

Lokalisation ultrakurzer Laserpulse in randomisierten Nanostrukturen

Dissertation

Dominik Differt

Molekül- und Oberflächenphysik
Fakultät für Physik
Universität Bielefeld

Betreut durch

Prof. Dr. Walter Pfeiffer

Bielefeld, 23.03.2016

“Human beings, who are almost unique in having the ability to learn from the experience of others, are also remarkable for their apparent disinclination to do so.”

D. Adams and M. Carwardine, *Last chance to see* [1]

Inhaltsverzeichnis

1	<i>Einleitung</i>	1
2	<i>Beschreibung und Darstellung ultrakurzer Laserpulse</i>	4
2.1	Ebene Wellengleichung	4
2.2	Spektrale und zeitliche Beschreibung von Femtosekunden-Laserpulsen	5
2.3	Poincaré-Darstellung	9
3	<i>Spektrale Interferometrie</i>	15
3.1	Rekonstruktion der spektralen Phase	15
3.2	Experimenteller Aufbau der spektralen Interferometrie	17
4	<i>Vektorfeldsynthesizer</i>	20
4.1	Experimenteller Aufbau des Vektorfeldsynthesizers	20
4.1.1	Funktionsweise des SLM-Displays	22
4.1.2	Aktive Phasenstabilisierung	25
4.1.3	Ansteuerung des Pulsformers	27
4.2	Eichung des Vektorfeldsynthesizers	28
4.2.1	Wellenlängeneichung	29
4.2.2	Phaseneichung	30
4.3	Charakterisierung des Vektorfeldsynthesizers	33
4.3.1	Zeitliche Stabilität und Restphase	33
4.3.2	Abtastung der Poincaré-Ebene	35
4.3.3	Polarisationsdrehung eines spektralen Fensters	36
4.4	Zusammenfassung	40
5	<i>Anderson-Lokalisierung in nanotexturierten Absorberschichten</i>	42
5.1	Überwindung des Yablonovitch-Limits	43
5.2	Prinzip der Anderson-Lokalisierung	48
5.3	Anderson-Lokalisierung in Dünnschichtsolarzellen	52
5.3.1	Charakterisierung von a-Si:H Dünnschichtsolarzellen	55
5.3.2	Spektrale Moden im Streulicht von Dünnschichtsolarzellen	59
5.3.3	Zeitliche Rekonstruktion des Streulichtes	63
5.3.4	Ausschluss von Strukturanomalien als Ursache der Lichtlokalisierung	64
5.3.5	Bestimmung des dimensionslosen Leitwertes g	68
5.3.6	Alternativer Nachweis der Modenlokalisierung	74
5.4	Anderson-Lokalisierung in lasertexturierten a-Si:H-Schichten	82

5.4.1	Laserinduzierte Nanotexturierung auf a-Si:H-Schichten	82
5.4.2	Charakterisierung der Nanotexturierung	84
5.4.3	Zeitliche Pulspropagation	91
5.4.4	Dimensionsloser Leitwert g in laserstrukturierten Solarzellen	92
5.5	Zusammenfassung	94
6	<i>Ultraschnelle Nanolokalisierung in randomisierten Medien</i>	96
6.1	Prinzip der Zeitumkehr	98
6.2	Zeitumkehrinvarianz der Maxwell-Gleichungen	101
6.3	Konstruktion und Charakterisierung der Streustruktur	102
6.4	Simulationsdetails	110
6.4.1	Zeitumkehr zur räumlichen Nanolokalisierung	112
6.4.2	Adaptive Optimierung zur räumlichen Nanolokalisierung	112
6.4.3	Maß für die räumliche Lokalisierung	114
6.5	Fluenzlokalisierung mittels eines Aufpunktes	115
6.6	Zeitliche Lokalisierung mittels eines Aufpunktes	119
6.7	Fluenzlokalisierung durch multiple Aufpunkte	121
6.8	Zeitliche Fokussierung durch multiple Aufpunkte	125
6.9	Refokussierung mit sphärischer Wiederhallkammer	129
6.10	Vergleich zwischen Zeitumkehr und adaptiver Optimierung	131
7	<i>Adaptive Nahfeldkontrolle in randomisierten 3D Streustrukturen</i>	133
7.1	Herstellung randomisierter Streustrukturen	134
7.2	Zwei-Photonen-Fluoreszenzmikroskop	136
7.3	Probencharakterisierung	138
7.4	Fluoreszenzoptimierung mittels eines genetischen Algorithmus	142
7.5	Diskussion der raumzeitlichen Fluoreszenzkontrolle	150
7.6	Zusammenfassung	151
8	<i>Zusammenfassung und Ausblick</i>	153
	<i>A. Publikationen</i>	158
	<i>B. Akronyme</i>	160
	<i>Literaturverzeichnis</i>	161
	<i>Danksagung</i>	169

1 Einleitung

Lichtlokalisierungseffekte in randomisierten Medien sind von großer Wichtigkeit in einer Vielzahl von Anwendungen [2, 3]. Ob es sich um die Absorptionsmechanismen in der Photovoltaik [4–6] oder um die ultraschnelle Kontrolle von Plasmonen in randomisierten Nanostrukturen [2, 7, 8] handelt: Die Lichtstreuung in solchen Systemen führt zur Ausbildung von optischen Nahfeldern, die eine komplizierte räumliche und zeitliche Propagation aufweisen. Kontrolliert man das Zusammenspiel zwischen optischen Nahfeldern, Oberflächen und anregenden Fernfeldmoden, lässt sich Licht raumzeitlich innerhalb von randomisierten Streustrukturen lokalisieren. Das ermöglicht neue Ansätze in der modernen Chip-Technologie [9], Entwicklung von Sensoren [10] und Optimierung von Dünnschichtsolarzellen [4–6, 11, 12]. In dieser Dissertation werden verschiedene Aspekte der raumzeitlichen Lokalisierung von ultrakurzen Lichtpulsen in randomisierten Medien behandelt. Im Folgenden wird ein Überblick über diese gegeben.

Bei Dünnschichtsolarzellen wird versucht, durch einen sehr geringen Materialeinsatz und niedrige Herstellungstemperaturen die Produktionskosten zu reduzieren. Durch die immer dünneren Absorberschichten verringert sich jedoch auch die Lichtabsorption und somit die Effizienz einer Dünnschichtsolarzelle. Um dem entgegenzuwirken, werden verschiedene Methoden zur Absorptionserhöhung angewandt [13–15], wie etwa Lichtbeugungsstrukturen [4] und randomisierte Oberflächentexturierungen [16, 17]. Obwohl randomisierte Oberflächentexturierungen kommerziell eingesetzt werden, wird der Absorptionsmechanismus immer noch kontrovers diskutiert [5, 6]. Häufig wird der Lichteinfang in theoretischen Modellen als Einkopplung von Fernfeldmoden in einen Wellenleiter beschrieben. Eine Dünnschichtsolarzelle fungiert dann als 2D-Wellenleiter, in dessen Ebene das Licht propagiert, bis es absorbiert wurde. In dieser Arbeit wird gezeigt, dass dieses einfache Bild im nahinfraroten Spektralbereich nicht zulässig ist. Die Absorption einer Dünnschichtsolarzelle ist dort überraschend hoch, obwohl der Absorptionskoeffizient der Absorberschicht sehr gering ist. Es wird nachgewiesen, dass die Absorption im nahinfraroten Spektralbereich primär durch Anderson-lokalisierte Moden verursacht wird. Es handelt sich dabei um einen durch Unordnung induzierten Phasenübergang in der Elektronen- bzw. Lichtleitfähigkeit [18–20]. Durch die Kombination verschiedener Messmethoden wird es möglich, diesen Lokalisierungsprozess als dominanten Absorptionsmechanismus im nahinfraroten Spektralbereich zu identifizieren (siehe Kapitel 5).

