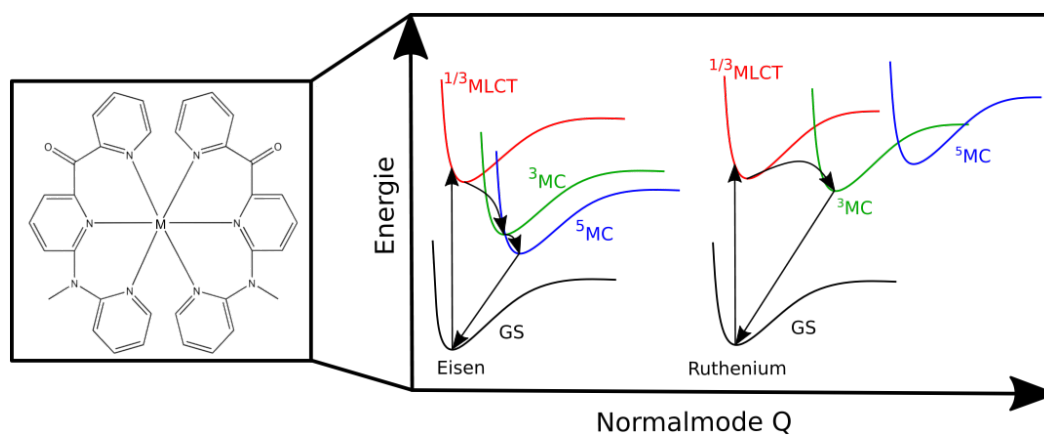


Ein Green'sche Funktion - Bethe-Salpeter-Gleichung Ansatz zur Untersuchung der elektronischen Struktur von Übergangsmetallkomplexen der ersten Reihe

Der Klimawandel zwingt die Menschheit dazu, nach alternativen und erneuerbaren Wegen zur Deckung ihres Energiebedarfs zu suchen. Katalytische Reaktionen, bei denen Wasser in molekularen Wasserstoff und Sauerstoff aufgespalten wird, bieten eine vielversprechende Lösung für dieses Problem, da molekularer Wasserstoff in der Lage ist, diese Lücke zu schließen. Eine Schlüsselrolle bei diesen Reaktionen spielen Übergangsmetallkomplexe, da sie über Metall-zu-Ligand-Ladungstransfer (engl. Metal-to-Ligand-Charge-Transfer, MLCT) Zustände verfügen, welche einen Elektronentransfer einleiten können. Zudem können sie nicht nur für katalytische Reaktionen verwendet werden, bei denen molekularer Wasserstoff erzeugt wird, sondern auch in Farbstoffsolarzellen, sogenannten Grätzel-Zellen, eingesetzt werden. In beiden Fällen wirken sie als Photosensibilisator, welche zunächst das Sonnenlicht absorbieren und dann die Reaktion in Gang setzen. Bisher wurden nur seltene Erden wie Ruthenium verwendet, was die Kosten erheblich erhöht. Komplexe aus Übergangsmetallen der ersten Reihe, wie Kobalt, Eisen oder Kupfer, sind vielversprechende Kandidaten, um diese teuren Materialien zu ersetzen, die Gesamtkosten zu senken und folglich die Effektivität dieses Verfahrens zu erhöhen. Leider geht ein Wechsel des zentralen Metalls mit einer veränderten elektronischen Struktur einher, was dazu führt, dass MLCT-Zustände nach der optischen Anregung schnell entvölkert werden.



Daher konzentriert sich die derzeitige Forschung auf die chemische Veränderung der Ligandenstruktur, um diese Lebenszeiten zu verlängern und katalytische Reaktionen zu ermöglichen. Ohne geeignete theoretische Modelle fehlt es an einem tieferen Verständnis der Mechanismen und man kann keine Strategie zur Untersuchung künftiger Kandidaten entwickeln. Leider stoßen die üblicherweise verwendeten Methoden wie Dichtefunktionaltheorie an ihre Grenzen, da diese Systeme eine komplexe elektronische Struktur aufweisen bei welcher viele Zustände mit unterschiedlichem Ladungstransfercharakter eine wichtige Rolle spielen. In meiner Arbeit wurde ein alternativer Ansatz zur Untersuchung der elektronischen Struktur dieser Systeme unter Verwendung der Green'schen Funktion und der Bethe-Salpeter-Gleichung (BSE@GW) untersucht. Sie zeigen gute Ergebnisse und beseitigen die üblichen Probleme der Dichtefunktionaltheorie. Darüber hinaus sind sie mit akzeptablen Rechenkosten verbunden, was die Untersuchung verschiedener Komplexe und eine Parametrisierung ihrer Hyperpotentialflächen ermöglicht. Dies ebnet den Weg für zukünftige Molekulardynamiksimulationen auf der Grundlage von BSE@GW.