

# Modellierung der Licht-Materie-Wechselwirkung im Nanometerbereich

## Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades  
doctor rerum naturalium (Dr. rer. nat.)

vorgelegt dem Rat der Physikalisch-Astronomischen Fakultät der  
Friedrich-Schiller-Universität Jena



von Dipl. Inf. Robert Buschlinger  
geboren am 29.10.1985 in Neustadt an der Weinstraße

1. Gutachter: Prof. Dr. Ulf Peschel, Friedrich-Schiller-Universität Jena
2. Gutachter: Prof. Dr. Erich Runge, Technische Universität Ilmenau
3. Gutachter: Prof. Dr. Kurt Busch, Humboldt-Universität zu Berlin

Tag der Disputation: Freitag, 2. März 2018

# Inhaltsverzeichnis

<b>1. Einleitung</b>	<b>6</b>
<b>2. Beschreibung der Lichtausbreitung</b>	<b>10</b>
2.1. Diskretisierung der Maxwell-Gleichungen (FDTD)	10
2.1.1. Der Yee-Algorithmus	11
2.1.2. Stabilität und Numerische Dispersion	12
2.1.3. Offene Randbedingungen	13
2.1.4. Anregung ebener Wellen (TF/SF-Formalismus)	13
2.1.5. Parallelisierung der FDTD-Methode	14
2.2. Nichtlineare Ausbreitung von Moden im Wellenleiter	16
2.2.1. Ausbreitungsgleichung für Moden (CMT)	16
2.2.2. Diskretisierungsverfahren	19
<b>3. Beschreibung der Licht-Materie-Wechselwirkung</b>	<b>21</b>
3.1. Licht-Materie-Wechselwirkung im Halbleiter	21
3.1.1. Halbleiter-Bloch-Gleichungen	21
3.1.1.1. Hamiltonoperator für Licht-Materie-Wechselwirkung im Halbleiter	21
3.1.1.2. Makroskopische Größen und ihre Bewegungsgleichungen	23
3.1.1.3. Hartree-Fock Näherung	24
3.1.1.4. Übergang ins Elektron-Loch Bild	25
3.1.1.5. Halbleiter-Bloch-Gleichungen	25
3.1.1.6. Winkelgemittelte Gleichungen	26
3.1.2. Phänomenologische Beschreibung höherer Korrelationen	27
3.1.2.1. Coulombstreuung	27
3.1.2.1.1. Relaxationszeitnäherung	28
3.1.2.1.2. Sprungterme	28
3.1.2.1.3. Erweiterung der Sprungterme	29
3.1.2.2. Abschirmung des Coulombpotentials	30
3.1.3. Dephasierung und spontane Rekombination	30
3.1.4. Wechselwirkung mit dem Gitter	31
3.1.5. Berücksichtigung realer Bandstrukturen	33
3.1.5.1. Übergänge für 2-6 Halbleiter	33
3.2. Photoionisierung von Dielektrika	36
3.2.1. Nichtlineare Ionisierungsmechanismen	36
3.2.2. Elektronen im Leitungsband	38
3.2.3. Rekombination und Materialmodifikation	38

<b>4. Lasing in Halbleiter-Nanodrähten</b>	<b>40</b>
4.1. Einleitung . . . . .	40
4.2. Statische Eigenschaften . . . . .	42
4.2.1. Absorption der Pumpstrahlung . . . . .	42
4.2.2. Modeneigenschaften . . . . .	43
4.3. Anschwingvorgänge im Multimode-Draht . . . . .	47
4.3.1. Halbleiter-Nanodraht . . . . .	47
4.3.2. Vergleich mit einem Zweiniveau-Laser . . . . .	48
4.3.3. Modenselektion und konische Drähte . . . . .	50
4.4. Zeitliche Dynamik auf längeren Zeitskalen . . . . .	52
4.4.1. CMT-Verfahren für Halbleiter-Nanodrähte . . . . .	52
4.4.1.1. Vergleich mit dem FDTD-Verfahren . . . . .	52
4.4.2. Ladungsträgergetriebene Dynamik in ZnO-Nanodrähten . . . . .	56
4.4.2.1. Einfluss der Coulomb-Wechselwirkung . . . . .	60
4.4.3. Simulationen zu Doppelpump-Experimenten . . . . .	61
4.4.3.1. Experimentelle Ergebnisse und ursprüngliche Interpretation . . . . .	62
4.4.3.2. Modellierung mit Halbleiter-Bloch-Gleichungen . . . . .	63
4.4.3.3. Diskussion . . . . .	67
4.5. Schlussbemerkungen zur Simulation von Halbleiter-Nanodrähten . . . . .	69
<b>5. Halbleiter-Nanodrähte als polaritonische Resonatoren</b>	<b>70</b>
5.1. Resonatormoden in Halbleiter-Nanodrähten . . . . .	70
5.1.1. Bestimmung der Modenstruktur . . . . .	72
5.1.2. Diskussion der Ergebnisse . . . . .	73
5.2. Ausblick: Effiziente Simulation polaritonischer Effekte mit Ortsauflösung . . . . .	74
5.2.1. Kopplung an akustische Phononen . . . . .	75
5.2.2. Demonstration am eindimensionalen Testsystem . . . . .	78
5.3. Schlussbemerkungen zu polaritonischen Systemen . . . . .	80
<b>6. Musterbildung bei der Photoionisierung amorpher Festkörper</b>	<b>81</b>
6.1. Einleitung . . . . .	81
6.1.1. Experimente zu Nanogittern in Glas . . . . .	82
6.1.2. Bisherige Erklärungsansätze . . . . .	83
6.1.3. Modellierungsansatz . . . . .	84
6.2. Einzelne Inhomogenität . . . . .	86
6.2.1. Inhomogenitäten in Glas . . . . .	86
6.2.2. Plasmakugel in der Dipolnäherung . . . . .	86
6.2.3. Ionisierbare Kugel in der Dipolnäherung . . . . .	87
6.2.4. Inhomogenität im ionisierbaren Material . . . . .	89
6.3. Chaotisch verteilte Inhomogenitäten . . . . .	92
6.3.1. Selbstorganisation bei homogener Polarisierung . . . . .	92
6.3.2. Selbstorganisation mit lokaler Polarisationsstruktur . . . . .	95
6.4. Schlussbemerkungen zur Nanogitterbildung . . . . .	97

## *Inhaltsverzeichnis*

<b>7. Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>99</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>101</b>
<b>A. Publikationsliste</b>	<b>113</b>
<b>B. Danksagungen</b>	<b>114</b>
<b>C. Curriculum Vitae</b>	<b>116</b>
<b>D. Ehrenwörtliche Erklärung</b>	<b>117</b>

# 1. Einleitung

Die Entwicklung des Transistors[1, 2] und der halbleiterbasierten Prozessortechnologie[3, 4] führte zu einer Revolution in der Elektronik und Rechentechnik. Diese ist heute ein alltäglicher Bestandteil unseres Lebens, mit dessen Hilfe wir mit Geräten interagieren und Informationen speichern, teilen und verarbeiten. Seit der Entwicklung der ersten Mikroprozessoren ist die Anzahl der auf einem Chip integrierten Transistoren von wenigen Tausenden auf über zwei Milliarden angewachsen. Dieser enorme Fortschritt, der durch das vielzitierte “Moore’sche Gesetz”[5] illustriert wird, demzufolge sich die Anzahl integrierter Transistoren alle ein bis zwei Jahre verdoppelt, ist vor allem der fortschreitenden Miniaturisierung zu verdanken. Diese erlaubt nicht nur die Integration weiterer Recheneinheiten auf einem Chip und damit die Leistungssteigerung durch parallele Verarbeitung, sondern ist auch direkt mit der möglichen Schaltfrequenz der einzelnen Bauelemente verknüpft[6]. Die Miniaturisierung wird jedoch spätestens bei der Größe einzelner Atome an ihre physikalischen Grenzen stoßen. Soll die Leistung weiter gesteigert werden, sind also andere Ansätze nötig[7]. Auf makroskopischer Ebene werden bereits heute optische Wellenleiter eingesetzt, um die Grenzen elektrischer Datenleitungen zu umgehen und die Übertragungsgeschwindigkeiten zu erhöhen. Durch die Verwendung photonischer Komponenten auch auf der Ebene einzelner Platinen oder sogar Chips könnte auch hier die mögliche Übertragungs- und Schaltgeschwindigkeit erhöht werden. Traditionell haben optische Komponenten jedoch weit größere Abmessungen im Millimeter- oder Mikrometer-Bereich. Mit der Miniaturisierung optischer Komponenten beschäftigen sich verschiedene Ansätze. Dazu zählt die Verwendung von Halbleitermaterialien, die das Licht aufgrund ihres hohen Brechungsindex auch auf Größenordnungen unterhalb der Vakuumwellenlänge einschließen können[8] oder metallische Komponenten, die plasmonische Moden mit sogar noch höheren effektiven Brechungsindizes führen[9, 10]. Neben der Miniaturisierung bestehender Technologien ermöglicht die Nanotechnologie aber auch die Umsetzung völlig neuartiger Konzepte wie Metamaterialien[11, 12] und Metaflächen[13].

Bei der Interaktion mit hochbrechenden Materialien und Subwellenlängenstrukturen verhält sich Licht nicht mehr entsprechend einer einfachen strahlenoptischen Intuition. Stattdessen muss der vektorielle Charakter des Lichts berücksichtigt und es müssen die vollen Maxwellgleichungen gelöst werden, um das Systemverhalten korrekt wiederzugeben. Bei dispersiven Materialien und vor allem bei nichtlinearen Effekten, die für alle aktiven optischen Komponenten unerlässlich sind, müssen zudem die zeitabhängige Natur des Lichts und die Interaktion mit dem Materialsystem berücksichtigt werden, so dass die Beschreibung mit einem einfachen nichtdispersiven Brechungsindex nicht mehr möglich ist. Zur Erschließung neuartiger Effekte in solchen Systemen und zur Optimierung für mögliche Anwendungen ist ein genaues Verständnis der zugrundeliegenden Physik not-

## 1. Einleitung

wendig. In einigen Fällen kann dieses aus vereinfachten Systemen gewonnen werden, die einer analytischen Lösung mit den traditionellen Methoden der theoretischen Physik zugänglich sind. In vielen Fällen ist dies jedoch aufgrund einer zu komplizierten Geometrie oder aufgrund komplizierter nichtlinearer Materialgleichungen nicht möglich. Eine Alternative stellt in diesem Fall die Computersimulation dar. Dabei werden die das System beschreibenden Differentialgleichungen sowie die zu untersuchende Geometrie im Rechner diskretisiert und das so entstehende Gleichungssystem numerisch gelöst. Die Möglichkeit, komplette Experimente am Rechner nachzubilden und dabei den Einfluss verschiedener Parameter oder zusätzlicher Effekte in den zugrundeliegenden Modellen zu untersuchen, hat die Simulation zu einem wichtigen dritten Zugang zu physikalischen Systemen neben dem Experiment und der analytischen Theorie gemacht. Auch die vorliegende Arbeit befasst sich mit diesem Zugang und beschäftigt sich mit der Modellierung und numerischen Analyse der Licht-Materie-Wechselwirkung in verschiedenen nanophotonischen Systemen.

Da die Realisierung komplett optischer Rechner aufgrund vielfältiger Schwierigkeiten wie Verlusten oder dem Fehlen hinreichend starker Nichtlinearitäten in weiter Ferne liegt, stellen hybride Systeme einen vielversprechenden Ansatz dar. Dabei bleibt die traditionelle Umsetzung der Rechentechnik auf elektronischer Basis erhalten, während Übertragungstrecken so weit wie möglich mit plasmonischen oder photonischen Bauteilen realisiert werden. An der Schnittstelle zwischen elektronischen und optischen Komponenten werden daher kompakte und effiziente Lichtquellen benötigt. Einen vielversprechenden Ansatz stellen hier Halbleiter-Nanodrähte[14, 15] dar. Diese können durch chemische Wachstumsprozesse in großen Mengen hergestellt werden. Durch ihre hohe Kristallqualität und den direkten Bandübergang der verwendeten Halbleitermaterialien können sie sowohl als optische[16, 17, 18, 19] oder plasmonische[20, 21, 22, 23] Laser als auch als polaritonische Bauelemente[24, 25] eingesetzt werden. Während die planare Integration von Bauteilen aus Silizium und aus Halbleitern mit direktem Bandübergang aufgrund von Inkompatibilitäten in der Herstellung problematisch ist, werden Nanodrähte zunächst durch Kristallwachstum hergestellt und können dann frei auf dem Substrat platziert werden.

In einem ersten Schwerpunkt dieser Arbeit werden Licht-Materie-Wechselwirkung und Lasing in Halbleiter-Nanodrähten untersucht. Während die Berechnung der optischen Eigenschaften von Halbleitern bereits ein weit fortgeschrittenes Forschungsgebiet[26, 27] darstellt, wurden die dort entstandenen komplexen Modelle bisher nicht an die räumlich aufgelöste Simulation eines dreidimensionalen optischen Systems gekoppelt. In dieser Arbeit wurden bestehende Simulationsmethoden für die Lichtausbreitung mit einem aktuellen Modell des elektronischen Systems im Halbleiter verbunden und zur Beschreibung des Lasingvorgangs in Nanodrähten verwendet. Dadurch werden Vorhersagen der longitudinalen und transversalen Lasingmoden sowie der zeitlichen Dynamik in diesen Systemen möglich. Die Beschreibung des Materialsystems erfolgte dabei auf Basis der Halbleiter-Bloch-Gleichungen. Für das optische System wurden zwei verschiedene Ansätze untersucht. Zum einen kann die komplette Systemgeometrie mit Hilfe finiter Differenzen im Zeitbereich (FDTD)[28, 29] auf einem Gitter diskretisiert und die gekoppelten Maxwell- und Materialgleichungssysteme auf diesem Gitter gelöst werden. Dieser Ansatz ist nume-

## 1. Einleitung

risch aufwändig, aber erlaubt die Simulation beliebiger Geometrien. Zum anderen wurde die auf Wellenleitersysteme zugeschnittene Coupled Mode Theory[30] verwendet, welche auf zuvor berechneten Wellenleitermoden mit bekannten Ausbreitungseigenschaften basiert, welche zeitlich und entlang der Drahtachse aufgelöst beschrieben und an das Materialsystem gekoppelt werden. Diese Methode ist auf Wellenleitergeometrien beschränkt, aber numerisch sehr effizient und erlaubt dadurch die Simulation realistischer Szenarien in kurzer Zeit. Dadurch werden der Vergleich mit dem Experiment, die numerische Optimierung von Nanolasern und die Verwendung noch komplizierterer Materialmodelle möglich.

Während für den Lasingprozess eine starke Anregung des Halbleitermaterials nötig ist, erfährt auch die Licht-Materie-Wechselwirkung im schwach angeregten Halbleiter wachsendes Interesse[31, 32]. In diesem Anregungsregime entstehen exzitonische Resonanzen in der Materialabsorption, welche stark an das optische Feld koppeln können. Die durch die starke Kopplung entstehenden Quasiteilchen werden als Polaritonen bezeichnet und weisen eine geringe effektive Masse, aber eine starke Wechselwirkung auf. Sie eignen sich dadurch sehr gut zur Untersuchung von Kondensationseffekten und nichtlinearer Dynamik. In einem kurzen Kapitel werden polaritonische Eigenmoden in Nanodrähten untersucht und effiziente räumlich aufgelöste Modelle für die Polaritonenpropagation diskutiert. Speziell wird ein semiklassisches Modell zur Beschreibung der Kopplung an akustische Phononen vorgeschlagen.

In einem zweiten Schwerpunkt wurde die nichtlineare Absorption und Plasmaerzeugung von Licht in dielektrischen Materialien untersucht. Dabei befindet sich die Energie der einfallenden Photonen weit unterhalb des optischen Übergangs im Material, so dass eine resonante Wechselwirkung über Einphotonenabsorption nicht möglich ist. Bei extremen Intensitäten kann ein Übergang jedoch durch die gleichzeitige Absorption mehrerer Photonen erfolgen[33, 34, 35]. Da bei diesem Prozess sehr viel Energie ins Material eingebracht wird, geht er meist mit einer Modifikation des Materials einher. Dies erlaubt die gezielte Bearbeitung von Materialien mit kurzen Laserpulsen. So können sowohl kontinuierliche Brechungsindexveränderungen[36] als auch durch Mikroexplosionen erzeugte Kavitäten im Materialvolumen erzeugt werden[37, 38]. In einem dritten Regime können doppelbrechende Strukturen erzeugt werden, welche aus selbstorganisierten Nanogittern im Materialvolumen bestehen[39, 40, 41, 42]. Diese stellen nicht nur ein faszinierendes Selbstorganisationsphänomen dar, sondern können auch zur Realisierung dreidimensionaler optischer Speichermedien,[43] zur Erzeugung strukturierter Phasenplatten[44, 45] für die Holographie[46] oder für mikroskopische Anwendungen[47], oder nach einem Ätzvorgang als mikrofluidische Kanäle[43] verwendet werden. Trotz dieser vielfältigen Anwendungsmöglichkeiten ist der Entstehungsprozess dieser Strukturen weitgehend unverstanden und es existieren mehrere teils sehr verschiedene Erklärungsansätze[40, 48, 39, 49, 50]. Damit beschäftigt sich der letzte Teil dieser Arbeit. Auch hier wurde die FDTD-Methode zur Beschreibung der Lichtausbreitung verwendet. Die Beschreibung der Laser-Plasma-Wechselwirkung erfolgte durch ein Drude-Modell gekoppelt an eine einfache Rategleichung zur Beschreibung der nichtlinearen Ionisierung. Dieser Ansatz wurde zur Simulation der rein optischen Musterbildung im Rahmen eines nanoplasmonischen Modells verwendet. Dabei konnten die wichtigsten Aspekte der selbstorganisierten Gitterbildung



## *1. Einleitung*

in Glas korrekt reproduziert und ein Erklärungsmodell vorgeschlagen werden.

## 2. Beschreibung der Lichtausbreitung

Dieses Kapitel beschäftigt sich mit der Beschreibung der Ausbreitung von Licht in Medien mit homogenem oder strukturiertem Brechungsindex. Wir betrachten zunächst die direkte Diskretisierung der Maxwellgleichungen im Ortsraum und im Zeitbereich mit der Finite-Difference Time-Domain Methode (FDTD). Dadurch können beliebige Anregungssituationen und Geometrien modelliert werden. Die Behandlung im Zeitbereich erlaubt auch den einfachen Anschluss dispersiver und nichtlinearer Materialmodelle. Des Weiteren wird auf die Parallellisierung von FDTD-Simulationscodes eingegangen.

Im zweiten Teil des Kapitels behandeln wir die Lichtausbreitung speziell in Wellenleiterstrukturen. Dabei wird die Zeitentwicklung von Modenamplituden räumlich aufgelöst entlang der Drahtachse beschrieben. Die Behandlung im Zeitbereich erlaubt auch hier die Ankopplung beliebiger Materialmodelle.

### 2.1. Diskretisierung der Maxwell-Gleichungen (FDTD)

Der umfassendste Ansatz zur Simulation der Lichtausbreitung in beliebig strukturierten Materialien ist die direkte Simulation der Maxwellgleichungen

$$\frac{\partial}{\partial t} \vec{D} = \nabla \times \vec{H} - \vec{J} \quad (2.1)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \vec{H} = -\frac{1}{\mu_0} \nabla \times \vec{E} \quad (2.2)$$

$$\nabla \cdot \vec{H} = 0 \quad (2.3)$$

$$\nabla \cdot \vec{D} = \rho \quad (2.4)$$

mit  $\vec{D} = \varepsilon(\vec{r})\vec{E} + \vec{P}$ . Dabei kann die lokale Struktur des Materials sowohl durch eine ortsabhängige Permittivität  $\varepsilon(\vec{r})$  als auch durch ortsabhängige Polarisierungen  $\vec{P}$  und Stromdichten  $\vec{J}$  beschrieben werden. Letztere werden gegebenenfalls durch eigene Differentialgleichungen beschrieben, welche die dispersiven und eventuell nichtlinearen Eigenschaften des jeweiligen Materials beschreiben. Auch Quellen werden gewöhnlicherweise durch vorgegebene räumliche und zeitliche Verläufe der Stromdichte festgelegt. Um quasistatische Eigenschaften des Systems wie Eigenmoden oder die Anregung mit einer festen Frequenz zu beschreiben, eignen sich Methoden, bei denen die Maxwellgleichungen in den Frequenzbereich transformiert werden. Möchte man hingegen die Dispersion der Material- und Struktureigenschaften oder nichtlineare Effekte beschreiben, bei denen im Allgemeinen das Superpositionsprinzip nicht mehr erfüllt ist, müssen die Maxwellgleichungen als Anfangswertproblem im Zeitbereich gelöst werden. In diesem Kapitel wird

## 2. Beschreibung der Lichtausbreitung

die Diskretisierung der Maxwellgleichungen mit Hilfe finiter Differenzen erläutert. Außerdem werden einige Aspekte der Implementierung und der praktischen Nutzung des Verfahrens diskutiert. Die dargestellten Konzepte wurden für die Implementierung eines eigenen elektrodynamischen Simulationscodes in der Programmiersprache C++ [51] verwendet.

### 2.1.1. Der Yee-Algorithmus

Eine einfache und vielseitige Methode, die Gleichungen 2.1 und 2.2 numerisch zu lösen, ist die Diskretisierung mit Hilfe finiter Differenzen. Diese führt zu der bekannten Finite Difference Time Domain (FDTD) - Methode [28, 29]. Dabei werden das Simulationsvolumen und die Zeit auf einem äquidistanten Gitter berechnet, so dass nur noch diskrete Felder

$$F_{i,j,k,n} = F(i\Delta x, j\Delta y, k\Delta z, n\Delta t) \quad (2.5)$$

vorliegen, Außerdem werden alle räumlichen und zeitlichen Ableitungen durch zentrierte finite Differenzen erster Ordnung ersetzt, zum Beispiel

$$\left[ \frac{\partial}{\partial x} F \right]_{i+\frac{1}{2},j,k,n} \rightarrow \frac{F_{i+1,j,k,n} - F_{i,j,k,n}}{\Delta x}. \quad (2.6)$$

Dieses Diskretisierungsschema bietet sich besonders bei den Maxwellgleichungen an, da für die Aktualisierung der elektrischen Felder jeweils die Ableitungen der magnetischen Felder benötigt werden und umgekehrt. Verwendet man dazu zentrale finite Differenzen, erhält man jeweils um einen halben Orts- und Zeitschritt verschobene Gitter für die einzelnen Feldkomponenten. Die Einheitszelle des so entstandenen Gitters wird „Yee-Zelle“ genannt und ist in Abbildung 2.1 skizziert. Man erhält diskrete Versionen der Maxwellgleichungen, zum Beispiel

$$\frac{D_{x,i,j+\frac{1}{2},k+\frac{1}{2},n+1} - D_{x,i,j+\frac{1}{2},k+\frac{1}{2},n}}{\Delta t} = \frac{H_{z,i,j+1,k+\frac{1}{2},n+\frac{1}{2}} - H_{z,i,j,k+\frac{1}{2},n+\frac{1}{2}}}{\Delta y} - \frac{H_{y,i,j+\frac{1}{2},k+1,n+\frac{1}{2}} - H_{y,i,j+\frac{1}{2},k,n+\frac{1}{2}}}{\Delta z} - J_{x,i,j+\frac{1}{2},k+\frac{1}{2},n+\frac{1}{2}} \quad (2.7)$$

für die  $x$ -Komponente des elektrischen Feldes. Zur numerischen Lösung des Anfangswertproblems löst man nach dem Wert für den nächsten Zeitschritt  $D_{x,i,j,k,n+1}$  und erhält auf diese Weise ein explizites Zeitschrittverfahren für die Aktualisierung der Felder, zum Beispiel

$$D_{x,i,j+\frac{1}{2},k+\frac{1}{2},n+1} = D_{x,i,j+\frac{1}{2},k+\frac{1}{2},n} + \Delta t \left( \frac{H_{z,i,j+1,k+\frac{1}{2},n+\frac{1}{2}} - H_{z,i,j,k+\frac{1}{2},n+\frac{1}{2}}}{\Delta y} - \frac{H_{y,i,j+\frac{1}{2},k+1,n+\frac{1}{2}} - H_{y,i,j+\frac{1}{2},k,n+\frac{1}{2}}}{\Delta z} - J_{x,i,j+\frac{1}{2},k+\frac{1}{2},n+\frac{1}{2}} \right). \quad (2.8)$$

Die Gleichungen 2.3 und 2.4 bleiben dabei automatisch erhalten, wenn sie von den Anfangsbedingungen erfüllt wurden.

## 2. Beschreibung der Lichtausbreitung

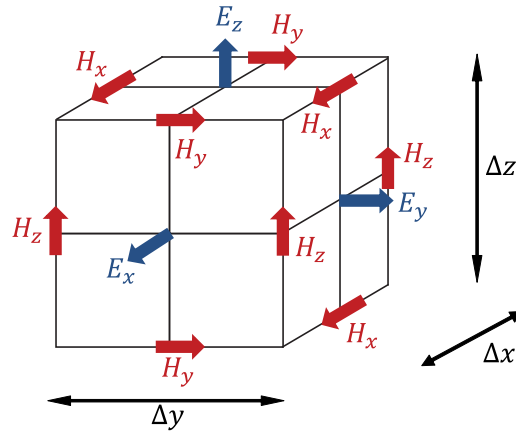


Abbildung 2.1.: Illustration der Einheitszelle („Yee-Zelle“) des elektrodynamischen FDTD-Algorithmus mit den Positionen der elektrischen und magnetischen Feldkomponenten.

### 2.1.2. Stabilität und Numerische Dispersion

Da die Felder in der FDTD-Methode auf einem diskreten Gitter statt im kontinuierlichen Raum propagieren, ist anzunehmen, dass sich dies ähnlich wie bei der Ausbreitung von mechanischen Anregungen auf einer linearen Kette von Atomen[52] auch auf die Dispersionsrelation auswirkt. Setzt man die elektrischen und magnetischen Felder als ebene Wellen an, ergibt sich die Dispersionsrelation[29]

$$\left[ \frac{1}{c\Delta t} \sin\left(\frac{\omega\Delta t}{2}\right) \right]^2 = \left[ \frac{1}{\Delta x} \sin\left(\frac{k_x\Delta x}{2}\right) \right]^2 + \left[ \frac{1}{\Delta y} \sin\left(\frac{k_y\Delta y}{2}\right) \right]^2 + \left[ \frac{1}{\Delta z} \sin\left(\frac{k_z\Delta z}{2}\right) \right]^2 \quad (2.9)$$

für die Ausbreitung von Wellen im diskretisierten Vakuum. Man sieht leicht, dass diese sich der Dispersionsrelation der kontinuierlichen Maxwellgleichungen  $\frac{\omega^2}{c^2} = k^2$  annähern, wenn  $\Delta x$ ,  $\Delta y$ ,  $\Delta z$  und  $\Delta t$  sehr klein gewählt werden. Im eindimensionalen Fall, beispielsweise bei einer Ausbreitung nur in  $z$ -Richtung und Homogenität in den beiden anderen Dimensionen, kann die kontinuierliche Dispersionsrelation sogar exakt reproduziert werden, wenn der Zeitschritt gemäß

$$\Delta t = \frac{\Delta z}{c} \quad (2.10)$$

gewählt wird.

Als nächstes soll die numerische Stabilität der diskretisierten Maxwellgleichungen untersucht werden. Dazu betrachtet man das Verhalten der Frequenz  $\omega$ . Ist diese für alle  $\vec{k}$  reell, behalten alle Lösungen ihre Amplitude bei und das Verfahren ist stabil. Komplexwertige  $\omega$  hingegen führen zur Verstärkung der Lösungen und der Algorithmus wird

## 2. Beschreibung der Lichtausbreitung

instabil. Aus der Dispersionsrelation 2.9 erhält man

$$\omega = \frac{2}{\Delta t} \sin^{-1}(\zeta) \quad (2.11)$$

mit

$$\zeta = c\Delta t \sqrt{\left(\frac{1}{\Delta x} \sin\left(\frac{k_x \Delta x}{2}\right)\right)^2 + \left(\frac{1}{\Delta y} \sin\left(\frac{k_y \Delta y}{2}\right)\right)^2 + \left(\frac{1}{\Delta z} \sin\left(\frac{k_z \Delta z}{2}\right)\right)^2}.$$

Das Argument  $\zeta$  nimmt Werte zwischen 0 und  $\zeta_{max} = c\Delta t \sqrt{\frac{1}{\Delta x^2} + \frac{1}{\Delta y^2} + \frac{1}{\Delta z^2}}$  an. Überschreitet  $\zeta$  den Wert 1, erhalten wir einen komplexen Wert für die Frequenz  $\omega$ . Die Bedingung für ein stabiles Verfahren ist also  $\zeta_{max} \leq 1$ . Aus dieser Bedingung erhält man das bekannte Courant-Friedrichs-Levy-Kriterium[53]

$$\Delta t < \frac{1}{c \sqrt{\frac{1}{\Delta x^2} + \frac{1}{\Delta y^2} + \frac{1}{\Delta z^2}}}. \quad (2.12)$$

Daraus folgt, dass bei Wahl einer feineren räumlichen Diskretisierung auch die zeitliche Diskretisierung angepasst werden muss, um die Stabilität des Verfahrens zu garantieren.

### 2.1.3. Offene Randbedingungen

In den meisten Fällen ist es erwünscht, die Wellenausbreitung in einem nach außen hin offenen Volumen zu modellieren. Während reflektierende und periodische Randbedingungen leicht implementiert werden können, indem die Feldkomponenten am Rand des Simulationsvolumens auf Null gesetzt oder von der gegenüberliegenden Seite des Volumens kopiert werden, gestaltet sich die Simulation offener Ränder als schwieriger. Zwar existieren auch analytische offene Randbedingungen für die FDTD-Methode[54], jedoch sind diese stark abhängig von der Diskretisierung und dem Einfallswinkel der Wellen. Sie werden daher in der Praxis selten verwendet. Stattdessen ist es gebräuchlich, die Simulationsdomäne mit einer Schicht aus einem nicht-physikalischen Material zu umgeben, welches die einfallende Strahlung absorbiert und dabei nur eine minimale Reflektivität aufweist. Dieses Verfahren bezeichnet man als Perfectly Matched Layer (PML)[55, 56, 57, 29]. In dieser Arbeit wurde die Uniaxiale PML-Formulierung (UPML) aus Referenz [29] implementiert. Im kontinuierlichen Fall ist das PML-Material komplett reflexionsfrei. Im diskreten Fall können noch leichte Reflexionen an der Grenzfläche zwischen dem PML-Material und dem eigentlichen Simulationsvolumen auftreten. Um diesen Effekt zu minimieren, wird in der Regel eine PML-Schicht aus 10-20 Yee-Zellen mit graduell ansteigender Absorption verwendet.

### 2.1.4. Anregung ebener Wellen (TF/SF-Formalismus)

In vielen Anwendungen, beispielsweise der Berechnung der Streuung an Nanostrukturen, ist eine Anregung mit ebenen Wellen erforderlich. Prinzipiell kann eine ebene Welle

## 2. Beschreibung der Lichtausbreitung

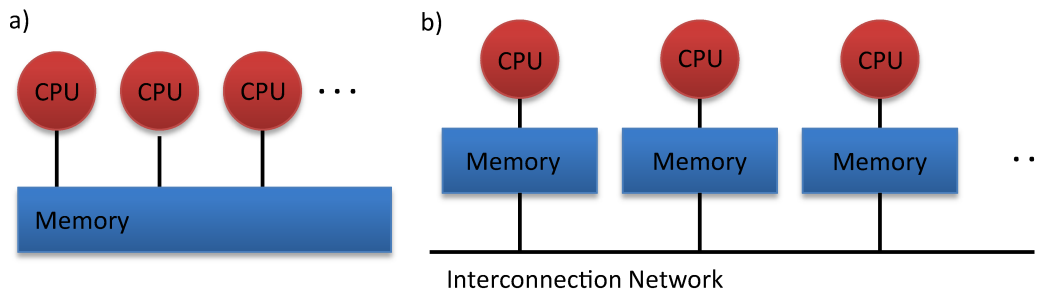


Abbildung 2.2.: Die zwei prinzipiellen Paradigmen des verteilten Rechnens. (a): Shared Memory, (b): Distributed Memory

im FDTD-Algorithmus leicht durch eine oszillierende Stromdichte in einer Fläche des Simulationsgebiets angeregt werden. Wenn keine periodischen Randbedingungen verwendet werden, kommt es jedoch zur Beugung der so angeregten Welle und damit zu einem unerwünschten Ausbreitungsverhalten. Die Verwendung periodischer Randbedingungen hingegen kann wieder eigene Artefakte erzeugen. Stattdessen ist die gängige Vorgehensweise die Einführung einer Grenze zwischen einem Simulationsgebiet mit und ohne anregender Welle, die man als Total Field / Scattered Field - Grenze (TF/SF) bezeichnet[58, 59, 29]. Dabei werden die anregenden Felder an der Innenseite der Grenzfläche zu den berechneten Feldern addiert, während die gerade außerhalb der Grenze liegenden Felder subtrahiert werden. Werden die Felder einfach durch einen analytischen Ausdruck wie zum Beispiel  $\vec{E}_{exc} = \vec{E}_0 \cos(kz - \omega t)$  angegeben, muss die korrekte numerische Dispersionsrelation  $k(\omega)$  aus Gleichung 2.9 verwendet werden, um Artefakte an der TF/SF-Grenze zu vermeiden. Bei monochromatischen Wellen mit fixer Frequenz  $\omega$  ist dies einfach zu bewerkstelligen. Bei zeitlich modulierten Signalen ist hingegen eine Fourier Hin- und Rücktransformation notwendig, um alle Frequenzkomponenten korrekt zu behandeln. Einfacher ist die Verwendung einer zusätzlichen eindimensionalen FDTD-Simulation, welche simultan und mit der gleichen räumlichen und zeitlichen Diskretisierung wie die Hauptsimulation abläuft und auf diese Weise die korrekten Felder zur Addition oder Subtraktion an den Grenzen liefert. Die eigentliche Anregung wird dann als punktförmige Stromquelle in die eindimensionale Hilfsrechnung eingesetzt. So ist die numerische Dispersion des Gitters automatisch berücksichtigt. Durch Erweiterung auf eine zweidimensionale Hilfssimulation können zudem auch schräg einfallende Wellen behandelt werden. Die Implementierung der TF/SF - Quelle wird detailliert in [29] beschrieben. In dieser Arbeit wurde sie zur optischen Anregung von Halbleiter-Nanolasern verwendet.

### 2.1.5. Parallelisierung der FDTD-Methode

Da die Maxwellgleichungen mit feiner räumlicher und zeitlicher Auflösung in einem vollen dreidimensionalen Volumen berechnet werden müssen, ist die FDTD-Methode numerisch extrem aufwändig. Dabei umfassen interessante Simulationen oft ein Volumen mit der Seitenlänge einiger Mikrometer bei einer Auflösung zwischen 1 nm und 20 nm.

## 2. Beschreibung der Lichtausbreitung

Um diesen Rechenaufwand bewältigen zu können, wird das Problem meist auf mehrere Recheneinheiten aufgeteilt. Dabei sind prinzipiell zwei verschiedene Ansätze möglich[60]. Für kleinere Aufgaben kann die Parallelisierung auf einem einzelnen Rechner mit mehreren Prozessoren und einem gemeinsamen Arbeitsspeicher erfolgen (Shared Memory Architektur), wie in Abbildung 2.2 (a) dargestellt. Eine Kommunikation zwischen den einzelnen Prozessen ist hier nur notwendig, um die synchrone Verarbeitung der Daten sicherzustellen. Für größere Probleme hingegen muss das Volumen wie in Abbildung 2.2 (b) dargestellt auf mehrere Rechner verteilt werden, die jeweils eigenen Speicher verwenden (Distributed Memory Architektur). In diesem Fall müssen eventuell benötigte Daten über ein schnelles Verbindungsnetzwerk zwischen den Rechnern übertragen werden. Ein gängiger Standard für die Datenübertragung zwischen Rechenprozessen ist das MPI-Protokoll[61], welches am Argonne National Laboratory entwickelt wurde und in mehreren offenen und proprietären Implementierungen verschiedener Anbieter erhältlich ist. Dieses wurde für die FDTD-Implementierung in dieser Arbeit verwendet. Die Verwendung der Distributed Memory Architektur stellt dabei keine Einschränkung dar, da es auch möglich ist, mehrere Prozesse auf einem einzelnen physikalischen Rechner zu starten. Diese verwenden dann ohne Zutun des Anwendungsprogrammierers den gemeinsamen Arbeitsspeicher zur Kommunikation.

Im Fall der FDTD-Methode wird das Simulationsvolumen in mehrere Quader zerlegt. Da die Diskretisierung der Ableitungen mit finiten Differenzen wie in Gleichung 2.8 jeweils auf räumlich benachbarte Felder zugreift, müssen diese an den Grenzen der einzelnen Simulationsdomänen zwischen den Prozessen ausgetauscht werden. Es gibt prinzipiell verschiedene Möglichkeiten zur Implementierung dieses Austauschs, die sich darin unterscheiden, welche Felder in den einzelnen Knoten berechnet werden und welche vom Nachbarknoten bezogen werden. Hier wird das Kommunikationsschema aus [62] verwendet. Dabei werden die tangential zur Prozessgrenze verlaufenden magnetischen Felder sowie das elektrische Feld senkrecht zur Grenze ausgetauscht. Der Austauschprozess der Randzellen ist in Abbildung 2.3 dargestellt. Die eine Yee-Zelle vor der Grenze zwischen zwei Rechenknoten gelegene Ebene aus Feldkomponenten wird an den Nachbarknoten gesendet, welcher diese genau an der Grenzfläche einfügt. Die zwischen der letzten und vorletzten Ebene gelegenen Feldkomponenten werden von beiden Knoten unabhängig berechnet.

## 2. Beschreibung der Lichtausbreitung

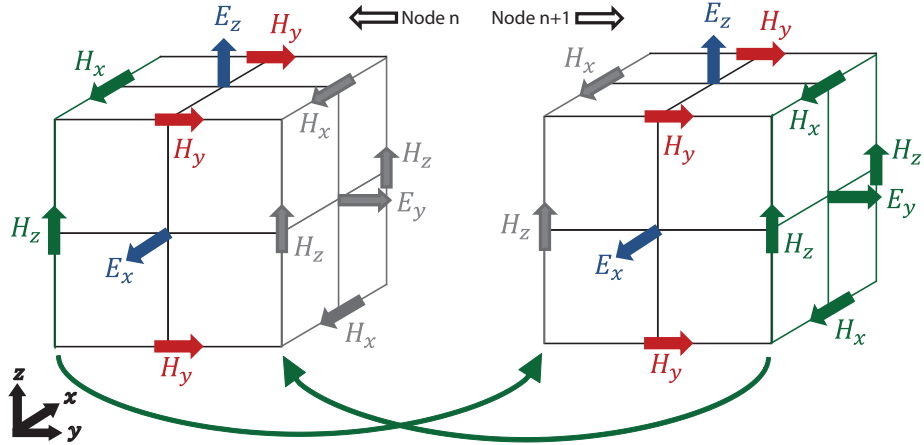


Abbildung 2.3.: Austausch von Feldkomponenten bei der parallelen FDTD-Methode. Gezeigt ist jeweils eine einzelne Yee-Zelle auf beiden Seiten einer in der  $xz$ -Ebene verlaufenden Grenze zwischen den Gebieten zweier Rechenknoten. Die grün dargestellten Komponenten werden an den jeweiligen Nachbarknoten gesendet, die grau dargestellten Komponenten werden empfangen. Die zwischen den gesendeten und empfangenen Feldern gelegenen Komponenten werden in beiden Rechenknoten berechnet.

## 2.2. Nichtlineare Ausbreitung von Moden im Wellenleiter

Das im letzten Abschnitt beschriebene FDTD-Verfahren stellt einen allgemeingültigen Ansatz zur Simulation der Licht-Materie-Wechselwirkung in beliebigen Materialgeometrien dar. Oft lassen sich aber auch spezialisierte Verfahren finden, die auf bestimmte Geometrien zugeschnitten sind und die den Rechenaufwand in diesem Fall erheblich reduzieren. Ein großer Teil dieser Arbeit beschäftigt sich mit Nanodrähten. Diese lassen sich, abgesehen von den Endfacetten, als Wellenleiter beschreiben. Das heißt, die Materialgeometrie hängt nur von den transversalen Koordinaten  $x$  und  $y$ , nicht aber von der Ausbreitungsrichtung  $z$  ab. Interessiert man sich nur für entlang des Drahts propagierende Felder, können diese als Superposition von Wellenleitermoden [30] geschrieben werden.

### 2.2.1. Ausbreitungsgleichung für Moden (CMT)

Im Folgenden betrachten wir die Ausbreitung von Pulsen in Wellenleitern unter der Berücksichtigung von Nichtlinearitäten und Materialdispersion [63, 30]. Wir beginnen mit den Maxwellgleichungen im Frequenzbereich

$$\nabla \times \vec{E} = i\omega\mu_0\vec{H} \quad (2.13)$$

$$\nabla \times \vec{H} = -i\omega\varepsilon_0\varepsilon\vec{E} - i\omega\vec{P}. \quad (2.14)$$



## 2. Beschreibung der Lichtausbreitung

Der Polarisationssterm  $\vec{P}$  soll später benutzt werden, um eine Beschreibung des Materials anzukoppeln, soll aber zunächst vernachlässigt werden ( $\vec{P} = 0$ ). Wir betrachten die geführten Moden eines in  $z$ -Richtung homogen ausgedehnten Wellenleiters. In diesem Fall können die modalen Felder als

$$\begin{aligned}\vec{E}(x, y, z) &= \vec{E}_m^\pm(x, y) e^{\pm i\beta_m z}, \\ \vec{H}(x, y, z) &= \vec{H}_m^\pm(x, y) e^{\pm i\beta_m z}\end{aligned}\quad (2.15)$$

mit der Propagationskonstante  $\pm\beta_m$  dargestellt werden.

Wir betrachten zunächst den Ausdruck

$$\vec{\gamma}_{m,n} = \left( \vec{E}_n^\pm \times \vec{H}_m^{\pm*} + \vec{E}_m^{\pm*} \times \vec{H}_n^\pm \right) e^{iz(\pm\beta_n \mp \beta_m)}. \quad (2.16)$$

Mit den Gleichungen 2.13 und 2.14 erhalten wir bei verschwindender Polarisation

$$\nabla \vec{\gamma}_{m,n} = 0. \quad (2.17)$$

Integriert man Gleichung 2.17 über die transversalen Koordinaten und nutzt außerdem den Umstand, dass die geführten Moden per Definition keine Energie in transversale Richtung abstrahlen ( $\nabla_{x,y} \vec{\gamma}_{m,n} = 0$ ), erhält man statt dieser lokalen Bedingung

$$\iint_{\mathbb{R}^2} \left[ \vec{E}_n^\pm \times \vec{H}_m^{\pm*} + \vec{E}_m^{\pm*} \times \vec{H}_n^\pm \right]_z dx dy i(\pm\beta_n \mp \beta_m) e^{iz(\pm\beta_n \mp \beta_m)} = 0. \quad (2.18)$$

Dabei steht das Subskript  $z$  für die  $z$ -Komponente des betrachteten Vektors. Für unterschiedliche Moden  $m \neq n$  muss also das Integral auf der linken Seite verschwinden und wir erhalten die Orthogonalitätsrelation für Wellenleitermoden

$$\iint_{\mathbb{R}^2} \left[ \vec{E}_n^\pm \times \vec{H}_m^{\pm*} + \vec{E}_m^{\pm*} \times \vec{H}_n^\pm \right]_z dx dy = \delta_{m,n}. \quad (2.19)$$

Als nächstes betrachten wir den interessanteren Fall  $\vec{P} \neq 0$ , der uns die Ankopplung der linearen und nichtlinearen Materialeigenschaften erlaubt. Im allgemeinen Fall lässt sich das im Wellenleiter propagierende Feld als Linearkombination der Moden

$$\vec{E} = \sum_{\pm, m} u_m^\pm(z) \vec{E}_m^\pm \quad (2.20)$$

$$\vec{H} = \sum_{\pm, m} u_m^\pm(z) \vec{H}_m^\pm. \quad (2.21)$$

darstellen. Ähnlich wie vorher im Fall  $\vec{P} = 0$  betrachten wir jetzt den Ausdruck  $\vec{\gamma}_m = \vec{E} \times \vec{H}_m^{\pm*} e^{\mp i\beta_m z} + \vec{E}_m^{\pm*} e^{\mp i\beta_m z} \times \vec{H}$ , der als Beitrag der Mode  $m$  zum gesamten Poynting-Vektor verstanden werden kann. In diesem Fall erhalten wir durch die gleichen Rechenschritte wie zuvor

$$\nabla \vec{\gamma}_m = i\omega \vec{E}_m^{\pm*} \vec{P} e^{\mp i\beta_m z}. \quad (2.22)$$

## 2. Beschreibung der Lichtausbreitung

Integrieren wir Gleichung 2.17 über die transversalen Koordinaten  $x$  und  $y$ , erhalten wir

$$\iint_{\mathbb{R}^2} \frac{\partial}{\partial z} \left( \left[ \vec{E} \times \vec{H}_m^{\pm*} + \vec{E}_m^{\pm*} \times \vec{H} \right]_z e^{\mp i\beta_m z} \right) dx dy = i\omega \iint_{\mathbb{R}^2} \left( \vec{E}_m^{\pm*} \vec{P} e^{\mp i\beta_m z} \right) dx dy. \quad (2.23)$$

Jetzt setzen wir die Modendarstellung der Felder 2.20 und 2.21 in Gleichung 2.23 ein und erhalten unter Verwendung der Orthogonalität der Moden (Gleichung 2.19)

$$\frac{\partial}{\partial z} u_m^{\pm} \mp i\beta_m u_m^{\pm} = \frac{i\omega}{4\gamma_{mm}} \iint_{\mathbb{R}^2} \left( \vec{E}_m^{\pm*} \vec{P} \right) dx dy \quad (2.24)$$

mit der geführten Leistung

$$\gamma_{mm} = \frac{1}{4} \iint_{\mathbb{R}^2} \left( \vec{E}_m^{\pm} \times \vec{H}_m^{\pm*} + \vec{E}_m^{\pm*} \times \vec{H}_m \right)_z dx dy. \quad (2.25)$$

Da sich nichtlineare Effekte wie Lasing im Frequenzbereich schlecht modellieren lassen, transformieren wir Gleichung 2.23 zurück in den Zeitbereich. Um Faltungsterme oder höhere Ableitungen in den Bewegungsgleichungen zu vermeiden, nehmen wir eine lineare Abhängigkeit

$$\beta_m(\omega) = \beta_{0,m} + \frac{1}{v_m} (\omega - \omega_0)$$

der Propagationskonstante von der zeitlichen Frequenz  $\omega$  in der Nähe einer frei wählbaren Trägerfrequenz  $\omega_0$  an. Dies erleichtert uns die Transformation in den Zeitbereich. Dabei gilt  $\beta_{0,m} = \beta_m(\omega_0)$ .  $\frac{1}{v_m} = \left[ \frac{\partial \beta_m}{\partial \omega} \right]_{\omega_0}$  ist die inverse Gruppengeschwindigkeit bei  $\omega = \omega_0$ . Die Annahme linearer Dispersion bezieht sich hier lediglich auf den Wellenleiter bei  $\vec{P} = 0$ . Durch das Materialmodell verursachte Dispersionsterme höherer Ordnung werden nach wie vor korrekt durch die Ankopplung der Materialpolarisation  $\vec{P}$  und durch deren zeitliche Evolution beschrieben.

Wir definieren außerdem eine Pulseinhüllende

$$\hat{u}(z, t) = u(z, t) e^{i\omega_0 t - i\beta_{0,m} z} \quad (2.26)$$

für die Modenamplituden und

$$\hat{\vec{P}}(z, t) = \vec{P}(z, t) e^{i\omega_0 t} \quad (2.27)$$

für die Polarisation. Damit erhalten wir eine Propagationsgleichung für die Einhüllende der Modenamplitude  $\hat{u}_m^{\pm}$

$$\pm \frac{1}{v_m} \frac{\partial}{\partial t} (\hat{u}_m^{\pm}) = -\frac{\partial}{\partial z} \hat{u}_m^{\pm} + D e^{\mp i\beta_{0,m} z} \quad (2.28)$$

mit dem Polarisationssterm

## 2. Beschreibung der Lichtausbreitung

$$D = -\frac{\partial}{\partial t} - i\omega_0 \iint_{\mathbb{R}^2} \left( \vec{E}_m^{\pm*} \hat{P} \right) dx dy. \quad (2.29)$$

Oft ist es wünschenswert, zusätzlich noch ein transversal zum Wellenleiter einfallendes Pumpfeld  $\vec{E}_{pump}(\vec{r}, t)$  einzubauen. Dann lautet der Ausdruck für das selbstkonsistente elektrische Feld

$$\begin{aligned} \vec{E}(\vec{r}, t) = & \sum_{\pm, m} \hat{u}_m^{\pm}(z, t) \vec{E}_m^{\pm}(x, y) e^{\pm i\beta_{0,m}z} e^{-i\omega_0 t} \\ & + \vec{E}_{pump}(x, y, z, t). \end{aligned} \quad (2.30)$$

Die durch das zusammengesetzte elektrische Feld getriebene Materialpolarisation verändert die Ausbreitungseigenschaften und koppelt die ursprünglich völlig unabhängig propagierenden Modenamplituden. Diese Betrachtungsweise bezeichnet man daher auch als Coupled Mode Theory (CMT).