Plasmonische Nanostrukturen ermöglichen die Steuerung der raumzeitlichen Ausbreitung optischer Nahfelder [7, 21–24]. Dabei wird ausgenutzt, dass durch die Nanostruktur eine

Kopplung zwischen propagierenden Fernfeldmoden und Nahfeldmoden auftritt. Die Beleuchtung mit verschiedenen Fernfeldern induziert unterschiedliche Nahfelder innerhalb der Nanostruktur. Durch die gezielte Variation des Fernfeldes kann so die Nahfeldverteilung in seiner räumlichen und zeitlichen Ausprägung gesteuert werden. Für reguläre Systeme wurde dies bereits gezeigt [21, 25]. Dort dienten metallische Nanostrukturen als optische Antennen für ultrakurze Lichtpulse im Fernfeld. Deren zeitliche Struktur wurde durch adaptive Optimierungsverfahren variiert, bis die gewünschte Nahfeldlokalisierung auftrat. Die Nahfelder konnten räumlich so konzentriert werden, dass deren Ausdehnung unterhalb des Beugungslimits liegt.

Randomisierte Nanostrukturen rücken immer weiter in den Fokus nanooptischer Anwendungen [26]. Sie ermöglichen eine flexible „bottom-up“-Herstellung von Nanostrukturen. Gittereffekte, wie sie beispielsweise bei photonischen Kristallen auftreten, werden vermieden [27]. Die Kontrolle optischer Nahfelder ist dabei eine große Herausforderung. In regulären Strukturen wird die gewünschte Funktionalität, wie beispielsweise die Lichtkonzentration, durch speziell designte Antennenstrukturen erreicht. In einem randomisierten Medium ist die strukturelle Ausprägung nur durch statistische Parameter, wie z. B. eine mittlere Dichte oder Größenverteilung von Partikeln, beschreibbar. Dementsprechend kompliziert kann die räumliche Ausbreitung und zeitliche Dynamik der induzierten Nahfelder werden. In einer theoretischen Arbeit konnte gezeigt werden, wie optische Nahfelder innerhalb einer randomisierten Nanostruktur raumzeitlich fokussiert werden können [28]. Dazu wurde ein sogenannter Zeitumkehralgorithmus verwendet. Dieser Ansatz wäre für eine experimentelle Umsetzung höchst interessant, wenn die Effizienz des Zeitumkehralgorithmus ausreichend groß ist. Im Rahmen dieser Arbeit werden numerische Simulationen durchgeführt (siehe Kapitel 6), welche die Kontrolle optischer Nahfelder durch einen Zeitumkehralgorithmus mit adaptiven Optimierungsverfahren vergleicht. Dabei werden die Simulationen möglichst realistisch gestaltet. So wird es möglich, die Erkenntnisse aus den numerischen Berechnungen für die Umsetzung eines Experiments zur raumzeitlichen Nanolokalisierung von Licht zu verwenden (siehe Kapitel 7).

Die theoretischen Grundlagen zur Beschreibung und Darstellung ultrakurzer Laserpulse werden in Kapitel 2 behandelt. Dabei wird besonders auf die Darstellung ultrakurzer Lichtpulse eingegangen, um deren gesamten Informationsgehalt visualisieren zu können. In den durchgeführten Experimenten werden kompliziert geformte Laserpulse detektiert und charakterisiert. Als Messmethode kommt die spektrale Interferometrie zum Einsatz, welche in Kapitel 3 beschrieben wird. In Kapitel 4 wird der Vektorfeldsynthesizer vorgestellt, der zur Erzeugung geformter Lichtpulse eingesetzt wird. In Kapitel 5 wird die ortsaufgelöste Streulichtspektroskopie angewandt, um Anderson-Lokalisierung in Dünnschichtsolarzellen nachzuweisen. Die Anderson-Lokalisierung kann dann als dominanter Absorptionsmechanismus identifiziert werden. Des Weiteren wurden a-Si:H-Absorberschichten untersucht. Deren Oberfläche konnte durch die Bestrahlung

mit verstärkten ultrakurzen Lichtpulsen eine randomisierte Struktur aufgeprägt werden. Die gleiche Methode lieferte auch in diesen Absorberschichten den Nachweis von Anderson-lokalisierten Moden. Zur Untersuchung der raumzeitlichen Subwellenlängenfokussierung in randomisierten Nanostrukturen werden in Kapitel 6 ein Zeitumkehralgorithmus und adaptive Optimierungsverfahren eingesetzt. Basierend auf diesen numerischen Simulationen werden erste Experimente zur Kontrolle optischer Nahfelder in randomisierten Nanostrukturen in Kapitel 7 vorgestellt. Die Resultate dieser Arbeit werden in Kapitel 8 zusammengefasst.

2 Beschreibung und Darstellung ultrakurzer Laserpulse

Dieses Kapitel behandelt die grundlegenden Konzepte zur Beschreibung von Femtosekunden-Laserpulsen und stellt verschiedene Methoden vor, um diese graphisch darzustellen. In Kapitel 2.1 wird die ebene Wellengleichung aus den Maxwell-Gleichungen hergeleitet. Diese werden zur mathematischen Darstellung von Femtosekunden-Laserpulsen in Kapitel 2.2 verwendet. Dort wird das spektrale und zeitliche Verhalten eines Beispieldulses mit vollständiger Polarisationsformung exemplarisch diskutiert. Zur Visualisierung solcher Laserpulse wird die Poincaré-Darstellung in Kapitel 2.3 eingeführt.

