer Form gespeichert. Der ladungsgetrennte Zustand mit den beiden verwaisten Elektronen wird in der Chemie auch als Radikalpaar bezeichnet.

Sind die Spins der beiden vereinzelt Elektronen parallel ausgerichtet, spricht man von einem Triplett-Zustand, sind sie antiparallel ausgerichtet, von einem Singulett-Zustand des Radikalpaares. Durch die freie individuelle Entwicklung der beiden Spins wechselt der Spin-Zustand des Radikalpaares zwischen Singulett- und Triplett-Zustand hin und her. Da energetisch zwischen diesen Spin-Ausrichtungen kein großer Unterschied besteht, waren sie bislang optisch nicht direkt unterscheidbar.

Eine Energiestabilisierung des Radikalpaars kann erfolgen, indem das Radikalelektron vom sogenannten Akzeptor-Molekül wieder zurückspringt zum sogenannten Donor-Molekül, und sich so unter Wärmefreisetzung der ursprüngliche Singulett-Zustand wieder zurückbildet. Damit es sich jedoch wieder mit dem ursprünglichen Partnerelektron paaren kann, muss sein Spin zu diesem entgegengesetzt geblieben sein, was durch eine zwischenzeitlich mögliche Spin-Umorientierung nicht unbedingt der Fall ist. Hat es aktuell eine andere Einstellung, kann es zwar nicht auf seine ursprüngliche Bahn zurück, aber durch Übergang in eine andere, noch freie tiefere Bahn ebenfalls Energie abgeben. Es bildet sich so ein Triplett-Produkt, das von dem Singulett-Produkt optisch unterschieden werden kann.

Radikalpaar als Modell für Qubits und den Magnetfeldsensor von Zugvögeln

Die Phase, in der die Radikalpaare zwischen den Singulett- und dem Triplett-Zustand hin- und herpendeln, ist in vielerlei Hinsicht von besonderem Interesse. Da es sich um eine quantenmechanisch gesteuerte kohärente Bewegung handelt, ist sie grundsätzlich, etwa durch ein äußeres Magnetfeld, kontrollierbar. Mit solchen Bewegungen werden beispielsweise in der Physik Quantenrechner realisiert. „Unser Radikalpaar kann als Modell für Qubits dienen, wie sie in Quantenrechnern als Elemente vorhanden sind, oder für das Verständnis der Funktion von Radikalpaaren in dem eingangs erwähnten biologischen Kompassmodell von Zugvögeln. Aus solchen Gründen ist es von Interesse zu wissen, wie der Spin in diesem Prozess gerade steht“, sagt Ulrich Steiner, der zu Photokinetik und Spin-Chemie forscht.

„Pump-Push-Puls“-Technik ermöglicht die Bestimmung von Singulett/Triplett-Einstellungen

Die Forschungskooperation hat mit der sogenannten „Pump-Push-Puls“-Technik ein Verfahren entwickelt, mit dem es zum ersten Mal möglich ist, die Singulett/Triplett-Einstellungen zu bestimmten Zeitpunkten auszulesen. Zunächst wird mit einem sogenannten Pump-Laser-Puls der Elektronentransfer vom Donor- zum Akzeptor-Molekül initiiert. Dabei entsteht der ladungsgetrennte Zustand mit Singulett-Spin. Die ungepaarten Elektronen-Spins können sich nun entwickeln. Nach einer gewissen Zeit wird ein zweiter Laser-Puls hinterhergeschickt.

„Durch diesen, sogenannten Push-Laser-Puls wird wieder ein Elektron vom Akzeptor zum Donor zurückübertragen, wobei der zweite Laserpuls das System zwingt, sofort die Entscheidung zwischen Triplet- oder Singulett-Produktbildung zu treffen, wofür sich das Radikalpaar normalerweise mehrere Spin-Oszillationsperioden Zeit lassen würde“, sagt Ulrich Steiner, der zusammen mit seinem russischen Kollegen die Interpretation der Experimente durch quantentheoretische Modellrechnungen belegt hat. Auf diese Weise lassen sich quasi Schnappschüsse des Spin-Zustandes des Radikalpaares zu verschiedenen Zeitpunkten aufnehmen.

Faktenübersicht:

- Originalpublikation: David Mims, Jonathan Herpich, Nikita N. Lukzen, Ulrich E. Steiner, Christoph Lambert. Readout of spin quantum beats in a charge-separated radical pair by pump-push spectroscopy, 16 Dezember 2021 • Vol 374, DOI: 10.1126/science.abl4254
- Dazu der Perspective article: P. J. Hore, Radical quantum oscillations, DOI:10.1126/science.abm9261
- Forschungskooperation der Universitäten Konstanz, Würzburg und Novosibirsk (RUS) kann mit neu entwickelter Spektroskopie-Methode optisch bislang nicht unterscheidbare Spin-Zustände auslesen
- Mit Beteiligung des Chemikers Prof. Dr. Ulrich Steiner von der Universität Konstanz

Hinweis an die Redaktionen:

Ein Bild kann im Folgenden heruntergeladen werden:

<https://cms.uni-konstanz.de/fileadmin/pi/filesserver/2022/schnappschuesse.jpg>

Bildunterschrift: Prinzipskizze des Experiments. Das ladungsgetrennte Radikalpaar (CSRP, schwarze Kurve) zerfällt in zirka 1.000 Nanosekunden durch Rekombination der Elektronen zu Singulett- bzw. Triplettprodukt. Der dynamische Wechsel des CSRP zwischen Singulett (S) und Triplett (T) wird dabei nur im Mittel über die Gesamtreaktionszeit erfasst. Durch die Pump-Push-Puls-Technik können Singulett- und Triplettcharakter des CSRP zu jedem Zeitpunkt ausgelesen werden.