### 2.2.2. Diskretisierungsverfahren

Die Ausbreitungsgleichung 2.28 ist sehr einfach und kann als Ausgangspunkt für die analytische Untersuchung der Pulsausbreitung oder zur Herleitung von Gleichungen für spezielle Materialsysteme dienen. Hier soll sie jedoch zur Berechnung der Modenausbreitung in Halbleiter-Nanodrähten verwendet werden. Dazu ist die Kopplung an ein umfassendes Modell des Halbleitermaterials notwendig, so dass das Gesamtsystem numerisch untersucht werden muss. Für die numerische Lösung der Modengleichung 2.28 bietet sich die Integration entlang von Charakteristiken an[64]. Dazu verwendet man eine räumliche und zeitliche Diskretisierung

$$[\hat{u}_m^{\pm}]_j^i = \hat{u}_m^{\pm}(i\Delta z, j\Delta t).$$

Wählt man jetzt den Zeitschritt

$$\Delta t = \frac{\Delta z}{|v|}, \quad (2.31)$$

erhält man ein sehr einfaches Zeitschrittverfahren

$$\begin{aligned} [\hat{u}_m^+]_{j+1}^{i+1} &= [\hat{u}_m^+]_j^i + \frac{\Delta t}{2} D_{j+\frac{1}{2}}^{i+\frac{1}{2}}, \\ [\hat{u}_m^-]_{j+1}^{i-1} &= [\hat{u}_m^-]_j^i + \frac{\Delta t}{2} D_{j+\frac{1}{2}}^{i-\frac{1}{2}}. \end{aligned} \quad (2.32)$$

Das Integral zur Berechnung des Materialterms  $D$  in Gleichung 2.29 kann in einem beliebigen, der Wellenleitergeometrie angepassten Koordinatensystem erfolgen. Die dazu notwendigen Modenprofile  $\vec{E}_m^{\pm}(x, y)$ ,  $\vec{H}_m^{\pm}(x, y)$  müssen dazu vor der eigentlichen Simulation analytisch oder mit Hilfe eines numerischen Modesolvers bestimmt werden. Im Extremfall eines einmodigen Wellenleiters ist es auch möglich, nur einen einzelnen Datenpunkt

## 2. Beschreibung der Lichtausbreitung

für die transversale Auflösung zu verwenden und das Problem so auf eine eindimensionale Geometrie zu reduzieren.

Berechnet man die reine Pulsausbreitung ohne Materialinteraktion, erhält man automatisch offene Randbedingungen. Sobald ein Materialsystem angekoppelt wird, ergibt sich eine schwache Reflektivität, die genau der Reflexion an einer Grenze zwischen Regionen mit und ohne angekoppeltem Materialsystem entspricht. Für die Simulation von Nanodrahtlasern ist es jedoch ohnehin erforderlich, die Reflektivität der Endfacetten mit zu berücksichtigen. Im Gegensatz zur Reflektion an einer ebenen Grenzfläche kann bei der Reflektion von Wellenleitermoden auch eine direkte Modenmischung auftreten. Um eine reflektierende Endfacette zu modellieren, wird zunächst die Reflektivitätsmatrix  $R_{mn}$  bestimmt, die angibt wie stark die Mode  $n$  in die Mode  $m$  reflektiert wird. Dazu kann beispielsweise das FDTD-Verfahren verwendet werden[65]. Diese wird dann in der eigentlichen Simulation verwendet, um die entsprechenden reflektierten Amplituden einzufügen. Werden die Gleichungen 2.31 auf den diskreten Indizes  $i \in [0, N_z - 1]$  ausgewertet, so ergibt sich für die reflektierten Amplituden am Rand

$$\begin{aligned} [\hat{u}_m^-]_j^{N_z} &= \sum_n R_{mn} [\hat{u}_n^+]_j^{N_z-1} \\ [\hat{u}_m^+]_j^{-1} &= \sum_n R_{mn} [\hat{u}_n^-]_j^0. \end{aligned} \tag{2.33}$$

## 3. Beschreibung der Licht-Materie-Wechselwirkung

Dieses Kapitel widmet sich verschiedenen Modellen der Licht-Materie-Wechselwirkung in unterschiedlichen Systemen. Im ersten Teil wird die resonante Wechselwirkung von Licht mit dem direkten Bandübergang von Halbleitermaterialien beschrieben. Die hier verwendeten Modelle werden im weiteren Verlauf dieser Arbeit zur Beschreibung von Halbleiter-Nanodrähten verwendet. Der zweite Teil beschäftigt sich mit der nicht-resonanten und nichtlinearen Wechselwirkung von Licht mit dielektrischen Materialien über Multiphotonenprozesse und bildet somit die Grundlage für die Untersuchung der Bildung selbstorganisierter Strukturen bei der Photoionisierung in Quarzglas.

### 3.1. Licht-Materie-Wechselwirkung im Halbleiter

#### 3.1.1. Halbleiter-Bloch-Gleichungen

Hier soll die Herleitung von Bewegungsgleichungen zur Beschreibung der Wechselwirkung eines klassischen Lichtfeldes mit quantenmechanisch beschriebenen Elektronen im Halbleiter erläutert werden. Dabei wird auch die Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Ladungsträgern in der Hartree-Fock Näherung berücksichtigt. Die so gewonnenen Gleichungen werden als Halbleiter-Bloch-Gleichungen[26, 27] bezeichnet. Wir beschränken uns für die elementare Herleitung auf je ein einzelnes Valenz- und Leitungsband. Elektronen im Valenz- und Leitungsband mit dem Blochwellenvektor  $\vec{k}$  werden durch die fermionischen Erzeuger- und Vernichterooperatoren  $\mathbf{c}_{v,\vec{k}}^\dagger, \mathbf{c}_{v,\vec{k}}$  beziehungsweise  $\mathbf{c}_{c,\vec{k}}^\dagger, \mathbf{c}_{c,\vec{k}}$  mit den Antikommutatorrelationen  $\{\mathbf{c}_{v,\vec{k}}^\dagger, \mathbf{c}_{v,\vec{k}}\} = \{\mathbf{c}_{c,\vec{k}}^\dagger, \mathbf{c}_{c,\vec{k}}\} = \delta(\vec{k}, \vec{k}')$  beschrieben. Die Erzeuger- und Vernichterooperatoren unterschiedlicher Bänder vertauschen mit verschwindendem Antikommutator.

##### 3.1.1.1. Hamiltonoperator für Licht-Materie-Wechselwirkung im Halbleiter

Der Hamiltonian für Licht-Materie-Wechselwirkung im Halbleiter setzt sich aus der kinetischen Energie der Quasiteilchen  $\mathbf{H}_e$ , der Licht-Materie-Wechselwirkung  $\mathbf{H}_{e-f}$  und der Coulomb-Wechselwirkung  $\mathbf{H}_C$  zwischen den Quasiteilchen zusammen

$$\mathbf{H} = \mathbf{H}_e + \mathbf{H}_{e-f} + \mathbf{H}_C. \quad (3.1)$$

### 3. Beschreibung der Licht-Materie-Wechselwirkung

Die Elektronenenergie hat die bekannte Form

$$\mathbf{H}_e = \sum_{\vec{k}} \left( \varepsilon_{c,k} \mathbf{c}_{c,\vec{k}}^\dagger \mathbf{c}_{c,\vec{k}} - \varepsilon_{v,k} \mathbf{c}_{v,\vec{k}}^\dagger \mathbf{c}_{v,\vec{k}} \right). \quad (3.2)$$

Der Index  $\vec{k}$  soll dabei stets auch die Summation über Spin-Zustände beinhalten. Die Licht-Materie-Wechselwirkung wird durch die Dipolnäherung

$$\mathbf{H}_{e-f} = \sum_{\vec{k}} -\vec{d}_k \vec{E} \left( \mathbf{c}_{c,\vec{k}}^\dagger \mathbf{c}_{v,\vec{k}} + \mathbf{c}_{c,\vec{k}} \mathbf{c}_{v,\vec{k}}^\dagger \right) \quad (3.3)$$

beschrieben. Hier handelt es sich um eine semiklassische Näherung, bei der das elektrische Feld klassisch beschrieben und nur das Materialsystem quantenmechanisch behandelt wird. Eine voll quantenmechanische Beschreibung erhält man durch Ersetzen klassischer Felder durch Feldoperatoren. Durch die semiklassische Beschreibung des Lichts verzichtet man auf eine mikroskopische Beschreibung nichtklassischer Zustände des Lichts sowie der spontanen Emission. Letztere kann jedoch nachträglich phänomenologisch eingebaut werden. Bei der Dipolnäherung wird davon ausgegangen, dass das elektrische Feld innerhalb einer Einheitszelle näherungsweise konstant ist. Da beim Übergang in ein höheres Band kein nennenswerter Impuls vom Licht an die Elektronen übergeben wird, ist die Wechselwirkung lokal.

Zur Herleitung des Coulomb-Hamiltonians beginnen wir mit dem klassischen Hamiltonian für paarweise Wechselwirkung im Ortsraum

$$\mathbf{H}_C = \int_{\mathbb{R}^3} \int_{\mathbb{R}^3} \rho(\vec{r}_1) \rho(\vec{r}_2) V(\vec{r}_1 - \vec{r}_2) d\vec{r}_1 d\vec{r}_2. \quad (3.4)$$

Das Wechselwirkungspotential hat in unserem Fall die Form

$$V(\vec{r}_1 - \vec{r}_2) = \frac{e^2}{4\pi\epsilon\epsilon_0} \frac{1}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|}. \quad (3.5)$$

In zweiter Quantisierung und Normalordnung entspricht dies

$$\mathbf{H}_C = \int_{\mathbb{R}^3} \int_{\mathbb{R}^3} \Psi^\dagger(\vec{r}_1) \Psi^\dagger(\vec{r}_2) V(\vec{r}_1 - \vec{r}_2) \Psi(\vec{r}_1) \Psi(\vec{r}_2) d\vec{r}_1 d\vec{r}_2. \quad (3.6)$$

Dabei sind  $\Psi^\dagger(\vec{r})$  und  $\Psi(\vec{r})$  die Feldoperatoren für Elektronen, welche gemäß der Antikommutatorrelation  $\{\Psi(\vec{r}), \Psi(\vec{r}')^\dagger\} = \delta(\vec{r}, \vec{r}')$  vertauschen.

Wir verwenden jetzt die Blochwellenbasis für die Feldoperatoren

$$\Psi(\vec{r}) = \sum_{\vec{k}, \lambda \in \{c, v\}} \mathbf{c}_{\lambda\vec{k}} e^{i\vec{k}\vec{r}} u_\lambda(\vec{r}). \quad (3.7)$$

Dabei steht der Index  $\lambda \in \{c, v\}$  für das Leitungs- oder Valenzband. Die Funktion  $u_\lambda$  stellt den gitterperiodischen Bloch-Faktor zum Band  $\lambda$  dar.

### 3. Beschreibung der Licht-Materie-Wechselwirkung

Für das Potential verwenden wir die Impulsbasis

$$V(\vec{r}_1 - \vec{r}_2) = \frac{1}{V} \sum_{\vec{q}} \tilde{V}_{\vec{q}} e^{i\vec{q}(\vec{r}_1 - \vec{r}_2)} \quad (3.8)$$

bezüglich der relativen Koordinate  $\vec{r} = \vec{r}_1 - \vec{r}_2$  mit dem Fourier-Transformierten Coulomb-Potential  $\tilde{V}_{\vec{q}} = \frac{e^2}{\varepsilon\varepsilon_0} \frac{1}{q^2}$  und erhalten

$$\begin{aligned} \mathbf{H}_C &= \frac{1}{V} \int_{\mathbb{R}^3} \int_{\mathbb{R}^3} d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \sum_{\vec{k}_1 - \vec{k}_4, \lambda_1 - \lambda_4, \vec{q}} \tilde{V}_{\vec{q}} \\ & e^{i(\vec{k}_3 - \vec{k}_1)\vec{r}_1} e^{i(\vec{k}_4 - \vec{k}_2)\vec{r}_2} e^{i\vec{q}\vec{r}_1} e^{-i\vec{q}\vec{r}_2} \\ & u_{\lambda_1}^*(\vec{r}_1) u_{\lambda_2}^*(\vec{r}_2) u_{\lambda_3}(\vec{r}_1) u_{\lambda_4}(\vec{r}_2) \\ & \mathbf{c}_{\lambda_1, \vec{k}_1}^\dagger \mathbf{c}_{\lambda_2, \vec{k}_2}^\dagger \mathbf{c}_{\lambda_3, \vec{k}_3} \mathbf{c}_{\lambda_4, \vec{k}_4}. \end{aligned} \quad (3.9)$$

Wir integrieren im Ortsraum zunächst über die Einheitszellen. Unter der Annahme, dass die Exponentialfunktionen in der Einheitszelle näherungsweise konstant sind, erhalten wir dabei Kronecker-Deltas im Bandindex. Danach führen wir die Integrale über die Exponentialfunktionen aus. Wir erhalten

$$\mathbf{H}_C = \frac{1}{V} \sum_{\vec{k}_1 - \vec{k}_4, \lambda_1 - \lambda_4, \vec{q}} \tilde{V}_{\vec{q}} \delta_{\lambda_1, \lambda_3} \delta_{\lambda_2, \lambda_4} \delta_{\vec{k}_3 - \vec{k}_1, \vec{q}} \delta_{\vec{k}_4 - \vec{k}_2, -\vec{q}} \mathbf{c}_{\lambda_1, \vec{k}_1}^\dagger \mathbf{c}_{\lambda_2, \vec{k}_2}^\dagger \mathbf{c}_{\lambda_3, \vec{k}_3} \mathbf{c}_{\lambda_4, \vec{k}_4} \quad (3.10)$$

und damit

$$\mathbf{H}_C = \frac{1}{V} \sum_{\vec{k}, \vec{k}', \lambda_1, \lambda_2, \vec{q}} \tilde{V}_{\vec{q}} \mathbf{c}_{\lambda_1, \vec{k}}^\dagger \mathbf{c}_{\lambda_2, \vec{k}'}^\dagger \mathbf{c}_{\lambda_1, \vec{k} + \vec{q}} \mathbf{c}_{\lambda_2, \vec{k}' - \vec{q}} \quad (3.11)$$

Die Coulomb-Wechselwirkung erlaubt also den Austausch eines Impulses  $\vec{q}$  zwischen zwei Elektronen im gleichen Band ( $\lambda_1 = \lambda_2$ ) oder zwischen Leitungs- und Valenzband ( $\lambda_1 \neq \lambda_2$ ). Solange wir nicht in die Elektron-Loch-Darstellung wechseln, betrachten wir lediglich negativ geladene Elektronen in verschiedenen Bändern und die Coulomb-Wechselwirkung ist rein abstoßend.

#### 3.1.1.2. Makroskopische Größen und ihre Bewegungsgleichungen

Für eine Beschreibung des Systems sind vor allem die messbaren Größen der Quasiteildichten  $n_{c, \vec{k}} = \langle \mathbf{c}_{c, \vec{k}}^\dagger \mathbf{c}_{c, \vec{k}} \rangle$  und  $n_{v, \vec{k}} = \langle \mathbf{c}_{v, \vec{k}}^\dagger \mathbf{c}_{v, \vec{k}} \rangle$  und mikroskopischen Polarisationen  $\psi_{\vec{k}} = \langle \mathbf{c}_{v, \vec{k}}^\dagger \mathbf{c}_{c, \vec{k}} \rangle$  von Interesse. Vor allem die mikroskopischen Polarisationen sind für die Rückkopplung an das klassische elektromagnetische Feld über die makroskopische Polarisation

$$\vec{P} = \frac{1}{V} 2\Re \left( \sum_{\vec{k}} \vec{d}_{\vec{k}} \psi_{\vec{k}} \right) \quad (3.12)$$

### 3. Beschreibung der Licht-Materie-Wechselwirkung

relevant. Die Bewegungsgleichungen der Erwartungswerte können über die Heisenberg-  
sche Bewegungsgleichung  $\frac{d}{dt} \langle O \rangle = \frac{i}{\hbar} \langle [H, O] \rangle$  hergeleitet werden. Für die Teilchen-  
dichten erhält man

$$\begin{aligned} \hbar \frac{d}{dt} n_{c, \vec{k}} &= 2\Im (d_k^* E^* \psi_{\vec{k}}) \\ -\frac{2}{V} \sum_{\vec{k}', \vec{q}} \tilde{V}_{\vec{q}} \Im &\left( \langle \mathbf{c}_{c, \vec{k}}^\dagger \mathbf{c}_{c, \vec{k}'}^\dagger \mathbf{c}_{c, \vec{k}+\vec{q}} \mathbf{c}_{c, \vec{k}'-\vec{q}} \rangle + \langle \mathbf{c}_{c, \vec{k}}^\dagger \mathbf{c}_{v, \vec{k}'}^\dagger \mathbf{c}_{c, \vec{k}+\vec{q}} \mathbf{c}_{v, \vec{k}'-\vec{q}} \rangle \right) \end{aligned} \quad (3.13)$$

und

$$\begin{aligned} \hbar \frac{d}{dt} n_{v, \vec{k}} &= 0 + 2\Im (d_k^* E^* \psi_{\vec{k}}) \\ -\frac{2}{V} \sum_{\vec{k}', \vec{q}} \tilde{V}_{\vec{q}} \Im &\left( \langle \mathbf{c}_{v, \vec{k}}^\dagger \mathbf{c}_{v, \vec{k}'}^\dagger \mathbf{c}_{v, \vec{k}+\vec{q}} \mathbf{c}_{v, \vec{k}'-\vec{q}} \rangle + \langle \mathbf{c}_{v, \vec{k}}^\dagger \mathbf{c}_{c, \vec{k}'}^\dagger \mathbf{c}_{v, \vec{k}+\vec{q}} \mathbf{c}_{c, \vec{k}'-\vec{q}} \rangle \right), \end{aligned} \quad (3.14)$$

wobei die drei Summanden jeweils dem Beitrag aus dem kinetischen, dem Wechselwirkungs-  
und dem Coulombterm entsprechen. Für die mikroskopischen Polarisierungen erhält man

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{d}{dt} \psi_{\vec{k}} &= (\varepsilon_{c, k} + \varepsilon_{v, k}) \psi_{\vec{k}} - (1 - n_{c, \vec{k}} - n_{v, \vec{k}}) \vec{d} \vec{E} \\ &+ \frac{1}{V} \sum_{\vec{k}', \vec{q}} \tilde{V}_{\vec{q}} \left( \langle \mathbf{c}_{v, \vec{k}}^\dagger \mathbf{c}_{c, \vec{k}'}^\dagger \mathbf{c}_{c, \vec{k}+\vec{q}} \mathbf{c}_{c, \vec{k}'-\vec{q}} \rangle + \langle \mathbf{c}_{v, \vec{k}-\vec{q}}^\dagger \mathbf{c}_{c, \vec{k}'+\vec{q}}^\dagger \mathbf{c}_{c, \vec{k}'} \mathbf{c}_{c, \vec{k}} \rangle \right) \\ &+ \frac{1}{V} \sum_{\vec{k}', \vec{q}} \tilde{V}_{\vec{q}} \left( \langle \mathbf{c}_{v, \vec{k}}^\dagger \mathbf{c}_{v, \vec{k}'}^\dagger \mathbf{c}_{c, \vec{k}+\vec{q}} \mathbf{c}_{v, \vec{k}'-\vec{q}} \rangle + \langle \mathbf{c}_{v, \vec{k}-\vec{q}}^\dagger \mathbf{c}_{v, \vec{k}'+\vec{q}}^\dagger \mathbf{c}_{v, \vec{k}'} \mathbf{c}_{c, \vec{k}} \rangle \right). \end{aligned} \quad (3.15)$$

#### 3.1.1.3. Hartree-Fock Näherung

Die Bewegungsgleichungen 3.13, 3.14 und 3.15 für die für uns interessanten Größen koppeln  
offenbar an die Erwartungswerte höherer Operatorprodukte. Für diese müsste man  
nun wie in Abbildung 3.1 skizziert weitere Bewegungsgleichungen aufstellen, die aber  
dann an Erwartungswerte noch höherer Operatorprodukte koppeln. Die so entstehende  
Hierarchie aus Bewegungsgleichungen muss auf irgendeiner Ebene abgeschnitten werden.  
Die einfachste Näherung, bei der Coulombeffekte noch berücksichtigt werden, ist  
die Hartree-Fock-Näherung. Dabei wird jeder Vierer-Erwartungswert aus Erzeuger- und  
Vernichteroperatoren  $\langle \mathbf{c}_{\lambda_1, \vec{k}_1}^\dagger \mathbf{c}_{\lambda_2, \vec{k}_2}^\dagger \mathbf{c}_{\lambda_3, \vec{k}_3} \mathbf{c}_{\lambda_4, \vec{k}_4} \rangle$  in eine Summe von Produkten aus je-  
weils zwei Zweier-Erwartungswerten  $\delta_{\vec{k}_i, \vec{k}_j} \langle \mathbf{c}_{\lambda_i, \vec{k}_i}^\dagger \mathbf{c}_{\lambda_j, \vec{k}_j} \rangle \delta_{\vec{k}_k, \vec{k}_l} \langle \mathbf{c}_{\lambda_k, \vec{k}_k}^\dagger \mathbf{c}_{\lambda_l, \vec{k}_l} \rangle$  zerlegt.  
Dabei werden alle Kombinationen der vorkommenden Operatoren berücksichtigt, die zu  
Produkten aus Quasiteilchendichten und/oder Polarisierungen führen. Bei Umordnung  
der ursprünglichen Operatorenreihenfolge müssen zudem die Vertauschungsregeln für die  
Operatoren eingehalten werden.

An einem Beispiel erhalten wir

$$\langle \mathbf{c}_{c, \vec{k}}^\dagger \mathbf{c}_{c, \vec{k}'}^\dagger \mathbf{c}_{c, \vec{k}+\vec{q}} \mathbf{c}_{c, \vec{k}'-\vec{q}} \rangle \rightarrow - \langle \mathbf{c}_{c, \vec{k}}^\dagger \mathbf{c}_{c, \vec{k}+\vec{q}} \rangle \langle \mathbf{c}_{c, \vec{k}'}^\dagger \mathbf{c}_{c, \vec{k}'-\vec{q}} \rangle \delta_{\vec{q}, 0} \quad (3.16)$$

$$+ \langle \mathbf{c}_{c, \vec{k}}^\dagger \mathbf{c}_{c, \vec{k}'-\vec{q}} \rangle \langle \mathbf{c}_{c, \vec{k}'}^\dagger \mathbf{c}_{c, \vec{k}+\vec{q}} \rangle \delta_{\vec{q}, \vec{k}'-\vec{k}}. \quad (3.17)$$



### 3. Beschreibung der Licht-Materie-Wechselwirkung

Der erste Term liefert dabei nur einen Beitrag für  $\vec{q} = 0$ . Der Beitrag dieses Terms zu den Summen in den Bewegungsgleichungen ist infinitesimal klein. Vernachlässigen wir diesen, erhalten wir für unseren Beispielterm

$$\langle \mathbf{c}_{c,\vec{k}}^\dagger \mathbf{c}_{c,\vec{k}'}^\dagger \mathbf{c}_{c,\vec{k}+\vec{q}} \mathbf{c}_{c,\vec{k}'-\vec{q}} \rangle \rightarrow n_{c,\vec{k}} n_{c,\vec{k}'} \delta_{\vec{q},\vec{k}'-\vec{k}}. \quad (3.18)$$

Die oben auftretende Bedingung

$$\vec{q} = \vec{k}' - \vec{k} \quad (3.19)$$

ergibt sich bei den hier vorkommenden Kombinationen aus  $\vec{k}$ -Indizes auch für alle anderen Terme, so dass die Summation über  $\vec{q}$  in den Bewegungsgleichungen entfällt.

#### 3.1.1.4. Übergang ins Elektron-Loch Bild

Wie in der Halbleiterphysik üblich, wollen wir im Weiteren das Elektron-Loch Bild verwenden. Der Übergang erfolgt durch die Ersetzungen

$$\begin{aligned} \mathbf{e}_{\vec{k}} &= \mathbf{c}_{c,\vec{k}}, & \mathbf{e}_{\vec{k}}^\dagger &= \mathbf{c}_{\vec{k}}^\dagger \\ \mathbf{h}_{\vec{k}} &= \mathbf{c}_{v,-\vec{k}}^\dagger, & \mathbf{h}_{\vec{k}}^\dagger &= \mathbf{c}_{v,-\vec{k}} \\ n_{e,\vec{k}} &= n_{c,\vec{k}}, & n_{h,-\vec{k}} &= (1 - n_{v,\vec{k}}). \end{aligned} \quad (3.20)$$

Durch die Ersetzung der Valenzbandelektronenoperatoren durch Löcheroperatoren im Wechselwirkungsterm 3.11 ergibt sich ein zusätzlicher Term in der Energie der Löcher

$$\varepsilon_{h,k} = -\varepsilon_{v,k} + \sum_{\vec{k}'} \tilde{V}_{\vec{k}'} \quad (3.21)$$

Der zweite Term entspricht der Energie des gefüllten Valenzbandes und ist in der aus der Bandstruktur gewonnenen Löcherenergie bereits enthalten.

#### 3.1.1.5. Halbleiter-Bloch-Gleichungen

Damit erhält man als Bewegungsgleichungen für die Polarisation

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{d}{dt} \psi_{\vec{k}} &= (1 - n_{e,\vec{k}} - n_{h,\vec{k}}) \Omega_{\vec{k}} \\ &+ (\tilde{\varepsilon}_{e,\vec{k}} + \tilde{\varepsilon}_{h,\vec{k}}) \psi_{\vec{k}} \end{aligned} \quad (3.22)$$

mit der renormierten Rabi-Frequenz

$$\Omega_{\vec{k}} = d_{\vec{k}} \vec{E} + \frac{1}{V} \sum_{\vec{k}'} \tilde{V}_{\vec{k},\vec{k}'} \psi_{\vec{k}'}, \quad (3.23)$$

und den renormierten Quasiteilchenenergien

$$\tilde{\varepsilon}_{e/h,\vec{k}} = \varepsilon_{e/h,k} - \frac{1}{V} \sum_{\vec{k}'} \tilde{V}_{\vec{k},\vec{k}'} (n_{e,\vec{k}'} + n_{h,\vec{k}'}). \quad (3.24)$$

### 3. Beschreibung der Licht-Materie-Wechselwirkung

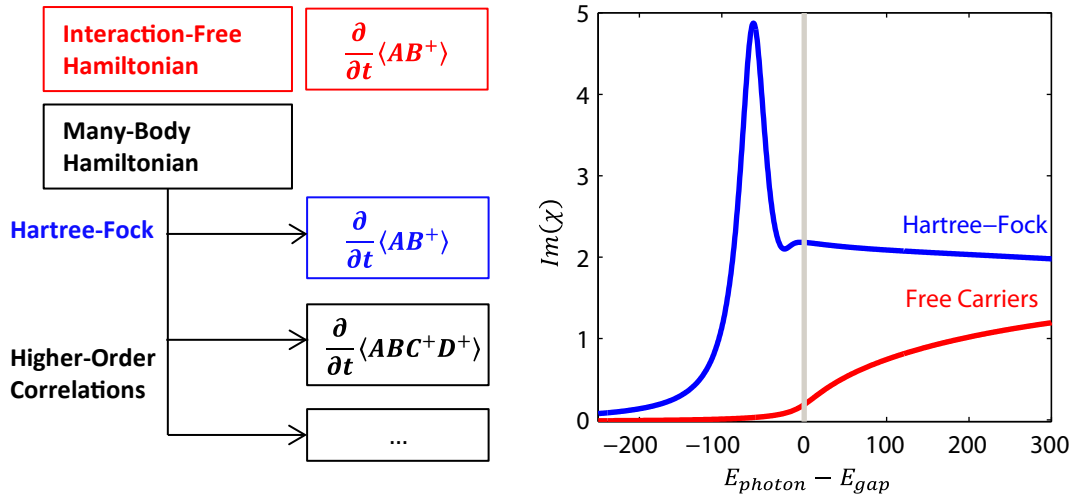


Abbildung 3.1.: Absorption eines Halbleiters mit direkter Bandlücke unter Berücksichtigung der Coulomb-Wechselwirkung in Hartree-Fock Näherung (blau) und berechnet ohne Coulomb-Wechselwirkung (freie Ladungsträger, rot). Die Skizze zeigt die Vorgehensweise bei der Ableitung von Bewegungsgleichungen für Mehrteilchensysteme.

Für die Besetzungszahlen erhalten wir

$$\frac{d}{dt} n_{e/h, \vec{k}} = -\frac{2}{\hbar} \Im \left( \Omega_{\vec{k}} \psi_{\vec{k}}^* \right). \quad (3.25)$$

Die Verwendung der Coulomb-Wechselwirkung in dieser Näherung führt offenbar dazu, dass die Erwartungswerte für verschiedene  $\vec{k}$ -Werte gekoppelt werden. Die so entstanden Bewegungsgleichungen werden als Halbleiter-Bloch-Gleichungen bezeichnet. Die optische Response eines solchen Systems wird durch die blaue Kurve in Abbildung 3.1 dargestellt. Aufgrund der Behandlung der Coulomb-Wechselwirkung enthält sie exzitonische Resonanzen unterhalb der Bandlücke und eine durch die Wechselwirkung erhöhte Absorption oberhalb der Bandlücke. Bei Weglassen der Coulomb-Wechselwirkung erhält man hingegen ungekoppelte Zweiniveausysteme, die jeweils durch die Bloch-Gleichungen der Atomphysik beschrieben werden. Die optische Response eines Modellsystems ohne Coulomb-Wechselwirkung ist in Abbildung 3.1 in rot dargestellt. Bei einem dreidimensionalen Halbleiterkristall steigt sie ab der Bandlücke wurzelförmig an.

#### 3.1.1.6. Winkelgemittelte Gleichungen

Eine Behandlung der Halbleiter-Bloch-Gleichungen in der Basis der Blochvektoren mit Richtungsauflösung ist numerisch extrem zeitaufwändig. Stattdessen ist es wünschenswert, über den Raumwinkel gemittelte Größen  $\psi_k$ ,  $n_{e,k}$  und  $n_{h,k}$  zu verwenden, die dann nur noch vom Betrag des Blochvektors abhängen. Dadurch können nur noch die S-Orbitale des Exzitons beschrieben werden. Diese Einschränkung ist jedoch unproblematisch, da bei der Anregung mit sichtbarem Licht ohnehin nur die S-Orbitale einen signifi-

### 3. Beschreibung der Licht-Materie-Wechselwirkung

kanten Beitrag leisten. Summen über Zustände  $\frac{1}{V} \sum_{\vec{k}}$  werden dann zu  $\frac{1}{V} \sum_{\vec{k}} \approx \int D(k) dk$  mit der Zustandsdichte  $D(k)$ . Im 3D-System gilt  $D(k) = \left(\frac{k}{\pi}\right)^2$ . Dabei ist die Summation über die beiden Spin-Zustände mit berücksichtigt.

So können auch die Coulomb-Summen vereinfacht werden

$$\begin{aligned} \frac{1}{V} \sum_{\vec{k}'} V(|\vec{k} - \vec{k}'|) f(\vec{k}') &\approx \frac{1}{(2\pi)^3} \int_0^\infty \int_0^{2\pi} \int_0^\pi dk' d\varphi d\Theta \\ &\tilde{V}(\vec{k}^2 + \vec{k}'^2 - 2\vec{k}\vec{k}' \cos(\Theta)) f(k') k'^2 \sin(\Theta) \\ &= \int_0^\infty f(k') V_{k,k'} dk' \end{aligned} \quad (3.26)$$

mit dem winkelgemittelten Potential

$$V_{k,k'} = \frac{e^2}{(2\pi)^2 \varepsilon \varepsilon_0} \frac{k'}{k} \ln \left( \frac{|k + k'|}{|k - k'|} \right). \quad (3.27)$$

#### 3.1.2. Phänomenologische Beschreibung höherer Korrelationen

Prinzipiell verfügen wir jetzt über eine komplette Beschreibung des Halbleiterübergangs in der Hartree-Fock-Näherung, die sich direkt in einer numerischen Implementierung umsetzen ließe. Durch das Abschneiden höherer Korrelationen in den Bewegungsgleichungen wurden allerdings einige wichtige Effekte vernachlässigt. Dazu zählen vor allem die Thermalisierung der Quasiteilchen über Coulombstreuungsprozesse und die Abschirmung der Coulombkraft bei hoher Anregungsdichte.

##### 3.1.2.1. Coulombstreuung

Berücksichtigt man bei der Herleitung von Bewegungsgleichungen nicht nur Erwartungswerte aus Paaren von Operatoren, sondern auch Terme aus jeweils vier Erzeuger- und Vernichtoperatoren, erhält man Streuprozesse zwischen Elektronen und Löchern. Während diese bei Berechnungen ohne räumliche Auflösung noch voll quantenmechanisch oder auf Basis der Boltzmann-Gleichung berücksichtigt werden können, ist dies bei der Kopplung an die Lichtausbreitung in einem räumlich aufgelösten System nicht mehr handhabbar. Unabhängig von den detaillierten Streumechanismen führt die Wechselwirkung aber zu einer Thermalisierung der Ladungsträger. Im thermischen Gleichgewicht nehmen diese dann eine Fermiverteilung

$$n_{f,e/h,k} = \left( 1 + e^{\frac{\varepsilon_{kin,e/h,k} - \mu_{e/h}}{k_B T_{e/h}} + 1} \right)^{-1} \quad (3.28)$$

mit der Temperatur  $T_{e/h}$  an.

### 3. Beschreibung der Licht-Materie-Wechselwirkung

**3.1.2.1.1. Relaxationszeitnäherung** Die konzeptionell einfachste Methode die Thermalisierung umzusetzen ist die Relaxation der Besetzungszahlen gegen eine Fermiverteilung mit der gleichen Ladungsträgerdichte. Dadurch erhält man einen zusätzlichen Term

$$\left[ \frac{d}{dt} n_{e/h,k} \right]_{relax} = \gamma_{f,e/h} (n_{f,e/h,k} - n_{e/h,k}) \quad (3.29)$$

in Gleichung 3.25. Dabei beschreibt  $\gamma_{f,e/h}$  die konstante Relaxationsrate. Das chemische Potential  $\mu_{e/h}$  muss dabei so gewählt werden, dass die Gesamtladungsträgerdichte  $N_{e/h} = \int \left(\frac{k}{\pi}\right)^2 n_{e/h,k} dk$  erhalten bleibt. Meist werden sowohl die Thermalisierung durch die Emission von Phononen als auch die Thermalisierung durch Coulombstreuung durch einen gemeinsamen nicht-energieerhaltenden Relaxationsprozess beschrieben. Als Gleichgewichtsverteilung wird dann eine Fermiverteilung mit der Gittertemperatur  $T_{lat}$  angesetzt. Als Unbekannte verbleibt dann der korrekte Wert für das chemische Potential, bei dem die Ladungsträgerdichte erhalten bleibt. Da für  $T > 0K$  keine analytische Formel zur Berechnung des chemischen Potentials existiert, muss dieses numerisch, beispielsweise durch das Intervallhalbierungsverfahren bestimmt werden. Soll die Coulombstreuung gesondert von anderen Relaxationsprozessen behandelt werden, muss hingegen berücksichtigt werden, dass es sich dabei um einen energieerhaltenden Prozess handelt. Zusätzlich zum chemischen Potential muss also auch die Temperatur  $T_{e/h}$  der Fermiverteilung bestimmt werden. Dabei muss die Gesamtenergie der Quasiteilchen  $E_{e/h} = \int_0^\infty \left(\frac{k}{\pi}\right)^2 n_{e/h,k} \varepsilon_{kin,e/h,k} dk$  erhalten bleiben.

**3.1.2.1.2. Sprungterme** Um die oben beschriebene Relaxationszeitnäherung umzusetzen, müssen das chemische Potential und im Falle einer rein energieerhaltenden Thermalisierung auch die Temperatur der Gleichgewichtsverteilung stets bekannt sein. Die Bestimmung des chemischen Potentials bei festgesetzter Temperatur ist auf diese Weise bereits numerisch aufwändig. Die gleichzeitige Bestimmung des chemischen Potentials und der Temperatur bei erhaltener Gesamtenergie und Ladungsträgerdichte hingegen ist für unsere Zwecke bereits nicht mehr sinnvoll umsetzbar. Ein alternativer Ansatz wurde von Huang und Ho vorgeschlagen[66]. Anstatt eine Gleichgewichtsverteilung vorzugeben, werden hier Sprungraten zwischen benachbarten Punkten im  $k$ -Raum angesetzt. Dabei können sowohl Abwärts- als auch Aufwärtssprünge auftreten. Anstatt der Relaxationsrate 3.29 erhält man nun den Term

$$\left[ \frac{d}{dt} n_{e/h,k} \right]_{relax} = \frac{\Delta_{k+\frac{1}{2}} - \Delta_{k-\frac{1}{2}}}{n_{0,e/h,k}} \quad (3.30)$$

mit

$$\Delta_{k+\frac{1}{2}} = \frac{n_{0,e/h,k+1} n_{e/h,k+1} (1 - n_{e/h,k})}{\tau_{d,e/h,k+\frac{1}{2}}} - \frac{n_{0,e/h,k} n_{e/h,k} (1 - n_{e/h,k+1})}{\tau_{u,e/h,k+\frac{1}{2}}}. \quad (3.31)$$

Die Faktoren  $n_{initial} (1 - n_{final})$  erzwingen dabei die Einhaltung des Pauli-Prinzips. Die Skalierung mit den  $k$ -abhängigen Zustandsdichten  $n_{0,e/h,k}$  stellt die Erhaltung der Gesamtladungsträgerdichte sicher. Versucht man nun, die Aufwärts- und Abwärtssprungraten

### 3. Beschreibung der Licht-Materie-Wechselwirkung

$\tau_u$  und  $\tau_d$  so zu wählen, dass das System im Gleichgewichtszustand eine Fermiverteilung mit einer vorgegebenen Temperatur  $T_{e/h}$  einnimmt, erhält man das Verhältnis

$$\frac{\tau_{u,e/h,k+\frac{1}{2}}}{\tau_{d,e/h,k+\frac{1}{2}}} = e^{\frac{\varepsilon_{kin,e/h,k+1} - \varepsilon_k}{k_B T}} \frac{n_{0,e/h,k+1}}{n_{0,e/h,k}} \quad (3.32)$$

zwischen den Aufwärts und Abwärts gerichteten Sprungraten. Wie man sieht, ist das chemische Potential  $\mu_{e/h}$  in diesem Ausdruck nicht mehr enthalten. Es muss also lediglich die Temperatur der finalen Verteilung bekannt sein. Ein weiterer Vorteil dieser Formulierung ist die Tatsache, dass die Relaxationszeiten auch  $k$ -abhängig gewählt werden können. Dabei wird jeweils eine der Sprungzeiten zwischen zwei Nachbarn entsprechend angesetzt. Die entgegengesetzte Sprungzeit ist dann durch das Verhältnis 3.32 bestimmt. Bei der Relaxationszeitnäherung führt eine  $k$ -abhängige Relaxationszeit hingegen automatisch zu einer Verletzung der Dichteerhaltung.

**3.1.2.1.3. Erweiterung der Sprungterme** Die Coulombstreuung erlaubt prinzipiell energierhaltende Streuprozesse von jedem Punkt im  $k$ -Raum zu jedem anderen Punkt. Unter Verwendung einer Relaxationszeitnäherung wird dieser Aspekt korrekt nachgebildet. Verwendet man Sprungterme in der ursprünglichen Formulierung von [66] wie in Gleichung 3.31 dargestellt, geht dieser Aspekt verloren. Dort sind nur Sprünge zwischen unmittelbar benachbarten  $k$ -Werten möglich. Die Formulierung lässt sich jedoch problemlos auf Sprünge zwischen beliebig weit entfernten Nachbarn übertragen. Wird das Verhältnis zwischen den Sprungzeiten  $\tau_{i \rightarrow j}$  und  $\tau_{j \rightarrow i}$  wie in Gleichung 3.32 bemessen, stellt sich als Gleichgewichtsverteilung auch hier eine Fermiverteilung bei der angesetzten Temperatur ein. Man erhält dann allgemeine Sprungterme

$$\left[ \frac{d}{dt} n_{e/h,k} \right]_{relax} = \sum_q \frac{\Delta_{q \rightarrow k} - \Delta_{k \rightarrow q}}{n_{0,e/h,k}} \quad (3.33)$$

mit

$$\Delta_{q \rightarrow k} = \frac{n_{0,e/h,q} n_{e/h,q} (1 - n_{e/h,k})}{\tau_{e/h,q \rightarrow k}} - \frac{n_{0,e/h,k} n_{e/h,k} (1 - n_{e/h,q})}{\tau_{e/h,k \rightarrow q}}, \quad (3.34)$$

wobei das Verhältnis

$$\frac{\tau_{e/h,k \rightarrow q}}{\tau_{e/h,q \rightarrow k}} = e^{\frac{\varepsilon_{kin,e/h,q} - \varepsilon_k}{k_B T}} \frac{n_{0,e/h,q}}{n_{0,e/h,k}} \quad (3.35)$$

gelten muss. Die Berechnung der Sprungterme zwischen beliebigen Paaren  $(k, q)$  skaliert quadratisch mit der Anzahl der verwendeten  $k$ -Punkte und ist daher numerisch aufwändiger als die Verwendung der einfachen Sprungterme oder der Relaxationszeitmethode. Soll eine energierhaltende Relaxation modelliert werden und zugleich das Springen zwischen beliebigen  $k$ -Punkten möglich sein, muss jedoch diese Alternative verwendet werden. Ähnlich wie bei Sprungtermen zwischen unmittelbaren Nachbarn müssen die Elemente der Sprungmatrix  $\tau_{e/h,k \rightarrow q}$  nicht für alle Paare  $(k, q)$  identisch sein. Stattdessen können diese auch unterschiedlich gewichtet werden. Dadurch können beispielsweise auch Sprünge um einen festen Energiebetrag realisiert werden, wie sie bei der Kopplung an optische Phononen auftreten.

### 3.1.2.2. Abschirmung des Coulombpotentials

Bei hohen Anregungen, wie sie im Lasingregime auftreten, liegt eine sehr hohe Dichte aus freien Ladungsträgern vor. Ähnlich wie in einem Plasma führt die Anwesenheit freier Ladungsträger zu einer Abschirmung der Coulombwechselwirkung. Wie die Coulombstreuung wird auch die Abschirmung beim Abschneiden höherer Korrelationen im Rahmen der Hartree-Fock-Näherung vernachlässigt. Da auch die Abschirmung einen signifikanten Einfluss auf die optischen Eigenschaften von Halbleitermaterialien hat, muss sie phänomenologisch behandelt werden. Dazu ersetzt man zunächst das Coulombpotential  $\tilde{V}_{\vec{q}}$  durch ein abgeschirmtes Potential

$$\tilde{W}_{\vec{q}} = \frac{e^2}{\varepsilon\varepsilon_0} \frac{1}{q^2 + \kappa^2} \quad (3.36)$$

mit der Abschirmlänge  $\kappa$ . Durch diese Ersetzung ändert sich prinzipiell auch die Energie der Löcher in Gleichung 3.21. Drückt man diese durch eine effektive Masse aus ist zu beachten, dass in dem so entstehenden Zahlenwert bereits ein nicht-abgeschirmtes Coulombpotential enthalten ist. Um die korrekte Löcherenergie bei Hochanregung zu berechnen muss also noch die Differenz

$$\Delta = \sum_{\vec{q}} \tilde{W}_{\vec{q}} - \tilde{V}_{\vec{q}} \quad (3.37)$$

zur mit einem abgeschirmten Potential berechneten Energie hinzu addiert werden[27]. Diese bezeichnet man als Coulomb hole shift.

### 3.1.3. Dephasierung und spontane Rekombination

Eine komplett quantenmechanische Beschreibung des Halbleiters enthält zusätzliche Effekte, die für ein realistisches Modell von Bedeutung sind. Da ein quantenmechanisches Modell der Licht-Materie-Wechselwirkung sehr aufwändig ist, werden auch diese Effekte phänomenologisch beschrieben. Dazu zählt die spontane Rekombination von Quasiteilchen. Diese lässt sich phänomenologisch durch einen Zerfall mit einer konstanten Rate  $\gamma_{rec}$  beschreiben. Dies führt zu einem zusätzlichen Term

$$\left[ \frac{d}{dt} n_{e/h,\vec{k}} \right]_{rec} = -\gamma_{rec} n_{e,\vec{k}} n_{h,\vec{k}} \quad (3.38)$$

in Gleichung 3.25. Zusätzlich kommt es dadurch auch zu einem Verlust der Phaseninformation der Interbandpolarisation. Auch hier ist es üblich, einen konstanten Zerfall der Polarisation mit einer Rate  $\gamma$  anzusetzen. Dadurch erhält man den zusätzlichen Zerfallsterm

$$\left[ \frac{d}{dt} \psi_{\vec{k}} \right]_{dephasing} = -\frac{1}{\hbar} \gamma \psi_{\vec{k}} \quad (3.39)$$

in Gleichung 3.22. Dieser Term hat neben der physikalischen auch numerische Relevanz, da es ohne eine solche Verbreiterung zu Divergenzen im Absorptionsspektrum kommt.

### 3. Beschreibung der Licht-Materie-Wechselwirkung

Die spontane Rekombination von Ladungsträgern erfolgt zum Teil strahlend durch Emission von Photonen. Um die dadurch entstehenden statistischen Schwankungen zu modellieren, wird ein Rauschterm

$$\Gamma_{\psi,\lambda,q,k} = (\xi_{1,\lambda,q,k} + i\xi_{2,\lambda,q,k}) \sqrt{\gamma_{se,k} n_{e,k} n_{\lambda,k}} \quad (3.40)$$

in Gleichung 3.22 eingesetzt. In Simulationen kann dadurch das Anschwingen von Lasern aus der spontanen Emission modelliert werden.

Ein ähnlicher Term

$$\Gamma_{n_{e/h},k} = \xi_{3,h/e,k} \sqrt{n_{e,k} n_{h,k} \gamma_{rec}} \quad (3.41)$$

in Gleichung 3.25 beschreibt die durch spontane Rekombination induzierten Schwankungen in der Ladungsträgerdichte[67, 68].

#### 3.1.4. Wechselwirkung mit dem Gitter

In Abschnitt 3.1.2.1 wurde bereits die energieerhaltende Thermalisierung der Quasiteilchen durch Coulombstreuung behandelt. Zusätzlich kann aber auch Energie an Phononen abgegeben werden. Während die Coulombstreuung erst im Rahmen der Hartree-Fock-Näherung vernachlässigt wurde, ist die Wechselwirkung mit Phononen bereits im ursprünglichen Hamiltonian nicht enthalten. Um diese quantenmechanisch zu behandeln, müssten die entsprechenden Wechselwirkungsterme zum Hamiltonian hinzugefügt werden. Eine solche Beschreibung bietet der Fröhlich-Hamiltonian

$$H_{e-ph} = \sum_{\lambda} \int_{\mathbb{R}^2} \int_{\mathbb{R}^2} \gamma(\lambda, \vec{q}) \left( \mathbf{c}_{\lambda, \vec{k}} \mathbf{c}_{\lambda, \vec{k} + \vec{q}}^\dagger u_{\lambda, \vec{q}} - \mathbf{c}_{\lambda, \vec{k}} \mathbf{c}_{\lambda, \vec{k} - \vec{q}}^\dagger u_{\lambda, \vec{q}}^\dagger \right) d\vec{q} d\vec{k}. \quad (3.42)$$

In diesem Modell können Elektronen durch Erzeugung eines Phonons mit dem Operator  $u^\dagger(\vec{q})$  oder Absorption eines Phonons mit  $u(\vec{q})$  den Impuls  $\hbar\vec{q}$  an das Gitter abgeben. Die Wechselwirkung wird dabei durch das Potential  $\gamma(\lambda, \vec{q})$  bestimmt, welches je nach Art der betrachteten Phononen eine unterschiedliche Form annimmt. Für longitudinal akustische Phononen mit der Eigenfrequenz  $\omega_A(\vec{q})$  hat das Wechselwirkungspotential beispielsweise die Form[69]

$$\gamma_A(\lambda, \vec{q}) = \frac{-i\alpha_{0,\lambda}}{\sqrt{2\pi}^3} \sqrt{\frac{\hbar}{2m}} \times \frac{|\vec{q}|}{\sqrt{\omega_A(\vec{q})}} \quad (3.43)$$

und für longitudinal optische Phononen mit Eigenfrequenz  $\omega_O(\vec{q})$  die Form[70]

$$\gamma_O(\lambda, \vec{q}) = \frac{ie}{\sqrt{2\pi}^3} \sqrt{\frac{2\pi\hbar}{\epsilon_0} \left( \frac{1}{\epsilon_\infty} - \frac{1}{\epsilon_s} \right)} \times \frac{\sqrt{\omega_O(\vec{q})}}{|\vec{q}|} \quad (3.44)$$

mit der dielektrischen Feldkonstante im Vakuum  $\epsilon_0$  und den Permittivitäten  $\epsilon_\infty$  und  $\epsilon_s$  für hohe Frequenzen und statische Felder.