2.1 Ebene Wellengleichung

Die Maxwell-Gleichungen lauten im Vakuum [29]:

$$\nabla \mathbf{E} = \frac{\rho}{\varepsilon_0} \quad (2.1)$$

$$\nabla \mathbf{B} = 0 \quad (2.2)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (2.3)$$

$$\nabla \times \mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{j} + \mu_0 \varepsilon_0 \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \quad (2.4)$$

Anwendung von $\nabla \times$ auf Gleichung 2.3 und Einsetzen in die zeitliche Ableitung $\partial/\partial t$ von Gleichung 2.4 liefert die Wellengleichung [30] für die Propagation im isotropen und quellenfreien Raum (für das magnetische Feld gilt die analoge Gleichung). Sie lautet

$$\frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = c^2 \Delta \mathbf{E}. \quad (2.5)$$

Eine periodische Lösung der Wellengleichung in kartesischen Koordinaten ist eine ebene Welle. Für diese ist im Folgenden die Propagationsrichtung, ohne Beschränkung der

Allgemeinheit, entlang der z -Achse festgelegt. Für einen Ortspunkt z und zu einem Zeitpunkt t lautet sie

$$\mathbf{E}(t, z) = \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} A_x e^{i(kz - \omega t + \varphi_x)} \\ A_y e^{i(kz - \omega t + \varphi_y)} \end{pmatrix}, \quad (2.6)$$

wobei k die Wellenzahl, ω die Kreisfrequenz und φ_x und φ_y die zeitlichen Phasen der Polarisationskomponenten sind. Die Feldamplitude in x - und y -Richtung wird mit A_x bzw. A_y bezeichnet. Wenn die zeitlichen Phasen identisch sind, spricht man von linearer Polarisation. Der Feldvektor schwingt dann in einer Richtung in der x - y -Ebene. Die Schwingungsrichtung ist dabei durch das Verhältnis der Feldamplituden bestimmt.

Eine ebene Welle ist unendlich weit im Raum ausgedehnt und repräsentiert damit den Idealfall einer monochromatischen Laserstrahlung. Die Entwicklung von Lichtfeldern mit komplizierten raumzeitlichen Ausprägungen in ebene Wellen stellt sich oft als nützlich heraus. Dabei muss auch beachtet werden, dass die Energie der ebenen Welle infolge der unendlichen Ausdehnung ebenfalls unendlich ist. Es wird hier außerdem die Vereinbarung getroffen, dass die physikalischen elektrischen Felder durch die Realteile der komplexen Größen beschrieben werden.

Im Rahmen von numerischen Simulationen in Kapitel 6 wird es notwendig sein, kugelsymmetrische Lösungen der Wellengleichung zu betrachten. Sie ergeben sich analog zu einer ebenen Welle, indem die Wellengleichung 2.5 in Kugelkoordinaten gelöst wird.

2.2 Spektrale und zeitliche Beschreibung von Femtosekunden-Laserpulsen

Im vorausgegangenen Kapitel 2.1 wurde gezeigt, wie eine ebene Welle in der Zeitdomäne ausgedrückt wird. Äquivalent dazu kann aber auch eine Beschreibung durch die Fourier-transformierte (FT) Funktion im Frequenzraum verwendet werden. Die Fourier-Transformation $\hat{f}(\xi) = FT(f(x))$ einer (Lebesgue-)integrierbaren Funktion $f(x)$ lautet

$$\hat{f}(\xi) = \int_{-\infty}^{\infty} f(x) e^{-ix\xi} dx \quad (2.7)$$

und die Rücktransformation entsprechend

$$f(x) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \hat{f}(\xi) e^{ix\xi} d\xi \quad (2.8)$$

Für eine in x -Richtung polarisierte ebene Welle am Ursprung $z=0$ wird nun die Fourier-transformierte Funktion gebildet:

$$\begin{aligned} \hat{E}_x(\omega, \phi) &= \int_{-\infty}^{\infty} E_x(\omega_0, t) e^{-i\omega t} dt \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} A_x e^{-i(\omega_0 t + \phi_x)} e^{-i\omega t} dt = A_x e^{i\phi} 2\pi \delta(\omega + \omega_0). \end{aligned} \quad (2.9)$$

Die ebene Welle wird jetzt im Frequenzraum durch die Delta-Distribution δ , welche einen singulären Beitrag der Amplitude A_x bei der Zentralfrequenz ω_0 liefert, beschrieben. Die Phasenlage wird durch die spektrale Phase ϕ ausgedrückt. Die Rücktransformation lautet:

$$E_x(t, z) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \hat{E}_x(\omega, \phi) e^{i\omega t} dt. \quad (2.10)$$

Zur Beschreibung von kurzen Lichtpulsen wird die Superposition ebener Wellen verwendet. Diese erfüllt dann ebenfalls die Wellengleichung. Für einen in z -Richtung propagierenden Lichtpuls lautet das elektrische Feld am Ursprungsort dann:

$$\mathbf{E}(t, z) = \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{A}(k) e^{i(kz - \omega t + \phi(t))} dk. \quad (2.11)$$

Über den zeitlichen Verlauf des Pulses kann sich nun aufgrund von Dispersion die zeitliche Phase ändern. Aus der zeitlichen Phase kann durch Bildung der zeitlichen Ableitung die Momentanfrequenz bestimmt werden:

$$\omega(t) = \frac{d\phi(t)}{dt} \quad (2.12)$$

Die Fourier-transformierte Darstellung eines kurzen Lichtpulses lautet:

$$\mathbf{E}(\omega, \phi) = \mathbf{A}(\omega) e^{i(\phi(\omega))}. \quad (2.13)$$

Die auftretende spektrale Phase $\phi(\omega)$ kann für nicht zu komplizierte Phasenverläufe in eine Taylor-Reihe um die Zentralfrequenz ω_0 entwickelt werden.

$$\phi(\omega) = \phi_0 + \left. \frac{d\phi}{d\omega} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2} \left. \frac{d^2\phi}{d\omega^2} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{6} \left. \frac{d^3\phi}{d\omega^3} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0)^3 + \dots, \quad (2.14)$$

Der erste Koeffizient ist die absolute Phase. In der zeitlichen Entwicklung des Pulses führt sie zu einer Verschiebung der Feldoszillationen gegenüber der Einhüllenden. Der zweite Term wird als lineare Phase bezeichnet und führt im Zeitraum zu einer zeitlichen Verschiebung des Pulses bzw. einer seiner Polarisationskomponenten gegenüber der anderen. Die beiden ersten Koeffizienten haben keinen Einfluss auf die Form der zeitlich Einhüllenden. Das gilt jedoch nicht mehr für den dritten Koeffizienten. Die quadratische spektrale Phase (GVD, engl. Group Velocity Dispersion) fügt eine frequenzabhängige zeitliche Verzögerung hinzu und bewirkt somit eine Veränderung der zeitlichen Pulsstruktur. Ein bandbreitebegrenzter Puls wird dadurch verbreitert. Durch den vierten Koeffizienten, die TOD (engl. Third Order Dispersion), bilden sich, abhängig vom Vorzeichen, zeitlich Vor- bzw. Nachpulse aus. In der Praxis lässt sich für einen Laserpuls, der ein Material wie z. B. Glas durchläuft, die akkumulierte Phase in Form dieser ersten Taylor-Koeffizienten ausdrücken. Mit der spektralen Phase der y-Polarisationskomponente wird analog verfahren.