Bild: Christoph Lambert / Universität Würzburg

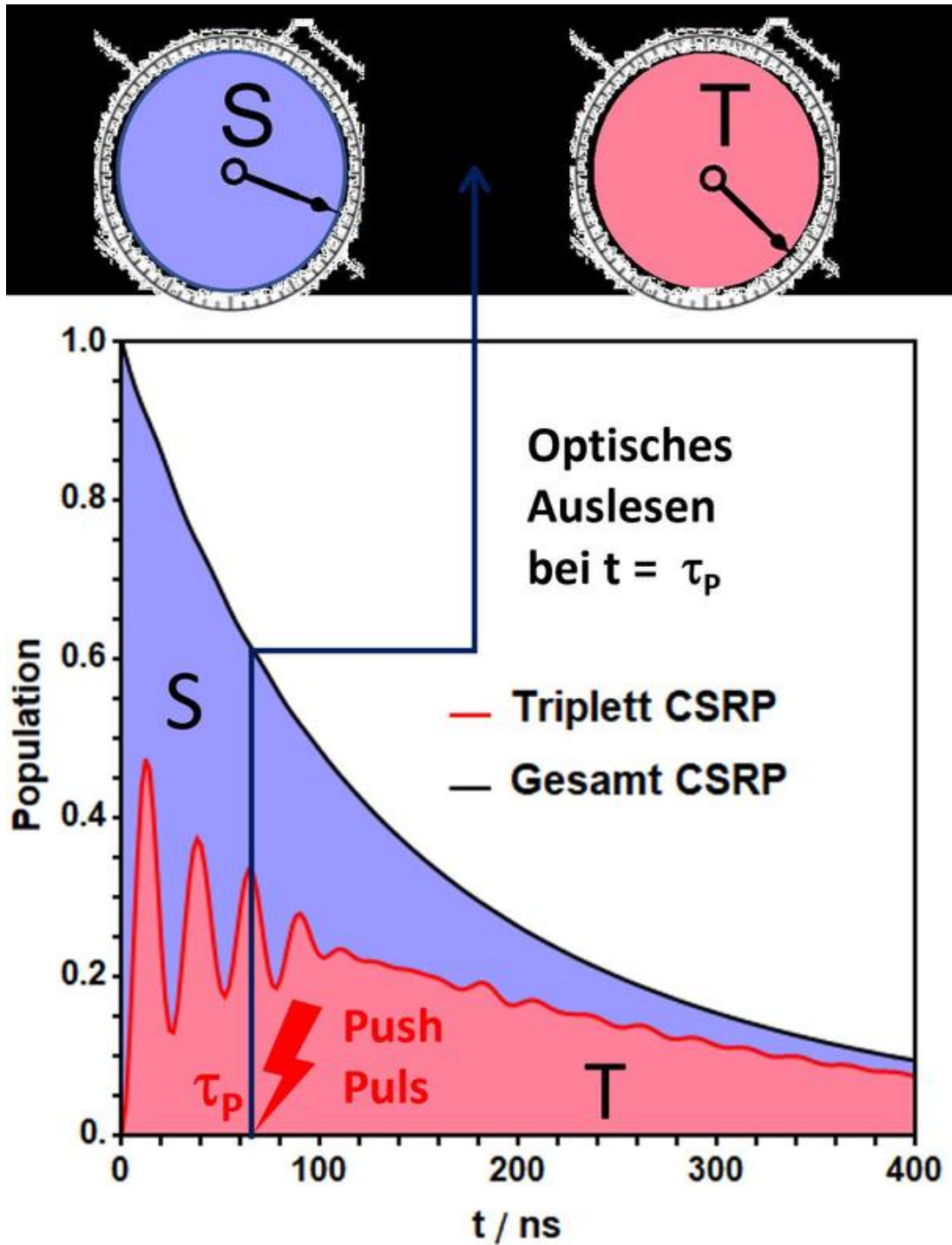
contact for scientific information:

Universität Konstanz
Kommunikation und Marketing
Telefon: + 49 7531 88-3603
E-Mail: kum@uni-konstanz.de

- uni.kn

Original publication:

<https://www.science.org/doi/10.1126/science.abl4254>
<https://www.science.org/doi/10.1126/science.abm9261>



Prinzipische Skizze des Experiments.
Christoph Lambert / Universität Würzburg