### 3. Beschreibung der Licht-Materie-Wechselwirkung

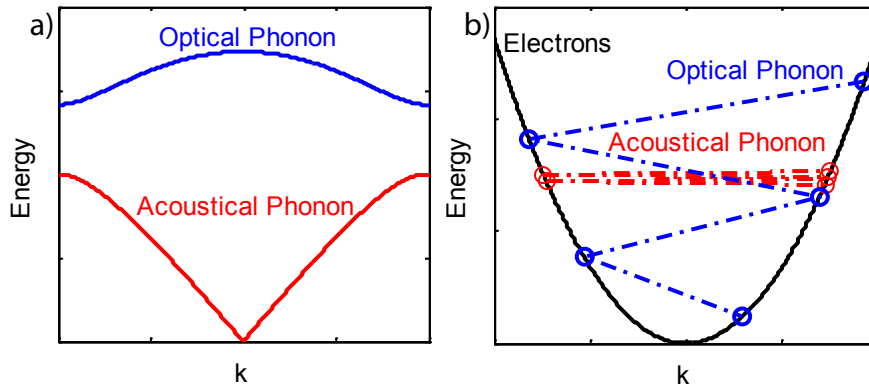


Abbildung 3.2.: (a): Dispersion optischer und akustischer Phononen am Beispiel einer zweiatomigen linearen Kette. (b): Skizze einiger möglicher Sprünge durch Emission optischer (blau) oder akustischer (rot) Phononen.

Auf die quantenmechanische Behandlung der Wechselwirkung wird kurz in Kapitel 5.2.1 eingegangen. Für die Anwendung in Verbindung mit den Halbleiter-Bloch-Gleichungen als Lasingsmodell interessiert uns aber vor allem die Relaxation der Ladungsträger durch die Emission von Phononen, welche hier nur phänomenologisch behandelt werden soll. Da die Wärmekapazität der Elektronen und Löcher sehr gering ist, kann man in den meisten Fällen davon ausgehen, dass das Gitter nicht signifikant erhitzt wird. In diesem Fall führt die Relaxation zu einer Fermiverteilung bei der Gittertemperatur  $T_{lat}$ . Ähnlich wie bei der Coulombstreuung kann eine solche Relaxation näherungsweise entweder durch die Relaxationszeitnäherung oder durch Sprungterme beschrieben werden.

Da die Anregungen ihre Energie bei diesem Prozess an ein Phonon abgeben, sind jeweils nur Sprünge um den Energiebetrag eines Phonons möglich. Gleichzeitig muss auch der Gesamtimpuls erhalten bleiben. Die Dispersion von Phononen ist in Abbildung 3.2 (a) beispielhaft für eine lineare zweiatomige Kette dargestellt. Sowohl optische als auch akustische Phononen sind im Vergleich zu den Ladungsträgern sehr schwach dispersiv. Akustische Phononen haben bei  $k = 0$  eine verschwindende Eigenenergie. Aufgrund ihrer geringen Gruppengeschwindigkeit leisten sie auch bei für Elektronen sehr großen  $k$ -Werten nur einen geringen Energiebeitrag. Für Elektronen und Löcher ermöglicht dies Sprünge zu Zuständen mit umgekehrtem Vorzeichen von  $k$ , aber mit fast unveränderter Energie (Abbildung 3.2 (b)). Solche Sprünge lassen sich gut durch die Kopplung benachbarter  $k$ -Werte wie in Abschnitt 3.1.2.1.2 realisieren. Optische Phononen hingegen haben bei  $k = 0$  eine verschwindende Gruppengeschwindigkeit, aber eine endliche Eigenenergie  $E_{o,k=0}$ . Daher können durch Emission optischer Phononen praktisch nur Sprünge um die Phononenenergie  $E_{o,k=0}$  realisiert werden (Abbildung 3.2(b)). Soll dieses Verhalten umgesetzt werden, müssen die erweiterten Sprungterme aus Abschnitt 3.1.2.1.3 verwendet werden. Dabei werden die Elemente der Sprungmatrix so gewichtet, dass lediglich Sprünge mit dem korrekten Energiebetrag möglich sind.



### 3.1.5. Berücksichtigung realer Bandstrukturen

Bei der Herleitung der Halbleiter-Bloch-Gleichungen in Abschnitt 3.1.1 wurde zunächst nicht weiter auf die Energie der Quasiteilchen  $\varepsilon_{kin,e/h,k}$ , eingegangen. Diese muss im Allgemeinen aus Ab-Initio Methoden gewonnen werden. In der Nähe der direkten Bandlücke ergeben sich jedoch meist annähernd parabolische Bänder. Da sich die für die Licht-Materie-Wechselwirkung relevanten Phänomene meist in diesem Bereich des Wellenvektorraumes abspielen, verwendet man meist die Effektivmassennäherung

$$\varepsilon_{kin,e/h,k} = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_{eff,e/h}}. \quad (3.45)$$

Mit einer durch die reale Bandstruktur vorgegebenen effektiven Masse  $m_{eff,e/h}$ .

Da die reale Bandstruktur meist mehrere Übergänge aufweist, die energetisch in der Nähe der fundamentalen Bandlücke liegen, müssen auch diese berücksichtigt werden. Die Kopplung der einzelnen Übergänge an die verschiedenen Polarisationszustände wird dabei durch die Drehimpulserhaltung bestimmt. Um die erlaubten Übergänge und die damit verbundenen relativen Dipolmatrixelemente zu bestimmen, werden die vorliegenden Leitungs- und Valenzbandzustände mit Hilfe der Clebsch-Gordan-Koeffizienten durch Spin- und Bahndrehimpulseigenzustände  $|l, m_l\rangle |m_s\rangle$  dargestellt. Nimmt man an, dass der Elektronenspin erhalten bleibt, sind die erlaubten Übergänge dann jene, bei denen der gesamte Bahndrehimpuls des elektronischen Systems und der absorbierten Phononen erhalten bleibt.

Zusammenfassend sind die relevanten aus der Bandstruktur zu gewinnenden Parameter also

- Die relevanten Übergänge von Band  $\lambda_i$  zu Band  $\lambda_j$  und die jeweiligen Bandlücken  $\varepsilon_{gap,i \rightarrow j}$
- Die fundamentalen Dipolmatrixelemente  $d_k$  und die relativen Matrixelemente  $d_{k,\lambda_i \rightarrow \lambda_j,p}$  für die Polarisation  $p$  und die Übergänge  $\lambda_i \rightarrow \lambda_j$
- Die effektiven Massen  $m_{eff,\lambda}$  oder eine entsprechende Beschreibung der Energiedispersion der einzelnen Bänder  $\varepsilon_{kin,\lambda,k}$ .

#### 3.1.5.1. Übergänge für 2-6 Halbleiter

Teil 2 dieser Arbeit beschäftigt sich mit Nanodrähten aus den 2-6-Halbleitern ZnO und CdS in der Wurtzit-Struktur. Diese Materialien sind doppelbrechend, wobei die optische Achse in  $z$ -Richtung entlang des Drahts zeigt. Die optischen Übergänge erfolgen zwischen  $p$ -artigen Valenzbändern und einem  $s$ -artigen Leitungsband (Gesamtdrehimpuls  $j = \frac{1}{2}, m_j = \pm \frac{1}{2}$ ). Die Entartung der drei Valenzbänder  $a$  ( $j = \frac{3}{2}, m_j = \pm \frac{3}{2}$ ),  $b$  ( $j = \frac{3}{2}, m_j = \pm \frac{1}{2}$ ) und  $c$  ( $j = \frac{1}{2}, m_j = \pm \frac{1}{2}$ ) wird durch Spin-Bahn-Kopplung und durch das Kristallfeld aufgehoben[71, 72]. Bei Erhaltung des Bahndrehimpulses erhalten wir optische Übergänge mit  $\Delta m_l = 0$  für entlang der  $z$ -Achse polarisiertes Licht und Übergänge mit  $\Delta m_l = \pm 1$  für zirkular in der  $xy$ -Ebene polarisiertes Licht. Die Zustände in

### 3. Beschreibung der Licht-Materie-Wechselwirkung

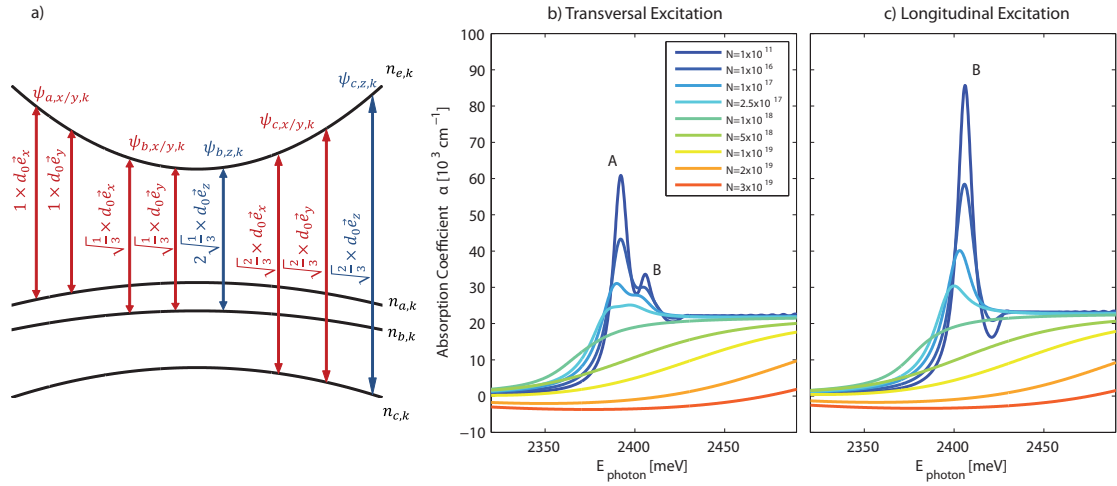


Abbildung 3.3.: (a): Skizze der relevanten Bänder und Übergänge für 2-6 Halbleitermaterialien mit Wurtzit-Struktur. (b) und (c): Absorptionsspektren von CdS, berechnet mit den Halbleiter-Bloch-Gleichungen mit den Valenzbändern  $a$  und  $b$  (Valenzband  $c$  wurde bei der Rechnung vernachlässigt, da es energetisch weit von der fundamentalen Bandlücke entfernt ist). In (b) wurde mit transversal zur Kristallachse polarisiertem Licht angeregt, in (c) mit longitudinal zur Kristallachse polarisiertem Licht.

ihrer Darstellung als Linearkombinationen der Spin- und Bahndrehimpulseigenzustände sind

$$|j = \frac{1}{2}, m_j = \pm \frac{1}{2}\rangle = |l = 0, m_l = 0\rangle |m_s = \pm \frac{1}{2}\rangle \quad (3.46)$$

für das Leitungsband und

$$|j = \frac{3}{2}, m_j = \pm \frac{3}{2}\rangle = |l = 1, m_l = \pm 1\rangle |m_s = \pm \frac{1}{2}\rangle \quad (3.47)$$

$$|j = \frac{3}{2}, m_j = \pm \frac{1}{2}\rangle = \sqrt{\frac{1}{3}}|l = 1, m_l = \pm 1\rangle |m_s = \mp \frac{1}{2}\rangle + \sqrt{\frac{2}{3}}|l = 1, m_l = 0\rangle |m_s = \pm \frac{1}{2}\rangle \quad (3.48)$$

$$|j = \frac{1}{2}, m_j = \pm \frac{1}{2}\rangle = \sqrt{\frac{2}{3}}|l = 1, m_l = \pm 1\rangle |m_s = \mp \frac{1}{2}\rangle - \sqrt{\frac{1}{3}}|l = 1, m_l = 0\rangle |m_s = \pm \frac{1}{2}\rangle \quad (3.49)$$

für die Valenzbänder  $a$ ,  $b$  und  $c$ . So erhält man also zwei Übergänge für  $x$ - und  $y$ -polarisiertes Licht mit den relativen Matrixelementen  $\vec{d}_{a,xy,k} = 1 \times d_{0,a,k} \vec{e}_{xy}$  für Valenzband  $a$ . Die Valenzbänder  $b$  und  $c$  hingegen koppeln an alle drei Polarisationsrichtungen mit den Matrixelementen  $\vec{d}_{b,xy,k} = \sqrt{\frac{1}{3}} \times d_{0,b,k} \vec{e}_{xy}$ ,  $\vec{d}_{b,z,k} = 2\sqrt{\frac{1}{3}} \times d_{0,b,k} \vec{e}_z$  für das  $b$ -Band und  $\vec{d}_{c,xyz,k} = \sqrt{\frac{2}{3}} \times d_{0,c,k} \vec{e}_{xy}$  für das  $c$ -Band. Die Bänder und erlaubten Übergänge

### 3. Beschreibung der Licht-Materie-Wechselwirkung

sind in Abbildung 3.3(a) skizziert. Abbildung 3.3(b) und (c) zeigen mit den Halbleiter-Bloch-Gleichungen mit mehreren Bändern berechnete Absorptionsspektren am Beispiel CdS. Man erkennt deutlich, dass sich im Fall transversal zur Kristallachse polarisierter Anregung ein zweiter exzitonischer Absorptionspeak bildet, der von dem Übergang von Valenzband  $a$  zum Leitungsband herrührt und der deshalb bei longitudinal polarisierter Anregung nicht zu sehen ist.

## 3.2. Photoionisierung von Dielektrika

Im letzten Abschnitt wurde die resonante Wechselwirkung von Licht mit einem elektronischen Übergang im Halbleiter beschrieben. Dort liegt die Photonenenergie des einfallenden Lichts nah an der Übergangsfrequenz, so dass Elektronen durch Absorption oder stimulierte Emission von Licht in ein anderes Band wechseln können. Eine andere Situation liegt bei dielektrischen Materialien vor. Hier liegen die elektronischen Übergänge energetisch viel höher als sichtbares Licht, so dass das Material transparent erscheint. Die Anregung von Elektronen ins Leitungsband ist hier nur durch nichtlineare Ionisierungsprozesse [33, 34, 35] möglich. Diese treten nur bei sehr hohen Intensitäten auf, wie sie beispielsweise bei der Fokussierung von Femtosekundenlaserpulsen vorliegen. Dieser Umstand macht die nichtlineare Ionisierung sehr interessant für Anwendungen in der Materialbearbeitung, da Material durch die starke Nichtlinearität gezielt nur im Fokus eines Laserstrahls modifiziert werden kann. Dadurch sind Materialmodifikationen nicht nur an der Oberfläche, sondern auch innerhalb des Materialvolumens möglich. Für geringe Pulsenergien führt das schnelle Schmelzen und Abkühlen des Materials zu einer homogenen Änderung des Brechungsindex im Fokusbereich, was zum Schreiben von Lichtwellenleitern verwendet werden kann [36]. Mit sehr hohen Pulsenergien können Mikroexplosionen hervorgerufen werden [37, 38]. Als eine weitere Modifikation können doppelbrechende Strukturen im Material erzeugt werden [39, 40, 41, 42], die in Kapitel 6 der vorliegenden Arbeit untersucht werden.

### 3.2.1. Nichtlineare Ionisierungsmechanismen

Die Beschreibung des Bandübergangs mit Hilfe des Wechselwirkungshamiltonians 3.3 geht davon aus, dass das anregende Feld zwar einen Übergang von Elektronen zwischen verschiedenen Zuständen induziert, dass die Zustände selbst jedoch nicht signifikant durch das Feld verändert werden. Mit dieser Annahme erhält man pro Übergang ein effektives Lorentzmodell mit einem Absorptionsmaximum bei der Energiedifferenz zwischen Start- und Zielzustand. Dies passt zur einfachen Vorstellung, dass die Energie eines absorbierten Photons mit der Energie des Bandübergangs übereinstimmen muss, damit die Energieerhaltung beim Absorptionsprozess nicht verletzt wird.

Denkbar ist aber auch eine elementarere Beschreibung, bei der ein auf der Größenordnung des Atoms homogenes elektrisches Feld als lineares Potential in die Schrödingergleichung für das Elektron eingeht. Dieses führt zu einer Modifikation des Gesamtpotentials wie in Abbildung 3.4(a) skizziert. Dadurch ist das Potential nicht mehr symmetrisch, sondern wird in eine Richtung abgeschwächt. Bei hinreichend starker Abschwächung ist es nun möglich, dass Elektronen aus ursprünglich gebundenen Zuständen durch die so entstandene Potentialbarriere tunneln. Dieser Effekt wird als Tunnelionisierung bezeichnet und wurde semiklassisch durch Keldysh beschrieben [33, 34]. Die so gewonnene Ionisierungsrate entspricht bei niedrigen Frequenzen genau der Vorstellung der Tunnelionisierung. Bei hohen Frequenzen ergibt sich hingegen eine Ionisierungsrate

$$\nu_{mpi} = \sum_n \frac{\sigma_n I^n}{\rho_0} \quad (3.50)$$

### 3. Beschreibung der Licht-Materie-Wechselwirkung

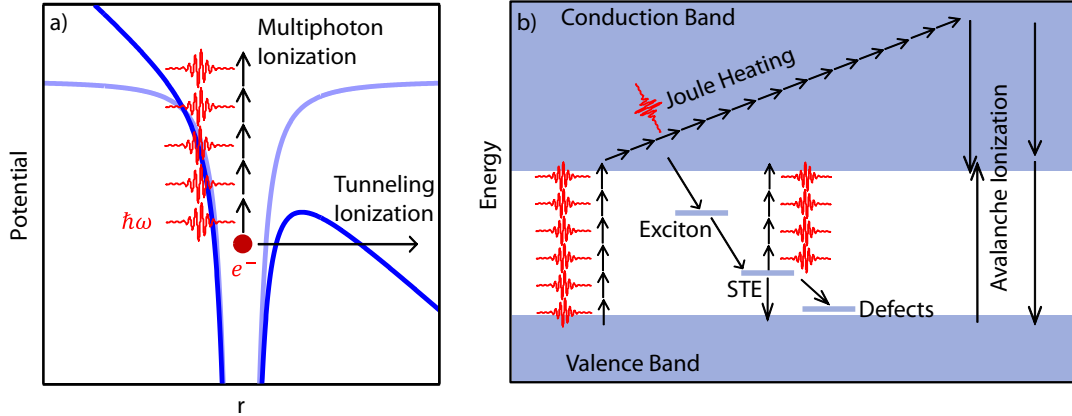


Abbildung 3.4.: (a): Initiale Ionisierung durch Mehrphotonenionisierung und Tunnelionisierung. (b): Weitere Prozesse nach der initialen Ionisierung: Erhitzung der Leitungsbandelektronen, Avalanche-Ionisierung und Relaxation zu Exzitonen, Self-Trapped Excitons (STE), Defektzuständen oder ins Valenzband.

abhängig von der Intensität  $I$ , die der Vorstellung entspricht, dass die Bandlücke durch die gleichzeitige Absorption von  $n$  Photonen mit dem Ionisierungsquerschnitt  $\sigma_n$  überwunden wird (Abbildung 3.4(a)). Dabei ist  $\rho_0$  die Atomdichte.

Dies ist insofern überraschend, dass das Modell rein semiklassisch angelegt ist und somit lediglich elektrische Felder, aber keine Photonen beschreibt. Eine nützliche Kennzahl zur Unterscheidung der Regimes dominanter Mehrphotonen- oder Tunnelionisierung ist der Keldysh-Parameter

$$\gamma = \omega \frac{\sqrt{2m_e W_{ion}}}{eE}. \quad (3.51)$$

Dabei bezeichnet  $m_e$  die effektive Elektronenmasse,  $W_{ion}$  die Ionisierungsenergie des Materials und  $E$  den Betrag der elektrischen Feldstärke. Im Fall  $\gamma \gg 1$  dominiert die Mehrphotonenionisierung, im Fall  $\gamma \ll 1$  die Tunnelionisierung.

Werden die ins Leitungsband angeregten Elektronen durch das einfallende Feld weiter beschleunigt beziehungsweise erhitzt, können sie ihre Energie wieder an Valenzbandelektronen abgeben und dadurch zur weiteren Ionisierung des Materials beitragen (Abbildung 3.4(b)). Dieser Mechanismus wird als Avalanche-Ionisierung bezeichnet und kann durch eine Temperatur- und Dichteabhängige Kollisionsfrequenz [73, 74] oder grundlegender durch ein Multi-Ratengleichungsmodell [75, 76] beschrieben werden, bei dem die verschiedenen Energiezustände innerhalb des Leitungsbands berücksichtigt werden. In dieser Arbeit wurde ein möglichst einfaches Modell verwendet, bei dem lediglich die Mehrphotonenionisierung berücksichtigt wird. Allerdings wurden die in Teil 3 vorgestellten Ergebnisse mittlerweile auch von anderen Autoren unter Verwendung einer kompletten Keldysh-Ionisierungsrate sowie eines Multi-Ratengleichungsmodells bestätigt [77].

Unter der hier verwendeten Annahme einer reinen Mehrphotonenionisierung ergibt sich

### 3. Beschreibung der Licht-Materie-Wechselwirkung

die einfache Ratengleichung

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho = (\rho_0 - \rho) \nu_{mpi} - \frac{\rho}{\tau_{rec}} \quad (3.52)$$

für die Anregungsdichte  $\rho$ . Dabei wurde zusätzlich eine Rekombination der Ladungsträger mit der Rate  $\tau_{rec}$  angenommen. Der Faktor  $(\rho_0 - \rho)$  sorgt für die Einhaltung des Pauli-Prinzips. Der durch die Absorption bedingte Verlust des elektrischen Feldes soll durch einen Ionisierungsstrom  $\vec{J}_{mpi}$  berücksichtigt werden[73, 74]. Dazu setzt man den Energiegewinn der Elektronen durch die Ionisierung  $\frac{\partial}{\partial t} W = W_{ion} \nu_{mpi} (\rho_0 - \rho)$  mit dem Verlust des elektrischen Feldes  $\vec{J}_{mpi} \vec{E}$  gleich und erhält so

$$\vec{J}_{mpi} = \frac{\sigma_n}{\rho_0} W_{ion} I^{n-1} \vec{E} (\rho_0 - \rho). \quad (3.53)$$

#### 3.2.2. Elektronen im Leitungsband

Elektronen, die ins Leitungsband angeregt wurden, sind frei beweglich und können mit dem elektrischen Feld wechselwirken. Im einfachsten Fall können sie dann durch die klassische Drude-Theorie[78] beschrieben werden

$$\frac{\partial}{\partial t} \vec{J}_d = -\nu_e \vec{J}_d + \frac{e^2}{m_e} \rho \vec{E}. \quad (3.54)$$

Dabei wird angenommen, dass das freie Elektronengas durch das elektrische Feld  $\vec{E}$  ausgelenkt und durch die Kollisionsrate  $\nu_e$  gedämpft wird. Da die Elektronen geladen sind, äußert sich dies in einer Stromdichte  $\vec{J}_d$ .

#### 3.2.3. Rekombination und Materialmodifikation

In dieser Arbeit stand die optische Selbstorganisation im Vordergrund und die anschließende Materialmodifikation wurde nicht modelliert. Da diese Effekte jedoch verantwortlich für die finale Ausbildung der untersuchten Strukturen und für die Vermittlung zwischen einzelnen Laserpulsen sind, sollen sie hier kurz besprochen werden. Nachdem die Elektronen ionisiert und durch weitere Bestrahlung erhitzt wurden, geben sie ihre Energie über verschiedene Prozesse wieder ans Gitter ab (Abbildung 3.4 (b)). Dadurch kommt es zu verschiedenen Veränderungen des Materials. Der kurzlebigste Defekt ist das so genannte Self-Trapped Exciton (STE). Dabei bilden sich aus freien Elektronen und Löchern zunächst Exzitonen. Diese wechselwirken mit Gitterschwingungen und können durch ihr eigenes Deformationsfeld lokalisiert werden[79]. Die Bildung von STEs führt zu einer kurzlebigen Erhöhung der Absorption.[80] Nach etwa 400 fs zerfallen STEs und erzeugen permanente Gitterdefekte, die zu einer Erhöhung der Dichte führen[81]. Ein weiterer Effekt, der zur Bildung von Defekten führen kann, ist das Herauslösen von Sauerstoff aus der Glasmatrix aufgrund starker Feldgradienten[82]. Da die Elektronen ihre Energie bei Rekombination oder Kollisionen ans Gitter abgeben, kann es auch zu mechanischen

### 3. Beschreibung der Licht-Materie-Wechselwirkung

Veränderungen durch Hitzeeinwirkung kommen[83]. Durch die verschiedenen Materialmodifikationen kommt es zu einer dauerhaften Veränderung der optischen Eigenschaften in den Bereichen hoher Intensität. Experimentell wurde speziell eine Erhöhung des Ionisationsquerschnitts festgestellt[84]. Ein solches Materialgedächtnis führt zu einer positiven Rückkopplung, so dass bereits bestehende Strukturen bei fortgesetzter Bestrahlung weiter ausgebildet werden. Dies ist besonders bei der Bildung von Nanogittern relevant, da sich diese erst über die Bestrahlung mit einer großen Anzahl von Laserpulsen herausbilden[85, 80].

# 4. Lasing in Halbleiter-Nanodrähten

## 4.1. Einleitung

Ein einfacher Halbleiter-Nanodraht enthält bereits alle notwendigen Komponenten eines Lasersystems[19]. Durch optisches oder elektrisches Pumpen kann das Halbleitermaterial des Drahts angeregt werden und liefert dann die benötigte optische Verstärkung. Die Nanodrahtgeometrie führt zu einem transversalen Einschluss des Lichtes in den geführten Wellenleitermoden. Einen longitudinalen Einschluss des Lichts erhält man schließlich durch die reflektierenden Endfacetten des Drahtes und die Ausbildung von Fabry-Pérot-Moden. Um eventuelle Anwendungen lasender Nanodrähte zu ermöglichen, ist also das Verständnis mehrerer Aspekte notwendig. Für eine optimale Einkopplung in optische Wellenleiter muss das transversale Profil der emittierten Laserstrahlung bekannt sein und zeitlich möglichst konstant gehalten werden. Wünschenswert wäre also die Emission in einer einzelnen Transversalmode, vorzugsweise der Grundmode, da diese optimal an die Grundmode von Wellenleitern gekoppelt werden kann. Für die Verwendung als Modulator in der Datenübertragung sind hingegen die Zeitdynamik und die spektralen Eigenschaften der emittierten Strahlung relevant. Diese sind durch das Verstärkungsprofil und die Zeitdynamik des verstärkenden Mediums sowie durch die longitudinalen Resonatormoden und deren Wechselwirkung über die Nichtlinearität des Mediums gegeben. Aufgrund der geringen Abmessungen und schnellen Anschaltzeiten von Nanodraht-Lasern ist der experimentelle Zugang schwierig und oft nur indirekt möglich. Während umfassende Informationen beispielsweise aus Fernfeldmessungen der Endfacettenemission[86, 87], aus Doppelpump-Experimenten[87, 88, 21] oder aus zeitaufgelösten  $\mu$ -PL-Messungen[25] gewonnen werden konnten, sind Simulationen und theoretische Untersuchungen für die korrekte Interpretation experimenteller Ergebnisse und für die Optimierung von Nanodraht-Lasern unerlässlich.

Diese Arbeit beschäftigt sich vor allem mit ZnO- und CdS-Nanodrähten, da diese aufgrund ihrer starken optischen Verstärkung, des hohen Brechungsindex und ihrer hohen Materialqualität attraktive Materialsysteme für die Implementierung von Nanodrahtlasern darstellen, die auch experimentell bereits ausführlich untersucht wurden[86, 89, 25, 88, 87, 90, 21].

In diesem Kapitel untersuchen wir zunächst die statischen Eigenschaften der Wellenleitermoden. Über den sogenannten Confinement-Faktor[91] kann das Verhältnis zwischen der reinen Materialverstärkung und der durch die Wellenleitergeometrie bedingten Verstärkung angegeben werden. Dadurch kann die Verstärkung pro Umlauf im Resonator abgeschätzt werden. Die Verluste einer Mode sind hingegen hauptsächlich durch die Endfacettenreflektivität gegeben. Diese weicht geometrisch bedingt ebenfalls von der rein materialbedingten Reflektivität an einer ebenen Grenzfläche ab. Diese Eigenschaften



#### 4. *Lasing in Halbleiter-Nanodrähten*

werden durch quasistatische FDTD-Simulationen bestimmt. Mit Hilfe der so gewonnenen Informationen kann die dominante Lasingmode abgeschätzt und mit experimentellen Messungen verglichen werden.

Im zweiten Teil werden dynamische Simulationen des Anschwingvorgangs und der Modenselektion in Halbleiter-Nanodrähten auf Basis eines an die Halbleiter-Bloch-Gleichungen gekoppelten FDTD-Modells diskutiert. Dieses erlaubt die Verifikation der aus den statischen Modeeigenschaften gewonnenen Abschätzungen und gibt einen ersten Einblick in die zeitliche Dynamik des Lasingvorgangs.

Um die Simulationen zeitlich auf den gesamten Lasingvorgang ausdehnen zu können wird im dritten Teil die numerisch effizientere Coupled Mode Theory verwendet und ebenfalls an eine dynamische Beschreibung des Halbleiters gekoppelt. So konnten aus Experimenten bekannte Eigenschaften des Halbleiters wie die Laserschwelle und die anregungsabhängige Anschwingzeit reproduziert werden. Zum Schluss des Kapitels folgen einige Untersuchungen zu Doppelpumpexperimenten[87, 88, 21] an Nanodraht-Lasern.

## 4. Lasing in Halbleiter-Nanodrähten

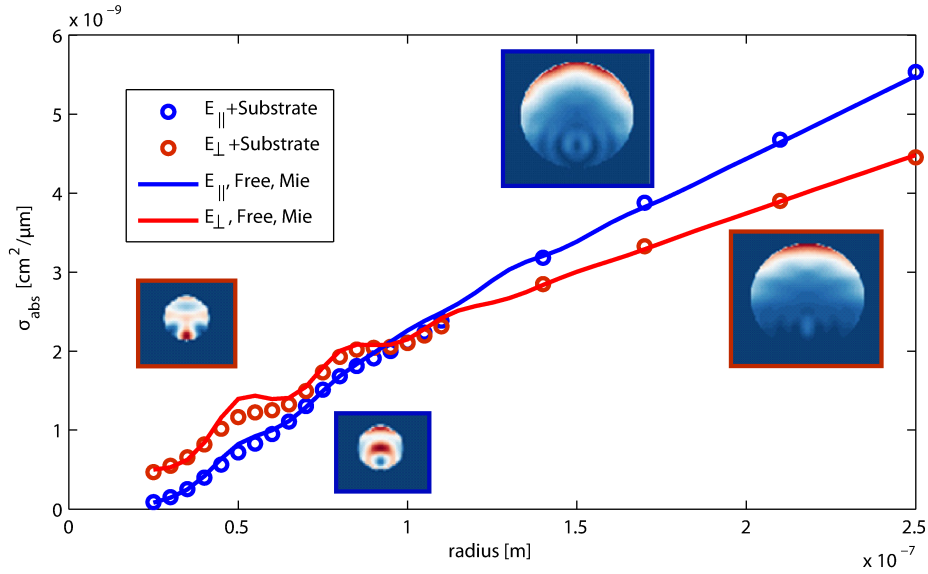


Abbildung 4.1.: Absorptionsquerschnitt für CdS-Nanodrähte ( $n = 2.5 + 0.4i$ ), die mit senkrecht(rot) oder parallel(blau) zur Drahtachse polarisiertem Licht angeregt wurden. Die durch Kreise markierten Datenpunkte stammen aus FDTD-Simulationen, bei denen die Drähte auf einem Glassubstrat ( $n = 1.4$ ) ruhen. Die durchgezogenen Linien beschreiben frei schwebende Drähte und wurden analytisch mit der Mie-Theorie für Zylinder berechnet. Die eingesetzten Grafiken zeigen die mit der FDTD-Methode berechneten orts aufgelösten Absorptionswerte für Nanodrähte im Fall eines typischen dünnen oder dicken Drahtes. Die farbliche Umrandung der Grafiken entspricht wie bei den Absorptionsquerschnitten der Anregung mit senkrecht oder parallel zur Drahtachse polarisiertem Licht.

## 4.2. Statische Eigenschaften

### 4.2.1. Absorption der Pumpstrahlung

Bei den meisten experimentell realisierten Implementierungen des Nanodraht-Laserkonzepts handelt es sich um optisch gepumpte Laser[19]. In diesem Fall wird der Nanodraht mit einer senkrecht zur Längsachse einfallenden Quelle bestrahlt. Diese wird am Draht gestreut und innerhalb des Drahts absorbiert. Experimentelle Untersuchungen an CdS-Nanodrähten haben gezeigt, dass die so erzielte Ausgangsleistung des Lasers eine signifikante Abhängigkeit von der Anregungspolarisation aufweist. Es wurde beobachtet, dass längs der Drahtachse polarisierte Pumpstrahlung zu einer höheren Ausgangsleistung führt als senkrecht zur Drahtachse polarisiertes Licht. Da die von verschiedenen Feldkomponenten angeregte Interbandpolarisation jeweils gemeinsam an die gleiche Elektronenpopulation koppelt und es zudem zu einer Relaxation zwischen den verschiedenen Valenzbändern kommt, enthält die Verstärkung der Lasermoden kaum Informationen

#### 4. Lasing in Halbleiter-Nanodrähten

über die ursprüngliche Anregungspolarisation. Die Ausgangsleistung wird also nur von der Effizienz der Absorption des Pumplichts bestimmt. Diese kann im Fall eines frei schwebenden Drahts mit Hilfe der analytischen Mie-Theorie für dielektrische Zylinder bestimmt werden[92]. Ruht der Draht auf einem Substrat, ist dies aufgrund der Brechung der Zylindersymmetrie nicht mehr möglich. Stattdessen kann der Absorptionsquerschnitt aber mit der FDTD-Methode berechnet werden. In beiden Fällen kann das Halbleitermaterial durch einen konstanten komplexen Brechungsindex  $n = 2.5 + 0.4i$ [93] beschrieben werden, da sich die Anregung bei einer Wellenlänge von  $\lambda = 355$  nm weit oberhalb der Bandlücke befindet, wo die in der Nähe der Bandlücke signifikante Doppelbrechung und Dispersion keine signifikante Rolle spielt. Durch die Simulation lässt sich leicht verifizieren, dass die Absorption bei für das Lasing relevanten Drahtdurchmessern für longitudinal polarisierte Anregung signifikant höher ausfällt als bei transversal polarisierter Anregung (Abbildung 4.1). Erst für sehr geringe Durchmesser wird die transversal polarisierte Anregungsstrahlung effizienter absorbiert. Lasing in CdS-Nanodrähten wurde experimentell ausschließlich für Durchmesser über  $d_{min} = 160$  nm beobachtet[89].

##### 4.2.2. Modeneigenschaften

Da sich der Realteil des Brechungsindex eines Nanodrahtlasers bei der Anregung nur leicht verändert, werden die Eigenschaften zu einem großen Teil von den Moden des unangeregten Drahts bestimmt. Da der Draht einem Fabry-Pérot-Resonator entspricht, hängt die spektrale Position der Lasermoden hauptsächlich von dessen Länge ab. Die Qualität dieser Moden wird allerdings stärker durch die transversalen Wellenleitermoden des Drahts vorgegeben, da diese sowohl die Effizienz der Wechselwirkung mit dem Material als auch die Verluste bei der Reflexion an den Endfacetten des Drahts festlegen. Wie in den Kapiteln 2.2 und 4.4 beschrieben wird, können die Moden des Drahts auch als Ausgangspunkt für ein dynamisches Modell des Lasers dienen. Abbildung 4.2 zeigt die Intensitätsprofile und die Polarisation der niedrigsten sechs Moden für einen typischen multimodigen CdS-Nanodrahtlaser mit dem Radius  $r = 250$  nm auf einem Quarzglassubstrat, berechnet mit dem Modesolver aus der Lumerical FDTD Solutions Software. Wie man deutlich erkennen kann, sind die Moden bis auf sehr kleine Abweichungen identisch mit denen eines frei schwebenden Zylinders. Dies ist zu erwarten, da das Substrat einen weit geringeren Brechungsindex ( $n = 1.4$ ) als der Nanodraht ( $n = 2.76$ ) [94] aufweist.

Da die Moden auch außerhalb des Drahts endliche Feldstärken aufweisen und innerhalb des Drahts räumlich stark variieren, erfährt eine Mode eine von ihrem Profil und damit von der Geometrie des Drahtes abhängige Verstärkung, die sich von der rein materialabhängigen Verstärkung einer ebenen Welle im Materialvolumen unterscheidet. Die Modenverstärkung kann dann als Produkt aus der reinen Materialverstärkung  $\alpha = \Im(n)$  und einem strukturabhängigen Faktor geschrieben werden. Diesen bezeichnet man als Confinement-Faktor  $\Gamma$ [91, 19]. Er lässt sich berechnen, indem man die Zunahme der in der Mode geführten Leistung  $\frac{dP(z)}{dz}$  bei der Ausbreitung entlang der Drahtachse  $z$  mit der wie oben zusammengesetzten Modenverstärkung gleichsetzt

$$\frac{dP(z)}{dz} = \Gamma\alpha P(z). \quad (4.1)$$

#### 4. Lasing in Halbleiter-Nanodrähten

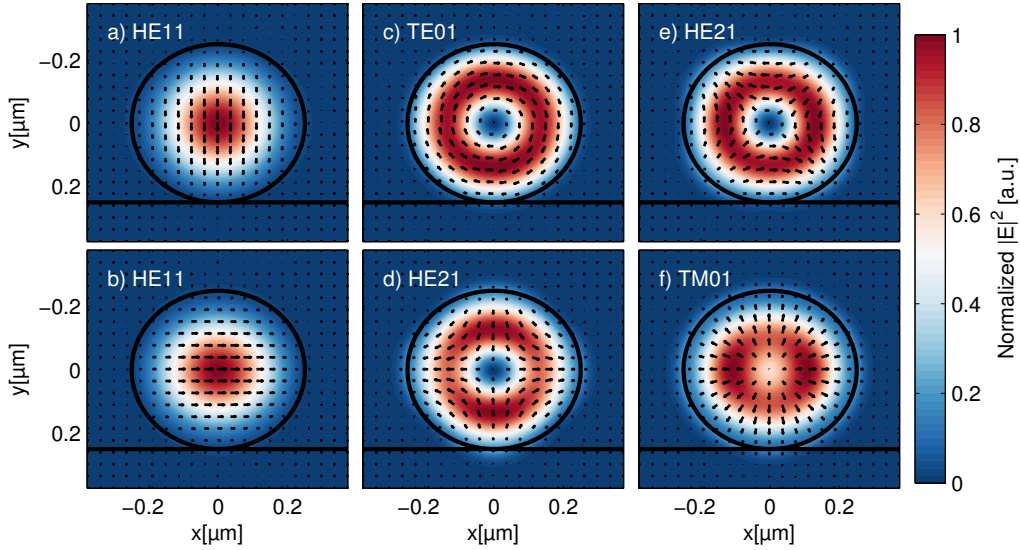


Abbildung 4.2.: Die niedrigsten sechs Moden eines CdS-Nanodrahts (schwarze Umrandung) mit dem Radius  $r = 250$  nm auf einem Quarzglassubstrat. Die Intensität ist farblich dargestellt. Die Polarisation der Moden ist durch Pfeile gekennzeichnet.

Daraus ergibt sich als Ausdruck für den Confinement-Faktor der Mode  $m$ [91]

$$\Gamma_m = \frac{c\sqrt{\epsilon}}{2\pi P_{0,m}} \int_{wire} |\vec{E}_m|^2 dA \quad (4.2)$$

mit dem über die komplette Querschnittsfläche  $\vec{A}$  integrierten, entlang des Drahts propagierenden Poynting-Vektor  $\vec{S}_m$  der Mode

$$P_{0,m} = \frac{1}{2} \int_{\mathbb{R}^2} (\vec{S}_m + \vec{S}_m^*) d\vec{A}. \quad (4.3)$$

Abbildung 4.3(a) zeigt den durchmesserabhängigen Confinement-Faktor der sechs Moden niedrigster Ordnung für einen CdS-Nanodraht. Der Confinement-Faktor entspricht im Grenzfall eines schwachen Wellenleiters dem einfachen Verhältnis aus der innerhalb des Drahts geführten zur außerhalb des Drahts geführten Leistung. Daher konvergiert er für große Drahtdurchmesser gegen 1. Für dünne Drähte und einen hohen Indexkontrast weicht der Confinement-Faktor jedoch von diesem intuitiven Ausdruck ab und kann auch größer als 1 werden. Dies bedeutet aber lediglich, dass die von der Mode im Draht erfahrene Verstärkung größer ist als die einer ebenen Welle im Materialvolumen. Dieser Effekt tritt vor allem in der Nähe des Cutoff-Radius der jeweiligen Mode auf. In diesem Bereich erhöht sich einerseits der Anteil der außerhalb des Drahts propagierenden Feldanteile, was prinzipiell zu einer Abschwächung der Verstärkung führt. Gleichzeitig erhöht sich aber auch der transversale Einschluss des im Draht propagierenden Feldes, was zu einer erhöhten Verstärkung führt. Erst beim Cutoff-Radius wird die Mode nicht mehr im Draht

#### 4. Lasing in Halbleiter-Nanodrähten

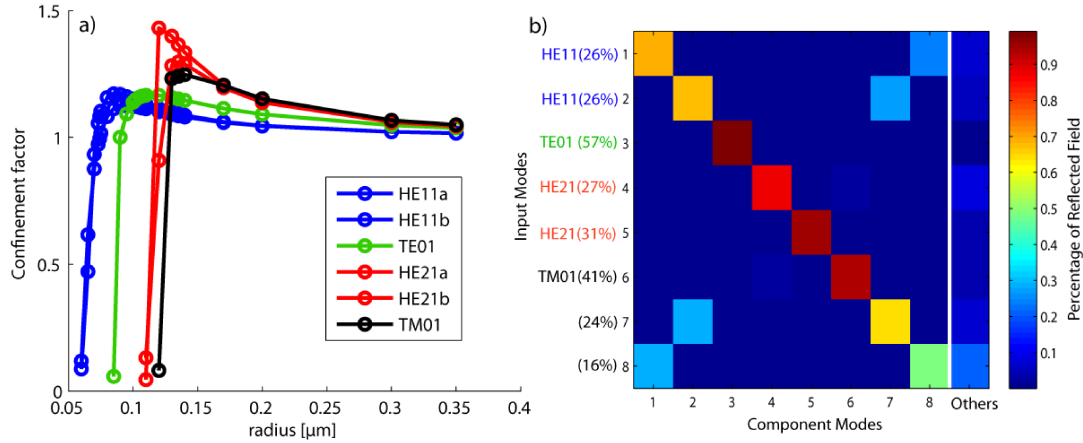


Abbildung 4.3.: Modeneigenschaften eines CdS-Nanodrahts auf einem Glassubstrat. (a): Confinement-Faktor  $\Gamma$  der sechs niedrigsten Moden für verschiedene Radien. (b): Reflektivitätsmatrix für einen Nanodraht mit Durchmesser  $d = 140 \text{ nm}$ . Die Farbmatrix  $\hat{R}_{mn}$  zeigt den Anteil jeder der sechs niedrigsten Moden  $n$  am von der Endfacette reflektierten Licht bei Einstrahlung mit allen anderen der dargestellten Moden  $m$ . In der letzten Spalte ist der verbleibende Anteil dargestellt, der einer Reflektion in höhere, hier nicht betrachtete Moden entspricht. Die Spur zeigt den in die ursprüngliche Mode zurückreflektierten Anteil. Die absolute Reflektivität jeder Mode in sich selbst ist an der linken Seite des Plots als Zahlenwert aufgeführt.

geführt und der nachteilige Effekt dominiert, so dass der Confinement-Faktor für noch kleiner Radien rapide abfällt.

Für die in [89] experimentell untersuchten Nanodrähte beobachtet man einen Übergang von der spontanen zur Lasungemission bei einem Durchmesser von etwa  $170 \text{ nm} - 180 \text{ nm}$ . Dies entspricht in etwa dem Cutoff-Radius der  $TE01$ -Mode in Abbildung 4.3(a). Daher kann eine Berechnung des Confinement-Faktors in Zusammenhang mit experimentellen Daten auch Hinweise auf die dominante Lasungmode liefern, bei der es sich hier offenbar um die  $TE01$ -Mode handelt. Ab einem Radius von etwa  $r = 110 \text{ nm}$  weisen die beiden  $HE21$ -Moden einen höheren Confinement-Faktor auf.

Neben der modalen Verstärkung treten jedoch auch modenabhängige Verluste auf. In einem idealen Nanodraht mit einem  $z$ -invarianten Querschnitt findet dies lediglich bei Reflektion an den Endfacetten statt. Diese ist also ein weiterer essentieller Faktor zur Einschätzung der Qualität der Lasermoden eines Nanodrahts. Die Reflektivität an der Endfacette eines Nanodrahts weicht im Allgemeinen von der Reflektivität einer ebenen Welle an einer ebenen Grenzfläche ab und muss mit Hilfe eines numerischen Verfahrens wie der FDTD-Methode bestimmt werden. Dazu wird die Geometrie eines abgeschnittenen Nanodrahts simuliert. In dieser wird gezielt eine einzelne Mode angeregt, so dass sie in Richtung der Endfacette propagiert. Die von der Endfacette zurückreflektierten Felder  $\vec{E}$  und  $\vec{H}$  können dann untersucht werden. Dabei ist zu beachten, dass bei der Reflektion der Mode  $m$  prinzipiell auch andere Moden  $n$  angeregt werden können. Man zerlegt

#### 4. Lasing in Halbleiter-Nanodrähten

daher die von der Endfacette rückwärts propagierenden Felder in die Komponenten der verschiedenen Moden, so dass gilt

$$\vec{E}_{refl,m} = \sum_n a_{m,n} \vec{E}_n \quad (4.4)$$

$$\vec{H}_{refl,m} = \sum_n b_{m,n} \vec{H}_n. \quad (4.5)$$

Die Koeffizienten  $a_n$  und  $b_n$  können durch die Überlappintegrale[30]

$$a_{m,n} = \frac{\int_{\mathbb{R}^2} \vec{E}_{refl,m} \times \vec{H}_n^* d\vec{A}}{\int_{\mathbb{R}^2} \vec{E}_n \times \vec{H}_n^* d\vec{A}}, \quad (4.6)$$

$$b_{m,n}^* = \frac{\int_{\mathbb{R}^2} \vec{E}_n \times \vec{H}_{refl,m}^* d\vec{A}}{\int_{\mathbb{R}^2} \vec{E}_n \times \vec{H}_n^* d\vec{A}} \quad (4.7)$$

berechnet werden. Dadurch erhält man den Anteil  $o_{m,n}$  der Mode  $n$  [65]

$$o_{m,n} = \frac{\Re((a_{m,n} - b_{m,n})^* (a_{m,n} + b_{m,n}) P_{0,n})}{\Re(P_{refl})} \quad (4.8)$$

an der reflektierten Leistung  $P_{refl,m}$ [65, 30]. Der Reflektionskoeffizient der eingestrahnten Mode ergibt sich dann aus  $R_m = o_{m,m} \frac{P_{refl,m}}{P_{0,m}}$ .

Abbildung 4.3(b) zeigt eine auf diese Weise berechnete Reflektivitätsmatrix für einen CdS-Nanodraht. Die eingestrahnten Moden werden durch die entsprechende Reihe, die jeweiligen Modenkomponenten des zurückgestreuten Feldes durch die Spalte der Matrix definiert. Wie erwartet sind die zahlenmäßig größten Einträge in der Spur der Matrix zu finden. Die Moden streuen also hauptsächlich in sich selbst zurück. Es gibt aber auch nicht-diagonale Einträge, die eine Kopplung an jeweils andere Moden erlauben. Die absolute Reflektivität jeder Mode ist an der linken Seite der Matrix angegeben. Wie man sieht weist die  $TE_{01}$ -Mode die stärkste Reflektivität auf. Dieser Befund deckt sich sehr gut mit den bereits beschriebenen experimentellen Ergebnissen, welche auf die  $TE_{01}$ -Mode als dominante Lasingmode hindeuten.

Es ist also bereits durch Kenntnis der statischen Modeneigenschaften möglich, einige experimentelle Befunde zu erklären und gewisse Aussagen über das Lasingverhalten von Nanodrahtmoden zu treffen.