Zur Veranschaulichung wird der folgende ultrakurze Laserpuls betrachtet:

$$\begin{pmatrix} E_x(\omega, \phi) \\ E_y(\omega, \phi) \end{pmatrix} = A(\omega) \begin{pmatrix} 1 \\ e^{i(15 \text{ fs } \omega + 100 \text{ fs}^2 \text{ rad}^{-1} \omega^2)} \end{pmatrix} \quad (2.15)$$

Als spektrale Amplitude $A(\omega)$ wurde die Gauß-Funktion $A(\omega) = \exp\left(-\left(\frac{\omega - 2.35 \text{ rad fs}^{-1}}{0.2 \text{ fs}^{-1}}\right)^2\right)$ angenommen. Die Polarisationskomponenten haben identische spektrale Amplituden. Die spektrale Phase $\phi_x(\omega)$ der x -Polarisation ist konstant Null. Dadurch wird im Zeitraum der für ein gegebenes Spektrum kürzeste Puls realisiert. Im Folgenden wird dieser als „bandbreitebegrenzt“ bezeichnet. Für die y -Polarisation wurde eine lineare Phase von $d\phi_y/d\omega|_{\omega_0} = 15 \text{ fs}$ und eine GVD von $d^2\phi_y/d\omega^2|_{\omega_0} = 100 \text{ fs}^2 \text{ rad}^{-1}$ benutzt. Die spektrale Amplitude $A(\omega)$ und spektrale Phase $\phi(\omega)$ sind in Abbildung 1a gezeigt. Die Gauß-förmige spektrale Amplitude ist um die Zentralfrequenz ω_0 zentriert. Die spektrale Phase der y -Polarisationskomponente ist parabelförmig. Der lineare Anteil der spektralen Phase bewirkt, dass der Scheitelpunkt der Parabel gegenüber der Zentralfrequenz ω_0 nach kleineren Kreisfrequenzen verschoben wird.

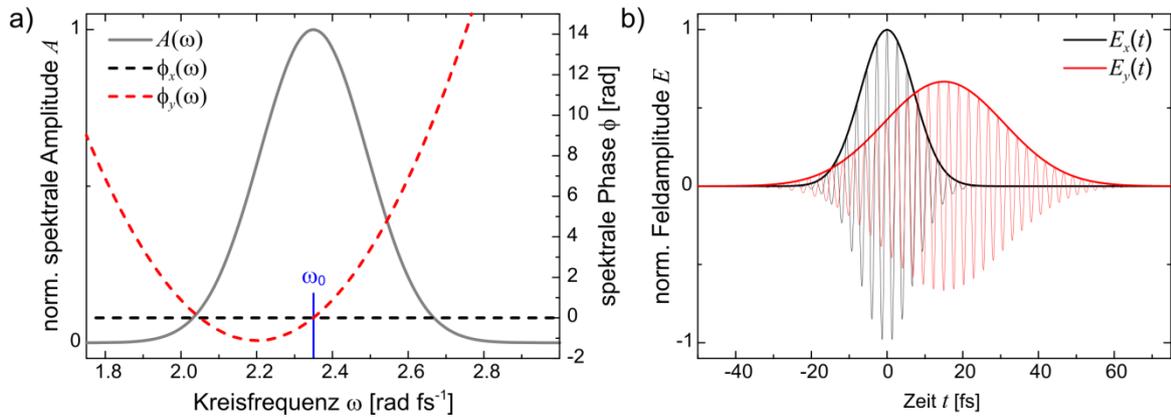


Abb. 1: Beispiel für einen ultrakurzen Laserpuls (siehe Gl. 2.15). a) Gauß-förmige spektrale Amplitude A (graue Linie) und spektrale Phasenfunktionen ϕ für x -Polarisation (schwarze gestrichelte Linie) und y -Polarisation (rote gestrichelte Linie). b) Zeitliche Darstellung des im Frequenzraum definierten Pulses durch Fourier-Transformation. Gezeigt sind das elektrische Feld E und die Feldeinhüllende der x -Komponente (schwarze Linie) und der y -Komponente.

Durch Anwendung von Gleichung 2.8 wird der Puls in den Zeitraum transformiert. Für die x -Komponente ergibt sich durch die Nullphase ein bandbreitebegrenzter Puls (siehe Abbildung 1b, schwarze Kurve). Die Bandbreitebegrenzung bedeutet dabei, dass eine Gauß-förmige spektrale Amplitude mit einer Nullphase nach einer Fourier-Transformation die Gauß-Verteilung mit der geringsten Halbwertsbreite (FWHM, engl. Full Width at Half Maximum) erzeugt. Für einen Gauß-förmigen Puls lässt sich leicht zeigen, dass die FWHM-Breiten im Frequenzraum $\Delta\omega$ und Zeitraum Δt folgender Beziehung genügen:

$$\Delta\omega\Delta t = 4 \ln 2. \quad (2.16)$$

Um einen zeitlich möglichst kurzen Lichtpuls zu generieren, ist also ein breites Spektrum notwendig. Je schmaler die spektrale Verteilung wird, desto länger wird der bandbreitebegrenzte Puls im Zeitraum. Für die y -Komponente bewirkt die GVD der Phase eine zeitliche Verbreiterung des Pulses (siehe Abbildung 1b, rote Kurve). Der zeitliche Versatz des Amplitudenmaximums wird durch die lineare Phase hervorgerufen.

Die Darstellung im Frequenzraum in Abbildung 1 a) veranschaulicht, welche spektralen Anteile vertreten sind und was für Phaseneffekte, wie z. B. Dispersion durch Glas, auftreten. In der zeitlichen Darstellung in Abbildung 1 a) lässt sich hingegen sofort die zeitliche Verschiebung zwischen den Polarisationskomponenten und deren unterschiedlichen Pulslängen erkennen. Betrachtet man die Feldoszillationen bei $t = -15\text{fs}$, so erkennt man, dass die Feldoszillationen der Polarisationskomponenten gleichphasig schwingen. Das Licht ist zu diesem Zeitpunkt linear polarisiert. Zum Zeitpunkt $t = +15\text{fs}$ schwingen die Feldoszillationen gegenphasig und das Licht ist ebenfalls linear polarisiert. Die Schwingungsebene des elektrischen Feldvektors ist jedoch um 90° gegenüber der gleichphasigen Schwingung gedreht. Die Phasenverschiebung zwischen beiden Polarisationskomponenten ändert sich zwischen beiden Zeitpunkten und das Licht ist elliptisch polarisiert. Eine genauere Quantifizierung des Polarisationszustandes ist in dieser Darstellungsweise nicht hinreichend möglich. Eine geeignete Visualisierung bietet die Poincaré-Darstellung. Sie wird im nachfolgenden Kapitel behandelt.