### 4.3. Anschwingvorgänge im Multimode-Draht

Lasing ist ein stark nichtlinearer Prozess, bei dem verschiedene Moden um die optimale Ausnutzung der Verstärkung im Material konkurrieren. Außerdem ändern sich die optischen Eigenschaften des Materials während des Pumpvorgangs und während des durch die stimulierte Emission bedingten Ladungsträgerabbaus stark. Um dieses dynamische Verhalten zu beschreiben, reicht die Kenntnis der statischen Modeeigenschaften nicht mehr aus. Stattdessen müssen dynamische Modelle herangezogen werden. Zu diesem Zweck wurde das auf den Halbleiter-Bloch-Gleichungen basierende Materialmodell aus Kapitel 3.1 an ein FDTD-Modell zur Simulation der Maxwellgleichungen gekoppelt[95]. Diese Vorgehensweise erlaubt die korrekte Simulation der Materialeigenschaften über das gesamte Anregungsspektrum vom exzitonischen bis zum Lasingbereich.

#### 4.3.1. Halbleiter-Nanodraht

Wir betrachten jetzt das Anschwingverhalten eines optisch gepumpten CdS-Nanodrahtlasers. Dazu simulieren wir einen Nanodraht der Länge  $l = 7.5\mu\text{m}$  mit einem Durchmesser von  $d = 250\text{ nm}$ , der entlang der  $z$ -Achse auf einem Quarzglassubstrat ausgerichtet ist. Der Nanodraht wird von oben (aus der negativen  $x$ -Richtung) mit einer  $y$ -polarisierten ebenen Welle mit einem *sech*-förmigen zeitlichen Profil angeregt (Abbildung 4.4(a) und (d)). Der Anregungspuls hat eine Mittenwellenlänge von  $\lambda_0 = 500\text{ nm}$  leicht oberhalb der Bandlücke des Halbleitermaterials und eine Dauer von  $w_t = 100\text{ fs}$ . Die Abbildungen 4.4 (e)-(g) zeigen die Feldverteilung in einem Querschnitt des Nanodrahts nach dem Pumpvorgang. Die lokale Struktur der Polarisation zeigt, dass das transversale Feldprofil hauptsächlich durch die azimuthal polarisierte TE<sub>01</sub>-Mode geprägt wird. Simultan existiert aber auch ein starker durch die Grundmode bestimmter Anteil, der zu einem zweigeteilten Muster in Abbildung 4.4(f) führt.

Abbildung 4.4(b) zeigt die räumliche und zeitliche Entwicklung der Feldverteilung entlang der Drahtachse  $z$  nach dem Pumpvorgang. Man beobachtet ein starkes Ansteigen der Feldstärken mit einem Maximum bei etwa  $t = 1.4\text{ ps}$  nach dem Maximum des Anregungspulses. Bis zu diesem Zeitpunkt ist die räumliche Feldverteilung zeitlich fast konstant, was auf die Dominanz einer einzelnen Mode hindeutet. Danach bildet sich ein zeitabhängiges Feldprofil entlang des Drahts aus, bei dem einige kurze Pulse zwischen den Endfacetten umlaufen. Die räumlich stark inhomogene Struktur des umlaufenden Feldes ist ebenfalls deutlich in einem Längsschnitt des Nanodrahts in Teil (c) der Abbildung zu sehen. Spektral entspricht dieses Verhalten einer Verbreiterung auf mehrere gleichzeitig lasende Longitudinalmoden. Diese Vermutung lässt sich durch eine weitere Analyse der Moden und deren zeitlicher Dynamik überprüfen. Diese ist in Abbildung 4.5 dargestellt. Neben der Laseremission ist hier auch die Anregung bei etwa  $2.5\text{ eV}$  zu sehen. Zum Lasing tragen prinzipiell mehrere Longitudinalmoden bei, die sich spektral in der Region der maximalen Verstärkung leicht unterhalb der Bandlücke befinden (Abbildung 4.5(c)). Die Fenster-Fouriertransformation in Teil (b) zeigt, dass das Lasing anfänglich von einer einzelnen Longitudinalmode bei etwa  $2.355\text{ eV}$  dominiert wird, die aufgrund der starken Inversion des Halbleitermaterials exponentiell verstärkt wird. Dadurch kommt es

#### 4. Lasing in Halbleiter-Nanodrähten

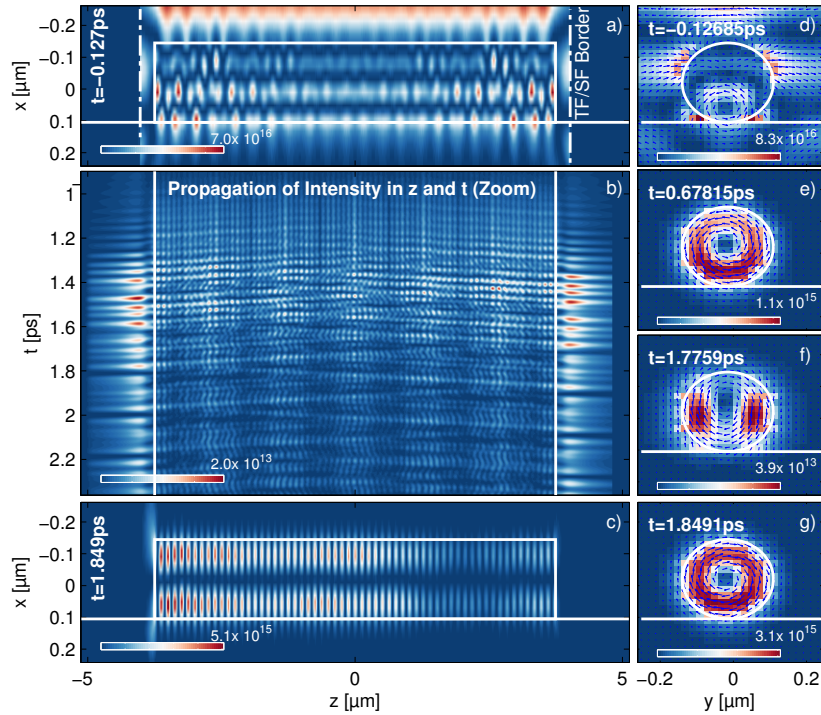


Abbildung 4.4.: Räumliche und zeitliche Dynamik der Felder in einem Halbleiter-Nanodraht simuliert mit den Halbleiter-Bloch-Gleichungen. (a),(d): Felder in einem Längsschnitt durch den Draht während des Pumpimpulses und während des Lasingsvorgangs. (b):  $|E|^2$  gemittelt über den Querschnitt des Drahts abhängig von der longitudinalen Position  $z$  und der Zeit  $t$ . (d)-(g) Feldintensität für ein festes  $z$  zu verschiedenen Zeitpunkten. Die Polarisation ist durch Pfeile angegeben.

zu einem schnellen Abbau der Inversion (Abbildung 4.5 (a) und (c)) in dem von dieser Mode betroffenen Bereich des elektronischen Blochwellenvektors. Da das Nachrelaxieren von Ladungsträgern aus höher gelegenen  $k$ -Bereichen vergleichsweise langsam abläuft, wird die Lasungemission zu diesem Zeitpunkt schwächer und verbreitert sich auf weitere Longitudinalmoden. So kann auf Bereiche des Wellenvektorraumes zugegriffen werden, in denen die Inversion noch nicht abgebaut wurde.

#### 4.3.2. Vergleich mit einem Zweiniveau-Laser

Aufgrund des sehr hohen numerischen Aufwands einer Simulation der Halbleiter-Bloch-Gleichungen an jedem Raumpunkt eines FDTD-Gitters wäre es interessant, auf abgerüstete Materialmodelle auszuweichen. Tatsächlich sind einige der beobachteten Effekte nicht durch das Halbleitermaterial, sondern durch die Geometrie des Nanodrahts und seine optische Modenstruktur bedingt. Andere Effekte wie das Ausweichen auf andere Moden und das daraus resultierende lang anhaltende Lasing nach dem anfangs schnellen



#### 4. Lasing in Halbleiter-Nanodrähten

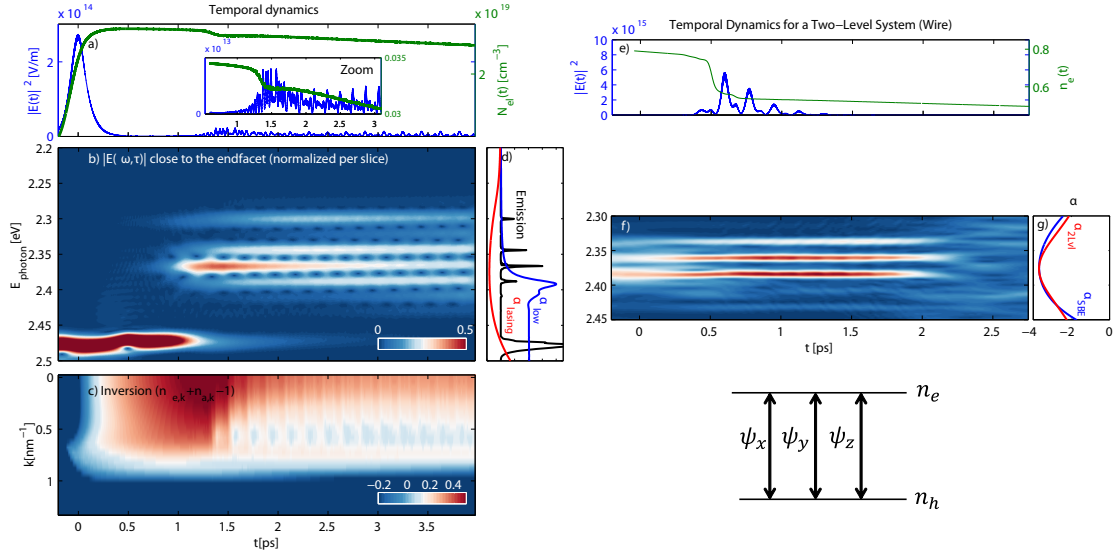


Abbildung 4.5.: Zeitliche Dynamik für einen CdS-Nanodraht-Laser simuliert mit den Halbleiter-Bloch-Gleichungen (a-d) und mit einem angenäherten Zweiniveausystem(e-g). (a) und (e) zeigen die zeitlichen Verläufe der Anregungsdichte und der Intensität. (b) und (f) zeigen zeitabhängige Spektren aus einer Fenster-Fouriertransformation. (a) und (g) zeigen Absorptionsspektren für eine niedrige Anregungsdichte und für das Lasingregime in (a) und ebenfalls für das Lasingregime bei den kompletten Gleichungen und dem angepassten Zweiniveausystem in (g). In (d) ist zusätzlich das Emissionsspektrum des Lasers eingezeichnet.

Anstieg basieren auf den elektronischen Eigenschaften des Halbleiters. Wir betrachten daher einen vergleichbaren Nanodraht-Laser, bei dem das Material durch ein einfaches Zweiniveausystem beschrieben wird (Abbildung 4.5(e-g)). Damit alle Transversalmoden an das Material ankoppeln können, wählen wir drei Materialpolarisationen  $\Psi_{x/y/z}$ , die jeweils mit identischen Dipolmatrixelementen  $d_x = d_y = d_z = d$  an die Feldkomponenten  $E_{x/y/z}$  ankoppeln (Skizze in Abbildung 4.5). Um eine hinreichend große Verstärkung zu erreichen, wird die Anregungsdichte zu Beginn der Simulation mit  $n_e = n_h = 0.8$  initialisiert. Die Verbreiterung  $\gamma$  und das Dipolmatrixelement  $d$  des Zweiniveausystems (rot in Abbildung 4.5(g)) werden so gewählt, dass ein ähnliches Verstärkungsprofil wie bei dem stark angeregten Halbleitermaterial erreicht wird (blau in Abbildung 4.5 (g)).

Wie bereits vermutet, weicht die Dynamik dieses Lasers stark von der des zuvor betrachteten Halbleiterlasers ab, obwohl das Verstärkungsprofil zu Beginn der Simulation fast identisch ist. Die langsame Emission nach dem anfänglich schnellen Anstieg ist hier nicht zu beobachten. Man erhält stattdessen ein eher symmetrisches zeitliches Emissionsprofil (Abbildung 4.5 (e)). Abbildung 4.5 (f) zeigt das zeitliche Verhalten der einzelnen Lasermoden. Da sich die Form des Verstärkungsprofils bei einem Zweiniveausystem beim Abbau der Ladungsträger nicht verändert, sondern lediglich abgeschwächt wird oder sein Vorzeichen ändert, bleibt die relative Stärke der einzelnen Moden während des gesamten

#### 4. Lasing in Halbleiter-Nanodrähten

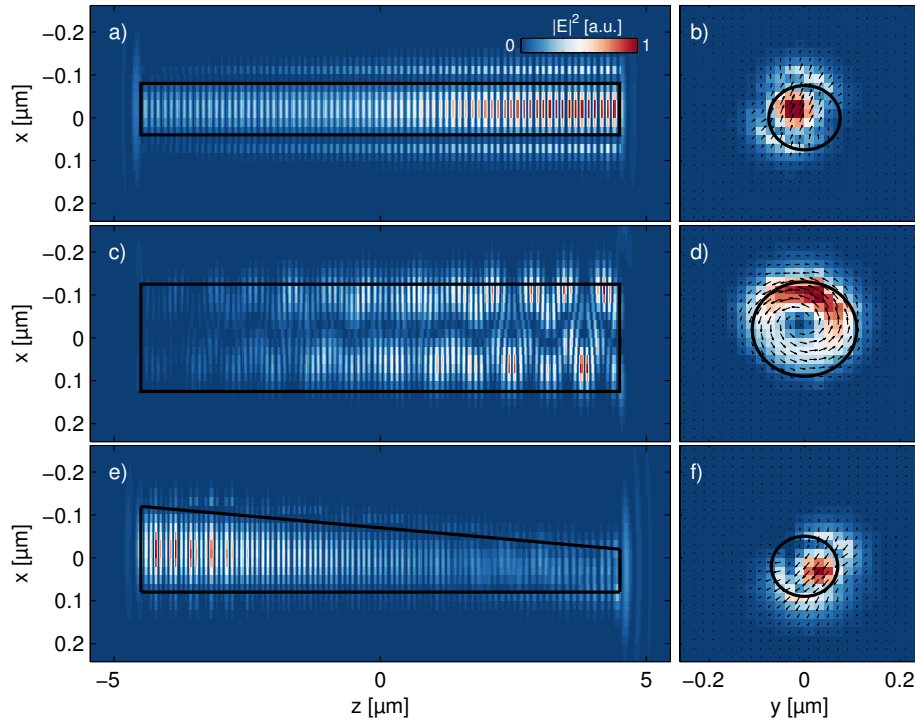


Abbildung 4.6.: Feldprofile in Nanodrähten verschiedener Geometrie. (a,b): Einmodiger Nanodraht mit dem Durchmesser  $d = 140$  nm. (c,d): Multimodiger Draht mit dem Durchmesser  $d = 220$  nm. (e,f) optimierter konischer Draht mit dem minimalen Durchmesser  $d_{min} = 120$  nm und dem maximalen Durchmesser  $d_{max} = 220$  nm. In den Bildern (b,d,f) sind Querschnitte des Drahts abgebildet. Die Polarisation wird durch die Pfeile angegeben. Alle gezeigten Drähte haben eine Länge von  $l = 9\mu\text{m}$  und wurden mit einer Anregungsdichte von  $n_e = 3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  vorinitialisiert.

Emissionsprozesses erhalten. Sobald die Laserschwelle für die dominante Mode unterschritten wird, bricht das Lasing für alle Moden zusammen.

#### 4.3.3. Modenselektion und konische Drähte

Wie wir bereits in den Abschnitten 4.2.2 und 4.3.1 gesehen haben, beginnen Nanodrähte ab einer bestimmten Dicke (bei CdS etwa  $d = 170 \text{ nm} - 180 \text{ nm}$ ) mehrere transversale Moden zu führen. Aufgrund des etwas höheren Confinement-Faktors und vor allem Aufgrund der höheren Endfacettenreflektivität wird das Lasing dann von der  $TE_{01}$ -Mode dominiert. Da auch für die Grundmode die Laserschwelle überschritten ist, findet sich in den transversalen Feldprofilen auch ein signifikanter Anteil dieser Mode. Die inkohärente Überlagerung dieser beiden Moden führt zu einem räumlich und zeitlich schwankenden transversalen Feldprofil. Um die räumliche Kohärenz des emittierten Lichts zu erhöhen und das Einkoppeln in photonische Wellenleiter zu erleichtern, ist es hingegen

#### 4. Lasing in Halbleiter-Nanodrähten

wünschenswert in nur einer Transversalmode zu lasen. Dies lässt sich prinzipiell am einfachsten durch die Verwendung dünnerer, einmodiger Drähte erreichen. Dies ist möglich wenn die bei der Herstellung erreichten Strukturqualitäten und die Materialverstärkung hinreichend groß sind.

Leider ist die zu erwartende Ausgangsleistung bei einem einmodigen Draht geringer als bei einem dickeren Draht, da die  $TE_{01}$ -Mode günstigere Eigenschaften aufweist als die Grundmode und weil ein größeres Materialvolumen zur Emission beiträgt. Um die Vorzüge eines uniformen und technisch günstigen Emissionsprofils mit der erhöhten Ausgangsleistung des dicken Drahts zu kombinieren, ist die Verwendung eines konischen Drahts naheliegend. Tatsächlich liegen gewachsene Nanodrähte meist in leicht konischer Form vor, so dass dazu lediglich optimale Drähte ausgewählt werden müssen. Um diese Option zu demonstrieren wurde zusätzlich zu einem einmodigen und einem dickeren Draht noch ein konischer Draht mit den Start- und Enddurchmessern  $d_{min} = 120$  nm und  $d_{max} = 220$  nm simuliert (Abbildung 4.6 (e,f)). Der Drahtdurchmesser am dickeren Ende liegt dabei deutlich im multimodigen Bereich, der minimale Durchmesser hingegen liegt sogar für die Grundmode im Cutoff-Bereich. Tatsächlich wirkt die konische Geometrie als Modenfilter und wir beobachten ein Feldprofil, das fast ausschließlich von der Grundmode beherrscht wird. Ein Vergleich der emittierten Leistung bei den drei simulierten Drahtgeometrien zeigt, dass der konische Draht 90% der Leistung des dicken Drahts emittiert, während der dünne Draht lediglich 70% der Ausgangsleistung emittiert. Dabei wurde für jede Geometrie über mehrere Realisierungen der in die spontane Emission eingehenden Zufallszahlen gemittelt, um statistische Schwankungen auszuschließen.

## 4.4. Zeitliche Dynamik auf längeren Zeitskalen

Im letzten Kapitel wurde die FDTD-Methode verwendet, um die longitudinalen Lasermoden und die Auswahl transversaler Moden in Nanodrahtlasern verschiedener Geometrie zu untersuchen. Dabei konnte auch die initiale Laserdynamik für einzelne Drähte untersucht werden. Bereits die Bestimmung einfacher Kenngrößen wie einer leistungsabhängigen Laserkurve erfordert jedoch die Simulation mehrerer Lasingvorgänge mit verschiedenen Parametern über den kompletten Zeitraum von der Anregung bis zum Abklingen der stimulierten Emission. In diesem Kapitel soll daher ein an die Nanodrahtgeometrie angepasstes effizienteres Modell entwickelt und damit die Laserdynamik auf längeren Zeitskalen untersucht werden.

### 4.4.1. CMT-Verfahren für Halbleiter-Nanodrähte

Die FDTD-Methode ist bereits für sich betrachtet numerisch sehr aufwändig. Werden zusätzlich an jedem Raumpunkt die Halbleiter-Bloch-Gleichungen gelöst, steigt der Rechenaufwand noch einmal beträchtlich. Im Fall der Nanodrahtgeometrien aus Kapitel 4.3 wurden beispielsweise 24h Rechenzeit auf 64 Knoten des lima-Clusters des regionalen Rechenzentrums in Erlangen zur Simulation des Lasingvorgangs während lediglich 4ps benötigt. Daher konnten dort nur die Anschwingvorgänge der Nanodrahtlaser untersucht werden. Mit dem Coupled Mode Theory -Verfahren (CMT) aus Kapitel 2.2 muss hingegen lediglich das Innere des Nanodrahts erfasst werden. Außerdem kann die transversale Diskretisierung erheblich reduziert werden. Im Extremfall ist sogar die Reduktion auf einen einzelnen transversalen Punkt und somit auf ein eindimensionales Problem möglich. Die zeitliche Diskretisierung ist dann durch den Zeitschritt 2.31 vorgegeben. Dies gilt jedoch nur für die Ausbreitungsgleichungen und nicht für das Materialmodell. Eine weitere Ersparnis ist also möglich, wenn die Materialgleichungen nicht mehr auf dem gleichen zeitlichen Gitter diskretisiert werden wie die Ausbreitungsgleichungen, sondern nur noch alle  $N_{skip}$  Schritte berechnet werden. Die fehlenden Werte müssen dann durch lineare Interpolation angenähert werden. Die so erzielte zusätzliche Einsparung ist erheblich, da die Halbleiter-Bloch-Gleichungen den größten Teil des Rechenaufwands ausmachen.

Aus diesen Gründen wurde eine Implementierung der CMT-Methode realisiert, welche die Halbleiter-Bloch-Gleichungen zur Berechnung der Materialterme  $\vec{P}$  und  $\vec{J}$  verwendet. Obwohl dieses Verfahren einen sehr viel geringeren Aufwand als die direkte Diskretisierung der Maxwellgleichungen mit sich bringt, kann die Effizienz auch hier durch Parallelisierung weiter gesteigert werden, Der Kommunikationsaufwand ist dabei erheblich geringer als in Abschnitt 2.1.5, da zwischen zwei benachbarten Knoten lediglich die Amplituden  $[\hat{u}_m^+]_j^{N_z-1}$  nach vorne (positive z-Richtung) und die Amplituden  $[\hat{u}_m^-]_j^0$  nach hinten weitergegeben werden müssen. Die Implementierung erfolgte in der Programmiersprache C++[51] und verwendet das MPI-Protokoll[61] zur Parallelisierung.

#### 4.4.1.1. Vergleich mit dem FDTD-Verfahren

Um die Eignung der gekoppelten Modenberechnung für die Simulation von Halbleiter-Nanodrähten zu überprüfen, bietet sich der Vergleich mit der FDTD-Methode an (Ab-

#### 4. Lasing in Halbleiter-Nanodrähten

bildung 4.7). Wir betrachten einen Nanolaser der Länge  $l = 8\mu\text{m}$ , der zu Beginn der Simulation bereits stark angeregt ist. Die spontane Emission, die erhebliche statistische Schwankungen hervorrufen kann, wird bei der Simulation ausgeschaltet um eine bessere Vergleichbarkeit zu gewährleisten. Stattdessen wird der Lasingvorgang mit einem schwachen Saftpuls gestartet. In der CMT-Simulation wird dazu eine der Modenamplituden mit einem zeitlich variierenden Profil angeregt. Die gleiche Mode muss dann durch Verwendung einer Quelle mit dem entsprechenden transversalen Feldprofil auch in der FDTD-Rechnung angeregt werden. Im Allgemeinen ist es jedoch schwierig, eine reine Transversalmode anzuregen. Einfacher wird dies durch Verwendung eines dünnen Nanodrahts mit einem Radius von  $r = 80\text{ nm}$ , der bei der verwendeten Mittenwellenlänge von  $\lambda = 512\text{ nm}$  lediglich die zweifach entartete Grundmode führt. Die Beimischung anderer Moden durch eine fehlerhafte Anregung ist dadurch ausgeschlossen. Die Gruppengeschwindigkeit  $v_g = 7.72 \times 10^7 \frac{\text{m}}{\text{s}}$  und die Propagationskonstante  $\beta_0 = 22.28 \frac{1}{\mu\text{m}}$  der Mode wurden zuvor mit dem bereits in Abschnitt 4.2.2 verwendeten kommerziellen Modesolver bestimmt. Die Reflektivitätsmatrix der Endfacetten

$$R = \begin{pmatrix} 0.51 & 0.02 \\ 0.02 & 0.51 \end{pmatrix} \quad (4.9)$$

wurde mit der FDTD-Methode berechnet[65]. Dabei beschreiben die Diagonalelemente die Reflektivität der jeweils  $x$ - oder  $y$ -polarisierten Grundmode in sich selbst, während die Außerdiagonalelemente die Rückstreuung in die Grundmode mit um  $90^\circ$  gedrehter Polarisation darstellen. Um die Modeeigenschaften zu bestimmen, wurde der Brechungsindex  $n = 2.81$  von CdS ohne die elektronischen Beiträge verwendet. In einem rotationssymmetrischen Draht sollte prinzipiell keine Streuung aus einer Polarisationsrichtung in die andere auftreten, bei den Außerdiagonalelementen handelt es sich also um numerische Artefakte. Wir verwenden für die Vergleichsrechnungen trotzdem die volle berechnete Reflektivitätsmatrix, um die FDTD-Ergebnisse besser reproduzieren zu können. Wir starten die Simulation mit einer Anregungsdichte von  $N_{el} = 3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ ,  $N_{h,a} = N_{h,b} = 1.5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  bei einer Fermiverteilung der Temperatur  $T = 300\text{K}$ . Bei dieser Anregung weist das Halbleitermaterial bereits eine signifikante Verstärkung auf. In der FDTD-Simulation (schwarze Kurve) verwenden wir die Auflösung  $\Delta x = \Delta y = \Delta z = 10\text{ nm}$ . In der CMT-Simulation verwenden wir die gleiche Auflösung in  $z$ -Richtung. Der Querschnitt des Wellenleiters wird mit Zylinderkoordinaten mit  $N_R = 4$  radialen und  $N_\theta = 16$  azimuthalen Punkten abgetastet. Wir vergleichen Simulationen, bei denen die Materialgleichungen mit der gleichen zeitlichen Diskretisierung berechnet werden wie die Propagation ( $N_{skip} = 1$ , rote Kurve) und Simulationen mit  $N_{skip} = 8$  (blaue Kurve). Wie man sieht ist die Simulation mit  $N_{skip} = 6$  etwa 400 mal schneller als die entsprechende FDTD-Simulation. Überspringt man eine noch größere Zahl von Zeitschritten, wird die Rechnung in diesem speziellen Fall instabil. Welche zeitliche Auflösung der Materialgleichungen für eine stabile und korrekte Simulation benötigt wird, hängt von den Anstiegs- und Abfallszeiten der Felder und Besetzungszahlen und somit von den individuellen Simulationsparametern ab.

Für alle drei Rechnungen beobachten wir zunächst einen schnellen Anstieg der Laserleistung. Nachdem die Inversion an der energetischen Position der dominanten Lasing-

#### 4. Lasing in Halbleiter-Nanodrähten

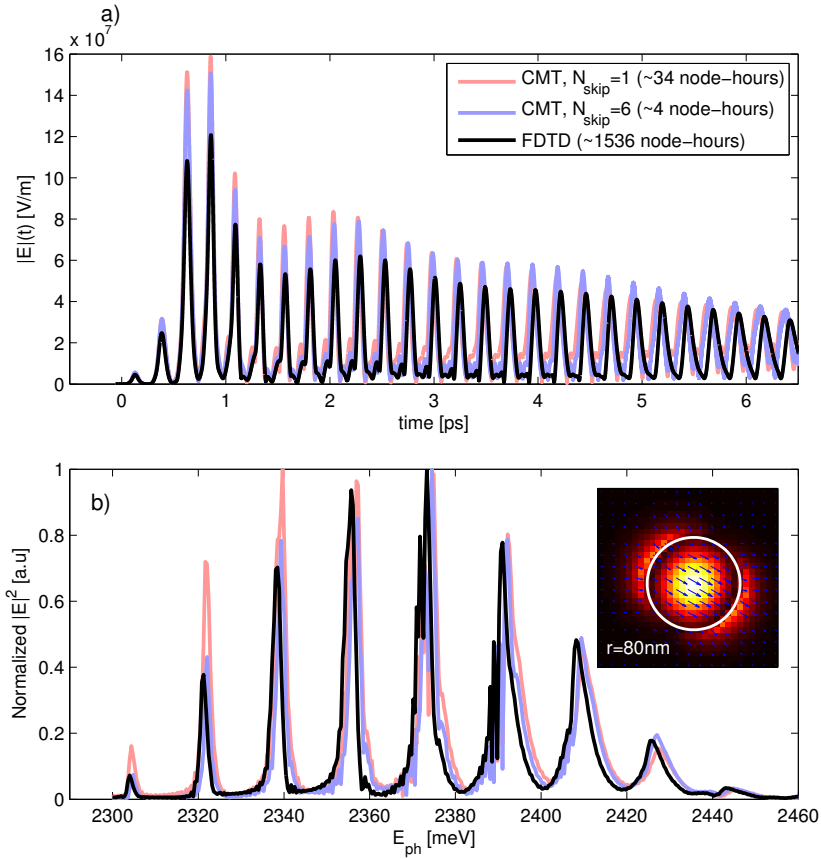


Abbildung 4.7.: Zeitliche Entwicklung (a) und Laserspektrum (b) eines CdS-Nanodraht-Lasers mit dem Radius  $r = 80$  nm und der Länge  $l = 8 \mu\text{m}$  in Luft berechnet mit der FDTD-Methode (schwarz) und der Coupled Mode Theory mit Berechnung der Materialgleichungen in jedem einzelnen (rot) oder in jedem sechsten Zeitschritt (blau). Die Simulation startet mit einer Anregungsdichte von  $N_{el} = 3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ ,  $N_{h,a} = N_{h,b} = 1.5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ . Der Draht unterstützt nur die Grundmode, welche klein in (b) dargestellt ist.

#### 4. Lasing in Halbleiter-Nanodrähten

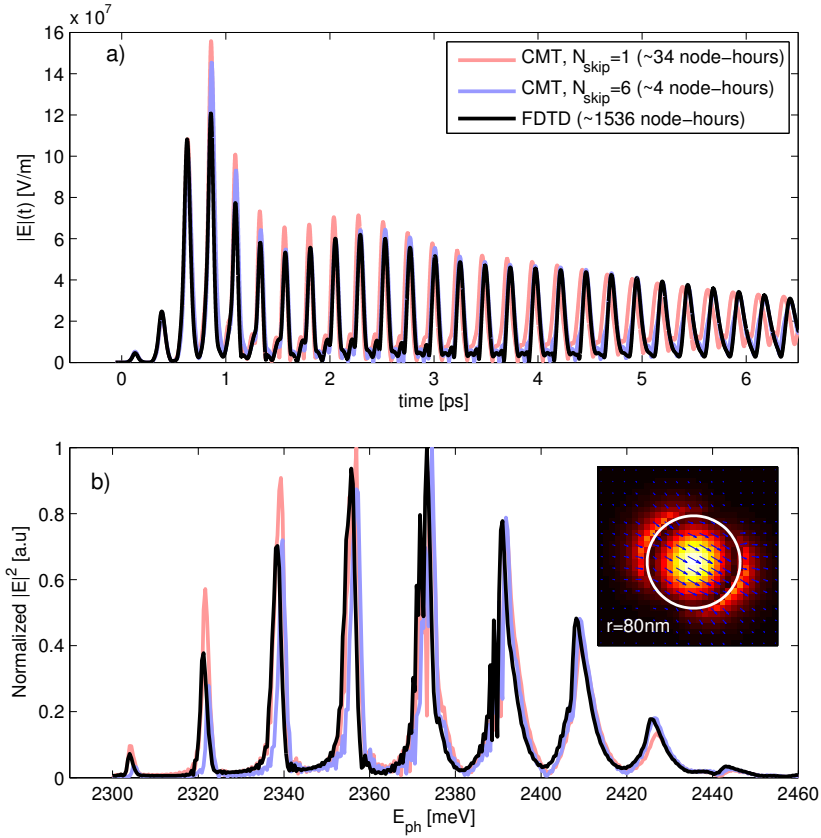


Abbildung 4.8.: Zeitliche Entwicklung (a) und Laserspektrum (b) eines CdS-Nanodraht-Lasers mit Parametern wie in Abbildung 4.7 berechnet mit der FDTD-Methode (schwarz) und der Coupled Mode Theory mit Berechnung der Materialgleichungen in jedem einzelnen (rot) oder in jedem sechsten Zeitschritt (blau). Im Gegensatz zu Abbildung 4.7 wurde die Reflektivität der Endfacetten angepasst, um eine möglichst gute Übereinstimmung mit der FDTD-Rechnung zu erzielen. Die Diagonaleinträge der optimierten Reflektivitätsmatrix haben den Wert 0,4, die Nichtdiagonaleinträge den Wert 0,07.

#### 4. Lasing in Halbleiter-Nanodrähten

moden abgebaut wurde, kann sie durch die Relaxationsprozesse des Halbleitermaterials wieder aufgefrischt werden. Außerdem verbreitert sich die Emission, um einen größeren  $k$ -Bereich ausnutzen zu können. Dadurch beobachtet man nach dem anfänglich schnellen Anstieg eine schwächere, lang anhaltende Emission ähnlich wie in Kapitel 4.3.

Obwohl der numerische Aufwand erheblich reduziert wurde, stimmen die beiden mit der CMT-Methode berechneten Laserspektren sehr gut mit den mit der FDTD-Methode berechneten Spektren überein. Auch die zeitliche Entwicklung zeigt eine sehr gute qualitative Übereinstimmung. Lediglich die maximale Intensität ist in den CMT-Rechnungen etwas höher als in der FDTD-Rechnung. Eine noch bessere Übereinstimmung kann durch nachträgliche Anpassung der Endfacettenreflektivität in den CMT-Rechnungen erreicht werden (Abbildung 4.8). Dies zeigt, dass die geringen beobachteten Abweichungen durch die inkorrekte Beschreibung des Einflusses der Nichtlinearität auf die Endfacettenreflektivität in der CMT-Rechnung bedingt sind. Dabei handelt es sich um eine inhärente Schwäche der CMT-Methode, die allerdings keine große Einschränkung darstellt, da auch reale Nanodrähte in der Regel eine abweichende oder nicht genau bekannte Endfacettenreflektivität aufweisen.

##### 4.4.2. Ladungsträgergetriebene Dynamik in ZnO-Nanodrähten

Während mit dem an die Halbleiter-Bloch-Gleichungen gekoppelten FDTD-Verfahren mit den vorhandenen Ressourcen lediglich das Einsetzen des Lasings in einem einzelnen Nanodraht simuliert werden konnte, erlaubt der stark reduzierte numerische Aufwand des CMT-Verfahrens in einem vergleichbaren Zeitraum die Simulation einer Vielzahl von Anregungssituationen und Nanodrahtgeometrien. Dadurch wird es möglich, die Emissionseigenschaften von Halbleiter-Nanodrahtlasern detaillierter zu untersuchen und unsere Simulationen mit experimentellen Ergebnissen zu vergleichen. Bisher existieren zwei verschiedene Ansätze zur experimentellen Untersuchung der zeitlichen Dynamik von Nanodrahtlasern. Zum Einen kann die zeitliche Dynamik indirekt über sogenannte Doppelpumpexperimente abgetastet werden, bei denen der Draht mit zwei unterschiedlich starken Pumpimpulsen mit variablem zeitlichen Versatz angeregt und die Gesamtausgangsleistung aufgezeichnet wird. Diese Methode ist allerdings vergleichsweise aufwändig zu simulieren und der genaue Zusammenhang zwischen dem Lasingvorgang und dem aufgezeichneten Doppelpumpsignal ist noch nicht vollständig geklärt. Auf diesen Ansatz wird in Abschnitt 4.4.3 weiter eingegangen. In jüngerer Vergangenheit konnte die zeitabhängige Emission von Nanodrahtlasern jedoch auch direkt mit Hilfe zeitaufgelöster  $\mu$ -PL-Messungen bestimmt werden[25]. Ein wichtiger Parameter, der auf diese Weise gewonnen werden kann, ist die Anschaltzeit  $t_{on}$ . Dabei handelt es sich um die Zeitdauer zwischen dem Maximum des Anregungspulses und dem Anstieg des Lasingpulses auf das  $\frac{1}{e}$ -fache der Maximalintensität. Im Lasingregime wurde ein nichtlinearer Anstieg der inversen Anschaltzeit  $t_{on}^{-1}$  bei Erhöhung der Pumpleistung festgestellt. Außerdem können aus dem Experiment auch komplette zeitaufgelöste Spektren gewonnen werden. Dadurch kann die zeitabhängige Position und Stärke der einzelnen Lasingmoden untersucht werden. Dabei wurde eine Rotverschiebung der Lasingmoden während des Lasingvorgangs beobachtet. Diese kann durch den Abbau angeregter Ladungsträger und die damit ver-



#### 4. Lasing in Halbleiter-Nanodrähten

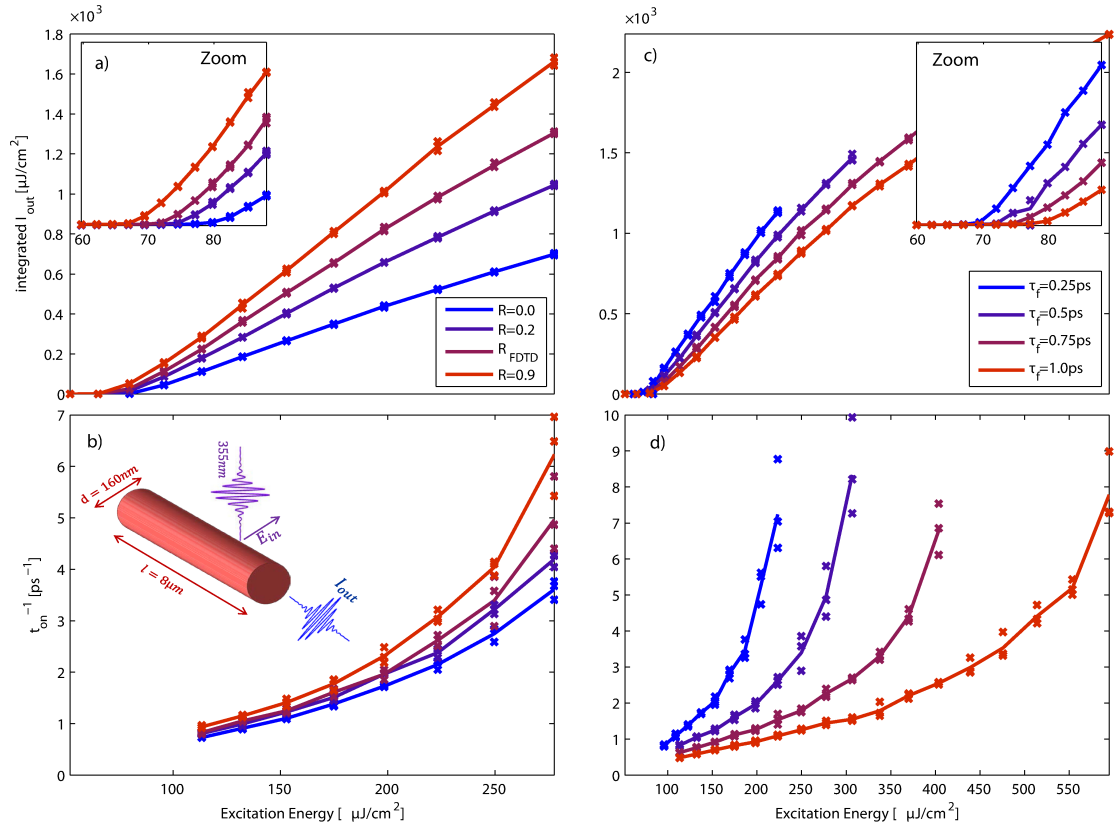


Abbildung 4.9.: Parameterabhängige Eigenschaften verschiedener ZnO-Nanodrahtlaser. (a) und (b) zeigen die Abhängigkeit der Lasingeigenschaften von der Endfacettenreflektivität  $R$  des Nanodrahts. (c) und (d) zeigen die Abhängigkeit von der Intradband-Relaxationszeit  $\tau_f$ . In (a) und (c) ist jeweils die Energie des Laserpulses in Abhängigkeit von der Anregungsenergie für verschiedene Werte von  $R$  beziehungsweise  $\tau_f$  abgebildet. (b) und (d) zeigen die inverse Anschlagzeit des Lasers für verschiedene Anregungsenergien.

#### 4. Lasing in Halbleiter-Nanodrähten

bundene Veränderung des Brechungsindex erklärt werden, welche zu einer Verschiebung der Fabry-Pérot Moden des Nanodrahts führt.

Im Folgenden sollen die geschilderten experimentellen Beobachtungen mit Hilfe von CMT-Simulationen reproduziert und die Abhängigkeit der Lasereigenschaften von experimentell schlecht zugänglichen und stark von der individuellen Probe abhängigen Parametern untersucht werden. Ähnlich wie im Experiment werden ZnO-Nanodrähte ( $n_{bg} = 2.0$ ) mit einem Durchmesser von  $d = 160$  nm und einer Länge von  $l = 8$   $\mu\text{m}$  untersucht. Wie in Abbildung 4.9(b) skizziert, werden die Drähte mit *sech*-förmigen Pulsen mit einer Pulsdauer von  $w_t = 2$  ps und einer Mittenwellenlänge von  $\lambda = 355$  nm angeregt. Das anregende elektrische Feld ist senkrecht zur Drahtachse polarisiert und wird innerhalb des Nanodrahts als homogen angenommen. Da sich der Draht bei der simulierten Dicke definitiv im monomodigen Bereich befindet, verwenden wir lediglich die Grundmode *HE01* mit einer zuvor bestimmten Ausbreitungskonstante  $\beta_0 = 24.31 \frac{1}{\mu\text{m}}$  und einer Gruppengeschwindigkeit von  $v_g = 1.26 \times 10^8 \frac{\text{m}}{\text{s}}$ . Um den Rechenaufwand zu reduzieren beschränken wir die transversale Auflösung auf einen einzelnen Datenpunkt. Zunächst untersuchen wir die Abhängigkeit der Emissionseigenschaften von der Endfacettenreflektivität  $R$ . Die Endfacettenreflektivität realer Nanodrähte kann von Probe zu Probe stark variieren und hat einen starken Einfluss auf die Qualität der durch den Draht gebildeten optischen Kavität. Wir untersuchen Drähte mit Endfacettenreflektivitäten zwischen den extremen Werten 0.0 und 0.9. Dabei ist zu beachten, dass aufgrund des in Abschnitt 2.2.2 beschriebenen Materialeffekts auch bei einer nominellen Reflektivität von 0.0 noch Licht von der Endfacette zurückreflektiert wird. Die mit der FDTD-Methode berechnete Reflektivität einer idealen Endfacette beträgt  $R_{FDTD} = 0.29$ . Abbildung 4.9(a) zeigt die integrierte Lasingleistung in Abhängigkeit von der Energie des Anregungspulses. Für alle untersuchten Reflektivitäten beobachtet man das übliche Lasingverhalten. Oberhalb der Laserschwelle von etwa  $W_{th} = 70 - 80 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  steigt die Ausgangsleistung des Lasers linear an. Die Laserschwelle liegt unterhalb des experimentellen Werts  $W_{th} = 200 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ , bewegt sich aber in der gleichen Größenordnung. Der im Vergleich zum Experiment geringere Schwellwert lässt sich durch die Beschreibung der Anregung in der CMT-Simulation erklären. Anders als im Experiment, wo ein Teil des Lichts an der Drahtoberfläche gestreut wird und nicht zur Anregung innerhalb des Drahts beitragen kann, wird hier ein homogenes Anregungsfeld innerhalb des Drahts angenommen, das der nominellen Pulsenergie entspricht. Wie man erwarten würde, erreichen Nanodrähte mit einer geringeren Reflektivität auch eine geringere Lasingeffizienz und haben eine geringfügig höhere Laserschwelle. Abbildung 4.9(b) zeigt die inverse Anschlagzeit  $t_{on}^{-1}$  der verschiedenen Nanodrahtlaser. In Übereinstimmung mit dem Experiment setzt die Laseremission bei stärker angeregten Drähten bereits früher ein. Zusätzlich beobachten wir auch eine leichte Erhöhung von  $t_{on}^{-1}$  bei Drähten mit höheren Endfacettenreflektivitäten. Dies lässt sich dadurch erklären, dass die Laserschwelle bereits zu einem früheren Zeitpunkt erreicht wird, wenn diese durch die Verwendung einer verbesserten Laserkavität abgesenkt wird oder wenn ein stärkerer Anregungspuls verwendet wird. Eine anregungsabhängige Intradrelaxationszeit ist in dem hier verwendeten Modell nicht enthalten und wird somit auch nicht zur Erklärung des Effekts benötigt.

#### 4. Lasing in Halbleiter-Nanodrähten

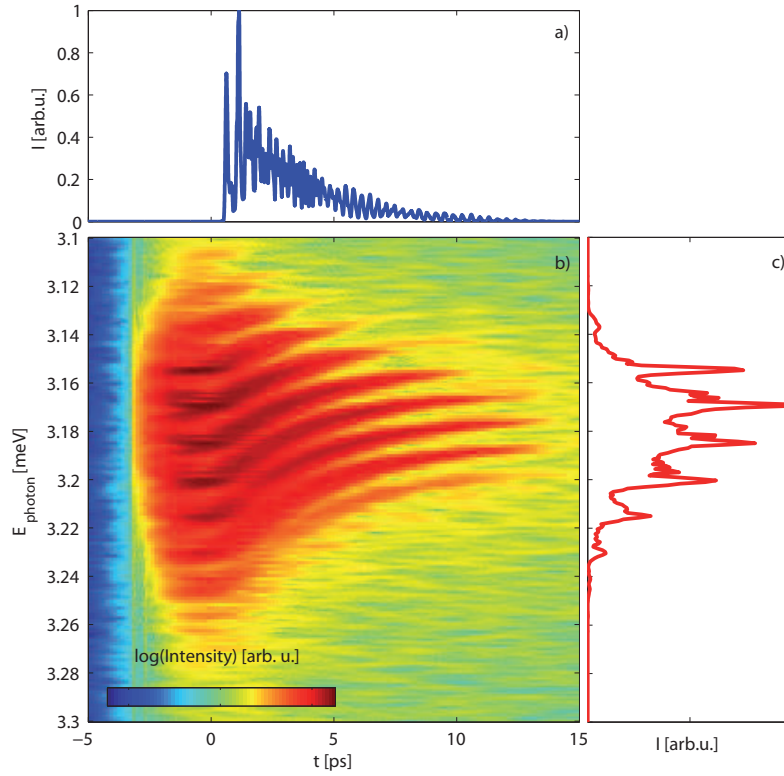


Abbildung 4.10.: (a): Zeitliches Intensitätsprofil eines typischen Laserpulses aus einem ZnO-Nanodraht ( $\tau_f = 0.5$  ps,  $R = 0.29$ ,  $d = 160$  nm). (b): Fenster-Fouriertransformation der zeitlichen Daten aus der gleichen Simulation. (c): Spektrale Intensität der Laseremission gewonnen aus einer Fouriertransformation der Daten in (a). Alle Daten wurden über drei Simulationsläufe mit verschiedenen Zufallszahlen für die spontante Emission gemittelt.

Nachdem der Einfluss der optischen Kavität auf die Lasingdynamik untersucht wurde, soll jetzt die Abhängigkeit von der Relaxationsdynamik des Halbleitermaterials untersucht werden. In unserem Modell wird diese durch einen einzelnen Parameter, die Intra-band-Relaxationszeit  $\tau_f = \frac{1}{\gamma_f}$  bestimmt. Abbildung 4.9(c) zeigt die inverse Anschlagzeit für verschiedene Werte von  $\tau_f$ . Läuft die Relaxation der Ladungsträger zur Bandkante langsam ab, ist dementsprechend auch die Lasingdynamik verlangsamt. Daher beobachtet man einen starken Abfall von  $t_{on}^{-1}$  bei erhöhten Werten von  $\tau_f$ . Der nichtlineare Anstieg der Kurven bleibt jedoch für alle Relaxationszeiten erhalten. Zusätzlich beobachtet man einen Abfall der Lasingeffizienz für hohe Werte von  $\tau_f$  (Abb. 4.9(d)), da Ladungsträger bei einer verlangsamt Dynamik mit einer größeren Wahrscheinlichkeit durch andere Prozesse rekombinieren bevor sie zur stimulierten Emission beitragen können.

Zuletzt untersuchen wir die zeitabhängige Emission eines einzelnen Nanodrahts mit

#### 4. Lasing in Halbleiter-Nanodrähten

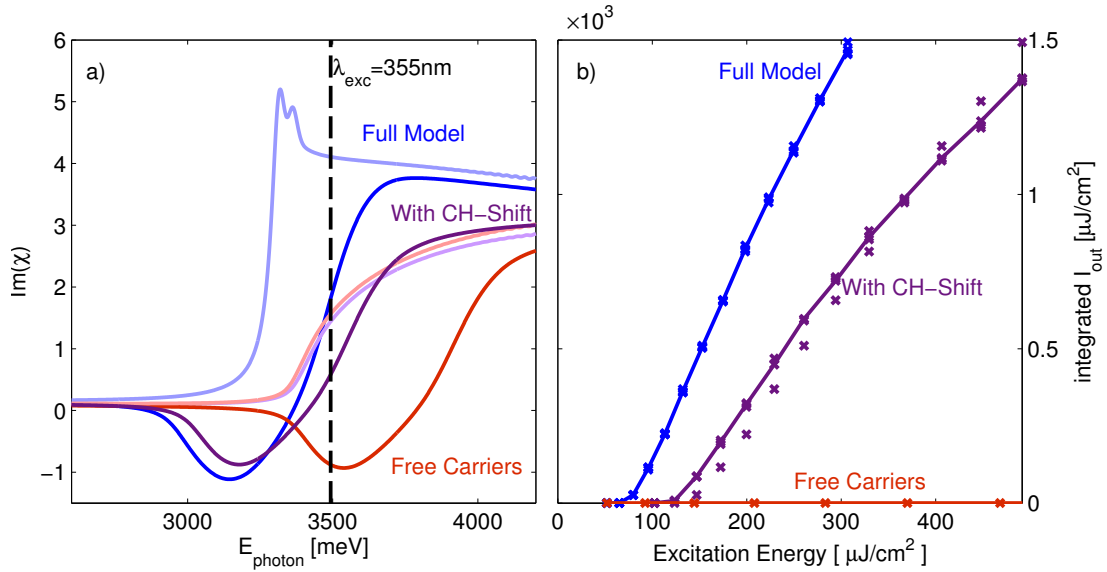


Abbildung 4.11.: Einfluss der Coulomb-Wechselwirkung auf das Lasingverhalten eines ZnO-Nanodrahts. (a): Absorptionsspektren für das volle Modell (blau), ein freies Ladungsträgermodell ohne die Coulomb-Wechselwirkung (rot) und ein freies Ladungsträgermodell, bei dem der Coulomb hole shift künstlich eingebaut wurde, um die Position der Gainregion zu korrigieren (violett). Gezeigt sind Kurven für das niedrig angeregte Material (verblasste Kurven,  $N = 3 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ ) und für die Hochanregung (kräftige Kurven  $N = 3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ ). Die für Lasingexperimente verwendete Anregungsfrequenz entsprechend  $\lambda_{\text{exc}} = 355 \text{ nm}$  ist gestrichelt eingezeichnet. (b): Die entsprechenden Lasingkurven. Die Farben entsprechen den Modellen aus (a).

$R = R_{FDTD}$  und  $\tau_f = 0.5 \text{ ps}$ . Um die Dynamik der einzelnen Lasingmoden untersuchen zu können, benutzen wir eine Fenster-Fouriertransformation zur Erzeugung zeitabhängiger Spektren (Abbildung 4.10). Wie im Experiment beobachtet man eine deutliche Rotverschiebung aller Lasingmoden während des Emissionsprozesses, die durch den Abbau der Inversion und die damit verbundene Änderung des Brechungsindex erklärt werden kann.

##### 4.4.2.1. Einfluss der Coulomb-Wechselwirkung

Die Berücksichtigung der Coulomb-Wechselwirkung stellt den numerisch aufwändigsten Teil unseres Modells dar. Aus diesem Grund wäre es prinzipiell wünschenswert, das Modell in dieser Hinsicht zu vereinfachen. Hier sollen die Auswirkungen der Coulomb-Wechselwirkung auf die Lasingeigenschaften von ZnO-Nanodrähten untersucht werden. Wir verwenden den gleichen Draht wie für Abbildung 4.10. Bereits durch Vergleich der linearen Absorptions- und Gainspektren (Abbildung 4.11(a)) der kompletten Halbleiter-Bloch-Gleichungen (blau) und eines Modells ohne die Coulomb-Wechselwirkung (rot) können einige Veränderungen vorausgesagt werden. Im niedrig angeregten Material (kräft-

#### 4. Lasing in Halbleiter-Nanodrähten

tige Linien) führt die Coulomb-Wechselwirkung zu einer erhöhten Absorption oberhalb der Bandlücke[26, 27]. Wird die Coulomb-Wechselwirkung vernachlässigt, ist also eine geringere Absorption und damit ein erhöhter Laserthreshold und eine verringerte Effizienz zu erwarten. Zum Anderen führt die Vernachlässigung der verschiedenen durch die Behandlung der Coulombterme bedingten energetischen Verschiebungen zu einer signifikanten Blauverschiebung der Gainregion im hochangeregten Material (verblasste Kurven). Verstärkung liegt dann fast ausschließlich für Frequenzen oberhalb der Bandlücke vor. Dementsprechend ist eine Blauverschiebung des Laserspektrums zu erwarten. Der letzte Aspekt kann durch eine künstliche Berücksichtigung des Coulomb hole shifts zum Teil korrigiert werden (violett). Auch wenn dieser im Kontext eines wechselwirkungsfreien Modells physikalisch unbegründet ist, lässt sich so der Gainbereich etwa an die von dem vollen Modell vorhergesagte Position verschieben.

Die entsprechenden Lasingkurven für eine Pumpwellenlänge von  $\lambda_{exc} = 355 \text{ nm}$  sind in Abbildung 4.11(b) gezeigt. Wie sich zeigt, unterbinden die verringerte Zustandsdichte und das Fehlen der energetischen Verschiebungen bei Nichtberücksichtigung der Coulomb-Wechselwirkung das Lasing in unserem Fall sogar komplett (rote Kurve), da die für die Anregungswellenlänge relevanten Zustände bereits gesättigt sind, bevor die notwendige Anregungsdichte erreicht werden kann. Für das künstlich korrigierte Modell hingegen ist optisch gepumptes Lasing bei dieser Pumpwellenlänge möglich. Trotzdem führt das Weglassen der Coulomb-Wechselwirkung wie erwartet zu einer signifikanten Erhöhung der Laserschwelle und einer Verringerung der Effizienz.

Wie man sieht führt ein Nichtberücksichtigen der Coulomb-Wechselwirkung zu deutlichen Veränderungen der spektralen Eigenschaften und der Leistung von Nanodrahtlasern. Die Verwendung eines auf diese Weise vereinfachten Modells ist also nur in einzelnen Fällen sinnvoll und erfordert stets die händische Anpassung der Modellparameter um korrekte Ergebnisse liefern zu können.

##### 4.4.3. Simulationen zu Doppelpump-Experimenten

Während zeitaufgelöste  $\mu$ -PL-Messungen die direkte Bestimmung des zeitlichen Emissionsprofils erlauben, ist die zeitliche Auflösung der verwendeten Streak-Kameras auf einige Pikosekunden begrenzt. Eine Alternative stellen sogenannte Doppelpumpexperimente [21, 88, 87] dar. Dabei wird der Nanodraht wie in Abbildung 4.12(a) skizziert mit zwei Pumpimpulsen bei der gleichen Mittenfrequenz mit variablem zeitlichen Versatz  $\tau$  angeregt und jeweils die Gesamtausgangsleistung aufgezeichnet. Die Intensität des starken Pumpimpulses ist so gewählt, dass die Laserschwelle überschritten wird. Der zweite Pumpimpuls ist schwächer gewählt, so dass er alleine nicht in der Lage ist, Lasing im Nanodraht anzuregen. Die aufgezeichnete vom zeitlichen Versatz abhängige Gesamtintensität erlaubt nun indirekte Rückschlüsse über den durch den starken Pumpimpuls angeregten Lasingvorgang. Diese beruhen jedoch auf verschiedenen Annahmen und erlauben keine direkte Rekonstruktion des zeitlichen Profils des Laserpulses. Die zeitliche Auflösung ist bei diesem Verfahren allerdings nur durch die Pulsdauer von üblicherweise 100 fs bis 150 fs begrenzt[21] und somit sehr viel genauer als bei einer direkten zeitaufgelösten Messung mit Hilfe einer Streak-Kamera. Daher wäre es wünschenswert, den Zusammenhang

#### 4. Lasing in Halbleiter-Nanodrähten

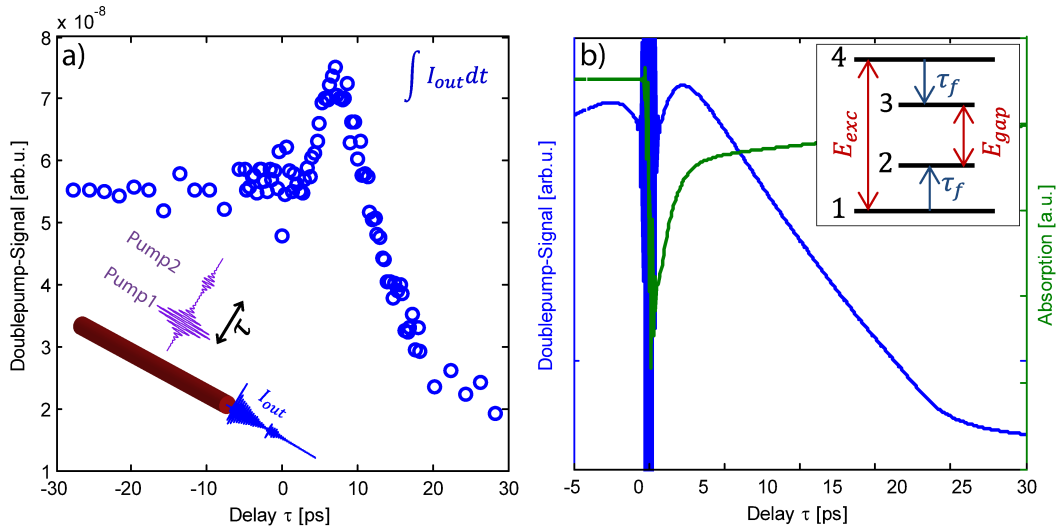


Abbildung 4.12.: (Daten entnommen aus [21]) (a): Experimentell aufgezeichnete Doppelpump-Kurve für einen CdS-Nanodraht. Die eingebettete Skizze zeigt die Anregungssituation bei den Doppelpump-Experimenten. (b): Veranschaulichende Rechnung mit einem Vier-Niveau-System als Modell für den Halbleiter (siehe eingebettete Skizze). In blau ist eine berechnete Doppelpumpkurve abgebildet. Die grüne Kurve zeigt die zeitabhängige Absorption bei der Pumpwellenlänge.

zwischen dem Doppelpumpsignal und dem zu vermessenden Lasingpuls mit Hilfe von Simulationen genauer bestimmen zu können. Während zunächst stark vereinfachte Modelle auf Basis eines Vier-Niveau-Lasers zur Illustration der experimentellen Ergebnisse verwendet wurden[21], erlauben diese nur begrenzt Rückschlüsse auf die Vorgänge in einem Halbleitermaterial.

##### 4.4.3.1. Experimentelle Ergebnisse und ursprüngliche Interpretation

In diesem Abschnitt sollen zunächst die Ergebnisse aus vorliegenden experimentellen Arbeiten[21, 88, 87] sowie die dort vorgestellte Interpretation dargestellt werden. Die experimentellen Ergebnisse zeigen ein ausgeprägtes Maximum des Doppelpump-Signals bei einem positiven zeitlichen Versatz  $\tau = t_{max}$  zwischen dem starken und dem schwachen Anregungspuls (Abbildung 4.12(a)), das heißt die emittierte Gesamtenergie ist maximal, wenn der schwächere Puls dem stärkeren im kurzen zeitlichen Abstand nachfolgt. Um den relativen Einfluss der Materialdynamik und der Geometrie der Laserkavität auf das zeitliche Verhalten zu untersuchen, wurden Experimente mit den Materialien CdS, ZnO und GaN und mit verschiedenen Drähten unterschiedlicher Geometrie durchgeführt[88]. Während für ZnO und GaN-Drähte lediglich eine Pumpwellenlänge von  $\lambda = 355$  nm verwendet wurde, wurden die Experimente für CdS-Nanodrähte auch bei einer Wellenlänge von  $\lambda = 420$  nm wiederholt. Ein Maximum des Doppelpumpsignals wurde bei allen Materi-

#### 4. Lasing in Halbleiter-Nanodrähten

alsystemen und Anregungswellenlängen beobachtet. Die Position des Maximums variiert allerdings bereits zwischen einzelnen Nanodrähten und liegt meist zwischen  $t_{max} = 5$  ps und  $t_{max} = 15$  ps. Für einen einzelnen Draht war sie jedoch weitgehend unabhängig von der gewählten Anregungswellenlänge. Daher ist davon auszugehen, dass die Position des Maximums hauptsächlich durch die Geometrie der Laserkavität bestimmt ist und somit direkten Aufschluss über das zeitliche Verhalten der Laseremission gibt.

Die Ergebnisse wurden zunächst auf Basis eines Vier-Niveau Lasers interpretiert.[21] Dabei werden die kontinuierlichen Energiebänder des Halbleiters durch vier Zustände beziehungsweise zwei optische Übergänge wie in Abbildung 4.12(b) skizziert dargestellt. Der Übergang zwischen dem höchsten und dem niedrigsten Energiezustand 4 und 1 wird entsprechend der Pumpfrequenz aus dem Experiment gewählt und entspricht Zuständen weit oberhalb der Bandlücke des realen Halbleiters. Der Übergang zwischen den beiden mittleren Energiezuständen 2 und 3 wird entsprechend der Bandlücke eingestellt, um den lasenden Bandübergang in der Nähe von  $k = 0$  zu modellieren. Die Intraband-Relaxation entspricht dann einer Relaxation der Besetzungszahlen von Zustand 1 zu Zustand 2 und von Zustand 4 zu Zustand 3 mit der Relaxationszeit  $\tau_f$ . Aufgrund der fermionischen Natur der Elektronen und der in diesem Modell stark begrenzten Menge vorhandener Zustände setzt bei weiterem Pumpen nach vollständiger Anregung der Zustände 2 und 3 auch eine Sättigung des Pumpübergangs  $1 \rightarrow 4$  ein. Die Sättigung tritt prinzipiell bei jeder Wahl des zeitlichen Versatzes auf und führt zu einer verringerten Absorption des jeweils späteren Anregungspulses (grüne Kurve in Abbildung 4.12(b)). Sie kann aber durch Abbau der Ladungsträger durch stimulierte Emission wieder aufgehoben werden. Trifft der schwächere Puls nach Abbau der Sättigung durch den ersten Lasingpuls ein, kann dieser das Material ein zweites Mal anregen und es entsteht ein zweiter Lasingpuls. Dadurch steigt die über das gesamte Experiment integrierte Ausgangsleistung an (blaue Kurve in Abbildung 4.12 (b)). Bei größeren Werten des zeitlichen Versatzes sind bereits weitere Ladungsträger rekombiniert, so dass der schwächere zweite Pumpimpuls zunehmend weniger zur stimulierten Emission beitragen kann, da die Laserschwelle nur noch knapp überschritten wird. Dadurch sinkt das Doppelpumpsignal in diesem Bereich rapide ab. Ist die Anregung des Materials schließlich so weit abgefallen, dass trotz optimaler Absorption des zweiten Anregungspulses kein zweiter Lasingpuls mehr emittiert werden kann, verlangsamt sich der Abfall der Doppelpumpkurve wieder, da der schwächere Anregungspuls nur noch zur spontanen Emission beitragen kann.

##### 4.4.3.2. Modellierung mit Halbleiter-Bloch-Gleichungen

In einem Vier-Niveau-System wird automatisch ein Sättigungseffekt erreicht, wenn das Material nach Sättigung des unteren Übergangs noch weiter angeregt wird. In einem Halbleiter existiert hingegen ein Kontinuum an Zuständen zwischen der Bandlücke bei  $k = 0$  und einem energetisch höhergelegenen Reservoir-Zustand  $k = k_{pump}$ . Um einen Sättigungseffekt des oberen Übergangs zu erreichen muss also der gesamte Zustandsraum bis zum der Pumpfrequenz entsprechenden Zustand  $k_{pump}$  gefüllt werden. Bei einer fest gewählten Leistung des Pumpimpulses erwartet man somit eine starke Abhängigkeit des Effekts von der Pumpfrequenz, da der gesättigte Bereich des Wellenvektorraums nur

#### 4. Lasing in Halbleiter-Nanodrähten

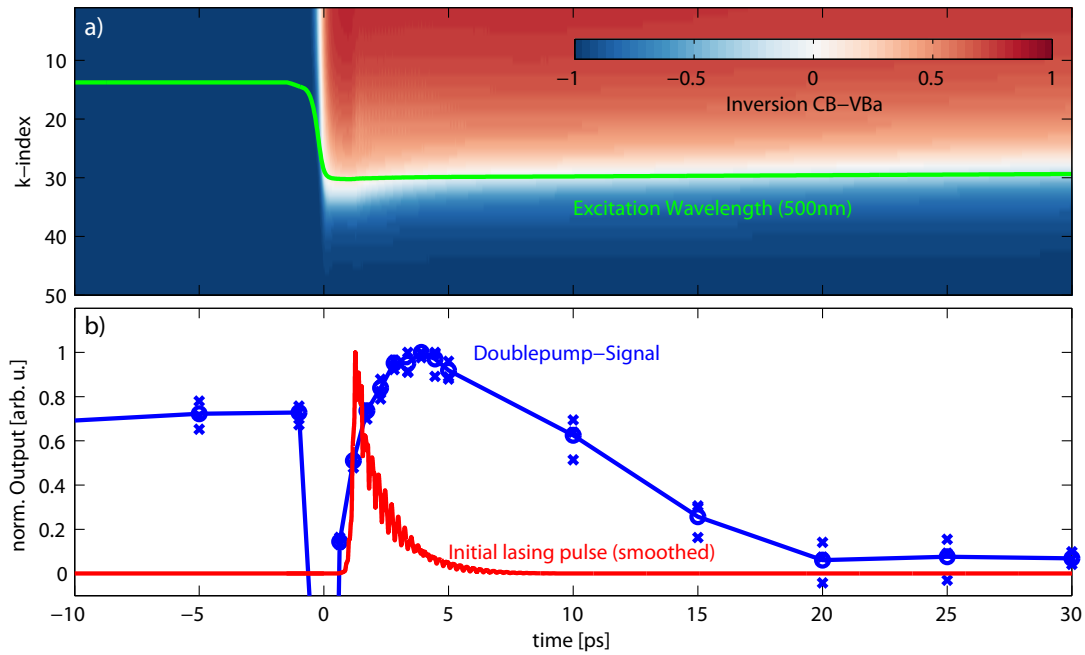


Abbildung 4.13.: Simuliertes Doppelpump-Experiment bei Anregung ( $E_{exc} = 2480$  meV) nahe an der fundamentalen Bandlücke ( $E_{gap} = 2420$  meV). (a): Zeitabhängigkeit der Inversion des Übergangs von Valenzband a zum Leitungsband im Wellenvektorraum bei Anregung nur mit dem starken Pumpuls. (b): Geglätteter Intensitätsverlauf des durch den starken Pumpuls ausgelösten Laserpulses (rote Kurve) und Doppelpumpsignal (blaue Kurve).

die Übergänge bis zu einem bestimmten  $k$ -Wert erreicht. Oberhalb dieses Wertes sollte der Effekt komplett ausbleiben. Die bei Experimenten mit ZnO und GaN verwendete Pumpwellenlänge  $\lambda = 355$  nm befindet sich in beiden Fällen nahe an der Bandlücke des Materials, so dass ein Sättigungseffekt wie oben beschrieben durchaus denkbar ist. Die gleiche Wellenlänge wurde allerdings auch bei Experimenten mit CdS verwendet. In diesem Material liegt die Bandlücke sehr viel tiefer, so dass ein Sättigungseffekt unwahrscheinlich erscheint oder zumindest eine Bestätigung durch eine rigorose Simulation erfordert. Daher wurde der Effekt in dieser Arbeit mit Hilfe der Coupled Mode Theory und der Halbleiter-Bloch-Gleichungen untersucht.

Abbildung 4.13 zeigt ein simuliertes Doppelpump-Experiment mit einer Pumpwellenlänge nahe an der fundamentalen Bandlücke des verwendeten Materials ( $E_{exc} - E_{gap} = 60$  meV). Betrachtet wurde ein CdS-Nanodraht. In Abbildung 4.13(a) ist die zeitabhängige Inversion der einzelnen  $k$ -Zustände dargestellt. Die grüne Linie markiert die der Pumpwellenlänge entsprechenden Zustände. Die Position der Anregung im Wellenvektorraum des Materials ist zeitlich nicht konstant, sondern verschiebt sich aufgrund der Coulomb-Renormierung und des Coulomb hole shift während der An- und Abregung des Halbleiters. Wie man erkennt, sind Pumpwellenlänge und Anregungsintensität so



#### 4. Lasing in Halbleiter-Nanodrähten

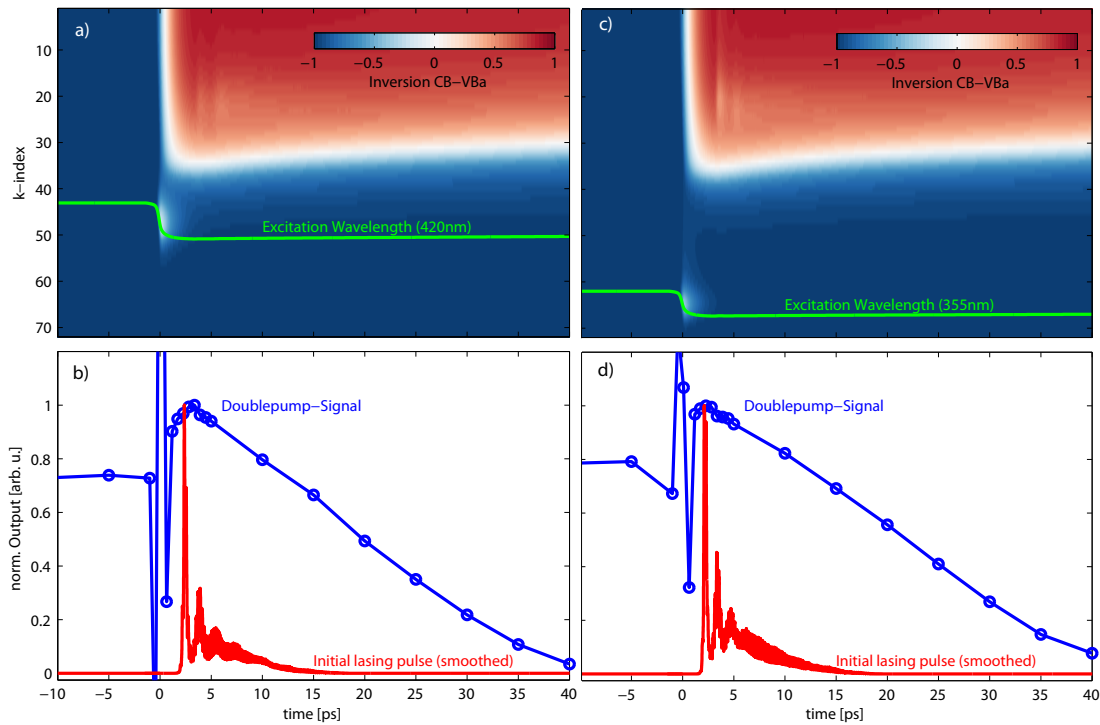


Abbildung 4.14.: Simulationen zu Doppelpumpexperimenten mit Anregungssituation wie im Experiment. Die Pumpwellenlängen liegen bei  $\lambda = 420$  nm (a,b) und bei  $\lambda = 355$  nm (c,d). Abbildungen (a) und (c) zeigen die zeitabhängige Inversion zwischen Valenzband a und dem Leitungsband bei Anregung nur mit dem starken Pumpuls. (b) und (d) zeigen den geglätteten Intensitätsverlauf des durch den starken Pumpuls ausgelösten Laserpulses (rote Kurve) und das Doppelpumpsignal (blaue Kurve).

gewählt, dass die Sättigung der einzelnen  $k$ -Zustände bis zur Pumpfrequenz reicht. Tatsächlich bildet sich bei dieser Konfiguration ein durch Sättigungseffekte erklärbares Maximum des Doppelpumpsignals (4.13(b), blaue Kurve) bei positivem zeitlichen Versatz  $\tau$  aus. Wie von der ursprünglichen Interpretation und den Simulationen mit 4-Niveau-Systemen vorausgesagt, ist die Gesamtintensität maximal, wenn der schwache Pumpuls etwa bei Ende des durch den starken Pumpuls ausgelösten Lasingpulses (4.13(b), rote Kurve) eintrifft.

Abbildung 4.14 zeigt hingegen eine dem Experiment entsprechende Situation mit Anregungen bei 420 nm in Abbildungsteil (a) und (b), beziehungsweise bei 355 nm in (c) und (d) für den gleichen Nanodraht. Die Anregungsintensität des starken Pulses liegt bei der doppelten, die des schwachen Pulses bei der 0.25-fachen Laserschwelle. Die zeitlich aufgelöste Inversion der einzelnen Übergänge in (a) und (c) zeigt deutlich, dass der gesättigte Bereich in beiden Fällen weit unterhalb der für die Pumpfrequenzen relevanten Zustände liegt. Eine Sättigung bei der Pumpfrequenz tritt lediglich in einem kurzen Zeitraum direkt während und nach der Anregung um  $t = 0$  auf und verschwindet, sobald sich

#### 4. Lasing in Halbleiter-Nanodrähten

die Ladungsträger im thermischen Gleichgewicht befinden. Sättigungseffekte im bisher beschriebenen Sinn können hier also keine Rolle spielen. Trotzdem bildet sich auch hier ein Maximum des Doppelpumpsignals bei positiven Werten von  $\tau$  aus. Im Gegensatz zur Anregung nahe der Bandlücke fällt hier auf, dass die Position des Maximums nicht mit dem Ende des ersten Laserpulses zusammenzuhängen scheint, sondern mit dem Maximum des Laserpulses beziehungsweise mit dem Abklingen der lokalen Inversion bei der Pumpwellenlänge übereinstimmt.

Das Doppelpumpsignal scheint also weniger durch den Abbau von Ladungsträgern durch stimulierte Emission als vielmehr von der Relaxation des Materials bestimmt zu sein. Um diese Vermutung zu testen betrachten wir nun die Anregung eines extrem kurzen und als Laserkavität ungeeigneten Drahts. Die Anregung entspricht der aus dem ursprünglichen Doppelpumpexperiment, aber die Laseremission bleibt aus, da die Laserschwelle für diese Kavität nicht erreicht wird. Außerdem wurden die spontane Emission und alle nichtstrahlenden Rekombinationsprozesse in dieser Simulation abgeschaltet. Abbildung 4.15(a) zeigt die maximal erreichte Anregungsdichte und den Imaginärteil des Brechungsindex bei der Pumpwellenlänge in Abhängigkeit vom zeitlichen Versatz zwischen den Anregungspulsen. Bei kompletter Sättigung des Übergangs wäre die maximal erreichte Ladungsträgerdichte symmetrisch und abgesehen von einem Einbruch um  $\tau = 0$  konstant, da in diesem Fall eine maximale Ladungsträgerdichte  $N_{max}$  nie überschritten werden kann. In unserer Simulation steigt die maximal erreichte Anregungsdichte stattdessen am Übergang zwischen positiven und negativen Werten von  $\tau$  an. Die Anstiegszeit hängt offenbar direkt von der Intradbandrelaxationszeit ab und entspricht in etwa der Zeitspanne, innerhalb der die Ladungsträger eine Gleichgewichtsverteilung einnehmen und die lokale Sättigung bei der Pumpfrequenz abgebaut wird. Die Doppelpumpenanregung führt also zu einer etwas höheren Ladungsträgerdichte wenn der schwache Pumpimpuls nach dem starken Pumpimpuls eintrifft und wenn der zeitliche Versatz so groß ist, dass keine lokale Sättigung der Zustände bei der Pumpfrequenz mehr vorliegt. Der einzige im verwendeten Modell auftretende Effekt, der selbst unterhalb der Laserschwelle eine solche Abhängigkeit von der Reihenfolge der Pumpimpulse auslösen kann, ist die Abschirmung des Coulombpotentials, da der Abschirmungs-Wellenvektor

$$\kappa \sim \int_0^\infty n(k) dk \quad (4.10)$$

nicht von der Anregungsdichte

$$N \sim \int_0^\infty n(k) \frac{k^2}{\pi^2} dk, \quad (4.11)$$

sondern von der konkreten Verteilung der Anregungen im Wellenvektorraum abhängt. Diese Vermutung lässt sich leicht bestätigen indem man ein rein  $N$ -abhängiges  $\kappa$  wählt, beispielsweise indem man  $n(k)$  in Gleichung 4.10 durch die jeweilige Fermiverteilung  $f(N, k, T)$  ersetzt. In diesem Fall (gestrichelte Linie in Abbildung 4.15(a)) verschwindet die Asymmetrie in der maximal erreichten Anregungsdichte annähernd.

Verwendet man hingegen die korrekte Formulierung aus Gleichung 4.10, werden Anregungen bei geringen  $k$ -Werten aufgrund der dort geringeren Zustandsdichte stärker

#### 4. Lasing in Halbleiter-Nanodrähten

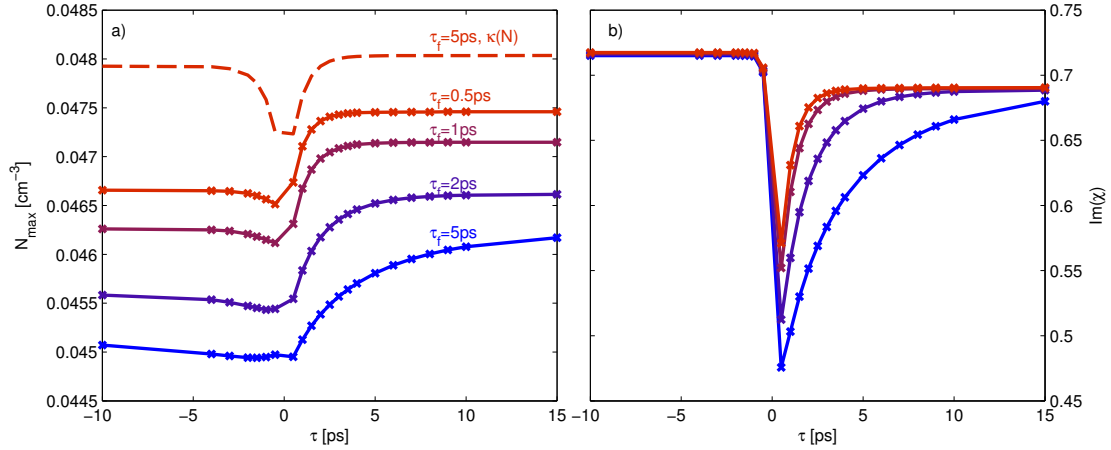


Abbildung 4.15.: Simulationen ohne Lasing mit Doppelpumpenanregung bei verschiedenen Interbandrelaxationszeiten. (a): Maximal erreichte Anregungsdichte. Die durchgezogenen Linien wurden wie bisher mit einem  $n(k)$ -abhängigen Wert der Abschirmwellenlänge  $\kappa$  berechnet. Bei der gestrichelten Linie wurde eine rein  $N$ -abhängige Abschirmwellenlänge  $\kappa$  verwendet. Die gestrichelte Linie wurde zur besseren Erkennbarkeit um  $\Delta N = 0.0015 \text{ cm}^{-3}$  nach oben versetzt. Die restlichen Kurven zeigen unmodifizierte Daten. (b): Imaginärteil der Suszeptibilität für den zweiten Pumpimpuls (bisheriges Modell mit  $n(k)$ -abhängiger Abschirmwellenlänge).

gewichtet. Da die Abschirmung zu einer Abschwächung der Absorption über weite  $k$ -Bereiche führt (Abbildung 4.16(a)), beeinflussen sich die beiden Pumpimpulse gegenseitig. Durch den schwächer als linear ansteigenden Einfluss der Anregungsdichte  $N$  auf den Abschirmwellenvektor  $\kappa$  und somit auf die Absorption (Abbildung 4.16(b)) kann der schwache Pumpimpuls den starken Pumpimpuls jedoch stärker beeinflussen als umgekehrt. Daher ist es vorteilhaft für die Gesamtabsorption, wenn der starke Pumpimpuls zuerst eintrifft.

##### 4.4.3.3. Diskussion

Im Experiment variiert die Position des Maximums des Doppelpumpsignals von Draht zu Draht und liegt zwischen  $t_{\max} = 5$  ps und  $t_{\max} = 15$  ps. Dabei sind Werte um  $t_{\max} = 10$  ps besonders häufig. Außerdem wurden in mehrmodigen Nanodrähten zwei aufeinanderfolgende Doppelpump-Maxima beobachtet[87]. Dies deutet auf eine starke Abhängigkeit von den optischen Eigenschaften der Kavität und damit vom Lasingvorgang hin. Bei einer Anregung nahe an der Bandlücke wie in Abbildung 4.13 konnte dieses Verhalten gut durch Simulationen reproduziert werden. In diesem Fall entspricht das Systemverhalten auch genau den einfachen auf Basis eines Vier-Niveau-Systems gemachten Annahmen. Die experimentelle Anregung befand sich jedoch zumindest bei CdS stets weit über der Bandlücke. In diesem Fall konnten die Doppelpumpkurven zwar qualitativ sehr gut reproduziert werden, die experimentell beobachtete starke Abhängigkeit vom

#### 4. Lasing in Halbleiter-Nanodrähten

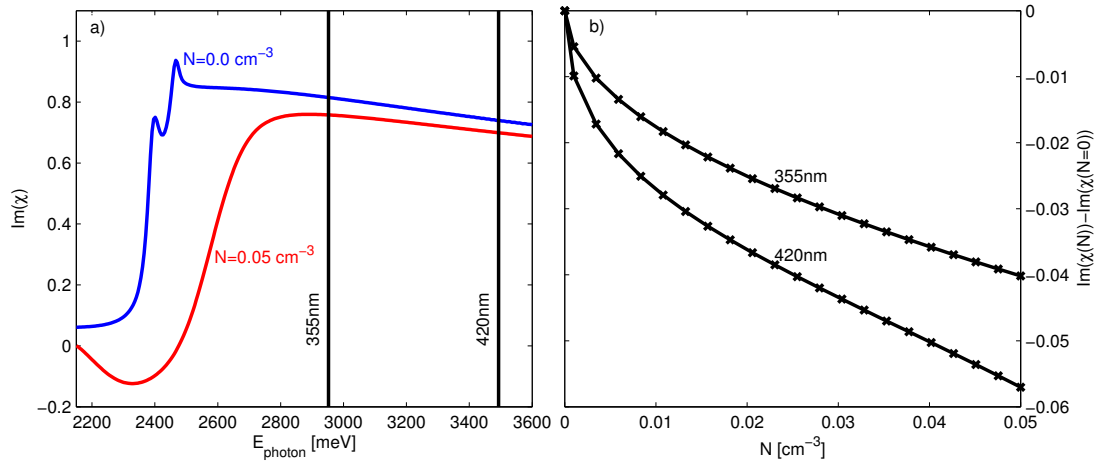


Abbildung 4.16.: Effekt der Abschirmung auf die Absorption bei Anregung weit über der Bandlücke am Beispiel CdS. (a): Imaginärteil der Suszeptibilität für unangeregtes (blau) und stark angeregtes (rot,  $N = 0.05 \text{ cm}^{-3}$ ) Material. (b): Abweichung des Imaginärteils der Suszeptibilität vom nichtangeregten Fall bei 355 nm und bei 420 nm für verschiedene Anregungsdichten.

Lasingprozess konnte jedoch nicht beobachtet werden. Stattdessen hängt die Position des Maximums hier lediglich vom Abbau der lokalen Sättigung bei der Pumpfrequenz und somit von der Interbandrelaxationszeit  $\tau_f$  ab und liegt daher bei realistischen Werten von  $\tau_f$  im Bereich zwischen  $t_{max} = 1 \text{ ps}$  und  $t_{max} = 5 \text{ ps}$ .

Dies deutet darauf hin, dass der für die Modulation des Doppelpumpsignals verantwortliche Effekt mit einem einfachen Modell ohne eine mikroskopische Beschreibung der Streuung und der Wechselwirkung mit dem Gitter nicht vollständig erklärt werden kann. Als Kandidaten zur Erklärung der Modulation kommen ausschließlich Effekte in Frage, welche zu einer Erinnerung des Materials an eine frühere Anregung führen. Dazu gehören Effekte, die ähnlich wie die Abschirmung im oben beschriebenen Fall von der Verteilung der Anregungen im Wellenvektorraum abhängen. Gänzlich andere Gedächtniseffekte wie beispielsweise eine Erhitzung des Materials kommen ebenfalls in Frage. Ein Sättigungseffekt wie ursprünglich angenommen wäre prinzipiell ebenfalls denkbar, allerdings müsste die Relaxation der Ladungsträger dann radikal anders ablaufen als von den hier verwendeten Näherungen angenommen. Die Identifikation und Simulation des hier relevanten Effekts stellt ein interessantes Thema für die weitere Forschung dar. Die numerische Effizienz des hier verwendeten CMT-Verfahrens ermöglicht die dazu notwendige Modellierung weiterer Effekte und die tiefere Untersuchung der Ladungsträger- und Temperaturdynamik in Nanodraht-Lasern.

## 4.5. **Schlussbemerkungen zur Simulation von Halbleiter-Nanodrähten**

In dieser Arbeit wurden verschiedene Möglichkeiten zur räumlich aufgelösten Modellierung der Licht-Materie-Wechselwirkung in Halbleitern untersucht. Die Materialdynamik wurde dabei stets auf Basis der Halbleiter-Bloch-Gleichungen beschrieben. Diese stellen ein modernes und vielseitiges Modell des direkten Bandübergangs in Halbleitern dar und berücksichtigen auch Vielteilcheneffekte der Elektronen und Löcher in der Hartree-Fock-Näherung. Korrelationen jenseits der Hartree-Fock-Näherung wie Abschirmung oder Coulombstreuung werden phänomenologisch berücksichtigt, so dass auch der hochangeregte Bereich beispielsweise bei Lasingexperimenten gut beschrieben werden kann. Das Materialmodell wurde an verschiedene Modelle zur Beschreibung der Lichtausbreitung gekoppelt. Zum Einen wurde das FDTD-Verfahren verwendet, bei dem die Maxwellgleichungen und die Materialgeometrie auf einem Gitter diskretisiert werden. Dieses erlaubt die Simulation beliebiger Materialgeometrien ohne vereinfachende Annahmen, ist aber numerisch sehr aufwändig. Zum Anderen wurde das auf Wellenleitergeometrien zugeschnittene CMT-Verfahren verwendet. Dieses ist auf die Beschreibung propagierender Moden im Wellenleiter beschränkt, erlaubt aber extreme numerische Vereinfachungen.

Beide Verfahren wurden zur Simulation lasender Halbleiter-Nanodrähte verwendet. Während der Anregungsprozess und das Anschwingen des Lasers sowie die initiale Kompetition zwischen Moden umfassend mit dem FDTD-Verfahren simuliert werden konnte, ermöglichte das effizientere CMT-Verfahren die Untersuchung der Dynamik auf längeren Zeitskalen und die Untersuchung des Einflusses der Material- und Kavitätsparameter über weite Bereiche. So konnten erste Vergleiche mit experimentellen Untersuchungen angestellt werden, welche eine sehr gute qualitative Übereinstimmung zeigten.

Wie sich bei der Untersuchung von Doppelpumpexperimenten zeigt, gibt es aber auch weiterhin Effekte, die mit dem hier verwendeten einfachen Halbleitermodell nicht komplett erklärt werden können. Um diese zu identifizieren und zu verstehen, sind tiefergehende Simulationen mit Ab-Initio-Modellen ebenso notwendig wie die Berücksichtigung weiterer Effekte in räumlich aufgelösten Codes wie den hier vorgestellten. Der Grundstein zu solchen Untersuchungen wurde durch die Implementierung und Erprobung räumlich aufgelöster und numerisch handhabbarer Modelle der Licht-Materie-Wechselwirkung in dieser Arbeit gelegt.

## 5. Halbleiter-Nanodrähte als polaritonische Resonatoren

Im letzten Kapitel wurde die Licht-Materie-Wechselwirkung in lasenden Halbleiter-Nanodrähten untersucht. Abgesehen vom Anregungsprozess durch die Pumpstrahlung spielt sich dort die gesamte Dynamik in einem stark angeregten Zustand ab, in dem die Coulomb-Wechselwirkung aufgrund der Abschirmung durch das Plasma keine signifikante Rolle spielt und das Material eine spektral breite Verstärkung in der Nähe der Bandlücke aufweist. Wachsendes Interesse erfährt aber auch der gegenteilige Bereich der geringen Anregung von Halbleitern[31, 32]. In diesem Fall werden die optischen Eigenschaften stark durch die Coulomb-Wechselwirkung beeinflusst und es treten exzitonische Resonanzen in der Absorption des Materials auf. Koppeln diese stark an das Lichtfeld, so stellen die optische Mode und die exzitonische Polarisation keine Eigenmoden des Gesamtsystems mehr dar. Die Quasiteilchen, die man bei kanonischer Quantisierung der tatsächlichen Eigenmoden des gekoppelten Systems erhält, werden als Exziton-Polaritonen bezeichnet[96, 97]. Sie erben die starke Nichtlinearität der Materialanregung, aber auch die meisten dispersiven Eigenschaften des Lichts. Diese Eigenschaften machen Exziton-Polaritonen zu einem interessanten Spielfeld der Grundlagenforschung zu Quantenfluiden und nichtlinearer Dynamik. Auch technologische Anwendungen, zum Beispiel als alternative kohärente Lichtquelle mit einer geringen Anregungsschwelle[98, 99] werden zur Zeit diskutiert. Bisher wurden in diesem Zusammenhang vor allem planare Resonatoren untersucht, bei denen eine Fabry-Pérot Mode der optischen Kavität an die exzitonische Resonanz eines Quasi-Zweidimensionalen Halbleiter-Quantentrogs gekoppelt wird. Aufgrund ihrer hohen Kristallqualität, der hohen Güte der resonanten Moden und der optisch quasi-eindimensionalen Geometrie stellen Resonatoren aus Halbleiter-Nanodrähten eine interessante Alternative dar[24, 100]. In diesem Kapitel werden zunächst die Eigenschaften der photonischen und polaritonischen Moden in diesen Resonatoren untersucht.

Aufgrund der komplizierten Struktur aus gekoppelten und ungekoppelten Moden, die in diesen Systemen existieren, wären auch hier räumlich aufgelöste Modelle wünschenswert. Am Ende des Kapitels werden daher Möglichkeiten zur Simulation polaritonischer Systeme diskutiert. Besonderes Augenmerk liegt dabei auf einer effizienten Beschreibung der Kopplung an akustische Phononen.

### 5.1. Resonatormoden in Halbleiter-Nanodrähten

Konventionelle Halbleiter-Mikrokavitäten haben eine planare Geometrie und nutzen die Fabry-Pérot-Moden zwischen zwei gegenüberliegenden Bragg-Spiegeln[32]. In einem Resonator der Länge  $l_z$  mit verschwindender Phasenverschiebung durch die Spiegel müssen

## 5. Halbleiter-Nanodrähte als polaritonische Resonatoren

diese die Resonatorbedingung  $k_z = \frac{\pi M}{l_z}$  für die Wellenzahlvektorkomponente  $k_z$  und einen ganzzahligen positiven Modenindex  $M$  erfüllen. Da der Resonator in  $x$ - und  $y$ -Richtung ausgedehnt ist, können die Moden aber auch einen transversalen Wellenvektor  $\vec{k}_\perp = (k_x, k_y)$  annehmen. Für eine einzelne Mode ergibt sich dann die transversale Dispersionsrelation für  $k_\perp \ll k_z$

$$\omega = \frac{c}{n} \sqrt{k_z^2 + \vec{k}_\perp^2} \approx \omega_0 + \frac{\hbar \vec{k}_\perp^2}{2m_{cav}}. \quad (5.1)$$

Diese entspricht der Dispersionsrelation eines massebehafteten Teilchens im zweidimensionalen Raum mit der Frequenz  $\omega_0$  bei  $k_\perp = 0$  und der effektiven Photonennasse  $m_{cav} = \hbar \omega_0 \frac{n^2}{c^2}$ .

Um polaritonische Effekte in integrierten photonischen Schaltungen nutzen zu können, müssen Polaritonen effizient geführt und manipuliert werden können. Dies ist prinzipiell einfacher in quasi-eindimensionalen Systemen zu erreichen als bei freier zweidimensionaler Propagation. Eine Möglichkeit, Polaritonen in eindimensionalen Strukturen einzuschließen ist die Verwendung von Mikro- oder Nanodrähten[101, 24, 100]. Anders als bei den lasenden Systemen im letzten Kapitel werden hier allerdings nicht die Fabry-Pérot-Moden zwischen den Endfacetten des Drahts verwendet, da diese im nicht-angeregten Halbleiter eine extrem geringe Lebensdauer aufweisen und über keinerlei Freiheitsgrade verfügen. Stattdessen betrachtet man die in den beiden Richtungen senkrecht zur Drahtachse eingeschlossenen Whispering-Gallery-Moden. Dabei erwartet man für die einzelnen Moden eine ähnliche Dispersionsrelation wie in einer Mikrokavität mit dem Unterschied, dass die einzelnen Moden zweidimensional eingeschlossen sind und eine Propagation nur noch entlang der Drahtachse möglich ist.

Die höchsten Modenqualitäten lassen sich bei größeren Drähten mit Durchmessern im Mikrometerbereich erzielen. In diesen Drähten lassen sich die starke Kopplung zwischen optischen und exzitonischen Anregungen und die Bildung von Polaritonen bereits am unbeschichteten Draht beobachten. Durch die hohe Anzahl von Moden ergeben sich aber prinzipiell andere Effekte als bei den üblichen Kavitäten, so dass man eher die Streuung zwischen verschiedenen Polaritonzweigen als die Relaxation innerhalb eines einzelnen Zweiges beobachtet[24]. Diese Effekte bieten ihrerseits interessante potentielle Anwendungen wie die Erzeugung verschränkter Polaritonen. Möchte man die eindimensionale Propagation von Polaritonen innerhalb eines Zweiges untersuchen, sind Nanodrähte aufgrund der deutlichen räumlichen und spektralen Trennung der Moden besser geeignet. Diese bringen aufgrund ihrer geringen Abmessungen aber auch geringere Resonatorqualitäten mit sich und werden daher zur Erhöhung der Lebenszeiten der Photonen in der Kavität mit konzentrischen Bragg-Spiegeln beschichtet.

Die eindimensionale photonische Bandlücke der verwendeten Spiegel verbietet zwar die Propagation von Licht senkrecht zur Schichtung, also in radialer Richtung, nicht aber die Propagation entlang der Schichten des Spiegels. Somit ist zunächst unklar, ob die resonanten Moden eines Bragg-beschichteten Nanodrahts im Bereich des Halbleiterdrahts lokalisiert sind, oder ob diese ähnliche wie Whispering-Gallery-Moden in den äußeren Schichten des Drahts propagieren. Um diese Frage zu beantworten und die Eignung beschichteter Mikrodrähte als polaritonische Resonatoren zu überprüfen, wurden diese

Systeme numerisch untersucht und die polaritonischen Eigenmoden einer typischen Kavität wurden bestimmt. Die Ergebnisse wurden mit den Ergebnissen einer experimentellen Untersuchung an der Universität Leipzig verglichen[100].

### 5.1.1. Bestimmung der Modenstruktur

Die Bestimmung von Eigenmoden ist prinzipiell durch die Formulierung der Maxwellgleichungen im Frequenzbereich möglich, die direkt auf ein Eigenwertproblem führt, welches sich diskretisieren und mit den gängigen mathematischen Methoden lösen lässt. In diesem Fall gestaltet sich die Beschreibung absorbierender und dispersiver Materialien, welche alleine schon durch die Verwendung offener Randbedingungen notwendig ist, als schwierig. Eine alternative Möglichkeit ist die indirekte Bestimmung der Eigenmoden mit einer Zeitbereichsmethode wie FDTD. Dabei wird die relevante Kavitätsstruktur in einer Simulation mit einer zeitlich kurzen, also spektral breiten Quelle angeregt. Durch eine Fouriertransformation kann dann die spektrale Intensität der Felder im Inneren der Kavität bestimmt werden. Zu Beginn der Simulation dominiert dabei das anregende Feld. Im weiteren Verlauf der Simulation bleiben aber nur die den Eigenmoden entsprechenden spektralen Komponenten erhalten, da alle anderen Beiträge schnell abklingen. Schneidet man durch die Verwendung einer geeigneten Fensterfunktion bei der Berechnung der Fouriertransformation frühe Werte der Zeitreihe ab, erhält man also ein Intensitätsspektrum in dem ausschließlich die Eigenmoden des Systems vorkommen[102]. Diese sind dann als Peaks im Spektrum erkennbar. Die Feldprofile der Moden erhält man schließlich durch Fourier-Filterung der räumlich aufgelösten Felder bei der entsprechenden Eigenfrequenz. Als räumliches Profil der Anregung ist es üblich, zufällig im Inneren der Kavität verteilte und unterschiedlich polarisierte Dipolquellen zu verwenden, um möglichst alle Eigenmoden anregen zu können. Da die Anregung im Experiment mit einer von außen einfallenden Welle erfolgt, wählen wir auch hier eine ebene Welle als Anregung.

Um die korrekten polaritonischen Moden zu erhalten muss die dielektrische Funktion des Systems einschließlich exzitonischer Effekte verwendet werden. Dies wäre durch die Verwendung der an die FDTD-Methode gekoppelten Halbleiter-Bloch-Gleichungen wie in Abschnitt 3.1 und 4.3 möglich. Da hier jedoch nur die linearen Eigenmoden gesucht werden, ist es einfacher die dielektrische Funktion direkt durch einen Fit an experimentell ermittelte Brechungsindex-Werte anzunähern. Dies ist numerisch weit weniger aufwändig und erhöht die Vergleichbarkeit mit dem Experiment.