2.3 Poincaré-Darstellung

Im vorherigen Kapitel 2.2 wurde gezeigt, wie ultrakurze Lichtpulse mathematisch beschrieben werden können. Dabei wurde das elektrische Feld E auf die Basisvektoren eines kartesischen Koordinatensystems \hat{x} , \hat{y} projiziert. Der zeitliche Verlauf des elektrischen Feldes kann so separat auf jeder Basis- bzw. Polarisationsachse betrachtet werden (vgl.: Abbildung 1 a)). In dieser Arbeit werden komplizierte polarisationsgeformte Laserpulse erzeugt, charakterisiert und in Simulationen verwendet. Innerhalb eines einzelnen Laserpulses können sich der Polarisationszustand und dessen Ausrichtung, die Feldamplitude und die Momentanfrequenz stark ändern. Die separate zeitliche Darstellung der x - und y -Polarisationskomponenten kann diese Variationen des elektrischen Feldes nicht hinreichend visualisieren. Als Alternative bietet sich die Poincaré-Darstellung an [31]. Dabei wird ausgenutzt, dass der elektrische Feldvektor innerhalb einer Feldoszillation eine Ellipse beschreibt, wenn sich die Einhüllende des Pulses nur langsam gegenüber der Oszillationsfrequenz des elektrischen Feldes ändert. Ein Beispiel für so eine Ellipse ist in Abbildung 2 gezeigt. Sie korrespondiert zu dem Zeitpunkt $t = 0$ des elektrischen Feldes aus Abbildung 1 b).

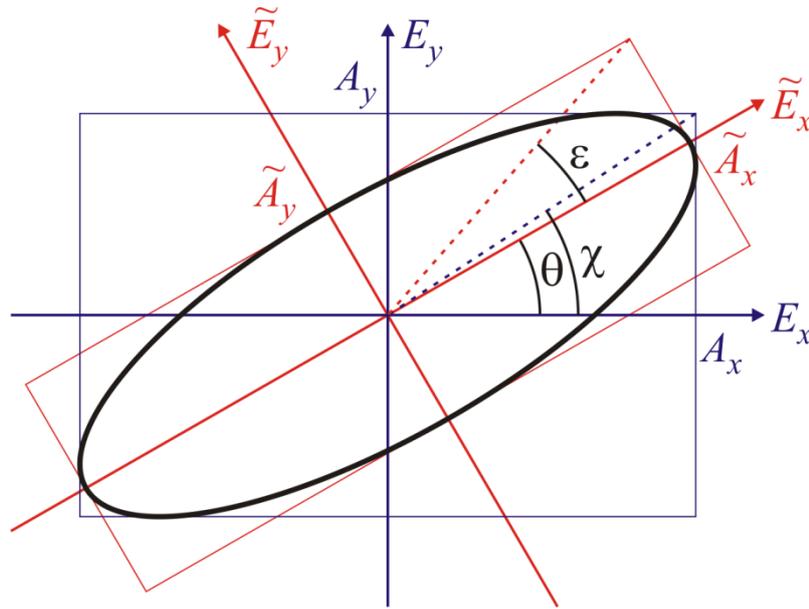


Abb. 2: Beispiel für eine Polarisationsellipse, beschrieben durch den zeitlichen Verlauf des elektrischen Feldvektors. In blau ist die Projektion des elektrischen Feldvektors E auf die kartesischen Basisvektoren E_x und E_y mit den entsprechenden Feldamplituden A_x und A_y gezeigt. Deren Verhältnis bildet den Hilfswinkel χ . In rot entsprechend die Basisvektoren \tilde{E}_x , \tilde{E}_y und die Feldamplituden \tilde{A}_x und \tilde{A}_y in elliptischer Basis. Das Verhältnis dieser Feldamplituden ergibt die Elliptizität ε . Das elliptische Koordinatensystem ist um den Winkel θ gegenüber dem kartesischen gedreht. Adaptiert aus [31].

Das elektrische Feld sei in kartesischen Koordinaten gegeben durch

$$\begin{pmatrix} E_x(t) \\ E_y(t) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} A_x(t) \cos(\omega t + \varphi_x(t)) \\ A_y(t) \cos(\omega t + \varphi_y(t)) \end{pmatrix}. \quad (2.17)$$

Definiert wird nun der Hilfswinkel

$$\chi = \arctan\left(\frac{A_y}{A_x}\right) \in [0, \pi/2]. \quad (2.18)$$

Die Phasendifferenz zwischen den zeitlichen Phasen lautet

$$\delta(t) = \varphi_y(t) - \varphi_x(t). \quad (2.19)$$

Damit ergibt sich die Elliptizität zu

$$\varepsilon = 1/2 \arcsin[\sin(2\chi) \sin(\delta)] \quad (2.20)$$

und die Hauptachsenorientierung wird ausgedrückt durch

$$\theta = \begin{cases} \tilde{\theta} & \in [-\pi/4, \pi/4] \text{ wenn } \chi \leq \pi/4 \\ \tilde{\theta} + \pi/2 & \in [\pi/4, \pi/2] \text{ wenn } \chi > \pi/4 \wedge \tilde{\theta} < 0, \\ \tilde{\theta} - \pi/2 & \in [-\pi/2, -\pi/4] \text{ wenn } \chi > \pi/4 \wedge \tilde{\theta} \geq 0 \end{cases} \quad (2.21)$$

mit

$$\tilde{\theta} = 1/2 \arctan[\tan(2\chi) \cos(\delta)]. \quad (2.22)$$

Die kleine und große Halbachse der Ellipse ergeben sich damit zu

$$\tilde{A}_x = \frac{\sqrt{A_x^2 + A_y^2}}{\sqrt{(\tan(\varepsilon))^2 + 1}} \quad \tilde{A}_y = \tan(\varepsilon) \tilde{A}_x. \quad (2.23)$$

Die totale Phase eines Lichtpulses berechnet sich dann durch

$$\varphi = \varphi_x + \text{sign}(\theta\varepsilon) \arccos\left(\sqrt{\frac{I}{I_x}} \cos(\theta) \cos(\varepsilon)\right) \quad \tilde{A}_y = \tan(\varepsilon) \tilde{A}_x \quad (2.24)$$

mit den Intensitäten $I = I_x + I_y = A_x^2 + A_y^2$. Die totale Phase gibt an, wie sich die Phasenmodulation relativ zum Perihelion der momentanen Ellipse verändert. Die Transformation auf die Poincaré-Ebene ist nicht invertierbar. Um Punkte zurück in ein kartesisches Koordinatensystem zu transformieren, wird eine Lookup-Tabelle verwendet.

Bei der Poincaré-Ebene handelt es sich um eine Kugeloberfläche. Die zweidimensionale Projektion einer Kugeloberfläche ist ein bekanntes Problem [32]. Eine verzerrungsfreie

zweidimensionale Darstellung kann nicht gefunden werden. Es gibt jedoch eine Vielzahl von Kartenprojektionen die unterschiedliche Methoden anwenden, um trotz der Verzerrungen eine gut übersichtliche Darstellung zu erzeugen. Zur Darstellung werden sich in dieser Arbeit die Plattkarte und die Mollweide-Projektion als nützlich erweisen. Konvention sei hier, dass die Standardparallele stets mit dem Null-Polarwinkel und der Null-Breitengrad mit dem Null-Azimutwinkel übereinstimmen. Die Plattkarte ist eine Zylinderprojektion und hat den Vorteil, dass Polar- und Azimutwinkel direkt abgelesen werden können. Die Verzerrung entlang der Azimutrichtung nimmt zu den Polen hin ständig zu. Damit vergrößert sich auch das Flächenelement zu den Polen hin. Die Mollweide-Projektion ist hingegen eine flächentreue Kartenprojektion. Das hat den Vorteil, dass Flächen zu den Polen hin nicht stark vergrößert erscheinen. Die Richtungen werden jedoch, bis auf den Schnittpunkt von Standardparallele und Null-Breitengrad, verzerrt dargestellt.

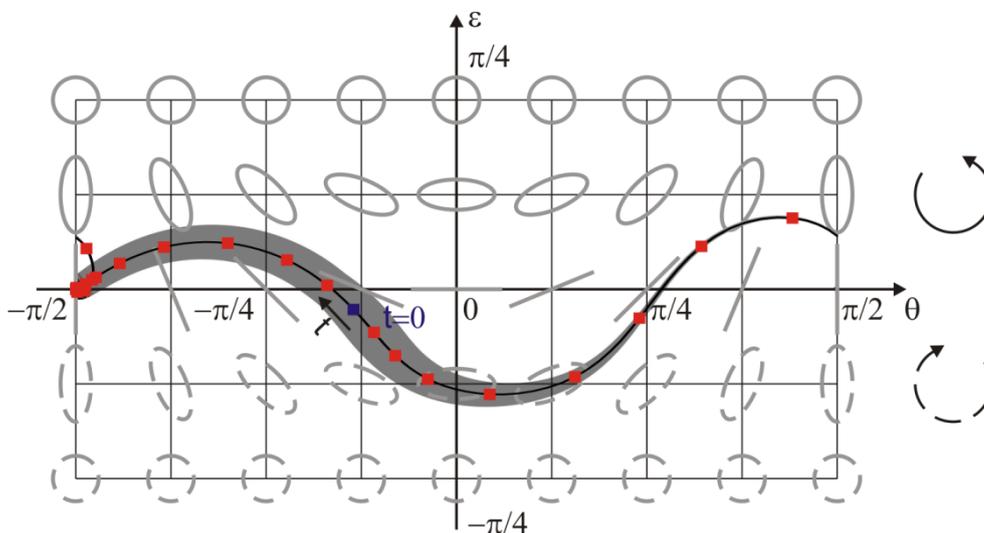


Abb. 3: Poincaré-Darstellung des Beispulpulses in Plattkartenprojektion. Die zeitliche Änderung der Polarisation und Elliptizität ist als schwarze Linie dargestellt. Zeitschritte von 2.5 fs sind durch rote Rechtecke markiert, der Zeitnullpunkt ist blau gefärbt. Positive Werte der Elliptizität stehen für links polarisiertes Licht (durchgezogene Ellipsenlinien), negative Werte entsprechend für rechts polarisiertes Licht (gestrichelte Ellipsenlinien). Als grau schattierte Fläche ist die momentane Gesamtamplitude A_{ges} eingezeichnet. Adaptiert aus [31]

Der Beispulpuls aus Gleichung 2.15 ist in Abbildung 3 als Plattkarte in der Poincaré-Darstellung gezeigt. Die Änderungen in Polarisation und Elliptizität können hier direkt abgelesen werden, indem der schwarzen Linie gefolgt wird. Die Variationsgeschwindigkeit dieser Parameter wird durch zeitlich äquidistante Markierungen (rote Rechtecke) visualisiert. Dies ist jedoch nicht mehr möglich, wenn über größere Zeiten hinweg nur kleine Änderungen in θ und ε auftreten. Die Markierungen überlappen an solchen Stellen. Im gezeigten Beispiel tritt dies bei $\theta = \pi/2$, $\varepsilon = 0$ auf. Es ist außerdem wichtig anzuzeigen, welche zeitliche Feldamplitude an jedem

Punkt des Pfades durch die Poincaré-Ebene vorherrscht. Das ist durch die grau schattierte Fläche dargestellt. Dazu wurde zu jedem Polarisationszustand, orthogonal zum momentanen Verlauf der Polarisation in der Poincaré-Ebene, die gesamte Feldamplitude $A_{ges} = \sqrt{A_x^2 + A_y^2}$ in positive und negative orthogonale Richtung aufgetragen. Die Entfernung der grauen Fläche von dem momentanen Polarisationszustand skaliert dabei mit der Größe der zu diesem Zeitpunkt vorherrschenden Feldamplitude. Dadurch kann identifiziert werden, welche Polarisationszustände mit einer signifikanten Feldamplitude einhergehen.

Vollständig zirkular polarisiertes Licht findet man in dieser Darstellung an den Polstellen $\varepsilon = \pm \pi/4$. Die Verzerrung der Projektion ist hier am größten, da an diesem Punkt θ unbestimmt ist. Es wäre nicht möglich, Fehlerbalken im Bereich der Polstellen zu visualisieren. Eine alternative Darstellung als Mollweide-Projektion ist in Abbildung 4 gezeigt. Die Polstellen werden nun durch nur einen Punkt visualisiert. Der zeitliche Verlauf des Beispulpulses wird in Richtung der Polstellen weniger stark verzerrt dargestellt. Durch die flächentreue Projektion wird es in Kapitel 4.3.2, Abbildung 15 ermöglicht, Messfehler vergleichbar auf der gesamten Poincaré-Ebene darzustellen.

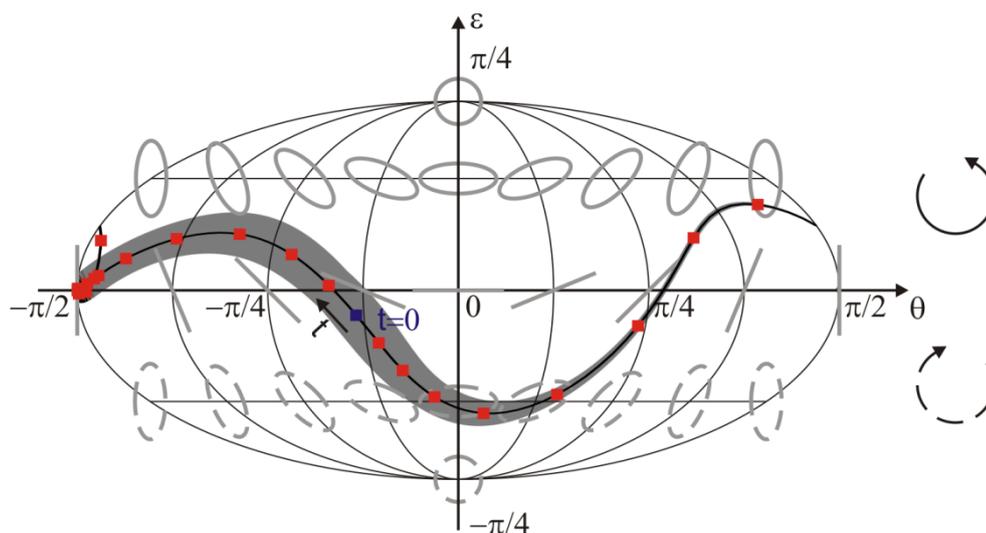


Abb. 4: Poincaré-Darstellung des Beispulpulses in Mollweide-Projektion. Die Bezeichnungen sind wie in Abbildung 3 gewählt.