Reale Mikrodrähte können je nach Wachstumsprozess eine hexagonale bis runde Form aufweisen. Diese kann auch entlang der Drahtachse variieren. Als ideale Kavität wählen wir für unsere Simulation einen Draht mit rundem Querschnitt. Die Bragg-Beschichtung besteht aus  $10 + \frac{1}{2}$  konzentrischen jeweils aus Yttrium-stabilisiertem Zirkonoxid(YSZ,  $d = 41.5 \text{ nm}$ ) und  $\text{Al}_2\text{O}_3$  ( $d = 55.2 \text{ nm}$ ) zusammengesetzten Schichtpaaren. Die frequenzabhängigen Brechungsindizes wurden jeweils an experimentelle Daten angepasst. Da Bragg-Stapel und Kavitäten mit hoher Qualität außerordentlich sensitiv auf kleine Dickenänderungen reagieren, muss eine außerordentlich feine räumliche Auflösung von  $\Delta x = \Delta y = \Delta z = 1 \text{ nm}$  verwendet werden. Eine weitere Eigenschaft hochwertiger Kavitäten ist eine sehr lange Abklingzeit der Modenintensitäten im Resonator. Aus diesem



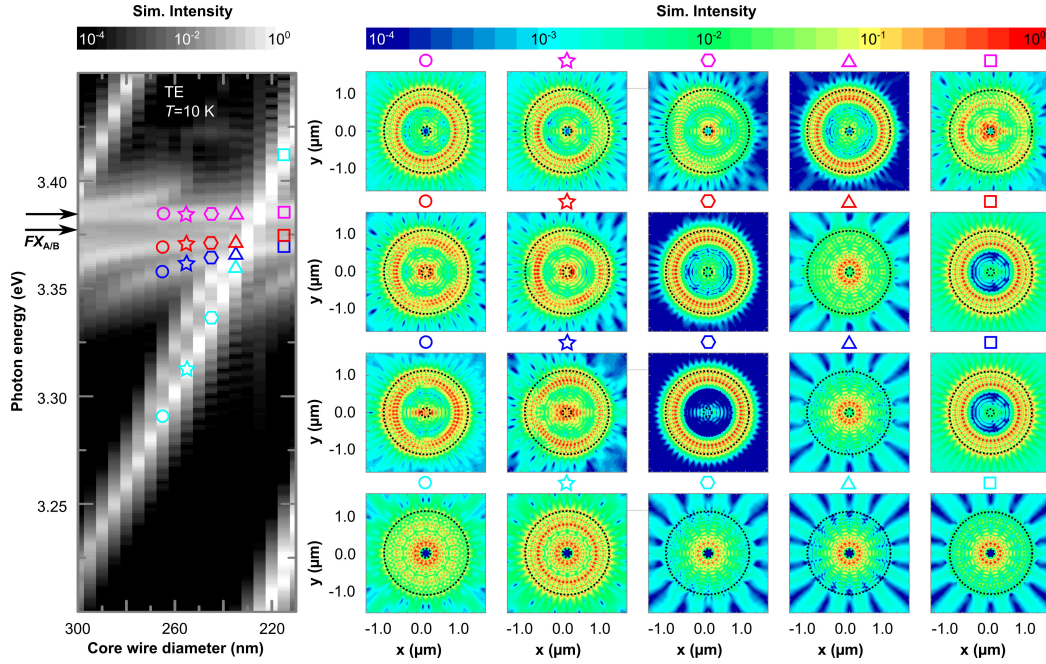


Abbildung 5.1.: Aus FDTD-Simulationen gewonnene Eigenmoden eines ZnO-Mikrodrahts mit Bragg-Beschichtung. (a): Durchmesserabhängige Modendispersion. (b): Räumliche Intensitätsverteilungen verschiedener Moden. Die entsprechende Modenenergie und Drahtdicken sind mit dem jeweiligen Symbol in (a) markiert. Die Umrisse des ZnO-Nanodrahts und des umgebenden Bragg-Spiegels sind jeweils schwarz markiert.

Grund müssen lange Simulationslaufzeiten verwendet werden. Um den so entstehenden Rechenaufwand in einem handhabbaren Rahmen zu halten, simulieren wir lediglich den zweidimensionalen Querschnitt der Kavität. Dies ist möglich, weil sich der interessante Parameterbereich bei geringen Werten des entlang des Drahts verlaufenden Wellenvektors  $k_z$  befindet und im Experiment lange Drähte verwendet werden, bei denen der Einfluss der Endfacetten gering ist. Dadurch ist eine Bestimmung der  $k_z$ -abhängigen Modenenergie nicht mehr möglich. Um trotzdem Zugang zur von der Verstimmung zwischen der Kavitätsmode und der exzitonischen Mode bestimmten Dispersion der Modenenergie zu erhalten, variieren wir die Dicke des Nanodrahts in einem Bereich von  $d = 210$  nm bis  $d = 300$  nm.

### 5.1.2. Diskussion der Ergebnisse

Abbildung 5.1(a) zeigt die so gewonnene durchmesserabhängige und spektral aufgelöste Intensität im Inneren der Kavität nach Anregung mit senkrecht zur Drahtachse polarisiertem Licht. In den simulierten Spektren erkennt man deutlich einige Moden mit unterschiedlicher Dispersion der Modenenergie  $E(d)$ . In Abbildung 5.1(b) wird außerdem die Feldverteilung einiger ausgewählter Moden bei unterschiedlicher Dicke gezeigt. Die zugehörigen Datenpunkte  $(d, E)$  sind in 5.1(a) mit entsprechenden Symbolen mar-

kiert. Die hellste Mode mit einer Energie von  $E = 3.21$  eV bei einem Durchmesser von  $d = 300$  nm, kreuzt deutlich erkennbar die exzitonischen Resonanzen für das Valenzband  $A$  bei  $FX_A = 3.376$  eV (Free Exciton  $A$ ) und für das Valenzband  $B$  bei  $FX_B = 3.385$  eV (Free Exciton  $B$ ). Aus den zugehörigen Intensitätsprofilen erkennt man deutlich, dass sich die Intensität der Mode hauptsächlich im Inneren des Bragg-Spiegels befindet und keinen relevanten Überlapp mit dem Nanodraht aufweist. Dies führt zu einer vernachlässigbaren Kopplung der optischen und der exzitonischen Mode und erklärt das Kreuzen der beiden Moden. Im Gegensatz dazu existieren aber auch Moden, die ein deutliches Anti-Crossing in der Nähe der exzitonischen Resonanzen  $A$  und  $B$  aufweisen. Diese sind mit roten und blauen Symbolen in 5.1 markiert. Im Gegensatz zu den schwach gekoppelten Moden haben diese Moden stets einen deutlichen Überlapp mit dem Halbleitermaterial im Inneren der Kavität. Die Moden koppeln also stark an die Materialresonanzen, so dass die Eigenenergien deutlich modifiziert werden und sich polaritonische Zweige herausbilden.

Des Weiteren beobachtet man eine Mode mit extrem schwacher Dispersion, die sich etwa bei einer Energie von  $E = 3.38$  eV befindet. Diese weist ebenfalls einen deutlichen Überlapp mit dem ZnO-Draht im Kern auf und lässt sich als mittlerer polaritonischer Zweig zwischen den ursprünglichen exzitonischen Resonanzen  $A$  und  $B$  interpretieren.

An den Feldverteilungen und der dickenabhängigen Dispersion erkennt man deutlich, dass die resonanten Moden nicht eindeutig als Whispering-Gallery oder als Fabry-Pérot klassifizierbar sind. Alle Moden haben mehrere Knoten in azimuthaler, aber auch in radialer Richtung. Die Intensität ist nicht ausschließlich im Inneren der Kavität, sondern auch in den konzentrischen Bragg-Spiegeln lokalisiert. Das wichtigste Kriterium zur Unterscheidung der Moden, welches auch über die Existenz der starken Kopplung und die Ausbildung polaritonischer Eigenzustände entscheidet, ist das Vorhandensein eines Überlapps mit dem Halbleiterdraht im Inneren der Kavität.

## 5.2. Ausblick: Effiziente Simulation polaritonischer Effekte mit Ortsauflösung

Der Versuch polaritonische Effekte weitergehend zu erforschen und diese auch praktisch nutzbar zu machen führt zur Verwendung alternativer Resonatortypen, die sich in ihrer Geometrie und ihrer Modenstruktur zunehmend von planaren Mikroresonatoren unterscheiden. Wie man am Beispiel des im letzten Abschnitt betrachteten Resonators sehen kann, können in diesen mehrere optische Moden mit mehreren exzitonischen Resonanzen koppeln, was zu einer komplizierten Struktur aus Polaritonenzweigen führt. Nichtlineare Wechselwirkungen wie Sättigung, Exziton-Exziton- und Exziton-Phonon-Wechselwirkung führen dann nicht nur zu einer Kopplung von Zuständen innerhalb einzelner Polaritonenzweige, sondern auch zwischen den unterschiedlichen polaritonischen Moden.

Das Verständnis all dieser Effekte erfordert räumlich aufgelöste und dynamische Modelle. Die einfachste Modellierung dieser Art basiert auf der Groß-Pitaevskii-Gleichung. Diese Modelle machen sich zu Nutze, dass sich der untere Polaritonenzweig im Bereich kleiner Wellenvektoren weiterhin gut durch eine Schrödinger-artige parabolische Disper-

## 5. Halbleiter-Nanodrähte als polaritonische Resonatoren

sionsrelation beschreiben lässt. Transformiert man diese zurück in den Zeit- und Ortsbereich und führt einen phänomenologischen nichtlinearen Term ein, erhält man eine Bewegungsgleichung, die der nichtlinearen Schrödingergleichung aus der nichtlinearen Optik entspricht und für die es zahlreiche analytische Methoden und numerische Lösungsverfahren gibt. Prinzipiell eignet sich dieses Modell aber offenbar nur für die Beschreibung der Propagation innerhalb eines einzelnen parabolischen Polaritonenzweigs in einer einfachen Kavität mit schwacher räumlicher Modulation. Ein weiteres Modell[103, 104] beschreibt das System nicht in der Eigenbasis polaritonischer Amplituden, sondern in der Basis des elektrischen Feldes und der Polarisation. Beide Polaritonenzweige bilden sich dann als Eigenmoden des Systems heraus anstatt bereits als Annahme in das Modell einzugehen. Dieses Modell berücksichtigt zwar automatisch den oberen und unteren Polaritonenzweig, beschreibt aber nach wie vor nur die Kopplung einer einzelnen optischen Mode an ein einzelnes Exziton. Die Nichtlinearität wird auch hier phänomenologisch eingeführt.

Für eine noch detailliertere Beschreibung ist ein mikroskopisches Modell des Halbleiters ähnlich wie in den Halbleiter-Bloch-Gleichungen in Kapitel 3.1 notwendig. Durch die Hinzunahme höherer Korrelationen und die zusätzliche Berücksichtigung eines Wechselwirkungsterms mit Phononen lassen sich rein formal Bewegungsgleichungen für das komplette System einschließlich der Exziton-Exziton und Exziton-Phonon-Wechselwirkung ableiten. Praktisch ist dieses Modell aber bereits ohne eine räumliche Auflösung nicht mehr handhabbar. Eine Vereinfachung stellt sich ein, wenn man statt der Elektron-Loch-Basis bereits eine Basis aus exzitonischen Zuständen wählt. Anstatt von Zweierpaaren aus elektronischen Operatoren erhält man dann lediglich einen einzelnen exzitonischen Operator. Dieser Ansatz wurde von Rochat et al.[105] zur Ableitung exzitonischer Bloch-Gleichungen verwendet, welche die Wechselwirkung von Licht mit  $1s$ -Exzitonen einschließlich der durch die Exziton-Exziton-Streuung hervorgerufenen anregungsabhängigen Blauverschiebung der exzitonischen Resonanz beschreiben. Die Exziton-Phonon-Wechselwirkung wird aber auch in diesem Modell nicht berücksichtigt.

Im Folgenden soll daher die Wechselwirkung von Exzitonen mit akustischen Phononen beschrieben und ein quasiklassisches und numerisch handhabbares Modell vorgestellt werden. Dabei werden die elektronischen Anregungen weiterhin in einer exzitonischen Basis behandelt und ausschließlich das  $1s$ -Exziton betrachtet. Dies erlaubt eine spätere Ankopplung an das restliche System, welches beispielsweise durch die schon angesprochenen exzitonischen Bloch-Gleichungen beschrieben werden kann. Die Überprüfung der Anwendbarkeit des Modells ist aktuell Gegenstand einer Masterarbeit.

### 5.2.1. Kopplung an akustische Phononen

Da eine Behandlung der Exziton-Phonon-Wechselwirkung in der Basis von Elektronen und Löchern einen nicht handhabbaren numerischen Aufwand darstellt, betrachten wir lediglich die Wechselwirkung mit  $1s$ -Exzitonen, so dass eine Beschreibung der inneren Freiheitsgrade entfällt. Wir betrachten Exzitonen mit den Erzeuger und Vernichterooperatoren  $\psi_{\vec{k}}^{\dagger}$  und  $\psi_{\vec{k}}$ . Zur Vereinfachung werden die Exzitonen als komplett bosonisch angenommen, das heißt für die Erzeuger- und Vernichterooperatoren gilt die Kommuta-

## 5. Halbleiter-Nanodrähte als polaritonische Resonatoren

torrelation

$$[\psi_{\vec{k}}, \psi_{\vec{k}'}^\dagger] = \delta_{\vec{k}, \vec{k}'} \quad (5.2)$$

Als Teilchen der Masse  $M$  haben sie eine parabolische Dispersionsrelation. Hinzu kommt die konstante Energie  $\hbar\omega_{exc}$  der Exzitonen bei  $\vec{k} = 0$ . Der Operator der Eigenenergie ist also

$$\mathbf{H}_{exc} = \sum_{\vec{k}} \psi_{\vec{k}}^\dagger \left( \frac{\hbar^2 |\vec{k}|^2}{2M} + \hbar\omega_{exc} \right) \psi_{\vec{k}} \quad (5.3)$$

Im Ortsraum entspricht dies

$$\mathbf{H}_{exc} = \iiint_V \phi^\dagger(\vec{r}) \left( -\frac{\hbar^2}{2M} \Delta + \hbar\omega_{exc} \right) \phi(\vec{r}) d\vec{r}. \quad (5.4)$$

Das Integral wird über das Quantisierungsvolumen  $V = L^3$  berechnet. Dabei ist

$$\phi(\vec{r}) = \frac{1}{L^{\frac{3}{2}}} \sum_{\vec{k}} \psi_{\vec{k}} e^{i\vec{k}\vec{r}} = \mathcal{F}^{-1} \{ \psi_{\vec{k}} \} \quad (5.5)$$

der räumlich aufgelöste Vernichtoperator für Exzitonen.

Akustische Phononen sollen durch die Erzeuger- und Vernichtoperatoren  $\mathbf{u}_{\vec{q}}^\dagger$  und  $\mathbf{u}_{\vec{q}}$  beschrieben werden, die ebenfalls bosonische Vertauschungsrelationen erfüllen. Ihre Eigenenergie ist durch die Dispersionsrelation

$$\omega_{\vec{q}} = v_{ph} |\vec{q}| \quad (5.6)$$

gegeben als

$$\mathbf{H}_{ph} = \hbar v_{ph} \sum_{\vec{q}} |\vec{q}| \mathbf{u}_{\vec{q}}^\dagger \mathbf{u}_{\vec{q}}. \quad (5.7)$$

Die ortsaufgelöste Deformation des Gitters lässt sich analog zur Quantisierung des harmonischen Oszillators

$$\vec{w}(\vec{r}) = \sum_{\vec{q}} \sqrt{\frac{\hbar}{2m\omega_{\vec{q}}}} \vec{e}_{\vec{q}} \left( \mathbf{u}_{\vec{q}} e^{i\vec{q}\vec{r}} + \mathbf{u}_{\vec{q}}^\dagger e^{-i\vec{q}\vec{r}} \right) \quad (5.8)$$

aus den Erzeuger- und Vernichtoperatoren gewinnen, wobei  $m = \rho V$  die Masse des gesamten Quantisierungsvolumens ist. Mit  $\vec{e}_{\vec{q}} = \frac{\vec{q}}{|\vec{q}|}$  und der Dispersionsrelation der Phononen 5.6 entspricht dies

$$\vec{w}(\vec{r}) = \sum_{\vec{q}} \sqrt{\frac{\hbar}{2mv}} \frac{\vec{q}}{|\vec{q}|^{\frac{3}{2}}} \left( \mathbf{u}_{\vec{q}} e^{i\vec{q}\vec{r}} + \mathbf{u}_{\vec{q}}^\dagger e^{-i\vec{q}\vec{r}} \right). \quad (5.9)$$

Die Wechselwirkung mit Gitterschwingungen erfolgt über ein Deformationspotential.[69] Klassisch und im Ortsraum hat dieses die Form

$$H_{ww} = -\alpha_0 \iiint_V \rho(\vec{r}) \nabla \vec{w}(\vec{r}) d\vec{r}. \quad (5.10)$$

## 5. Halbleiter-Nanodrähte als polaritonische Resonatoren

Dabei ist  $\rho(\vec{r})$  die räumliche Exzitonendichte und  $\alpha_0$  die Koppelkonstante für das Deformationspotential. Quantenmechanisch erhält man den Hamiltonoperator

$$\mathbf{H}_{ww} = -\alpha_0 \iiint_V \phi^\dagger(\vec{r}) \phi(\vec{r}) \nabla \vec{w}(\vec{r}) d\vec{r}. \quad (5.11)$$

Der Wechselwirkungsoperator im Impulsraum kann jetzt durch Einsetzen des Auslenkungsoperators 5.9 und der Fourierdarstellung der exzitonischen Operatoren 5.5 gebildet werden. Man erhält einen Wechselwirkungsoperator analog zu Gleichung 3.42 aus Abschnitt 3.1.4

$$\mathbf{H}_{ww} = -i\alpha_0 \sqrt{\frac{\hbar}{2mv}} \sum_{\vec{k}, \vec{q}} \sqrt{|\vec{q}|} \left( \mathbf{u}_{\vec{q}} \psi_{\vec{k}}^\dagger \psi_{\vec{k}-\vec{q}} - \mathbf{u}_{\vec{q}}^\dagger \psi_{\vec{k}}^\dagger \psi_{\vec{k}+\vec{q}} \right). \quad (5.12)$$

Der komplette Hamiltonian des Systems ist dann

$$\mathbf{H} = \mathbf{H}_{exc} + \mathbf{H}_{ph} + \mathbf{H}_{ww} \quad (5.13)$$

Für die Kopplung an das optische Feld und eine räumliche Auflösung komplizierter Resonatorgeometrien ist es wünschenswert, zumindest die exzitonische Bewegungsgleichung im Ortsraum zu lösen. So erhält man

$$\begin{aligned} \left. \frac{d}{dt} \right|_{ww} \phi(\vec{r}) &= -\frac{i}{\hbar} [\phi, \mathbf{H}_{ww}] \\ &= i \frac{\alpha_0}{\hbar} \phi \nabla \vec{w}(\vec{r}). \end{aligned} \quad (5.14)$$

Versucht man nun direkt, eine formale Bewegungsgleichung für  $\vec{w}(\vec{r})$  zu finden, enthält diese eine numerisch aufwändige Faltungssumme. Als einen ersten alternativen Ansatz kann man die Bewegungsgleichung der Phononen im Impulsraum lösen und die Kopplung als Ausdruck der Phononenamplitude  $\mathbf{u}(\vec{q})$  schreiben. Dann erhält man

$$\left. \frac{d}{dt} \right|_{ww} \phi(\vec{r}) = -\phi(\vec{r}) \frac{\alpha_0}{\hbar} \sqrt{\frac{\hbar}{2\rho v_{ph}}} \mathcal{F}^{-1} \left\{ \sqrt{|\vec{q}|} \mathbf{u}_{\vec{q}} - c.c. \right\} \quad (5.15)$$

als Wechselwirkungsanteil an der Evolutionsgleichung für die Exzitonen.

Für die Phononen erhält man dann den Wechselwirkungsterm

$$\begin{aligned} \left. \frac{d}{dt} \right|_{ww} \mathbf{u}_{\vec{q}} &= -\frac{i}{\hbar} [\mathbf{u}_{\vec{q}}, \mathbf{H}_{ww}] \\ &= \frac{\alpha_0}{\hbar} \sqrt{\frac{\hbar}{2mv_p}} \sqrt{|\vec{q}|} \sum_{\vec{k}} \psi_{\vec{k}} \psi_{\vec{k}-\vec{q}}^\dagger \\ &= \frac{\alpha_0}{\hbar} \sqrt{\frac{\hbar}{2\rho v_{ph}}} \sqrt{|\vec{q}|} \mathcal{F} \left\{ \phi^\dagger(\vec{r}) \phi(\vec{r}) \right\}. \end{aligned} \quad (5.16)$$

## 5. Halbleiter-Nanodrähte als polaritonische Resonatoren

Die vollen Bewegungsgleichungen lauten dann

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \mathbf{u}_{\vec{q}} &= -iv_{ph} |\vec{q}| \mathbf{u}_{\vec{q}} \\ &+ \frac{\alpha_0}{\hbar} \sqrt{\frac{\hbar}{2\rho v_{ph}}} \sqrt{|\vec{q}|} \mathcal{F} \left\{ \phi^\dagger(\vec{r}) \phi(\vec{r}) \right\} \end{aligned} \quad (5.17)$$

und

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \phi(\vec{r}) &= -i\omega_{exc} \phi(\vec{r}) + \frac{i\hbar}{2M} \Delta \phi(\vec{r}) \\ &- \phi(\vec{r}) \frac{\alpha_0}{\hbar} \sqrt{\frac{\hbar}{2\rho v_{ph}}} \mathcal{F}^{-1} \left\{ \sqrt{|\vec{q}|} \mathbf{u}_{\vec{q}} - c.c. \right\}. \end{aligned} \quad (5.18)$$

Auch wenn die beiden benötigten Fouriertransformationen mit dem FFT-Algorithmus relativ effizient berechnet werden können, wäre eine rein lokale Beschreibung des Systems nach wie vor wünschenswerter. Dies ist möglich, wenn man zur Beschreibung anstatt der Phononenamplitude  $\vec{w}$  oder dem Vernichtoperator  $u$  die Deformation  $p = \nabla \vec{w}$  verwendet. Da diese in Abwesenheit der Wechselwirkung einer Wellengleichung gehorchen sollte, suchen wir nach einem Ausdruck für  $\left(\frac{\partial}{\partial t}\right)^2 p$ . Dieser kann mit der Definition 5.9 und einer Rücktransformation in den Ortsraum aus Gleichung 5.17 gewonnen werden. Wir erhalten so die Bewegungsgleichungen

$$\left(\frac{d}{dt}\right)^2 p(\vec{r}) = v^2 \Delta p(\vec{r}) - \frac{\alpha_0}{\rho} \Delta |\phi(\vec{r})|^2 \quad (5.19)$$

$$\frac{d}{dt} \phi(\vec{r}) = -i\omega_{exc} \phi(\vec{r}) + \frac{i\hbar}{2M} \Delta \phi(\vec{r}) + i \frac{\alpha_0}{\hbar} \phi(\vec{r}) p(\vec{r}). \quad (5.20)$$

Diese Bewegungsgleichungen sind rein lokal und erlauben somit eine effiziente Lösung im Ortsraum ohne die Verwendung von Fouriertransformationen.

### 5.2.2. Demonstration am eindimensionalen Testsystem

Um die Anwendbarkeit des Modells zu testen, sollen hier erste Simulationen anhand eines einfachen Testsystems vorgestellt werden. Um den numerischen Aufwand gering und das System intuitiv verständlich zu halten, betrachten wir die Propagation in nur einer Raumrichtung. Dazu werden die Felder in den beiden anderen Raumrichtungen als unendlich ausgedehnt und homogen betrachtet. Wir verwenden ein System der Länge  $L = 500 \text{ nm}$  mit periodischen Randbedingungen und wählen eine räumliche Diskretisierung  $\Delta r = 0.4 \text{ nm}$  in der Größenordnung der Gitterkonstanten relevanter Halbleitermaterialien. Wir wählen eine Startverteilung der Exzitonen, die bei dem Wellenvektor  $k_0 = 1.5 \frac{1}{\text{nm}}$  zentriert ist, so dass eine Relaxation zu niedrigeren  $k$ -Werten beobachtet werden kann. Die Phononen werden mit einer Bose-Einstein-Verteilung um  $T_0 = 5K$  initialisiert. Abbildung 5.2(a) zeigt die Evolution der exzitonischen Besetzung im Wellenvektorraum. Wie bereits in Abschnitt 3.1.4 für Elektronen angesprochen, können Exzitonen durch Emission von Phononen zu anderen Zuständen springen. Dabei müssen die

## 5. Halbleiter-Nanodrähte als polaritonische Resonatoren

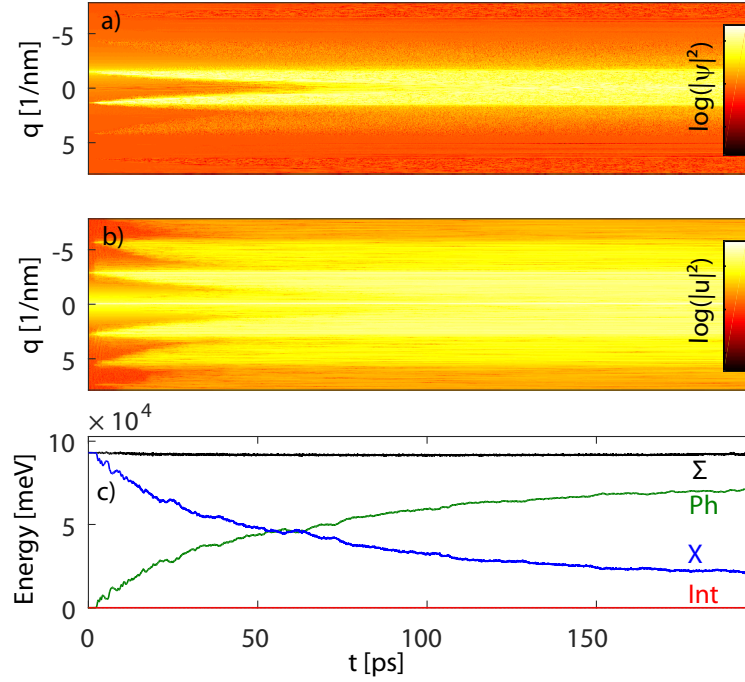


Abbildung 5.2.: Simulation der Wechselwirkung von Exzitonen mit akustischen Phononen in einem eindimensionalen Testsystem der Länge  $L = 500$  nm mit periodischen Randbedingungen. Als Startverteilung wurde eine um  $k_0 = 1.5 \frac{1}{\text{nm}}$  zentrierte Verteilung für die Exzitonen und eine Bose-Einstein-Verteilung für  $T = 5K$  für die Phononen eingesetzt. (a) Exzitonische Besetzungszahl im  $k$ -Raum. (b) Phononische Besetzungszahl im  $k$ -Raum, (c) Systemenergie für Exzitonen (blau), Phononen (grün), Wechselwirkung (rot) und das Gesamtsystem (schwarz).

Gesamtenergie und der Gesamtimpuls des Systems erhalten bleiben. Da die Phononen im Vergleich zu den Exzitonen ( $M = 0.8m_e$ ) sehr schwach dispersiv sind ( $v_{ph} = 4.4 \frac{\text{nm}}{\text{ps}}$ ), erfolgen die Sprünge hauptsächlich zu Zuständen mit umgekehrtem Vorzeichen von  $k$  mit nur geringfügig veränderten Absolutwert und nur leicht verringerter Energie. Dabei werden Phononen hauptsächlich mit einem Wellenvektor von  $\approx 2 \times k_0$  emittiert (Abbildung 5.2(b)). Durch schrittweise Relaxation zwischen positiven und negativen Wellenvektoren bildet sich schließlich ein Gleichgewichtszustand heraus, der bei  $k = 0$  zentriert ist. Wie in Abbildung 5.2(c) zu erkennen ist, wird bei diesem Relaxationsvorgang Energie vom exzitonischen an das phononische Teilsystem abgegeben, die Gesamtenergie des Systems bleibt jedoch erhalten.

### 5.3. Schlussbemerkungen zu polaritonischen Systemen

In diesem Kapitel wurden Halbleiterdrähte in Hinblick auf ihre Nutzung als polaritonische Resonatoren untersucht. Es wurden die Eigenmoden experimentell verwendeter Mikrodrahtresonatoren aus mit Bragg-Spiegeln beschichteten ZnO-Drähten bestimmt. Dabei findet man sowohl im Inneren des ZnO-Drahts lokalisierte Moden, die an die exzitonischen Resonanzen koppeln und somit für polaritonische Anwendungen relevant sind, als auch Whispering-Gallery-Moden, welche in den Bragg-Schichten lokalisiert sind und daher keine signifikante Wechselwirkung mit dem Halbleitermaterial aufweisen. Zum Verständnis der Wechselwirkung der unterschiedlichen polaritonischen und photonischen Moden sind räumlich aufgelöste dynamische Modelle wünschenswert. Solche Modelle existieren bereits auf verschiedenen Abstraktionsebenen, beziehen aber nur die Exziton-Exziton-Wechselwirkung ein. Daher wurde in diesem Kapitel ein semiklassisches Modell zur räumlich aufgelösten Untersuchung der Exziton-Phonon-Wechselwirkung vorgestellt. Zur Beschreibung des Systems ist lediglich die Lösung einer Schrödingergleichung für die Exzitonen und einer Wellengleichung für die Phononen erforderlich, welche durch lokale nichtlineare Terme gekoppelt sind und so Energie austauschen können. Die Funktionsweise des Systems wurde an einem einfachen eindimensionalen Testsystem demonstriert, in dem die Relaxation von Exzitonen durch Emission akustischer Phononen beobachtet werden konnte. Das System bietet interessante Perspektiven gerade für die Nanodrahtforschung, da es die Beschreibung räumlich strukturierter Medien sowohl für die Exzitonen als auch für die Phononen und die Kopplung an existierende räumlich aufgelöste Modelle für die Lichtausbreitung erlaubt. So könnten Nanodrahtresonatoren mit einer komplizierten räumlichen und modalen Struktur modelliert werden. Gleichzeitig wird die Exziton-Phonon-Streuung realistischer beschrieben als bei bereits existierenden räumlich aufgelösten Modellen. Somit bieten sich viele interessante Möglichkeiten für die weitere Forschung. Wichtige Themen sind hier die Erweiterung des Simulationscodes auf zwei- oder dreidimensionale Systeme, die Einbindung existierender Modelle für die Exziton-Exziton-Streuung und vor allem die Kopplung an das optische System. Letztere könnte mit unterschiedlichem numerischem Aufwand entweder durch die Verwendung effektiver Gleichungen für die relevanten Kavitätsmoden oder auch durch die Anbindung an einen FDTD-Code erfolgen.



# 6. Musterbildung bei der Photoionisierung amorpher Festkörper

## 6.1. Einleitung

Nachdem wir uns in Kapitel 4 und 5 dieser Arbeit mit der Licht-Materie-Wechselwirkung im Halbleiter beschäftigt haben, betrachten wir nun die stark nichtlineare Wechselwirkung von intensiven optischen Anregungen mit dielektrischen Materialien. Bei hinreichend starken Anregungen tritt auch hier eine Vielzahl von nichtlinearen Phänomenen auf, die hauptsächlich auf dem Wechselspiel der linearen Beugung und Dispersion, der fokussierenden Kerr-Nichtlinearität und der defokussierend wirkenden Wechselwirkung mit dem durch den Puls erzeugten Plasma beruhen. In diesem Zusammenhang wurden bereits Phänomene wie nichtlineare Pulsausbreitung[106, 107], Solitonenbildung und Filamentierung untersucht[108]. Auch einige der im Extremfall aus der Absorption des Lichtpulses erfolgenden Materialmodifikationen wurden bereits theoretisch untersucht und es existieren bereits umfangreiche Modelle für die Erzeugung von Mikrokavitäten[73, 74, 109, 110].

All diese Phänomene beruhen ausschließlich auf der Wechselwirkung eines Lichtpulses mit sich selbst und lassen sich durch die nichtlineare Lichtausbreitung in einem homogenen Medium beschreiben. Daher bietet sich hier auch die Verwendung vereinfachter Modelle wie der nichtlinearen Schrödingergleichung an[111, 112]. Eine weitere interessante Klasse von Phänomenen ergibt sich jedoch, wenn man stattdessen auch die Wechselwirkung mit einem inhomogenen Medium betrachtet. Dies ist vor allem interessant, wenn zufällig verteilte Inhomogenitäten auftreten, die als Streuzentren dienen und eine breite Verteilung von räumlichen Strukturperioden in das System einbringen. In diesem Fall kann es in nichtlinearen Systemen zur Selbstorganisation und Musterbildung kommen[113, 114, 115, 116]. In Gläsern ist dieser Fall auch praktisch relevant, da diese aufgrund ihrer chemischen Struktur als amorphe Festkörper auf der Nanometerebene inhärent inhomogen sind[117, 118]. Tatsächlich wurde die Selbstorganisation periodischer Strukturen bei der Wechselwirkung intensiver Lichtpulse mit verschiedenen Gläsern bereits experimentell anhand der dadurch hervorgerufenen periodischen Materialmodifikation nachgewiesen[41, 40, 45, 119, 42]. Der genaue Mechanismus dieses Selbstorganisationsphänomens konnte jedoch trotz der Existenz mehrerer sehr unterschiedlicher Erklärungsansätze[39, 48, 40] nicht identifiziert werden. In dieser Arbeit wurde daher die Wechselwirkung von Licht mit zufällig verteilten Inhomogenitäten untersucht. Dabei konnte die Bildung selbstorganisierter Plasmastrukturen simuliert werden[120, 121], die bereits einige der wichtigsten Eigenschaften der experimentell beobachteten Nanostrukturen aufweisen.

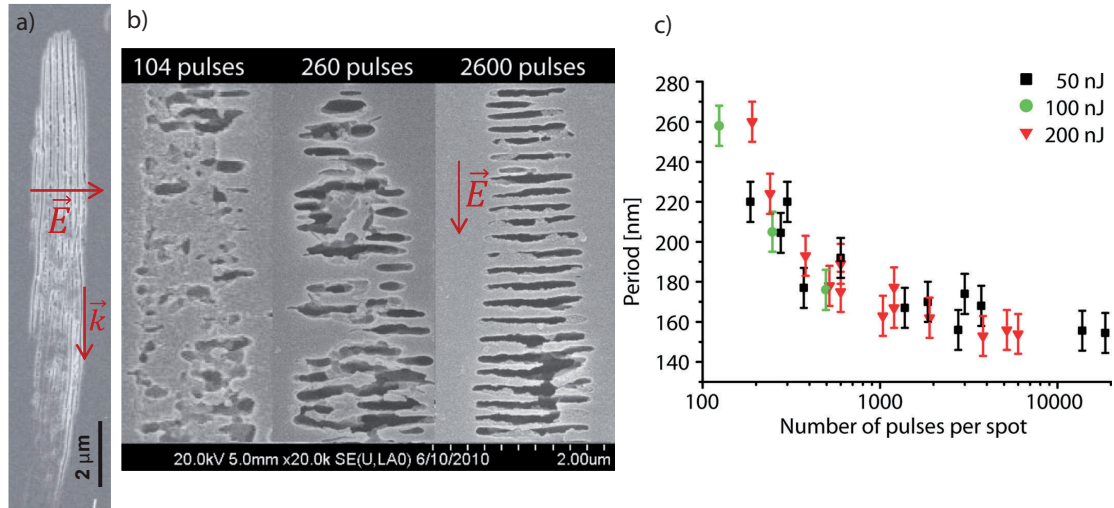


Abbildung 6.1.: Experimentelle Nanogitterstrukturen in Quarzglas. (a) SEM-Aufnahme einer Nanogitterstruktur aus [43]. (b) Fortsetzen der Nanogitter durch Verfahren des Fokuspunkts und Ausbildung von Nanogittern für verschiedene Pulszahlen. (c) Abhängigkeit der Gitterperiode von der Pulszahl für eine Wellenlänge von  $\lambda = 515 \text{ nm}$  und verschiedene Pulsenergien. Die Abbildungen (b,c) wurden aus [126] entnommen.

### 6.1.1. Experimente zu Nanogittern in Glas

Während sich mit niedrigen Laserpulsenergien Wellenleiter durch eine isotrope Veränderung des Brechungsindex erzeugen lassen, können mit intensiven Laserpulsen Löcher mit einem Durchmesser mehrerer hundert Nanometer erzeugt werden. 1999 wurde von Kazansky et al. ein weiteres Regime der Materialmodifikation bei mittleren Pulsenergien in Ge-dotiertem Glas nachgewiesen, bei dem eine doppelbrechende Struktur erzeugt wird [122]. Ein ähnlicher Effekt wurde auch von Sudrie et al. in Quarzglas beobachtet [123], welches seit der Entdeckung des Effekts das wichtigste Material zur Erzeugung und Nutzung von Nanogittern geblieben ist. Erst später wurde der Effekt auch in anderen Materialien wie Kristallen [49] und verschiedenen Gläsern [124, 125] untersucht.

Shimotsuma et al. konnten dann mit Hilfe von BEI (Backscattered Electron Imaging) zeigen, dass es sich bei den doppelbrechenden Strukturen um periodische planare Nanogitter handelt [40], die aus dem ursprünglichen Fokusbereich herauswachsen können (Abbildung 6.1(a)). Dabei wurden Regionen mit erhöhtem Sauerstoffgehalt und entsprechend verringerter Dichte beobachtet. Diese Beobachtung wurde später von Hnatovsky et al. bestätigt [127]. Dabei war zunächst unklar, ob es sich bei den Ebenen der Struktur um planare Nanorisse oder lediglich um eine stark modifizierte Materialregion handelt. FEG-SEM Untersuchungen von Lancry et al. zeigen, dass die Ebenen der Nanogitter aus porösem Silizium mit einer Porengröße von 10 nm - 30 nm bestehen [82]. Diese strukturellen Untersuchungen wurden später noch durch Röntgenstreuexperimente ergänzt, die zwei verschiedene Populationen aus kleineren Poren ( $30 \times 25 \times 75 \text{ nm}^3$ ) und ausgedehnte-

## 6. Musterbildung bei der Photoionisierung amorpher Festkörper

ren Rissen ( $280 \times 25 \times 380$ ) nm<sup>3</sup> innerhalb der Gitterebenen identifizieren konnten[128].

Weitere experimentelle Untersuchungen haben gezeigt, dass die Nanogitter stets senkrecht zur Anregungspolarisation ausgerichtet sind, während die Periode und damit die Stärke der Doppelbrechung über die Anzahl der Laserpulse[43, 45, 129, 130] oder die Dotierung des Materials[131, 132] beeinflusst werden kann. Es zeigt sich, dass sich die Nanogitter erst über die kumulative Wirkung vieler Laserpulse ausbilden. Dabei wurde zunächst die Bildung von Nanostrukturen ohne klare Periodizität beobachtet (Abbildung 6.1(b))[85]. Voll ausgeprägte Nanogitter erreichen dann eine Periode von meist  $\lambda/2n$ , für geringe Pulszahlen wurden allerdings auch Perioden von  $\lambda/n$  beobachtet[133]. Die initiale Periode verringert sich bei der Bestrahlung mit weiteren Pulsen noch signifikant (Abbildung 6.1(c))[85, 45, 134]. In Borofloat-Glas wurde sogar eine Periode von nur 60 nm bei einer Anregung mit  $\lambda = 800$  nm erreicht[125].

Verfährt man den Fokus durchs Material, können die Gitterstrukturen über makroskopische Größenordnungen fortgesetzt werden (Abbildung 6.1(b)). Dies funktioniert sowohl bei einer Verfahrerrichtung entlang der Nanoebenen als auch senkrecht dazu [42]. Nachdem die Bildung von Nanogittern zunächst nur bei linear polarisiertem Licht beobachtet wurde, gelang es Hnatovsky et al. 2011 zu zeigen, dass auch kompliziertere Polarisationszustände in Glas geschrieben werden können [119]. Auch hier bilden sich Nanoebenen senkrecht zur lokalen Polarisation des Lichts und es können stern- oder spiralförmige Strukturen geschrieben werden. Da die Ausrichtung der Nanogitter offenbar nur von der lokalen Polarisation der Anregung abhängt und die Gitter in beliebige Richtung fortgesetzt werden können, ist die Herstellung nahezu beliebiger doppelbrechender Strukturen möglich. So kann eine Vielzahl photonischer Funktionalitäten bereitgestellt werden. Dazu zählen Wellenplatten zur Erzeugung fast beliebiger Polarisationszustände[44, 45] mit Anwendungen in der Mikroskopie[47] und computergenerierte Hologramme[46]. Da die Nanogitter durch weitere Bestrahlung mit einer anderen Polarisation auch nachträglich überschrieben werden können, wurden auch Anwendungen als Bits für die dreidimensionale Datenspeicherung vorgeschlagen[43]. Durch selektives Ätzen des porösen Materials in den Gitterebenen können zudem nanofluidische Bauelemente hergestellt werden[43].

### 6.1.2. Bisherige Erklärungsansätze

Die existierenden Erklärungsansätze zur Nanogitterbildung lassen sich grob in zwei Klassen einteilen. Zum Einen existieren verschiedene Theorien, die auf räumlichen Dispersionseffekten beruhen[40, 48]. Räumliche Dispersion tritt auf, sobald ein Material eigenständig propagierende Wellen unterstützt, die an das optische Feld koppeln können. Dazu zählen beispielsweise Elektronenschallwellen in heißen Plasmen, die durch ein Drude-Modell mit einem zusätzlichen räumlichen Term für den Druck des Elektronengases beschrieben werden können[135] oder auch Exziton-Polaritonen[96, 97], sobald die Schwerpunktsbewegung der Exzitonen relevant wird. Die Nanogitterbildung könnte dann als ein Interferenzmuster bei der Überlagerung der elektromagnetischen Welle mit einer propagierenden Materialanregung gleicher Frequenz aber anderer Wellenlänge erklärt werden. Obwohl die Streuung an Inhomogenitäten bei diesen Theorien keine explizite Rolle spielt, wären diese auch hier notwendig um als Ausgangspunkt der Materialwellen zu fungieren,

## 6. Musterbildung bei der Photoionisierung amorpher Festkörper

die ohne eine Brechung der Translationsinvarianz nicht angeregt werden können. Eine Schwachstelle dieser Ansätze ist, dass sie eine starke Abhängigkeit des Interferenzmusters von der Anregungsdichte vorhersagen. Diese variiert jedoch räumlich und zeitlich stark. Die Nanogitter hingegen behalten ihre Periode selbst weit außerhalb des eigentlichen Fokusbereichs unverändert bei[43].

Andere, „nanoplasmonische“ Erklärungsansätze beruhen auf einer rein lokalen Wechselwirkung mit dem Material. Dabei geht man davon aus, dass sich an bereits existierenden Inhomogenitäten Nanoplasmen bilden, welche dann durch Streuphänomene über das optische Feld miteinander wechselwirken. Da die Feldüberhöhung bei einem schwach ionisierten Nanoplasma an dessen Äquator senkrecht zur anregenden elektrischen Feldrichtung liegt, könnten sich auf diese Weise langsam oblate Nanoplasmen bilden, die nach mehreren Bestrahlungsvorgängen zu ausgedehnten Gitterflächen heranwachsen könnten[39]. Ein ähnlicher Ansatz zieht die Anregung von Oberflächenplasmonen an der Grenzfläche des ionisierten Bereichs im Laserfokus in Betracht[49, 50]. In diesem Fall könnte die Bildung von Volumengittern in Analogie zur Bildung von Oberflächengittern[136, 137] verstanden werden.

Die Fülle der vorhandenen Erklärungsansätze zeigt, dass einfache Modelle und Annahmen zwar eine Vielzahl sehr verschiedener Ideen liefern, aber deren Verantwortlichkeit für die Gitterbildung nicht klären können. Einen Ausweg verspricht die numerische Simulation des Systems, anhand der die Plausibilität verschiedener Theorien direkt getestet werden kann.

### 6.1.3. Modellierungsansatz

Da Inhomogenitäten in Glas stets vorhanden sind und ihre Anwesenheit zudem für alle vorhandenen Erklärungsansätze notwendig ist, bietet es sich an, sich zunächst mit der Wechselwirkung des Lichts mit solchen Inhomogenitäten zu befassen. Da die auf räumlichen Dispersionseffekten beruhenden Modelle zudem in vieler Hinsicht problematisch sind, wird auf die Modellierung solcher Effekte in dieser Arbeit verzichtet. Stattdessen sollen die Möglichkeiten eines einfachen Modells untersucht werden, welches lediglich die nichtlineare Generation von Plasmastrukturen und die Streuung an diesen berücksichtigt. Die Eigenschaften des nichtangeregten Mediums, welche hauptsächlich durch die Valenzelektronen bestimmt sind, beschreiben wir durch eine Hintergrundpermittivität  $\varepsilon_{bg} = n^2\varepsilon_0$  mit dem Brechungsindex von Glas  $n = 1.45$ . Zusätzlich soll auch der Kerr-Effekt durch Einführung einer nichtlinearen Polarisation  $\vec{P} = \varepsilon_0\chi_3 E^2 \vec{E}$  dritter Ordnung berücksichtigt werden. Dabei nehmen wir eine skalare nichtlineare Suszeptibilität  $\chi_3 = 2 \times 10^{-22} \text{m}^2 \text{V}^{-2}$ [110] an. Die nichtlineare Ionisierung und die Laser-Plasma-Wechselwirkung beschreiben wir mit Hilfe des Modells aus Kapitel 3.2 und beschreiben die Leitungsbandelektronen durch das Drude-Modell in Gleichung 3.54 mit einer als konstant angenommenen Kollisionsfrequenz  $\nu_e = 10^{14} \text{s}^{-1}$ [138, 139, 107]. Wir beschränken uns auf die Mehrphotonenionisierung als dominanten Ionisierungsprozess. Für eine Anregungswellenlänge von  $\lambda = 800 \text{nm}$  und eine Bandlücke von  $W_{ion} = 9 \text{eV}$  werden 6 Photonen zur Ionisierung benötigt. Dadurch ergibt sich die intensitätsabhängige Ion-

## 6. Musterbildung bei der Photoionisierung amorpher Festkörper

isierungsrate in den Gleichungen 3.52 und 3.53 zu

$$\nu_{mpi} = \frac{\sigma_6 I^6}{\rho_0}. \quad (6.1)$$

Wir verwenden den Literaturwert  $\sigma_6 = 2 \times 10^{-65} \text{m}^9 \text{W}^{-6} \text{s}^{-1}$  des Ionisierungsquerschnitts für Quarzglas[110]. Die Ionisierung sättigt bei einer maximalen Anregungsdichte von  $\rho_0 = 2 \times 10^{28} \text{m}^{-3}$ [73]. Zusätzlich nehmen wir an, dass die Leitungsbandelektronen nach  $\tau_{rec} = 150 \times 10^{-15} \text{s}$  rekombinieren[140].

Wie in Abschnitt 6.1.1 gezeigt wurde, bilden sich die periodischen Gitter in Glas erst durch die kumulative Wirkung vieler Laserpulse. Zwischen den einzelnen Pulsen vermitteln komplexe chemische und mechanische Materialmodifikationen, die noch nicht komplett verstanden sind und die prinzipiell eine eigene Modellierung, beispielsweise mit Hilfe von molekulardynamischen[141] oder thermoplastischen[142] Modellen erfordern. Da die initiale Gitterperiode und die Ausrichtung jedoch klar durch die Parameter des Anregungslichts bestimmt ist, muss die Selbstorganisation der Gitter bereits durch optische Effekte erklärbar sein. Wir beschränken uns daher auf die Simulation der Effekte während der eigentlichen Laserbestrahlung. Diese können völlig getrennt von der anschließenden Materialmodifikation betrachtet werden, da die Thermalisierung zwischen Elektronen und Kristallgitter auf weit langsameren Zeitskalen abläuft als die in den Experimenten verwendeten Femtosekundenpulse[73, 74].

Um die Möglichkeiten der rein optischen Selbstorganisation während eines einzelnen Bestrahlungsvorgangs untersuchen zu können verwenden wir eine zeitlich konstante Anregung. Diese kann als Grenzfall eines sehr langen Pulses oder als Extrapolation der Wirkung vieler Pulse verstanden werden. Wir beschäftigen uns zunächst mit der Streuung an einzelnen Inhomogenitäten und dem dadurch induzierten Wachstum ausgedehnter Plasmastrukturen. Danach betrachten wir die Ionisierung in Materialvolumen mit zufällig verteilten Inhomogenitäten und den dabei auftretenden Wettbewerb zwischen einzelnen Plasmastrukturen. Zum Verständnis der anfänglichen Ionisierung verwenden wir ein einfaches kombiniertes Modell, das die Dipolstreuung zur Berechnung der lokalen Feldüberhöhung benutzt und dabei auf das oben beschriebene Modell zur Beschreibung der Materialeigenschaften zurückgreift. Dieses Modell wird in den Abschnitten 6.2.2 und 6.2.3 erklärt. Um ausgedehnte Plasmastrukturen zu untersuchen, kombinieren wir das gleiche Materialmodell mit der FDTD-Methode. Dazu wird das von der FDTD-Methode berechnete Feld in jedem Zeitschritt als Anregung in das Materialmodell eingesetzt. Umgekehrt wird die Stromdichte  $\vec{J} = \vec{J}_d + \vec{J}_{mpi}$  im Ampereschen Durchflutungsgesetz 2.1 verwendet, um die Rückkopplung an das elektromagnetische Feld zu realisieren. Um die auftretenden nichtlinearen Gleichungen zu lösen verwenden wir ein einfaches Fixpunktiterationsverfahren. Dabei wird das elektrische Feld aus dem letzten Zeitschritt als initialer Wert eingesetzt. Da sich die Felder über einen Zeitschritt nur schwach verändern, sind dann nur  $n = 3$  Fixpunktiterationen notwendig.