Ein großer Nachteil der zweidimensionalen Poincaré-Darstellung ist, dass nur die Gesamtamplitude A_{ges} darstellbar ist. Die Amplituden A_x und A_y können nicht separat gezeigt werden. Aus diesem Grund wird eine weitere, qualitative Darstellung von ultrakurzen Lichtpulsen im Zeitraum eingeführt [31]. Es handelt sich dabei um eine quasi-3D-Darstellung, in der die zeitlich variierende Ausrichtung der momentanen Polarisationsellipsen visualisiert wird. Dazu wird zu jedem Zeitpunkt die Polarisationsellipse (vgl.: Abbildung 2) bestimmt und über die Zeitachse hinweg aufgetragen. Für den Beispulpuls ist dies in Abbildung 5 gezeigt. Die Elliptizität ε ,

Drehung θ und Amplituden \tilde{A}_x und \tilde{A}_y der Ellipsen wurden dabei, wie oben beschrieben, berechnet. Die Momentanfrequenz $\omega(t)$ ist durch die Farbe der Ellipsen kodiert. Dadurch ergibt sich eine sehr intuitive Darstellung des komplexen Laserpulses. Es ist gut zu erkennen, wie zu Beginn der Puls größtenteils in x -Richtung polarisiert ist. Anschließend dreht die Polarisation kontinuierlich, bis der Puls am Ende vollständig in y -Richtung polarisiert ist. Die Intensität lässt sich dabei aus der Größe der Ellipsen ablesen. Die Momentanfrequenz $\omega(t)$ wird über die Farbe der Ellipsen kodiert. Grün wird für die Zentralfrequenz ω_0 verwendet, rot für niedrigere und blau für höhere Frequenzen.

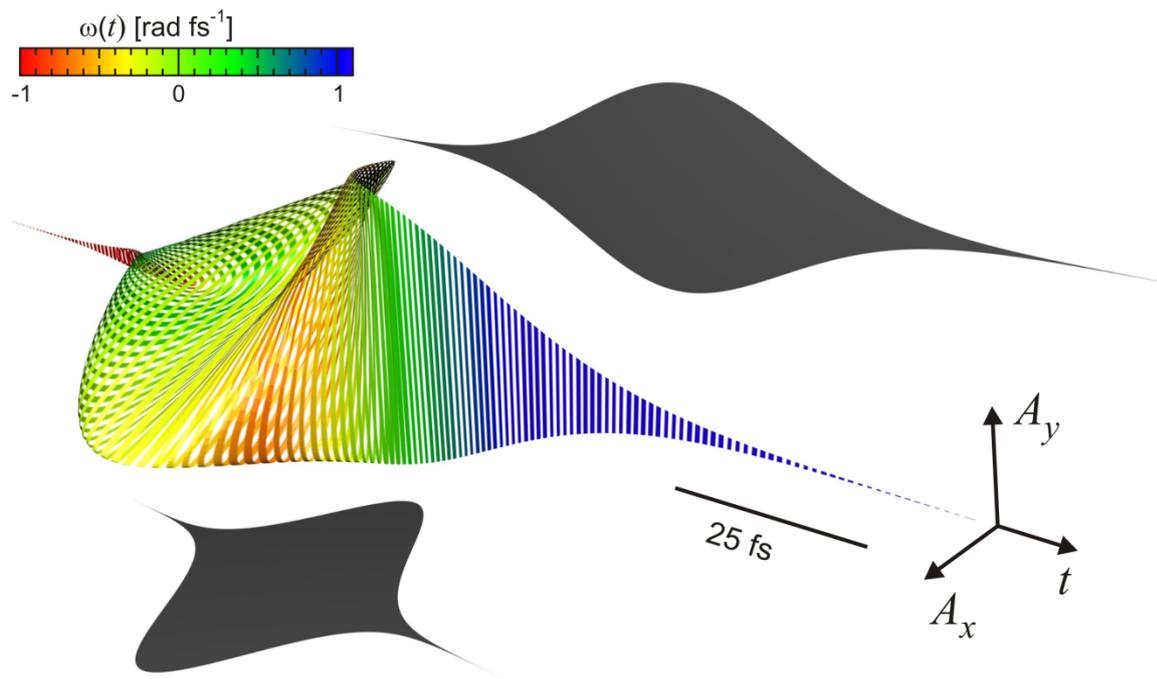


Abb. 5: Quasi-3D-Darstellung des ultrakurzen exemplarischen Laserpulses aus Kapitel 2.2. Die Projektionen auf die x - und y -Achse sind schattiert dargestellt.

3 Spektrale Interferometrie

Zur Messung der zeitlichen Struktur von polarisationsgeformten Pulsen werden in dieser Arbeit zwei verschiedene Methoden verwendet. Ein kommerzielles SPIDER (engl. Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction) [33] (A P E: SPIDER) wird zur Vermessung des Laserpulses am Ausgang des Laseroszillators verwendet. Es handelt sich dabei um eine nichtlineare interferometrische Messmethode im Frequenzraum. Durch die Verwendung eines nichtlinearen Effektes wird jedoch eine hohe Laserleistung von etwa 100 mW benötigt. Für geringe Pulsintensitäten ist diese Methode nicht geeignet. Durch den nichtlinearen Prozess sinkt auch die Genauigkeit, mit der die spektrale Phase rekonstruiert werden kann, da das elektrische Feld quadratisch eingeht. Das SPIDER kommt deshalb nur zur Charakterisierung des Pulses am Oszillatorausgang zum Einsatz. Die Laserpulse weisen dort eine bandbreitebegrenzte FWHM-Breite in der zeitlichen Intensität von 13 fs auf, die mit dem SPIDER gemessene Pulslänge (FWHM-Breite der Intensität) beträgt 15.5 fs. Auf dem Weg zum Experiment durchläuft der Laserstrahl ein Linsenteleskop, wodurch etwa $140 \text{ fs}^2 \text{ rad}^{-1}$ GVD auf die spektrale Phase des Pulses addiert werden. Die Pulslänge (FWHM-Breite der Intensität) beträgt dann 30 fs. Dieser Lichtpuls wird im Weiteren als „**Referenzpuls**“ bezeichnet.