## 6.2. Einzelne Inhomogenität

### 6.2.1. Inhomogenitäten in Glas

Als amorphe Festkörper sind Gläser auf der Nanometerskala inhärent inhomogen, da sich die chemische Struktur lokal ändert. Zusätzlich existieren Löcher und Gaseinschlüsse. Typische Einschlüsse in Quarzglas haben eine Größe von  $d = 0.6 \text{ nm}$  [117] und einen Volumenanteil von 3% [118], was einem durchschnittlichen Abstand von weniger als 20 nm zwischen zwei Inhomogenitäten entspricht. Wie bereits in Abschnitt 3.2.3 angesprochen wurde, können der Brechungsindex und der Ionisierungsquerschnitt zusätzlich durch frühere Laserbestrahlung erhöht werden [84].

Da die beschriebenen Inhomogenitäten viel kleiner als die Wellenlänge des sichtbaren Lichts sind, spielt ihre konkrete Form für die Streuung keine Rolle und sie können als elektrische Dipole beschrieben werden [92]. Die Streufelder werden nur durch die Brechungsindizes der Inhomogenität und des umgebenden Mediums bestimmt. Dadurch lassen sich unterschiedliche Arten von Inhomogenitäten so wie Regionen mit erhöhtem oder erniedrigtem Brechungsindex mit dem selben intuitiven Bild beschreiben. Wie in Abschnitt 6.2.4 gezeigt wird, trifft das auch im nichtlinearen Fall noch zu. Um ein grundlegendes Verständnis aufzubauen, betrachten wir in den Abschnitten 6.2.2 und 6.2.3 zunächst ionisierbare Regionen, die in ein nicht ionisierbares Material eingebettet sind. Danach betrachten wir verschiedene Inhomogenitäten innerhalb eines ebenfalls ionisierbaren Hintergrundmaterials.

### 6.2.2. Plasmakugel in der Dipolnäherung

Wir betrachten eine kleine Plasmakugel mit dem Radius  $r_{sphere}$ , deren vom Ort  $\vec{r}$  abhängiges Streufeld in der elektrostatischen Näherung außerhalb der Kugel als Dipolstrahlung

$$\vec{E}_{scattered} = \frac{e^{ikr}}{4\pi r} \left( k^2 (\vec{r} \times \vec{p}) \times \vec{r} + (3\vec{r}(\vec{r}\vec{p}) - \vec{p}) \left( \frac{1}{r^2} - \frac{ik}{r} \right) \right) \quad (6.2)$$

mit dem Dipolmoment  $\vec{p} = \alpha \vec{E}_{inc}$  und der Polarisierbarkeit

$$\alpha = 4\pi r_{sphere}^3 \frac{\varepsilon_{sphere} - \varepsilon_{bg}}{\varepsilon_{sphere} + 2\varepsilon_{bg}} \varepsilon_0. \quad (6.3)$$

beschrieben werden kann [92]. Dabei sind  $\varepsilon_{bg}$  und  $\varepsilon_{sphere}$  jeweils die Permittivität des umgebenden Materials und der Kugel. Diese Näherung ist sinnvoll, wenn die Kugel viel kleiner als die anregende Wellenlänge ist, so dass die Anregung im Inneren der Kugel annähernd konstant ist.

Vernachlässigt man nichtlineare Effekte und betrachtet die Plasmadichte als konstant, erhält man aus dem Drude-Modell (Gleichung 3.54) die Permittivität der Kugel

$$\varepsilon_{sphere} = \varepsilon_{bg} - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + \nu_e^2} + i \frac{\omega_p^2 \nu_e}{\omega^3 + \omega \nu_e^2} \quad (6.4)$$

## 6. Musterbildung bei der Photoionisierung amorpher Festkörper

In Luft ( $\varepsilon_{bg} = 1$ ) führt dies zu einem Brechungsindex  $n < 1$  für Licht mit einer Frequenz  $\omega > \omega_p$  und zu einem imaginären Brechungsindex für  $\omega < \omega_p$ . Dabei ist

$$\omega_p = \sqrt{\frac{\rho e^2}{m_e \varepsilon_0}}. \quad (6.5)$$

Setzt man für  $\varepsilon_{sphere}$  in Gleichung 6.3 die aus Gleichung 6.4 gewonnene Dielektrizitätskonstante ein, kann das durch Streuung an einer Plasmakugel beliebiger Dichte hervorgerufene Feld berechnet werden. Der Ausdruck für die Polarisierbarkeit in Gleichung 6.3 hat einen Pol bei  $\varepsilon_{sphere} = -2\varepsilon_{bg}$ . Unter Vernachlässigung der Verluste tritt dies ein wenn gilt

$$\rho_{res} = \frac{3\omega^2 m_e \varepsilon_0 \varepsilon_{bg}}{e^2} \quad (6.6)$$

Abbildung 6.2 (a) zeigt die Winkelabhängigkeit der Intensität im Nahfeld der Kugel abhängig von der Plasmadichte. Für kleine Plasmadichten verhält sich die Plasmakugel wie eine dielektrische Kugel und die Intensitätsverteilung wird durch die Interferenz der einfallenden Welle mit der Dipolstrahlung bestimmt. Die maximalen Intensitätsüberhöhungen liegen in diesem Fall in der Ebene senkrecht zum elektrischen Feldvektor. Bei größeren Plasmadichten hat das Streufeld viel größere Feldstärken als das einfallende Feld, so dass die Interferenz keine Rolle spielt. Entsprechend der Nahfeldverteilung eines Dipols befinden sich die Maxima jetzt an den Polen der Kugel in Richtung des anregenden Feldes. Der Wechsel vom Streufeld der dielektrischen Kugel zu dem einer "typischen" metallischen Kugel findet nicht beim Übergang zu metallischen Plasmadichten statt, sondern wird durch die relative Stärke des Streufeldes bestimmt.

### 6.2.3. Ionisierbare Kugel in der Dipolnäherung

Statt einer Kugel mit fester Plasmadichte wollen wir nun eine ionisierbare Kugel in einem äußeren Feld beschreiben. Jetzt müssen zusätzliche Polarisationsbeiträge berücksichtigt werden, die durch die Ionisierung und andere nichtlineare Effekte auftreten können.

Zuerst soll  $\varepsilon_{sphere}(t, \vec{E}_{sphere})$  bestimmt werden, so dass alle gewünschten Effekte zusätzlich zur linearen Polarisation aus dem Drude-Modell berücksichtigt sind. Dabei gilt

$$\vec{P} = \vec{P}_{bg} + \vec{P}_{extra} = \chi_{bg} \varepsilon_0 \vec{E} + f(\omega, \vec{E}) \vec{E} \quad (6.7)$$

mit  $f(t, \vec{E}) = \frac{\vec{P}_{drude} + \vec{P}_{Kerr} + \vec{P}_{6p}}{\vec{E}}$ . Dann kann man schreiben

$$\vec{P} = \varepsilon_0 \vec{E} \left( \frac{f(\omega, \vec{E})}{\varepsilon_0} + \chi_{bg} \right) = \varepsilon_0 \left( \frac{f(\omega, \vec{E})}{\varepsilon_0} + \varepsilon_{bg} + 1 \right) \vec{E} = \varepsilon_0 \chi \vec{E}$$

also erhält man ein neues  $\varepsilon_{sphere}(t, \vec{E})$

$$\varepsilon_{sphere} = \varepsilon_{bg} + \frac{f(t, \vec{E})}{\varepsilon_0} \quad (6.8)$$

## 6. Musterbildung bei der Photoionisierung amorpher Festkörper

und ein neues zeitabhängiges  $\alpha(t, \vec{E})$

$$\alpha = 4\pi r_{sphere}^3 \frac{\frac{f(t, \vec{E})}{\varepsilon_0}}{3\varepsilon_{bg} + \frac{f(t, \vec{E})}{\varepsilon_0}} \quad (6.9)$$

Um ein zeitabhängiges Modell zu erhalten, betrachten wir jetzt alle Felder als Produkte aus einer Einhüllenden und einer Trägerschwingung

$$F = \tilde{F}(t)e^{-i\omega t}. \quad (6.10)$$

Außerdem gehen wir davon aus, dass sowohl das anregende elektrische Feld als auch das elektrische Feld und die Polarisation im Inneren der Kugel in die gleiche Richtung zeigen, so dass wir auf die vektorielle Schreibweise verzichten können. Dann ergibt sich

$$\tilde{P}_{Kerr} = \chi_3 \tilde{E}^3 \quad (6.11)$$

$$\frac{d}{dt} \tilde{P}_{6p} = \sigma_6 W_{ion} \left(1 - \frac{\rho}{\rho_{max}}\right) \tilde{E}^{11} + i\omega \tilde{P}_{6p} \quad (6.12)$$

$$\left(\frac{d}{dt}\right)^2 \tilde{P}_{drude} = \frac{e^2}{m_e} \rho \tilde{E} + (2i\omega + \nu_e) \frac{d}{dt} \tilde{P}_{drude} + (\omega^2 + i\omega\nu_e) \tilde{P}_{drude} \quad (6.13)$$

$$\frac{d\rho}{dt} = \left(1 - \frac{\rho}{\rho_{max}}\right) \sigma_6 I^6 - \frac{\rho}{\tau_R} = \left(1 - \frac{\rho}{\rho_{max}}\right) \sigma_6 \tilde{E}^{12} - \frac{\rho}{\tau_R} \quad (6.14)$$

Gleichungen 6.11, 6.12, 6.13 und 6.14 kann man numerisch integrieren, um die Polarisationsbeiträge und die freie Ladungsträgerdichte zum Zeitpunkt  $t$  zu erhalten. Aufgrund der Nichtlinearität verbleiben Potenzen von  $\tilde{E}$  im Ausdruck für die Polarisierbarkeit. Hier brauchen wir das Gesamtfeld im Inneren der Kugel [92]

$$\tilde{E}_{sphere} = \tilde{E}_{inc} - \frac{\tilde{P}_{drude} + \tilde{P}_{6p} + \tilde{P}_{Kerr}}{3\varepsilon_0\varepsilon_{bg}}. \quad (6.15)$$

Dieses wird als  $\tilde{E}$  wieder in die Gleichungen 6.11-6.14 eingesetzt.

Dieses einfache Modell lässt sich verwenden, um die anfängliche Ionisierung in der Nähe einer Inhomogenität zu simulieren (Abbildung 6.2 (b)). Durch die Ionisierung der Kugel senkt sich der Brechungsindex und die Polarisierbarkeit der Kugel steigt an. Dadurch wachsen auch die elektrischen Feldstärken innerhalb der Kugel weiter an. Gerät die Plasmadichte innerhalb der Kugel durch diesen Prozess in die Nähe der resonanten Plasmadichte, steigen die Felder und die Plasmadichte exponentiell und erreichen dadurch sogar die maximale Plasmadichte  $\rho_{max}$ . Das heißt, der 6-Photonen-Übergang wird gesättigt. Ein ähnliches Verhalten zeigt sich auch bei der Simulation einer ionisierbaren Kugel mit der FDTD-Methode.



## 6. Musterbildung bei der Photoionisierung amorpher Festkörper

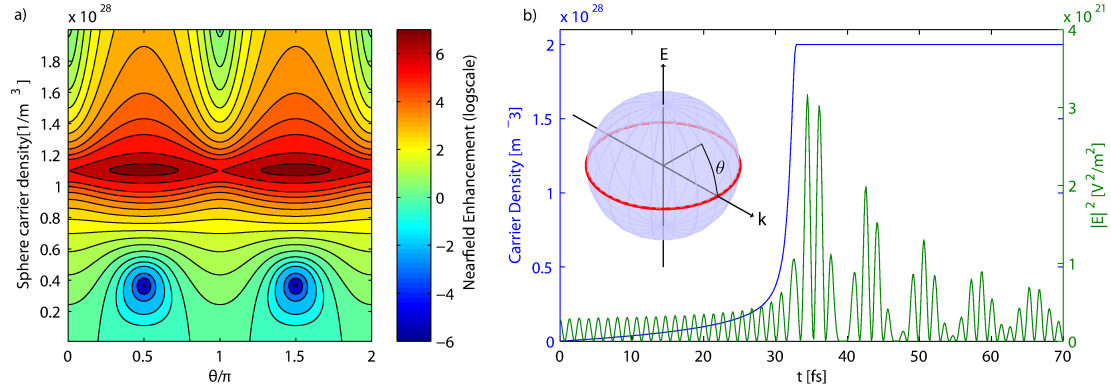


Abbildung 6.2.: (a): Intensität relativ zum Eingangsfeld für verschiedene Winkel  $\Theta$  (siehe Skizze in (b)) bei  $r = r_{sphere}$  unmittelbar außerhalb einer Plasmakugel mit verschiedenen Ladungsträgerdichten ( $\nu_{collision} = 1 \times 10^{14}$ ). (b): Zeitabhängigkeit der Intensität und der Plasmadichte innerhalb einer ionisierbaren Kugel berechnet mit dem zeitabhängigen Dipolmodell.

### 6.2.4. Inhomogenität im ionisierbaren Material

In Abschnitt 6.2.3 wurde die Streuung an einer ionisierbaren Kugel behandelt. Diese lässt sich leicht in der elektrostatischen Näherung beschreiben. Im realistischen Fall ist aber auch das Material außerhalb der Inhomogenität ionisierbar. Bei schwacher Anregung und sub-resonanten Plasmadichten folgt die Anregung dort lediglich dem durch Streuung hervorgerufenen Intensitätsmuster, es kommt aber nicht zu signifikanter Streuung an dem so erzeugten Plasma oder zur Stimulation eines weiteren Wachstums. Bei hinreichend starker lokaler Feldüberhöhung hingegen ist das Wachstum einer stark ionisierten Region zu erwarten. Solche Prozesse sind nicht mehr mit der elektrostatischen Näherung zu beschreiben, so dass wir auf die FDTD-Methode zurückgreifen müssen. Wir beschränken uns vorerst auf eine zweidimensionale Simulation, da sich die grundlegenden Prozesse daran einfacher darstellen lassen. Es zeigt sich später, dass im dreidimensionalen System ein sehr ähnliches Wachstum eintritt. Abbildung 6.3 zeigt die Verteilung der Plasmadichte um verschieden geartete Inhomogenitäten in Glas ( $n_{bg} = 1.45$ ) während der Bestrahlung mit einer starken ebenen Welle der Wellenlänge  $\lambda = 800$  nm. Wie bereits anhand der einfacheren Betrachtungen in der elektrostatischen Näherung in Abbildung 6.2 zu erwarten war, kommt es zunächst zu einem Anstieg der Plasmadichte in dem direkt von der ursprünglichen Inhomogenität betroffenen Bereich. In der Nähe der resonanten Plasmadichte kommt es dann zu starken Feldüberhöhungen an den Polen der Inhomogenität in Richtung des einfallenden elektrischen Feldvektors, die auch in diesen Regionen eine sehr schnelle Ionisierung bewirken. Dieser Prozess ermöglicht das Wachstum einer Struktur in der Größenordnung der Wellenlänge des einfallenden Lichts. Wie in Abbildung 6.3 zu erkennen ist, beeinflusst die genaue Art oder Größe der ursprünglichen Inhomogenität lediglich den Zeitpunkt, bei dem das Wachstum der Struktur einsetzt, nicht aber deren finale Form. Wir erhalten sowohl für ein Loch ( $\sigma_{6,inh} = 0, n = 1.0$ ) mit

## 6. Musterbildung bei der Photoionisierung amorpher Festkörper

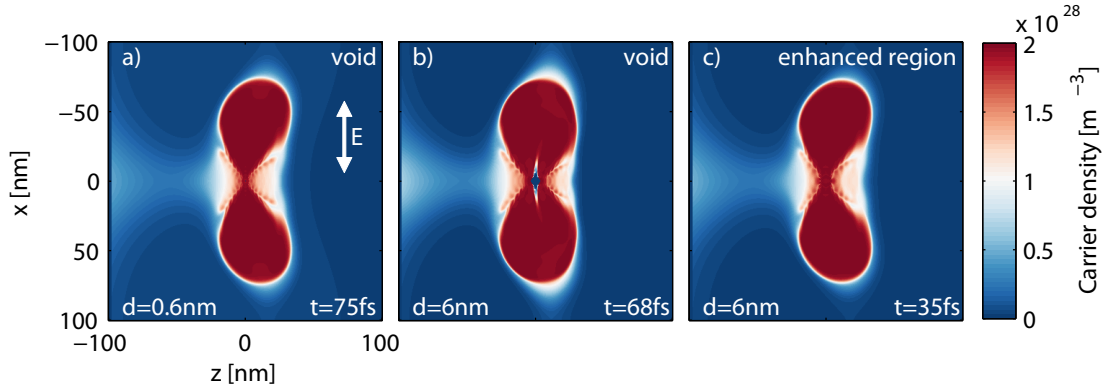


Abbildung 6.3.: Plasmadichte (2D FDTD) in einem frühen Stadium der Ionisierung in der Umgebung sphärische Löcher ( $\sigma_{6,inh} = 0$ ,  $n = 1.0$ ) verschiedener Größen und um eine Region mit erhöhtem Ionisationsquerschnitt  $\sigma_{6,inh} = \sigma_6 \times 5$  in Glas. Die Bestrahlung erfolgt mit einer ebenen Welle der Amplitude  $E_0 = 1.7 \times 10^{10} \text{Vm}^{-1}$ , die in  $z$ -Richtung einfällt.

Durchmesser  $d = 0.6 \text{ nm}$  oder  $d = 6 \text{ nm}$  als auch für eine Region mit künstlich erhöhtem Ionisationsquerschnitt  $\sigma_{6,inh} = \sigma_6 \times 5$  das gleiche Muster. Dies ist insofern zu erwarten, dass die Streuung an einer Subwellenlängenstruktur nicht von der genauen Form dieser Struktur abhängt[92]. Dieser Umstand erlaubt es auch, weitere Simulationen mit einer vergleichsweise groben Auflösung von  $\Delta x = 5 \text{ nm}$  und pixelgroßen Inhomogenitäten durchzuführen, auch wenn durchschnittliche Inhomogenitäten in Glas lediglich eine Größe von  $d = 0.6 \text{ nm}$  haben[117].

Das Wachstum in Polarisationsrichtung schwächt sich erst ab, wenn die Struktur Wellenlängendimensionen erreicht. Dann verhält sich die Struktur wie eine Nanoantenne, deren maximale Reflektivität bei der Größe  $\frac{\lambda}{2n}$  erreicht wird. Es kommt aber auch schon bei geringeren Größen zu einer substantiellen Reflexion. An den Positionen konstruktiver Interferenz der einfallenden und reflektierten Welle kommt es zu weiterer Ionisierung (Abbildung 6.4(b)). Dadurch kann eine neue Plasmastruktur entstehen, welche sich aus Einstrahlrichtung betrachtet vor der Ersten befindet. Diese verhindert das Wachstum der ursprünglichen Plasma-Antenne, so dass die Struktur eine endliche Größe in Polarisationsrichtung beibehält. Dieser Prozess setzt sich periodisch fort. Dadurch kann sich durch die Ionisierung einer winzigen Saat-Inhomogenität eine Plasmastruktur mit Wellenlängendimensionen bilden, die entgegen der Ausbreitungsrichtung des einfallenden Lichtes wächst (Abbildung 6.4(c)).

## 6. Musterbildung bei der Photoionisierung amorpher Festkörper

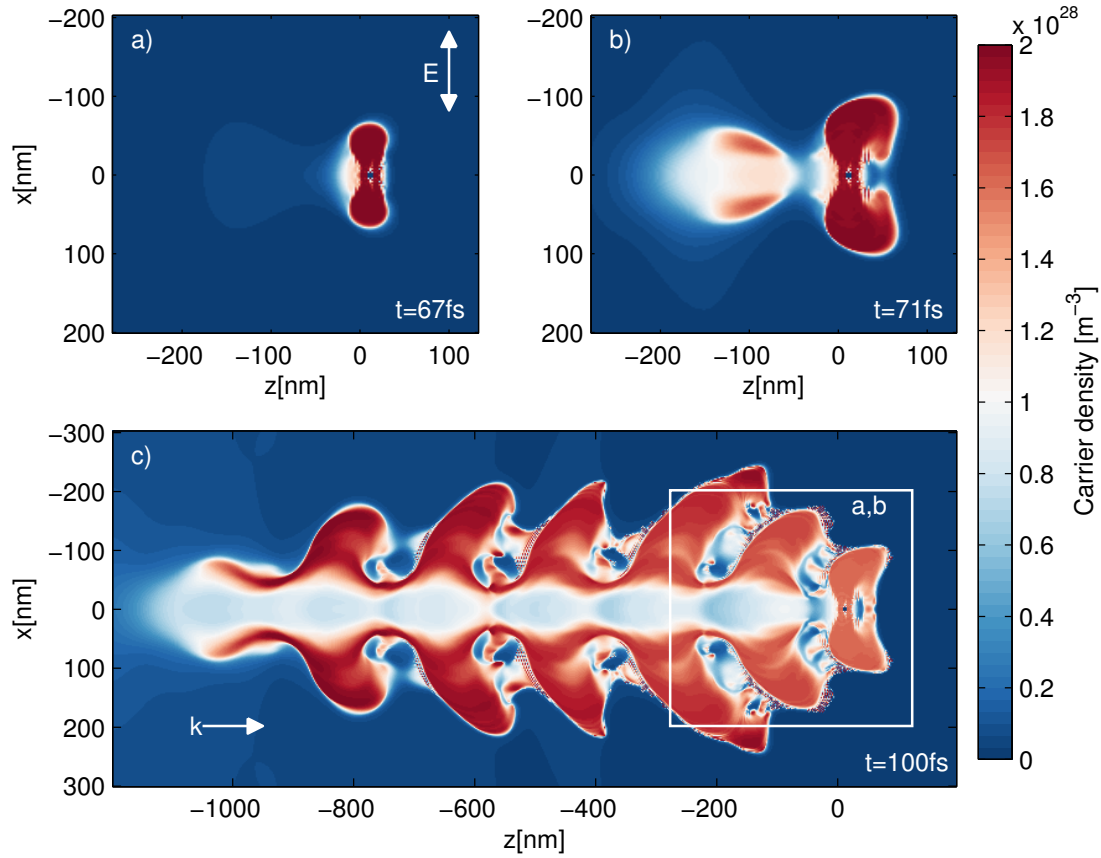


Abbildung 6.4.: Plasmadichte (2D FDTD) um ein sphärisches Loch ( $\sigma_{6,inh} = 0$ ,  $n = 1.0$ ,  $d = 7\text{ nm}$ ) in Glas zu verschiedenen Zeitpunkten während der Ionisierung. (a) Plasmawachstum in die Feldrichtung. (b) Sättigung des Wachstums und Start einer neuen Struktur. (c) Periodisches Nanoplasma durch Fortsetzung des Prozesses. Die Bestrahlung erfolgt mit einer ebenen Welle der Amplitude  $E_0 = 1.7 \times 10^{10}\text{ Vm}^{-1}$  die von links einfällt.

### 6.3. Chaotisch verteilte Inhomogenitäten

Wir betrachten jetzt die Photoionisierung in einem dreidimensionalen Materialvolumen mit zufällig verteilten Inhomogenitäten. Zur Simulation verteilen wir pixelgroße Inhomogenitäten mit erhöhtem Ionisierungsquerschnitt und der Dichte  $p_{inh}$ . Das Hintergrundmedium außerhalb der Inhomogenitäten bleibt unverändert. Wie erwartet beobachtet man auch hier wieder das Wachstum von Strukturen ausgehend von den ursprünglichen Inhomogenitäten. Sind die Inhomogenitäten schwach, beobachten wir nur vereinzelte Plasmastrukturen, die nicht miteinander wechselwirken. Im Fall stärkerer Inhomogenitäten wachsen die Strukturen hingegen so dicht, dass es zu Wechselwirkungen und schließlich auch zur Selbstorganisation kommt. Um solche Phänomene untersuchen zu können, erlauben wir jetzt auch stärkere Überhöhungen des Ionisierungsquerschnitts in den Inhomogenitäten (Abbildungen 6.5-6.7).

In diesem Fall beobachten wir ganz ähnliche Strukturen wie im zweidimensionalen Fall in Abschnitt 6.2.4. Allerdings wachsen die Strukturen jetzt auch in die dritte Raumrichtung  $y$ , die wir zuvor nicht berücksichtigt hatten. Dabei verbinden sie sich mit ihren Nachbarn und bilden dadurch eine ausgedehnte Plasmascheibe, die in der Ebene senkrecht zum einfallenden elektrischen Feld liegt. Auf Dauer nähern sich die Strukturen also dem zweidimensionalen Fall an. Durch Interferenz mit dem einfallenden Feld wird die Intensität in der Nähe einer einzelnen Plasmascheibe unterdrückt und erst im Abstand von etwa  $\frac{\lambda}{n}$  wieder erhöht. Im Hinblick auf die Feldunterdrückung in Richtung des einfallenden Feldes verhält sich also die ausgedehnte Plasmastruktur noch wie ein einzelner Dipol. Dadurch kommt es zur Wechselwirkung zwischen den einzelnen Strukturen, die dann letztendlich zur Selbstorganisation und zur Bildung periodisch angeordneter Plasma-Ebenen führen kann. Da sich viele Strukturen simultan ausbilden und erst in ihrem weiteren Wachstum miteinander interagieren, ist die finale Periode allerdings nicht komplett durch den Feldunterdrückungsmechanismus bestimmt, sondern hängt auch von anderen Parametern wie der Dichte und Stärke der ursprünglichen Inhomogenitäten oder der Anregungsintensität ab. Wir betrachten daher einige interessante Fälle.

#### 6.3.1. Selbstorganisation bei homogener Polarisierung

Die kleinste Gitterperiode konnte bei Beleuchtung mit einer ebenen Welle beobachtet werden. In diesem Fall entstehen stark ionisierte Strukturen zunächst in der Nähe der Anregungsebene und wachsen von dort aus rückwärts entgegen der Feldausbreitung. Dadurch wird die Ionisierung im Inneren des Volumens weitestgehend unterdrückt. Um ein freies Strukturwachstum auch in diesem Fall beobachten zu können, füllen wir nur den Halbraum  $z > 0$  mit Inhomogenitäten und belassen den negativen Halbraum hin zur Anregungsebene im homogenen Zustand. In diesem Fall starten die meisten Plasmastrukturen an der Grenzfläche zwischen den beiden Halbräumen, von wo sie entgegen der Anregung wachsen und miteinander interagieren können (Abbildung 6.5). Da in diesem Fall eine große Anzahl von Strukturen in der Grenzschicht zwischen homogenem und inhomogenem Material zu wachsen beginnt, kann lediglich die starke Feldabschwächung in unmittelbarer Nähe der einzelnen Plasmastruktur zur Unterdrückung weiterer

## 6. Musterbildung bei der Photoionisierung amorpher Festkörper

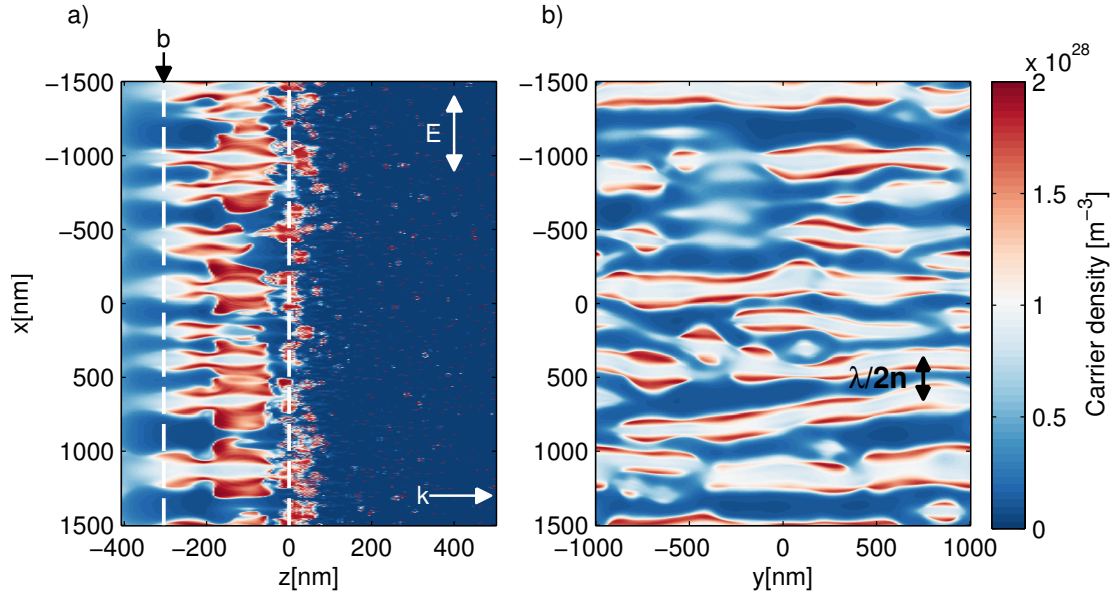


Abbildung 6.5.: Ladungsträgerdichte an einem mit Inhomogenitäten ( $p_{inh} = 0.01$ ,  $\sigma_{6,inh} = 60\sigma_6$ ) gefüllten Halbraum ( $z > 0$ ), der mit einer ebenen Welle (Amplitude  $E_0 = 1.7 \times 10^{10} \text{Vm}^{-1}$ ) bestrahlt wird. Die Plasmastrukturen wachsen an der Grenzschicht bei  $z = 0$  und bilden ein Gitter der Periode  $\sim \frac{\lambda}{2n} = 275 \text{ nm}$ . Die Polarisation und die Ausbreitungsrichtung sind in (a) eingezeichnet. (b) zeigt einen Schnitt durch die Gitterebenen bei  $z = -300 \text{ nm}$ .

Strukturen führen. Dadurch beobachten wir eine Periode von etwa  $\frac{\lambda}{2n}$ . Das Wachstum an einer Grenzfläche erinnert in gewisser Hinsicht an das Wachstum von Oberflächengittern, welches bereits durch die Interferenz von Dipolwellen erklärt wurde, die an einer rauen Oberfläche angeregt werden [136, 137]. In unserem Fall handelt es sich hingegen um einen Volumeneffekt, da die Selbstorganisation erst beim Rückwärtswachstum der Plasmastrukturen eintritt.

Um Simulationen durchzuführen, die näher an der experimentellen Situation bei der Erzeugung von Volumengittern liegen verwenden wir jetzt fokussierte Lichtquellen. Wir füllen nun wieder das gesamte Materialvolumen mit Inhomogenitäten. Die Position des initialen Strukturwachstums wird jetzt durch die Region maximaler Intensität im Strahlfokus vorgegeben.

Wir betrachten zunächst den einfachsten Fall einer linear polarisierten Quelle. Verwendet man hier einen punktförmig fokussierten Anregungsstrahl, ist es schwierig während eines einzelnen Bestrahlungsvorgangs mehr als eine einzelne Plasmastruktur zu erzeugen. Damit ist es schwierig, die Organisation mehrerer Gitterebenen zu beobachten. Wir verwenden stattdessen eine Lichtquelle, die sich in  $z$ -Richtung ausbreitet und die in  $x$ -Richtung polarisiert, aber nur in  $y$ -Richtung fokussiert ist. In Polarisationsrichtung ist der Fokus also ausgedehnt, so dass wir viele Gitterebenen beobachten können (Abbildung 6.6 (a)-(c)). Diese Konfiguration stellt auch ein Annäherung an Experimente dar,

## 6. Musterbildung bei der Photoionisierung amorpher Festkörper

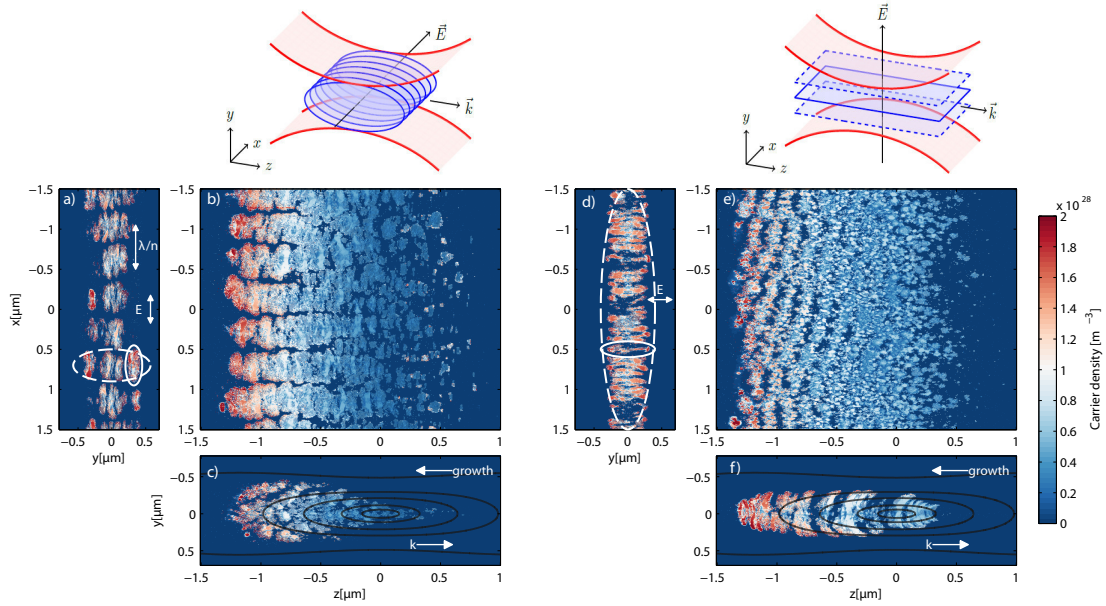


Abbildung 6.6.: Ladungsträgerdichte in einem Glasvolumen mit Inhomogenitäten ( $p_{inh} = 0.01$ ,  $\sigma_{6,inh} = 40 \times \sigma_6$ ). Die Beleuchtung erfolgt mit einem in  $y$ -Richtung fokussierten und in  $z$ -Richtung propagierenden Strahl (maximale Feldstärke des Strahls ohne Inhomogenitäten  $E_0 = 1.9 \times 10^{10} \text{Vm}^{-1}$ ,  $NA = 0.8$ ). Im linearen Fall liegt der Fokus bei  $z = 0$ . Bei Abbildung (a-c) wurde in  $x$ -Richtung polarisiertes Licht verwendet, bei Abbildung (d-f) in  $y$ -Richtung polarisiertes Licht. In (a) bzw. (d) sind die ursprüngliche Einzelplasmastruktur (durchgezogenes Oval) und die Gitterebene (gestricheltes Oval) markiert. In (c) und (f) sind Linien gleicher Intensität  $|E|^2$  des anregenden Strahls eingezeichnet. Die Skizzen zeigt die Fokuseometrie und die Lage der Plasma-Ebenen.

bei denen der Fokus während der Bestrahlung mit mehreren Einzelpulsen entlang der Probe verschoben wird. Wie erwartet erhalten wir mehrere Gitterebenen, die vom Fokusvolumen ausgehen und von dort über mehrere Mikrometer in Bereiche mit geringerer Intensität hineinwachsen. Die Selbstorganisation wird offenbar durch die maximale Feldüberhöhung bestimmt, so dass wir Strukturperioden von etwa  $\frac{\lambda}{n}$  beobachten. Da das Wachstum der einzelnen Strukturen zunächst an zufälligen Positionen im Fokusvolumen startet, setzt sich die Selbstorganisation erst nach kurzem Rückwärtswachstum durch. Mit Einsetzen der Selbstorganisation (etwa 500 nm vor dem ursprünglichen Fokus) erhöht sich die transversale Ausdehnung der einzelnen Gitterebenen, so dass sich eine “karrottenförmige” Struktur ergibt (Abbildung 6.6(c)). Man beobachtet weiterhin, dass die einzelnen Gitterebenen (markiert mit einer gestrichelten Linie in Abbildung 6.6(a)) aus kleineren Strukturen zusammengesetzt (durchgezogene Linie in Abbildung 6.6(a)) sind, die eine endliche Ausdehnung  $< \frac{\lambda}{2n}$  in Polarisationsrichtung haben. Diese entsprechen der ursprünglichen Flügelstruktur, wie sie in Abbildung 6.4(a) beobachtet wurde. Ähnlich wie in Abbildung 6.5 verschmelzen die Strukturen in  $y$ -Richtung und bilden dadurch

## 6. Musterbildung bei der Photoionisierung amorpher Festkörper

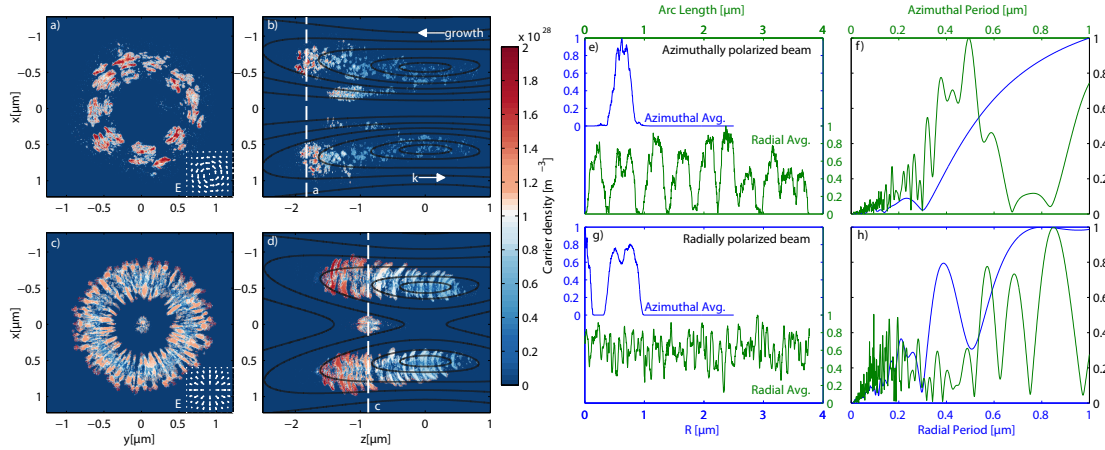


Abbildung 6.7.: (a-d): Ladungsträgerdichte in einem mit Inhomogenitäten ( $p_{inh} = 0.01$ ) gefüllten Volumen unter Beleuchtung mit Strahlen ( $E_0 = 1.7 \times 10^{10} \text{ Vm}^{-1}$ ,  $NA = 0.5$ ) mit räumlicher Polarisationsstruktur und Propagation in  $z$ -Richtung. (a) und (b): Azimuthal polarisierter Strahl,  $\sigma_{6,inh} = 60\sigma_6$ . (c) und (d): Radial polarisierter Strahl,  $\sigma_{6,inh} = 30\sigma_6$ . Die im linearen Fall erwarteten Linien gleicher Intensität  $|E|^2$  sind in (b) und (d) eingezeichnet. Die gestrichelten Linien zeigen die Position der in (a) und (c) gezeigten Schnitte. Außerdem ist die Polarisationsstruktur in (a) und (c) eingezeichnet. (e-h): Strukturelle Analyse der Strukturen. (e,g): Gerichtete Mittelwerte entlang der azimuthalen und radialen Richtung, (f,h): Fouriertransformation entlang der jeweils verbleibenden Richtung.

ausgedehnte Gitterebenen. Da wir uns hier noch im stark inhomogenen Material befinden, sind die resultierenden Strukturen jetzt weniger homogen. Um die Bedeutung der Polarisation und die Identifikation der ursprünglichen Strukturen zu überprüfen, wollen wir kurz die Anregungsgeometrie aus Abbildung 6.6 weiterverwenden. Der Strahl soll jetzt aber in die gleiche Richtung polarisiert sein, in der er auch fokussiert ist. Wenn die Ausrichtung der Plasma-Ebenen durch die Polarisation bestimmt wird, sollten sich jetzt keine periodischen Strukturen in  $x$ -Richtung mehr ausbilden. Stattdessen sollte sich eine einzelne Gitterebene in der  $yz$ -Ebene ausbilden. Tatsächlich erhalten wir eine einzelne Struktur, die in  $x$ -Richtung zwar aufgrund der ursprünglichen Flügelstrukturen aus den Abbildungen 6.4(a) und 6.6(a) moduliert, aber nicht periodisch ist (Abbildung 6.6(d)-(f)).

### 6.3.2. Selbstorganisation mit lokaler Polarisationsstruktur

Bisher haben wir lediglich homogen polarisierte Anregungen betrachtet. Die oben beschriebenen Selbstorganisationseffekte sollten aber auch bei einer lokal variierenden Polarisation auftreten. Die Ausrichtung der Gitterebenen sollte dann von der lokalen Polarisation bestimmt werden. Tatsächlich wurden solche Gitterstrukturen auch in Experimenten in Quarzglas beobachtet.[119] Daher betrachten wir jetzt radial und azimuthal polarisierte Strahlen. Tatsächlich bilden sich auch hier senkrecht zur lokalen Feldrich-

## 6. Musterbildung bei der Photoionisierung amorpher Festkörper

tung angeordnete Plasma-Ebenen heraus. Im azimuthal polarisierten Fall führt das zu einem sternförmigen Muster aus mehreren Gitterebenen (Abbildung 6.7(a)). Für den radial polarisierten Strahl bildet sich ein einzelner Plasmaring, der vom transversalen Feld definiert wird, sowie eine kleine Struktur im Strahlzentrum, die durch das lokal sehr starke  $z$ -polarisierte Feld erzeugt wird (Abbildung 6.7(b)). Die bei radialer Polarisation ausgebildeten Plasmaringe sind im Allgemeinen homogener, da sie genau in der Region maximaler Intensität verlaufen. Die von einem azimuthal polarisierten Strahl erzeugten einzelnen Gitterebenen hingegen wachsen aus der Region maximaler Feldstärke heraus und sind daher stärker durch die einzelnen Inhomogenitäten moduliert. Die Periodizität der so erzeugten Strukturen lässt sich am einfachsten untersuchen, indem man die Plasmadichten in ein radiales Koordinatensystem transformiert und sie dann entlang je einer Richtung mittelt (Abbildung 6.6(e), (g)) und entlang der anderen Richtung Fouriertransformiert (Abbildung 6.6(f), (h)). Für den azimuthal polarisierten Strahl zeigt sich ein deutliches Maximum bei einer Periode von etwa  $\frac{\lambda}{n}$  in der Fouriertransformierten in azimuthaler Richtung. In radialer Richtung gibt es kein deutliches Maximum. Bei radial polarisierter Anregung zeigt sich nur in radialer Richtung ein deutlicher Peak, der ebenfalls etwa bei  $\frac{\lambda}{n}$  liegt.



## 6.4. Schlussbemerkungen zur Nanogitterbildung

In Abschnitt 6.3 wurde die Ionisierung an zufällig angeordneten und wenige Nanometer großen Inhomogenitäten in Glas bei der Bestrahlung mit kontinuierlichen Wellen simuliert. Das verwendete Materialmodell entspricht in seinen Annahmen den „nanoplasmonischen“ Erklärungsansätzen für die Nanogitterbildung, da es hydrodynamische Effekte des Plasmas ausklammert. Ähnlich wie in [39] vermutet, betrachten wir die Bildung ausgedehnter Plasmastrukturen aus sehr kleinen Saat-Inhomogenitäten. Anders als dort angenommen, konnte ein signifikantes Wachstum des Nanoplasmas jedoch erst in der Nähe der resonanten Plasmadichte  $\varepsilon_{\text{plasma}} = -2\varepsilon_{bg}$  beobachtet werden. In diesem Fall liegt die Feldüberhöhung nicht am Äquator der ursprünglichen Inhomogenität, sondern an den Polen in Richtung des elektrischen Feldvektors. Trotzdem bilden sich nach Sättigung des so angeregten transversalen Wachstums Plasmaschichten mit endlicher Dicke aus, die orthogonal zur Anregungspolarisation ausgerichtet sind und die sich durch Wechselwirkung über das Streulicht in periodischen Gittern organisieren. Da die eigentliche Materialmodifikation und damit das Wachstum über viele Pulse durch dieses Modell nicht beschrieben werden, kann es sich hier natürlich nur um erste Schritte zum Verständnis der Nanogitterbildung handeln. Um das im realen System über viele Laserpulse stattfindende Wachstum in einer einzelnen Simulation beobachten zu können mussten die Femtosekundenpulse durch kontinuierliche Bestrahlung ersetzt werden.

Trotz dieser Einschränkungen konnten in den numerischen Experimenten bereits die wichtigsten Eigenschaften der realen Nanogitter wie die Ausrichtung senkrecht zum elektrischen Feld und die von der Anregungswellenlänge abhängige Selbstorganisation reproduziert werden. Besonders aussagekräftig ist das gegen die Lichtausbreitung gerichtete Wachstum der Plasmastrukturen, das sich auch außerhalb der Fokusregion über mehrere Mikrometer fortsetzt. Ein derartiges Wachstum lässt sich zufriedenstellend nur durch eine resonante Feldüberhöhung an den Nanoplasmen erklären. Auch die über das rückwärtsgerichtete Wachstum zunehmende Selbstorganisation der Nanogitter wird in diesem Modell reproduziert. Beide Effekte können in dem SEM-Bild in Abbildung 6.1(a) und in den berechneten Plasmastrukturen in Abbildung 6.6 beobachtet werden.

Die experimentell am häufigsten auftretende Gitterperiode von  $\frac{\lambda}{2n}$  wurde lediglich im speziellen Fall eines mit Inhomogenitäten gefüllten Halbraums reproduziert. Da diese Gitterperiode erst nach sehr vielen Laserpulsen auftritt, sind die so entstandenen Gitter aber auch nicht unmittelbarer Gegenstand dieser Arbeit. In den meisten Simulationen bildete sich eine Gitterperiode von  $\lambda/n$  heraus, die in Experimenten mit niedrigen Pulszahlen beobachtet wurde. Solche Experimente entsprechen den hier gemachten Annahmen am ehesten. In diesem Fall beobachtet man auch im Vergleich zu Abbildung 6.1 sehr viel dickere Gitterebenen[43], die eher den in den Simulationen gebildeten Plasmaschichten ähneln.

Mittlerweile wurden die hier vorgestellten Beobachtungen auch von einer anderen Arbeitsgruppe reproduziert[77]. Dabei wurde ein erweitertes Modell verwendet, welches neben der Mehrphotonenionisierung auch die Tunnel- und Kollisionsionisierung berücksichtigt. Zudem wurde der Einfluss der Inhomogenitätendichte auf die entstehenden Plasmastrukturen untersucht.

## 6. Musterbildung bei der Photoionisierung amorpher Festkörper

Anders als in dieser Arbeit wurden auch unregelmäßigere Strukturen, die im Ortsraum noch nicht als saubere Gitterstrukturen erkennbar sind, die aber bereits einen deutlichen Peak im räumlichen Spektrum aufweisen, als Nanogitter identifiziert. Durch dieses etwas schwächere Auswahlkriterium konnten auch Gitterstrukturen mit kleineren Perioden simuliert werden. Dadurch wurde eine Abhängigkeit der Gitterperiode von der Dichte der initialen Inhomogenitäten entdeckt. Auf diese Weise konnten auch kleinere Perioden  $\frac{\lambda}{Mn}$  mit  $M \in \mathbb{N}$  bis zu  $M = 4$  erzeugt werden. Da die Anzahl der Inhomogenitäten durch vorherige Bestrahlung oder die Dotierung des Materials zunimmt, könnte dadurch auch die Abnahme der Gitterperiode bei hohen Pulszahlen oder im dotierten Material erklärt werden. Lineare Simulationen haben zudem gezeigt, dass zwischen bestehenden Gitterebenen bei erneuter Bestrahlung konstruktive Interferenz auftritt, die zu einer Halbierung der Periode führen könnte[130].

Mit der Periodenhalbierung durch konstruktive Interferenz aus Referenz [130] und der Abhängigkeit der Gitterperiode von der Inhomogenitätendichte aus Referenz [43] existieren bereits zwei Effekte, welche die Existenz kleinerer Gitterperioden erklären könnten. Die relative Bedeutung dieser beiden Effekte kann jedoch nur durch kombinierte Simulation der optischen Effekte und der anschließenden Materialmodifikation geklärt werden. Während in dieser Arbeit und darauf aufbauenden Veröffentlichungen bereits ein erster Ansatz zur Erklärung und Simulation der Nanogitterbildung in Glas geliefert wurde, stellt das detaillierte Verständnis des Effekts weiterhin ein interessantes Betätigungsfeld sowohl innerhalb der nichtlinearen Optik als auch innerhalb der Materialwissenschaft dar.

## 7. Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurden numerische Methoden zur Behandlung der Licht - Materie - Wechselwirkung im Nanometerbereich in Halbleitern und in Dielektrika entwickelt. Die entwickelten Methoden wurden zur Modellierung des Lasingvorgangs in optisch gepumpten Halbleiter-Nanodrähten und zur Simulation von Selbstorganisationseffekten bei der nichtlinearen Ionisierung von Glas verwendet. Außerdem wurden polaritonische Moden sowie die Wechselwirkung von Exzitonen und akustischen Phononen in schwach angeregten Halbleiter-Nanodrähten untersucht.

Zur Untersuchung von Nanodraht-Lasern wurden zwei unterschiedliche Modelle entwickelt, welche beide auf einer Beschreibung des Halbleiters mit Hilfe von Halbleiter-Bloch-Gleichungen beruhen, aber unterschiedliche Modelle der Lichtausbreitung verwenden. Zum Einen wurde die FDTD-Methode verwendet, bei der die Maxwell-Gleichungen auf einem Gitter diskretisiert werden und somit beliebige Geometrien einschließlich aller vektoriellen und wellenoptischen Effekte modelliert werden können. Zum Anderen wurde die CMT-Methode verwendet, welche die Ausbreitung von Wellenleitermoden beschreibt. Diese ist nur auf bestimmte Geometrien und Anregungssituationen anwendbar, erlaubt aber je nach simulierter Situation und benötigter Genauigkeit bis zu tausend mal schnellere Simulationen. Die FDTD-Methode wurde zur Simulation des Anschwingvorgangs und der initialen Modenkompetition in Nanodraht-Lasern verwendet. Dadurch konnte die dominante Lasingmode in CdS- und ZnO- Nanodrähten verschiedener Dicke bestimmt werden, welche mit experimentellen Ergebnissen und mit Abschätzungen auf Basis der Modeneigenschaften übereinstimmen. Außerdem konnte gezeigt werden, dass sich in konischen Nanodrähten die praktischen Vorteile des in dünnen Drähten auftretenden Einzelmoden-Lasings mit dem größeren Verstärkungsvolumen dickerer Drähte verbinden lassen. Mit der effizienteren CMT-Methode konnten erstmals komplette Lasingvorgänge für eine Vielzahl von Materialparametern und Drahtgeometrien bei ZnO-Nanodraht-Lasern simuliert werden. Dadurch wurde der Vergleich mit experimentellen Ergebnissen möglich. Die in Experimenten auftretende nichtlineare Abhängigkeit der Anschaltzeit von der Anregungsintensität der Nanodrahtlaser konnte dabei ebenso nachgebildet werden wie die Rotverschiebung der Lasingmoden während des Lasingvorgangs. Auch die experimentelle Laserschwelle konnte näherungsweise reproduziert werden. Die Etablierung der beschriebenen Methoden kann als Ausgangspunkt für die weitere Erforschung der Licht - Materie - Wechselwirkung sowohl in Nanodrähten als auch im Falle der FDTD-Methode in weiteren Materialgeometrien dienen. Besonders das CMT-Modell erlaubt aufgrund seiner numerischen Effizienz den Anschluss komplizierterer Materialmodelle, welche beispielsweise die Ladungsträgerrelaxation und Diffusion oder die Erhitzung des Gitters beschreiben können. Ein interessantes Problem welches auf diese Weise

## 7. Zusammenfassung und Ausblick

gelöst werden könnte ist beispielsweise das Verständnis der in Abschnitt 4.4.3 vorgestellten Doppelpump-Experimente. Darüber hinaus werden die hier entwickelten Methoden zur Unterstützung experimenteller Arbeiten und zur Optimierung von Nanodraht-Geometrien beitragen können. Ein wichtiges zukünftiges Ziel bei der Erforschung von Halbleiter-Nanodrähten wird auch die Demonstration elektrisch gepumpter Nanodrahtlaser sein. Gerade für die Nutzung als Bindeglied zwischen optischen und elektrischen Teilsystemen wie in der Einleitung angesprochen ist dies unerlässlich. In diesem Zusammenhang wäre auch die numerische Bestimmung der Modulationsresponse von Nanodrahtlasern von Interesse, da diese Auskunft über die möglichen Schaltgeschwindigkeiten gibt. Da die verwendeten Geometrien vermutlich von einfachen Wellenleiterstrukturen abweichen werden, wird hier auch die Verwendung der FDTD-Methode von Nutzen sein.

Auch im niedrigangeregten Fall stellen Halbleiter ein interessantes Forschungsfeld dar. Hier steht vor allem die nichtlineare Ausbreitung von Exziton-Polaritonen im Vordergrund. Während die Erweiterung der Halbleiter-Bloch-Gleichungen um exzitonische Nichtlinearitäten für ein räumlich aufgelöstes Modell zu aufwändig ist, erscheinen hier Ansätze in einer exzitonischen Basis und unter der Berücksichtigung nur einiger weniger exzitonischer Zustände als vielversprechend. Hier könnten räumlich aufgelöste Modelle zum Verständnis polaritonischer Effekte in Nanodrähten mit komplexer Modenstruktur dienen. Ein erster Schritt wäre in diesem Zusammenhang die Erprobung eines effizienten Modells für die Wechselwirkung von Exzitonen mit akustischen Phononen wie in Kapitel 5.2 angesprochen.

Zur Untersuchung der nichtlinearen Ionisierung in Glas wurde ein einfaches Modell verwendet, bei dem Leitungsbandelektronen durch Multiphotonen-Ionisierung erzeugt werden, welche dann durch ein Drude-Modell beschrieben werden. Auch dieses Materialmodell wurde an die FDTD-Methode gekoppelt, um zufällig angeordnete Inhomogenitäten und beliebige entstehende Plasmastrukturen modellieren zu können. Mit diesem Modell kann die rein optische Selbstorganisation während der Bestrahlung mit einem einzelnen Laserpuls simuliert werden. Dabei konnte die Ausbildung mehrerer Mikrometer langer Plasmastrukturen um einzelne nur wenige Nanometer große Saat-Inhomogenitäten beobachtet werden. Bei zufälliger Anordnung bilden diese Gitterstrukturen aus, welche trotz des stark vereinfachten Modells viele Eigenschaften experimentell beobachteter Nanogitter in Quarzglas aufweisen. So konnte die Ausrichtung senkrecht zur Polarisationsrichtung des Lichts und die Selbstorganisation mit einer von der Wellenlänge abhängenden Periode reproduziert werden. Für Experimente mit geringen Pulszahlen stimmt die Periode mit der in den Simulationen auftretenden Periode überein und entspricht der Wellenlänge des Anregungslichts im Medium. Der hier vorgestellte Ansatz wurde bereits von anderen Gruppen aufgegriffen, so dass auch für die Ausbildung kleinerer Gitterperioden Erklärungsmodelle vorgeschlagen werden konnten. Das Verständnis der Nanogitterbildung ist trotz der hier gemachten Fortschritte noch lange nicht abgeschlossen und wird auch in Zukunft ein interessantes Forschungsgebiet darstellen. Da sich echte Nanogitter über die Bestrahlung mit vielen Laserpulsen ausbilden, zwischen denen eine schrittweise chemische und mechanische Modifikation des Materials eintritt, wird vor allem die Kooperation

## 7. Zusammenfassung und Ausblick

mit den Materialwissenschaften notwendig sein. Da die Thermalisierung zwischen Elektronen und Gitter auf weit langsameren Zeitskalen abläuft als die Laserbestrahlung, wäre eine abwechselnde Simulation der optischen und der chemischen oder mechanischen Prozesse möglich. So könnte auch die echte Evolution über viele Laserpulse simuliert werden.

Wie man exemplarisch anhand der hier vorgestellten Ergebnisse erkennen kann, sind numerische Methoden nicht nur zur Nachbildung von Experimenten und zur Optimierung von Bauelementen geeignet, sondern können auch zur Identifikation relevanter Effekte und zum physikalischen Verständnis experimentell beobachteter Phänomene beitragen. Diese Möglichkeiten haben die numerische Simulation neben dem Experiment und der analytischen Theorie als einen dritten Zugang zur Physik etabliert. Durch Fortschritte in der Rechentechnik können zunehmend komplizierte Systemgeometrien und längere Zeiträume simuliert werden. Auch wird die Verwendung zunehmend grundlegender physikalischer Modelle und somit die Elimination phänomenologischer Konstanten und die Verifikation von Modellannahmen möglich. Daher ist zu erwarten, dass die Rolle der Numerik in der Physik und in anderen Natur- und Ingenieurwissenschaften in Zukunft noch weiter wachsen wird.

# Literaturverzeichnis

- [1] J. Bardeen and W. H. Brattain, “The transistor, a semi-conductor triode,” *Phys. Rev.*, vol. 74, pp. 230–231, Jul 1948.
- [2] Lilienfeld, “Method and apparatus for controlling electric currents,” Jan. 28 1930. US Patent 1,745,175.
- [3] P. Jacobi, “Halbleiterverstaerker,” June 30 1952. DE Patent 833,366.
- [4] J. Kilby, “Miniaturized electronic circuits,” June 23 1964. US Patent 3,138,743.
- [5] G. E. Moore, “Cramming More Components onto Integrated Circuits,” *Electronics*, vol. 38, pp. 114–117, Apr. 1965.
- [6] R. W. Keyes, “Physical limits of silicon transistors and circuits,” *Reports on Progress in Physics*, vol. 68, no. 12, p. 2701, 2005.
- [7] “The International Technology Roadmap for Semiconductors (ITRS), System Drivers, 2009, <http://www.itrs.net/>,”
- [8] D. Thomson, A. Zilkie, J. E. Bowers, T. Komljenovic, G. T. Reed, L. Vivien, D. Marris-Morini, E. Cassan, L. Virost, J.-M. Fédéli, J.-M. Hartmann, J. H. Schmid, D.-X. Xu, F. Boeuf, P. O'Brien, G. Z. Mashanovich, and M. Nedeljkovic, “Roadmap on silicon photonics,” *Journal of Optics*, vol. 18, no. 7, p. 073003, 2016.
- [9] Y. Fang and M. Sun, “Nanoplasmonic waveguides: towards applications in integrated nanophotonic circuits,” *Light: Science & Applications*, vol. 4, p. e294, jun 2015.
- [10] D. K. Gramotnev and S. I. Bozhevolnyi, “Plasmonics beyond the diffraction limit,” *Nature Photonics*, vol. 4, pp. 83–91, jan 2010.
- [11] W. Cai and V. Shalaev, *Optical Metamaterials: Fundamentals and Applications*. Springer New York, 2009.
- [12] Y. Liu and X. Zhang, “Metamaterials: a new frontier of science and technology,” *Chem. Soc. Rev.*, vol. 40, pp. 2494–2507, 2011.
- [13] N. Yu and F. Capasso, “Flat optics with designer metasurfaces,” *Nature Materials*, vol. 13, pp. 139–150, jan 2014.
- [14] R. Yan, D. Gargas, and P. Yang, “Nanowire photonics,” *Nature Photonics*, vol. 3, pp. 569–576, oct 2009.

- [15] V. J. Sorger, R. F. Oulton, R.-M. Ma, and X. Zhang, “Toward integrated plasmonic circuits,” *MRS Bulletin*, vol. 37, pp. 728–738, 008 2012.
- [16] D. Saxena, S. Mokkaapati, P. Parkinson, N. Jiang, Q. Gao, H. H. Tan, and C. Jagadish, “Optically pumped room-temperature gaas nanowire lasers,” *Nature Photonics*, vol. 7, no. 12, pp. 963–968, 2013.
- [17] J. C. Johnson, H.-J. Choi, K. P. Knutsen, R. D. Schaller, P. Yang, and R. J. Saykally, “Single gallium nitride nanowire lasers,” *Nature Materials*, vol. 1, pp. 106–110, sep 2002.
- [18] B. Hua, J. Motohisa, Y. Kobayashi, S. Hara, and T. Fukui, “Single GaAs/GaAsP coaxial core-shell nanowire lasers,” *Nano Letters*, vol. 9, pp. 112–116, jan 2009.
- [19] M. A. Zimmler, F. Capasso, S. Müller, and C. Ronning, “Optically pumped nanowire lasers: invited review,” *Semiconductor Science and Technology*, vol. 25, no. 2, p. 024001, 2010.
- [20] H. Yu, K. Ren, Q. Wu, J. Wang, J. Lin, Z. Wang, J. Xu, R. F. Oulton, S. Qu, and P. Jin, “Organic-inorganic perovskite plasmonic nanowire lasers with a low threshold and a good thermal stability,” *Nanoscale*, vol. 8, pp. 19536–19540, 2016.
- [21] T. P. H. Sidiropoulos, R. Röder, S. Geburt, O. Hess, S. A. Maier, C. Ronning, and R. F. Oulton, “Ultrafast plasmonic nanowire lasers near the surface plasmon frequency,” *Nature Physics*, vol. 10, pp. 870–876, sep 2014.
- [22] R. F. Oulton, V. J. Sorger, T. Zentgraf, R.-M. Ma, C. Gladden, L. Dai, G. Bartal, and X. Zhang, “Plasmon lasers at deep subwavelength scale,” *Nature*, vol. 461, no. 7264, pp. 629–632, 2009.
- [23] X. Wu, Y. Xiao, C. Meng, X. Zhang, S. Yu, Y. Wang, C. Yang, X. Guo, C. Z. Ning, and L. Tong, “Hybrid photon-plasmon nanowire lasers,” *Nano Letters*, vol. 13, pp. 5654–5659, nov 2013.
- [24] C. P. Dietrich, R. Johne, T. Michalsky, C. Sturm, P. Eastham, H. Franke, M. Lange, M. Grundmann, and R. Schmidt-Grund, “Parametric relaxation in whispering gallery mode exciton-polariton condensates,” *Phys. Rev. B*, vol. 91, p. 041202, Jan 2015.
- [25] M. Wille, C. Sturm, T. Michalsky, R. Röder, C. Ronning, R. Schmidt-Grund, and M. Grundmann, “Carrier density driven lasing dynamics in zno nanowires,” *Nanotechnology*, vol. 27, no. 22, p. 225702, 2016.
- [26] H. Haug and S. Koch, *Quantum Theory of the Optical and Electronic Properties of Semiconductors (4th Edition)*. World Scientific, 2004.
- [27] W. Chow and S. Koch, *Semiconductor-Laser Fundamentals: Physics of the Gain Materials*. Springer, 1999.

- [28] K. S. Yee, “Numerical solution of initial boundary value problems involving maxwells equations in isotropic media,” *IEEE Trans. Antennas and Propagation*, pp. 302–307, 1966.
- [29] A. Taflove and S. C. Hagness, *Computational Electrodynamics: The Finite-Difference Time-Domain Method, Third Edition*. Artech House, 3 ed., June 2005.
- [30] A. Snyder and J. Love, *Optical Waveguide Theory*. Science paperbacks, Springer, 1983.
- [31] I. Carusotto and C. Ciuti, “Quantum fluids of light,” *Rev. Mod. Phys.*, vol. 85, pp. 299–366, Feb 2013.
- [32] H. Deng, H. Haug, and Y. Yamamoto, “Exciton-polariton bose-einstein condensation,” *Rev. Mod. Phys.*, vol. 82, pp. 1489–1537, May 2010.
- [33] L. V. Keldysh, “Ionization in the field of a strong electromagnetic wave,” *Soviet Physics JETP*, vol. 20, pp. 1307–1314, May 1965.
- [34] V. S. Popov, “Tunnel and multiphoton ionization of atoms and ions in a strong laser field (keldysh theory),” *Physics-Uspekhi*, vol. 47, no. 9, pp. 855–885, 2004.
- [35] Mainfray and Manus, “Multiphoton ionization of atoms,” *Rep. Prog. Phys.*, vol. 54, 1991.
- [36] K. Davis, K. Miura, N. Sugimoto, and K. Hirao, “Writing waveguides in glass with a femtosecond laser,” *Optics Letters*, vol. 21, 1996.
- [37] E. Glezer and E. Mazur, “Ultrafast-laser driven microexplosions in transparent materials,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 71, 1997.
- [38] Gamaly, Juodkazis, Nishimura, Misawa, and Luther-Davies, “Laser-matter interaction in the bulk of a transparent solid: Confined microexplosion and void formation,” *Physical Review B*, vol. 73, 2006.
- [39] P. P. Rajeev, M. Gertsvolf, C. Hnatovsky, E. Simova, R. S. Taylor, P. B. Corkum, D. M. Rayner, and V. R. Bhardwaj, “Transient nanoplasmonics inside dielectrics,” *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, vol. 40, no. 11, p. S273, 2007.
- [40] Y. Shimotsuma, P. Kazansky, J. Qiu, and K. Hirao, “Self-organized nanogratings in glass irradiated by ultrashort light pulses,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 91, 2003.
- [41] Y. Shimotsuma, K. Hirao, J. Qiu, and P. G. Kazansky, “Nano-modification inside transparent materials by femtosecond laser single beam,” *Modern Physics Letters B*, vol. 19, no. 5, pp. 225–238, 2005.
- [42] V. R. Bhardwaj, E. Simova, P. P. Rajeev, C. Hnatovsky, R. S. Taylor, D. M. Rayner, and P. B. Corkum, “Optically produced arrays of planar nanostructures inside fused silica,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 96, p. 057404, Feb 2006.



## Literaturverzeichnis

- [43] R. Taylor, C. Hnatovsky, and E. Simova, “Applications of femtosecond laser induced self-organized planar nanocracks inside fused silica glass,” *Laser & Photonics Reviews*, vol. 2, no. 1-2, pp. 26–46, 2008.
- [44] M. Beresna, M. Gecevičius, and P. G. Kazansky, “Polarization sensitive elements fabricated by femtosecond laser nanostructuring of glass, invited,” *Opt. Mater. Express*, vol. 1, pp. 783–795, Aug 2011.
- [45] L. P. R. Ramirez, M. Heinrich, S. Richter, F. Dreisow, R. Keil, A. V. Korovin, U. Peschel, S. Nolte, and A. Tünnermann, “Tuning the structural properties of femtosecond-laser-induced nanogratings,” *Applied Physics A*, 2010.
- [46] W. Cai, A. R. Libertun, and R. Piestun, “Polarization selective computer-generated holograms realized in glass by femtosecond laser induced nanogratings,” *Opt. Express*, vol. 14, pp. 3785–3791, May 2006.
- [47] K. Wicker and R. Heintzmann, “Single-shot optical sectioning using polarization-coded structured illumination,” *Journal Of Optics*, vol. 12, 8 2010.
- [48] M. Beresna, M. Gecevičius, P. G. Kazansky, T. Taylor, and A. V. Kavokin, “Exciton mediated self-organization in glass driven by ultrashort light pulses,” *Applied Physics Letters*, vol. 101, no. 5, p. 053120, 2012.
- [49] M. Hörstmann-Jungemann, J. Gottmann, and D. Wortmann, “Nano- and microstructuring of sio<sub>2</sub> and sapphire with fs-laser induced selective etching,” *J. Laser Micro/Nanoeng*, vol. 4, no. 2, pp. 135–140, 2009.
- [50] Y. Liao, J. Ni, L. Qiao, M. Huang, Y. Bellouard, K. Sugioka, and Y. Cheng, “High-fidelity visualization of formation of volume nanogratings in porous glass by femtosecond laser irradiation,” *Optica*, vol. 2, pp. 329–334, Apr 2015.
- [51] B. Stroustrup, *The C++ Programming Language*. Boston, MA, USA: Addison-Wesley Longman Publishing Co., Inc., 3rd ed., 2000.
- [52] N. Ashcroft and N. Mermin, *Solid State Physics*. Philadelphia: Saunders College, 1976.
- [53] Courant, Friedrichs, and Lewy, “Über die partiellen differenzgleichungen der mathematischen physik,” *Mathematische Annalen*, vol. 100, pp. 32–74, 1928.
- [54] G. Mur, “Absorbing boundary conditions for the finite-difference approximation of the time-domain electromagnetic-field equations,” *IEEE Transactions on Electromagnetic Compatibility*, vol. EMC-23, pp. 377–382, Nov 1981.
- [55] J. P. Berenger, “A perfectly matched layer for the absorption of electromagnetic waves,” *IEEE Transactions on Antennas and Propagation*, vol. 114, pp. 185–200, 1994.

- [56] S. D. Gedney, “An anisotropic perfectly matched layer-absorbing medium for the truncation of fdtd lattices,” *IEEE Transactions on Antennas and Propagation*, vol. 44, pp. 1630–1639, Dec 1996.
- [57] W. C. Chew and W. H. Weedon, “A 3d perfectly matched medium from modified maxwell’s equations with stretched coordinates,” *Microwave and Optical Technology Letters*, vol. 7, no. 13, pp. 599–604, 1994.
- [58] K. Umashankar and A. Taflove, “A novel method to analyze electromagnetic scattering of complex objects,” *IEEE Transactions on Electromagnetic Compatibility*, vol. EMC-24, pp. 397–405, Nov 1982.
- [59] D. E. Merewether, R. Fisher, and F. W. Smith, “On implementing a numeric huygen’s source scheme in a finite difference program to illuminate scattering bodies,” *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 27, pp. 1829–1833, Dec 1980.
- [60] A. S. Tanenbaum and J. R. Goodman, *Structured Computer Organization*. Upper Saddle River, NJ, USA: Prentice Hall PTR, 4th ed., 1998.
- [61] M. P. I. Forum, “Mpi: A message-passing interface standard version 3.0.” <http://www.mpi-forum.org/>, 09 2012.
- [62] W. Yu, R. Mittra, and T. Su, *Parallel Finite-Difference Time-Domain Method*. Artech House, 2006.
- [63] B. Crosignani, P. D. Porto, and C. H. Papas, “Coupled-mode theory approach to nonlinear pulse propagation in optical fibers,” *Opt. Lett.*, vol. 6, pp. 61–63, Feb 1981.
- [64] W. H. Press, S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling, and B. P. Flannery, *Numerical Recipes 3rd Edition: The Art of Scientific Computing*. New York, NY, USA: Cambridge University Press, 3 ed., 2007.
- [65] A. V. Maslov and C. Z. Ning, “Reflection of guided modes in a semiconductor nanowire laser,” *Applied Physics Letters*, vol. 83, no. 6, pp. 1237–1239, 2003.
- [66] Y. Huang and S.-T. Ho, “Computational model of solid-state, molecular, or atomic media for fdtd simulation based on a multi-level multi-electron system governed by pauli exclusion and fermi-dirac thermalization with application to semiconductor photonics,” *Opt. Express*, vol. 14, pp. 3569–3587, Apr 2006.
- [67] J. Andreasen and H. Cao, “Finite-difference time-domain formulation of stochastic noise in macroscopic atomic systems,” *J. Lightwave Technol.*, vol. 27, pp. 4530–4535, Oct 2009.
- [68] J. Andreasen and H. Cao, “Numerical study of amplified spontaneous emission and lasing in random media,” *Phys. Rev. A*, vol. 82, p. 063835, Dec 2010.

## Literaturverzeichnis

- [69] W. Harrison, *Solid State Theory*. Dover Books on Physics, Dover Publications, 1970.
- [70] K. Hannewald, S. Glutsch, and F. Bechstedt, *Spontaneous Emission from Semiconductors After Ultrafast Pulse Excitation: Theory and Simulation*, pp. 139–192. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2004.
- [71] D. G. Thomas and J. J. Hopfield, “Exciton spectrum of cadmium sulfide,” *Phys. Rev.*, vol. 116, pp. 573–582, Nov 1959.
- [72] D. G. Thomas and J. J. Hopfield, “Optical properties of bound exciton complexes in cadmium sulfide,” *Phys. Rev.*, vol. 128, pp. 2135–2148, Dec 1962.
- [73] J. R. Peñano, P. Sprangle, B. Hafizi, W. Manheimer, and A. Zigler, “Transmission of intense femtosecond laser pulses into dielectrics,” *Phys. Rev. E*, vol. 72, p. 036412, Sep 2005.
- [74] C. Mezel, L. Hallo, A. Bourgeade, D. Hebert, V. T. Tikhonchuk, B. Chimier, B. Nkong, G. Schurtz, and G. Travaille, “Formation of nanocavities in dielectrics: A self-consistent modeling,” *Phys. Plasmas*, vol. 15, no. 9, p. 093504, 2008.
- [75] B. Rethfeld, “Free-electron generation in laser-irradiated dielectrics,” *Phys. Rev. B*, vol. 73, p. 035101, Jan 2006.
- [76] B. Rethfeld, “Unified model for the free-electron avalanche in laser-irradiated dielectrics,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 92, p. 187401, May 2004.
- [77] A. Rudenko, J.-P. Colombier, and T. E. Itina, “From random inhomogeneities to periodic nanostructures induced in bulk silica by ultrashort laser,” *Phys. Rev. B*, vol. 93, p. 075427, Feb 2016.
- [78] P. Drude, “Zur elektronentheorie der metalle,” *Annalen der Physik*, vol. 306, pp. 566–613, 1900.
- [79] R. Williams and K. Song, “The self-trapped exciton,” *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, vol. 51, no. 7, pp. 679 – 716, 1990.
- [80] S. Richter, F. Jia, M. Heinrich, S. Döring, U. Peschel, A. Tünnermann, and S. Nolte, “The role of self-trapped excitons and defects in the formation of nanogratings in fused silica,” *Opt. Lett.*, vol. 37, pp. 482–484, Feb 2012.
- [81] L. Skuja, M. Hirano, H. Hosono, and K. Kajihara, “Defects in oxide glasses,” *physica status solidi (c)*, vol. 2, no. 1, pp. 15–24, 2005.
- [82] M. Lancry, B. Poumellec, K. Cook, and J. Canning, “Nanogratings and molecular oxygen formation during femtosecond laser irradiation in silica,” in *Proceedings of the International Quantum Electronics Conference and Conference on Lasers and Electro-Optics Pacific Rim 2011*, p. C229, Optical Society of America, 2011.

- [83] J. Canning, M. Lancry, K. Cook, and B. Poumellec, “New theory of femtosecond induced changes and nanopore formation,” vol. 8351, p. 83512M, SPIE, 2012.
- [84] P. P. Rajeev, M. Gertsvolf, E. Simova, C. Hnatovsky, R. S. Taylor, V. R. Bhardwaj, D. M. Rayner, and P. B. Corkum, “Memory in nonlinear ionization of transparent solids,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 97, p. 253001, Dec 2006.
- [85] S. Richter, M. Heinrich, S. Döring, A. Tünnermann, and S. Nolte, “Formation of femtosecond laser-induced nanogratings at high repetition rates,” *Applied Physics A: Materials Science & Processing*, vol. 104, pp. 503–507, 2011. 10.1007/s00339-011-6489-7.
- [86] R. Röder, D. Ploss, A. Kriesch, R. Buschlinger, S. Geburt, U. Peschel, and C. Ronning, “Polarization features of optically pumped cds nanowire lasers,” *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 47, no. 39, p. 394012, 2014.
- [87] R. Röder, T. P. H. Sidiropoulos, R. Buschlinger, M. Riediger, U. Peschel, R. F. Oulton, and C. Ronning, “Mode switching and filtering in nanowire lasers,” *Nano Letters*, vol. 16, pp. 2878–2884, apr 2016.
- [88] R. Röder, T. P. H. Sidiropoulos, C. Tessarek, S. Christiansen, R. F. Oulton, and C. Ronning, “Ultrafast dynamics of lasing semiconductor nanowires,” *Nano Letters*, vol. 15, no. 7, pp. 4637–4643, 2015. PMID: 26086355.
- [89] S. Geburt, A. Thielmann, R. Röder, C. Borschel, A. McDonnell, M. Kozlik, J. Kühnel, K. A. Sunter, F. Capasso, and C. Ronning, “Low threshold room - temperature lasing of cds nanowires,” *Nanotechnology*, vol. 23, no. 36, p. 365204, 2012.
- [90] R. Röder, M. Wille, S. Geburt, J. Rensberg, M. Zhang, J. G. Lu, F. Capasso, R. Buschlinger, U. Peschel, and C. Ronning, “Continuous wave nanowire lasing,” *Nano Letters*, vol. 13, no. 8, pp. 3602–3606, 2013.
- [91] A. Maslov and C.-Z. Ning, “Modal gain in a semiconductor nanowire laser with anisotropic bandstructure,” *Quantum Electronics, IEEE Journal of*, vol. 40, pp. 1389–1397, Oct 2004.
- [92] C. F. Bohren and D. R. Huffman, *Absorption and scattering of light by small particles*, vol. 1. Wiley, 1983.
- [93] S. Ninomiya and S. Adachi, “Optical properties of wurtzite cds,” *Journal of Applied Physics*, vol. 78, no. 2, pp. 1183–1190, 1995.
- [94] M. Bass, C. DeCusatis, J. Enoch, V. Lakshminarayanan, G. Li, C. MacDonald, V. Mahajan, and E. V. Stryland, *Handbook of Optics, Third Edition Volume IV: Optical Properties of Materials, Nonlinear Optics, Quantum Optics (set): 4*. McGraw-Hill Education, 2009.

## Literaturverzeichnis

- [95] R. Buschlinger, M. Lorke, and U. Peschel, “Light-matter interaction and lasing in semiconductor nanowires: A combined finite-difference time-domain and semiconductor bloch equation approach,” *Phys. Rev. B*, vol. 91, p. 045203, Jan 2015.
- [96] J. J. Hopfield, “Theory of the contribution of excitons to the complex dielectric constant of crystals,” *Phys. Rev.*, vol. 112, pp. 1555–1567, Dec 1958.
- [97] J. J. Hopfield and D. G. Thomas, “Theoretical and experimental effects of spatial dispersion on the optical properties of crystals,” *Phys. Rev.*, vol. 132, pp. 563–572, Oct 1963.
- [98] A. Imamoglu, R. J. Ram, S. Pau, and Y. Yamamoto, “Nonequilibrium condensates and lasers without inversion: Exciton-polariton lasers,” *Phys. Rev. A*, vol. 53, pp. 4250–4253, Jun 1996.
- [99] H. Deng, G. Weihs, D. Snoke, J. Bloch, and Y. Yamamoto, “Polariton lasing vs. photon lasing in a semiconductor microcavity,” *Proceedings of the National Academy of Sciences*, vol. 100, pp. 15318–15323, dec 2003.
- [100] Michalsky, Tom, Franke, Helena, Buschlinger, Robert, Peschel, Ulf, Grundmann, Marius, and Schmidt-Grund, Rüdiger, “Coexistence of strong and weak coupling in zno nanowire cavities,” *Eur. Phys. J. Appl. Phys.*, vol. 74, no. 3, p. 30502, 2016.
- [101] E. Wertz, L. Ferrier, D. Solnyshkov, R. Johne, D. Sanvitto, A. Lemaître, I. Sagnes, R. Grousson, A. V. Kavokin, P. Senellart, *et al.*, “Spontaneous formation and optical manipulation of extended polariton condensates,” *Nature physics*, vol. 6, no. 11, pp. 860–864, 2010.
- [102] D. H. Choi and W. J. R. Hofer, “The finite-difference-time-domain method and its application to eigenvalue problems,” *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques*, vol. 34, pp. 1464–1470, Dec 1986.
- [103] I. A. Shelykh, A. V. Kavokin, Y. G. Rubo, T. C. H. Liew, and G. Malpuech, “Polariton polarization-sensitive phenomena in planar semiconductor microcavities,” *Semiconductor Science and Technology*, vol. 25, no. 1, p. 013001, 2010.
- [104] I. Carusotto and C. Ciuti, “Probing microcavity polariton superfluidity through resonant rayleigh scattering,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 93, p. 166401, Oct 2004.
- [105] G. Rochat, C. Ciuti, V. Savona, C. Piermarocchi, A. Quattropani, and P. Schwendimann, “Excitonic bloch equations for a two-dimensional system of interacting excitons,” *Phys. Rev. B*, vol. 61, pp. 13856–13862, May 2000.
- [106] G. M. Petrov and J. Davis, “Interaction of intense ultra-short laser pulses with dielectrics,” *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, vol. 41, no. 2, p. 025601, 2008.

*Literaturverzeichnis*

- [107] N. M. Bulgakova, V. P. Zhukov, and Y. P. Meshcheryakov, “Theoretical treatments of ultrashort pulse laser processing of transparent materials: toward understanding the volume nanograting formation and ‘quill’ writing effect,” *Applied Physics B*, pp. 1–13, 2013.
- [108] Couairon and Mysyrowicz, “Femtosecond filamentation in transparent media,” *Physics reports*, vol. 441, pp. 47–189, 2007.
- [109] A. Bourgeade, C. Mézel, and O. Saut, “Modeling the early ionization of dielectrics by ultrashort laser pulses,” *Journal of Scientific Computing*, vol. 44, no. 2, pp. 170–190, 2010.
- [110] E. G. Gamaly, S. Juodkazis, K. Nishimura, H. Misawa, B. Luther-Davies, L. Hallo, P. Nicolai, and V. T. Tikhonchuk, “Laser-matter interaction in the bulk of a transparent solid: Confined microexplosion and void formation,” *Phys. Rev. B*, vol. 73, p. 214101, Jun 2006.
- [111] R. W. Boyd, *Nonlinear Optics, Third Edition*. Academic Press, 3rd ed., 2008.
- [112] C. Sulem and P. Sulem, *The Nonlinear Schrödinger Equation: Self-Focusing and Wave Collapse*. Applied Mathematical Sciences, Springer New York, 2007.
- [113] E. S. Efimenko and A. V. Kim, “Strongly coupled regime of ionization-induced scattering in ultrashort laser-matter interactions,” *Phys. Rev. E*, vol. 84, p. 036408, Sep 2011.
- [114] E. S. Efimenko, A. V. Kim, and M. Quiroga-Teixeiro, “Ionization-induced small-scaled plasma structures in tightly focused ultrashort laser pulses,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 102, p. 015002, Jan 2009.
- [115] F. Arecchi, S. Boccaletti, and P. Ramazza, “Pattern formation and competition in nonlinear optics,” *Physics Reports*, vol. 318, no. 1-2, pp. 1–83, 1999.
- [116] M. C. Cross and P. C. Hohenberg, “Pattern formation outside of equilibrium,” *Rev. Mod. Phys.*, vol. 65, pp. 851–1112, Jul 1993.
- [117] M. Hasegawa, M. Saneyasu, M. Tabata, Z. Tang, Y. Nagai, T. Chiba, and Y. Ito, “Positron and positronium studies of irradiation-induced defects and microvoids in vitreous metamict silica,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 166-167, pp. 431–439, May 2000.
- [118] R. H. Doremus, “Physical solubility of gases in fused silica,” *Journal of the American Ceramic Society*, vol. 49, pp. 461–462, 1966.
- [119] C. Hnatovsky, V. Shvedov, W. Krolikowski, and A. Rode, “Revealing local field structure of focused ultrashort pulses,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 106, p. 123901, Mar 2011.

- [120] R. Buschlinger, S. Nolte, and U. Peschel, “Self-organized pattern formation in laser-induced multiphoton ionization,” *Phys. Rev. B*, vol. 89, p. 184306, May 2014.
- [121] F. Zimmermann, S. Richter, R. Buschlinger, S. Shukla, R. Heintzmann, U. Peschel, and S. Nolte, “Ultrashort pulse-induced periodic nanostructures in bulk glass: from fundamentals to applications in high-resolution microscopy,” in *Optically Induced Nanostructures: Biomedical and Technical Applications*, De Gruyter, Berlin, 2015.
- [122] P. G. Kazansky, H. Inouye, T. Mitsuyu, K. Miura, J. Qiu, K. Hirao, and F. Starrost, “Anomalous anisotropic light scattering in ge-doped silica glass,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 82, pp. 2199–2202, Mar 1999.
- [123] L. Sudrie, M. Franco, B. Prade, and A. Mysyrowicz, “Writing of permanent bi-refrangent microlayers in bulk fused silica with femtosecond laser pulses,” *Optics Communications*, vol. 171, no. 4-6, pp. 279–284, 1999.
- [124] M. Lancry, B. Poumellec, A. Chahid-Erraji, M. Beresna, and P. G. Kazansky, “Dependence of the femtosecond laser refractive index change thresholds on the chemical composition of doped-silica glasses,” *Opt. Mater. Express*, vol. 1, pp. 711–723, Aug 2011.
- [125] S. Richter, C. Miese, S. Döring, F. Zimmermann, M. J. Withford, A. Tünnermann, and S. Nolte, “Laser induced nanogratings beyond fused silica - periodic nanostructures in borosilicate glasses and ule™,” *Opt. Mater. Express*, vol. 3, pp. 1161–1166, Aug 2013.
- [126] S. Richter, M. Heinrich, S. Döring, A. Tünnermann, S. Nolte, and U. Peschel, “Nanogratings in fused silica: Formation, control, and applications,” *Journal of Laser Applications*, vol. 24, no. 4, 2012.
- [127] C. Hnatovsky, R. S. Taylor, P. P. Rajeev, E. Simova, V. R. Bhardwaj, D. M. Rayner, and P. B. Corkum, “Pulse duration dependence of femtosecond-laser-fabricated nanogratings in fused silica,” *Applied Physics Letters*, vol. 87, no. 1, p. 014104, 2005.
- [128] Zimmermann, Plech, Richter, Döring, Tünnermann, and Nolte, “Structural evolution of nanopores and cracks as fundamental constituents of ultrashort pulse-induced nanogratings,” *Applied Physics A*, vol. 114, no. 1, pp. 75–79, 2013.
- [129] M. S. Ahsan, Y. G. Kim, and M. S. Lee, “Formation mechanism of nanostructures in soda-lime glass using femtosecond laser,” *Journal of Non-Crystalline Solids*, vol. 357, no. 3, pp. 851 – 857, 2011.
- [130] Y. Liao, W. Pan, Y. Cui, L. Qiao, Y. Bellouard, K. Sugioka, and Y. Cheng, “Formation of in-volume nanogratings with sub-100-nm periods in glass by femtosecond laser irradiation,” *Opt. Lett.*, vol. 40, pp. 3623–3626, Aug 2015.

- [131] F. A. Umran, Y. Liao, M. M. Elias, K. Sugioka, R. Stoian, G. Cheng, and Y. Cheng, “Formation of nanogratings in a transparent material with tunable ionization property by femtosecond laser irradiation,” *Opt. Express*, vol. 21, pp. 15259–15267, Jul 2013.
- [132] M. Lancry, J. Canning, K. Cook, M. Heili, D. R. Neuville, and B. Poumellec, “Nanoscale femtosecond laser milling and control of nanoporosity in the normal and anomalous regimes of  $\text{geO}_2\text{-SiO}_2$  glasses,” *Opt. Mater. Express*, vol. 6, pp. 321–330, Feb 2016.
- [133] K. Mishchik, G. Cheng, G. Huo, I. M. Burakov, C. Mauclair, a. Mermillod-Blondin, a. Rosenfeld, Y. Ouerdane, a. Boukenter, O. Parriaux, and R. Stoian, “Nanosize structural modifications with polarization functions in ultrafast laser irradiated bulk fused silica,” *Optics express*, vol. 18, pp. 24809–24, Nov. 2010.
- [134] F. Liang, J. Bouchard, S. Leang Chin, and R. Vallée, “Defect-assisted local field rearrangement during nanograting formation with femtosecond pulses,” *Applied Physics Letters*, vol. 107, no. 6, 2015.
- [135] Bohm and Gross, “Theory of plasma oscillations. a. origin of medium-like behavior,” *Phys. Rev.*, vol. 75, pp. 1851–1864, 1949.
- [136] J. E. Sipe, J. F. Young, J. S. Preston, and H. M. van Driel, “Laser-induced periodic surface structure. i. theory,” *Phys. Rev. B*, vol. 27, pp. 1141–1154, Jan 1983.
- [137] J. Z. P. Skolski, G. R. B. E. Römer, J. V. Obona, V. Ocelik, A. J. Huis in ’t Veld, and J. T. M. De Hosson, “Laser-induced periodic surface structures: Fingerprints of light localization,” *Phys. Rev. B*, vol. 85, p. 075320, Feb 2012.
- [138] L. Sudrie, A. Couairon, M. Franco, B. Lamouroux, B. Prade, S. Tzortzakis, and A. Mysyrowicz, “Femtosecond laser-induced damage and filamentary propagation in fused silica,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 89, p. 186601, Oct 2002.
- [139] X. Mao, S. S. Mao, and R. E. Russo, “Imaging femtosecond laser-induced electronic excitation in glass,” *Applied Physics Letters*, vol. 82, no. 5, pp. 697–699, 2003.
- [140] P. Audebert, P. Daguzan, A. Dos Santos, J. C. Gauthier, J. P. Geindre, S. Guizard, G. Hamoniaux, K. Krastev, P. Martin, G. Petite, and A. Antonetti, “Space-time observation of an electron gas in  $\text{SiO}_2$ ,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 73, pp. 1990–1993, Oct 1994.
- [141] A. N. Cormack, X. Yuan, and B. Park, “Molecular dynamics simulations of silicate glasses and melts,” *Glass Physics and Chemistry*, vol. 27, no. 1, pp. 28–36.
- [142] R. M. Vignes, T. F. Soules, J. S. Stolken, R. R. Settgast, S. Elhadj, and M. J. Matthews, “Thermomechanical modeling of laser-induced structural relaxation and deformation of glass: Volume changes in fused silica at high temperatures,” *Journal of the American Ceramic Society*, vol. 96, no. 1, pp. 137–145, 2013.



# A. Publikationsliste

## Beiträge in referierten Zeitschriften

- Röder, Wille, Geburt, Rensberg, Zhang, Lu, Capasso, Buschlinger, Peschel, Ronning, „Continuous Wave Nanowire Lasing“, *Nano Lett.* (2013), 13 (8), 3602-3606.
- Buschlinger, Nolte, Peschel, „Self-organized pattern formation in laser-induced multiphoton ionization“, *Phys. Rev. B* (2014) 89, 184306
- Röder, Ploss, Kriesch, Buschlinger, Geburt, Peschel, Ronning, „Polarization features of optically pumped CdS nanowire lasers“, *J. Phys. D: Appl. Phys.* (2014), 394012.
- Buschlinger, Lorke, Peschel, „Light-matter interaction and lasing in semiconductor nanowires: A combined finite-difference time-domain and semiconductor Bloch equation approach“, *Phys. Rev. B* (2015) 91, 045203
- Röder, Sidiropoulos, Buschlinger, Riediger, Peschel, Oulton, Ronning, „Mode Switching and Filtering in Nanowire Lasers“, *Nano Lett.* (2016), 16 (4), 2878–2884
- Michalsky, Franke, Buschlinger, Peschel, Grundmann, Schmidt-Grund, „Coexistence of strong and weak coupling in ZnO nanowire cavities“, *Eur. Phys. J. Appl. Phys.* (2016) 30502
- Buschlinger, Lorke, Peschel, „Coupled Mode Theory for Semiconductor Nanowires“, *Phys. Rev. Applied* (2017) 7, 034028

## Buchbeiträge

- Zimmermann, Richter, Buschlinger, Shukla, Heintzmann, Peschel, Nolte, „Ultrashort pulse-induced periodic nanostructures in bulk glass: from fundamentals to applications in high-resolution microscopy“, De Gruyter, Berlin (2015).

## B. Danksagungen

Hier möchte ich mich bei allen bedanken, die mich in den letzten Jahren wissenschaftlich oder moralisch unterstützt haben.

- Dazu zählt natürlich in erster Linie Prof. Dr. Ulf Peschel, der meine Promotion betreut und mir somit die Möglichkeit gegeben hat, als „Fachfremder“ tief in die Physik einzusteigen. Danke für die vielen Freiräume und ein offenes Ohr für Fragen!
- An dieser Stelle möchte ich auch dem Betreuer meiner Diplomarbeit, Prof. Dr. Karl-Heinz Brenner danken, der mir die Denk- und Arbeitsweise eines Physikers vermittelt und mich ermutigt hat, mich weiterhin mit der Physik zu beschäftigen und eine Promotion anzustreben.
- Den größeren Teil meiner Promotion habe ich als Teil der DFG-Forschergruppe 1616 verbracht, deren Mitgliedern ich für die inspirierende Zusammenarbeit danken möchte. Hier ist vor allem Dr. Michael Lorke zu nennen, der mir viel Wissen über die theoretische Festkörperphysik vermittelt hat und mit dem ich in verschiedenen Projekten zusammenarbeiten durfte. Genauso wichtig war aber auch die Zusammenarbeit mit den Experimentalphysikern aus der Forschergruppe, vor allem Dr. Robert Röder, Dr. Sebastian Geburt und Prof. Dr. Carsten Ronning von der Universität Jena sowie Dr. Marcel Wille, Dr. Tom Michalsky und Dr. Rüdiger Schmidt-Grund von der Universität Leipzig. Neben der wissenschaftlichen Zusammenarbeit möchte ich mich auch für die freundschaftliche Atmosphäre in der Forschergruppe bedanken!
- Vielen Dank an Szilvia Mammel und Silvia Hennig für die Hilfe im Umgang mit der Bürokratie. Danke auch an Szilvia, dass Du unsere Kaffeepausen in Deinem Büro geduldet und uns wenn möglich auch Gesellschaft dabei oder beim Mittag- oder Burgeressen geleistet hast!
- Danken möchte ich auch meinen Institutskollegen aus Erlangen und Jena. Gerade weil wir teils recht unterschiedliche Forschungsthemen untersucht haben, habt Ihr mir einen Blick über den eigenen Tellerrand ermöglicht. Über das Fachliche hinaus habt Ihr natürlich auch meine Mittags- und Kaffeepausen bereichert!

## *B. Danksagungen*

- Da es auch ein Leben außerhalb der Universität gibt, möchte ich meinen Freunden aus der Pfalz, Franken und aus dem Schwabenland für die gemeinsame Zeit und die nötige Ablenkung während der Promotion danken. Nicht zuletzt möchte ich meine Freunde aus Jena erwähnen. Ihr habt dafür gesorgt, dass die Stadt für mich nach einem nicht hundertprozentig freiwilligen Ortswechsel noch zu einer echten Heimat geworden ist!
- Der wohl größte Dank gebührt meinen Eltern. Danke, dass Ihr mich auch bei ambitionierten und vielleicht auch nicht unmittelbar lohnend erscheinenden Projekten wie einer Promotion in Physik bedingungslos unterstützt und Euch immer für meine Arbeit interessiert habt!

# C. Curriculum Vitae

## Persönliche Daten

Name	Robert Buschlinger
Geburtsdatum	29.10.1985
Geburtsort	Neustadt an der Weinstraße

## Ausbildung und wissenschaftlicher Werdegang

1992 - 1996	Grundschule Esthal
1996 - 2005	Leibniz-Gymnasium Neustadt an der Weinstraße
März 2005	Abitur
April 2005 - Oktober 2005	Zivildienst bei der Verbandsgemeindeverwaltung Lambrecht
2005-2010	Studium Technische Informatik an der Universität Mannheim
September 2010	Diplom (Dipl. Inf.) Technische Informatik
2010-2015	Wissenschaftlicher Mitarbeiter an der Friedrich-Alexander-Universität Erlangen-Nürnberg, AG Peschel
2015-2017	Wissenschaftlicher Mitarbeiter an der Friedrich-Schiller-Universität Jena, AG Peschel

Jena, den 23. April 2018

Robert Buschlinger

## D. Ehrenwörtliche Erklärung

Ich erkläre hiermit ehrenwörtlich, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig, ohne unzulässige Hilfe Dritter und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel und Literatur angefertigt habe. Die aus anderen Quellen direkt oder indirekt übernommenen Daten und Konzepte sind unter Angabe der Quelle gekennzeichnet. Bei der Auswahl und Auswertung folgenden Materials haben mir die nachstehend aufgeführten Personen in der jeweils beschriebenen Weise entgeltlich/unentgeltlich geholfen:

- Der in Kapitel 4.3 verwendete gekoppelte Halbleiter-Bloch / FDTD - Code wurde in Zusammenarbeit mit Dr. Michael Lorke von der Universität Bremen entwickelt.
- Im Übrigen waren jeweils die Koautoren der angeführten Veröffentlichungen (s. Anhang Publikationsliste) an der Interpretation der Ergebnisse beteiligt.

Weitere Personen waren an der inhaltlich-materiellen Erstellung der vorliegenden Arbeit nicht beteiligt. Insbesondere habe ich hierfür nicht die entgeltliche Hilfe von Vermittlungs bzw. Beratungsdiensten (Promotionsberater oder andere Personen) in Anspruch genommen. Niemand hat von mir unmittelbar oder mittelbar geldwerte Leistungen für die Arbeiten erhalten, die im Zusammenhang mit dem Inhalt der vorgelegten Dissertation stehen. Die Arbeit wurde bisher weder im In- noch im Ausland in gleicher oder ähnlicher Form einer anderen Prüfungsbehörde vorgelegt. Die geltende Prüfungsordnung der Physikalisch- Astronomischen Fakultät ist mir bekannt. Ich versichere ehrenwörtlich, dass ich nach bestem Wissen die reine Wahrheit gesagt und nichts verschwiegen habe.

Jena, den 23. April 2018

Robert Buschlinger