Durch die Verwendung des bekannten Referenzpulses kann mithilfe der spektralen Interferometrie (SI) [34, 35] jeder weitere unbekannte Puls charakterisiert werden. Dazu werden der Referenzpuls und der unbekannte Puls zur Interferenz gebracht und das resultierende Spektrum für jede Polarisationskomponente gemessen. Es handelt sich um eine lineare Methode, wodurch eine hohe Genauigkeit erzielt werden kann und auch Pulse mit sehr geringer Intensität noch vermessen werden können. In Kapitel 3.1 wird der mathematische Algorithmus zur Rekonstruktion der spektralen Phase vorgestellt. Dem schließt sich in Kapitel 3.2 die Beschreibung des verwendeten Aufbaus an.

3.1 Rekonstruktion der spektralen Phase

Das spektrale Interferenzsignal setzt sich aus dem Feld des Referenzpulses $E_0(\omega) = A_0(\omega)e^{i\phi_0(\omega)}$ und dem Feld des unbekanntes Pulses $E_u(\omega) = A_u(\omega)e^{i\phi_u(\omega)+i\omega\tau}$ wie folgt zusammen:

$$I(\omega) = |E_0(\omega) + E_u(\omega)|^2 = I_0(\omega) + I_u(\omega) + 2A_0(\omega)A_u(\omega)\cos(\phi_u(\omega) - \phi_0(\omega) + \omega\tau) \quad (3.1)$$

Dabei wurden die Intensitäten $I_0(\omega)=|E_0(\omega)|^2$ und $I_u(\omega)=|E_u(\omega)|^2$ verwendet. Sie können durch Abschattung des entsprechenden anderen Laserstrahls im Spektrometer direkt gemessen werden. Nach Subtraktion dieser Intensitäten und anschließender Division durch die Amplituden $2A_0(\omega)A_u(\omega)=2\sqrt{I_0(\omega)}\sqrt{I_u(\omega)}$ bleibt die phasenbedingte Modulation des SI-Signals übrig:

$$S(\omega) = \cos(\phi_u(\omega) - \phi_0(\omega) + \omega\tau) = \cos(\Phi(\omega)) \quad (3.2)$$

Dabei wurden die einzelnen Phasenbeiträge zu $\Phi(\omega)$ zusammengefasst. Die Anwendung von der Umkehrfunktion \arccos ist an dieser Stelle nicht möglich, da diese Singularitäten aufweist und zudem nicht eindeutig ist, da sie nur zwischen -1 und 1 definiert ist. Stattdessen wird die Fourier-Transformierte FT gebildet.

$$\begin{aligned} \text{FT}(S(\omega))(t) &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{1}{2} (e^{i\Phi(\omega)} + e^{-i\Phi(\omega)}) e^{i\omega t} d\omega \\ &= \underbrace{\frac{1}{2\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i(\omega t - \Phi(\omega))} d\omega}_{S^+(t)} + \underbrace{\frac{1}{2\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i(\omega t + \Phi(\omega))} d\omega}_{S^-(t)} \end{aligned} \quad (3.3)$$

Dadurch erhält man den komplexwertigen Beitrag $S^+(t)$ bei positiven Zeiten und $S^-(t)$ bei negativen Zeiten. Sie sind spiegelsymmetrisch zueinander und unterscheiden sich nur durch ein Vorzeichen in den zeitlichen Phasen. Es wird nun auf $S^+(t)$ die inverse Fourier-Transformation FT^{-1} angewendet:

$$\text{FT}^{-1}(S^+(t))(w) = \frac{1}{2} e^{i\Phi(w)} \quad (3.4)$$

Aus diesem Ausdruck kann die spektrale Phase direkt extrahiert werden. Dieser Algorithmus wird bei jeder SI-Messung angewandt.

Eine weitere Möglichkeit, die Phase aus dem SI-Signal zu rekonstruieren, besteht darin, die Fourier-Transformation von $I(\omega)$ zu bilden. Dadurch werden der Referenzpuls und der unbekannte Puls in den Zeitraum transformiert. Bei hinreichendem zeitlichem Abstand zwischen beiden Pulsen kann der unbekannte Puls auf der positiven Zeitachse

zurück in den Frequenzraum transformiert werden. Alle anderen zeitlichen Beiträge werden Null gesetzt. In dem transformierten Signal ist dann die spektrale Phase des unbekanntes Signals enthalten. Dies hat den Vorteil, dass nicht durch die spektralen Amplituden von dem Referenzpuls und dem unbekanntes Puls dividiert werden muss und somit kein zusätzliches Rauschen eingeführt wird. In der Praxis hat sich jedoch herausgestellt, dass die Wahl des Zeitbereiches, welcher den unbekanntes Puls beinhaltet, einen Einfluss auf die rekonstruierte spektrale Phase hat. Dadurch kommt es zu Ungenauigkeiten in der Phasenrekonstruktion, die vergleichbar zu den Fehlern in der oben vorgestellten Methode sind. Es wird daher für die hier durchgeführten SI-Messungen die erste vorgestellte Methode angewandt.

3.2 Experimenteller Aufbau der spektralen Interferometrie

Um durch die SI-Methode einen unbekanntes Puls zu vermessen, muss ein vollständig charakterisierter Referenzpuls zur Verfügung stehen. Im Experiment wird dieser mithilfe eines SPIDERS charakterisiert. Dadurch steht die spektrale Phase des Referenzpulses φ_0 zur Verfügung. Von diesem Strahl werden 10% der Leistung über einen 90:10-Strahlteiler als Referenz verwendet. Da der Referenzpuls p-polarisiert ist, wird eine $\lambda/2$ -Platte verwendet, um die Polarisationsachse des Strahls um 45° zu drehen. Damit stehen zum gleichen Teil Polarisationskomponenten sowohl in s- als auch p-Polarisationsrichtung zur Verfügung. Dabei sei die s-Polarisation definiert als die senkrecht zur Einfallrichtung des Lichtes auf eine Oberfläche polarisierte Komponente. Die p-Polarisation wird entsprechend als die parallel polarisierte dazu orientierte Polarisationskomponente bezeichnet. Dieser Referenzstrahl wird kollinear mit einem unbekanntes Puls an dem Strahlteiler ST überlagert (siehe Abbildung 6).

Durch eine Verzögerungsstrecke im Strahlengang des Referenzpulses kann die zeitliche Verzögerung zwischen den beiden Pulsen eingestellt werden. Zwischen gleichen spektralen Komponenten der beiden Pulse kommt es nun zur Interferenz. Durch den Polarisationsstrahlteiler wird das Interferenzsignal auf die Basisvektoren s und p projiziert und es ergibt sich für jede Polarisationskomponente ein SI-Signal, wie es in Gl. 3.1 angegeben ist. Über Linsen werden die Strahlen anschließend in die Spektrometer (Ocean Optics: USB4000) eingekoppelt. Über die Strahlblocker S1 und S2 kann ausgewählt werden, ob nur der Referenzpuls, der unbekanntes Puls oder das SI-Signal in den Spektrometern gemessen wird. Sowohl die Strahlblocker als auch die Spektrometer werden über einen Messcomputer gesteuert. Eine vollständige Puls-Charakterisierung wird automatisiert innerhalb von drei Sekunden ausgeführt.

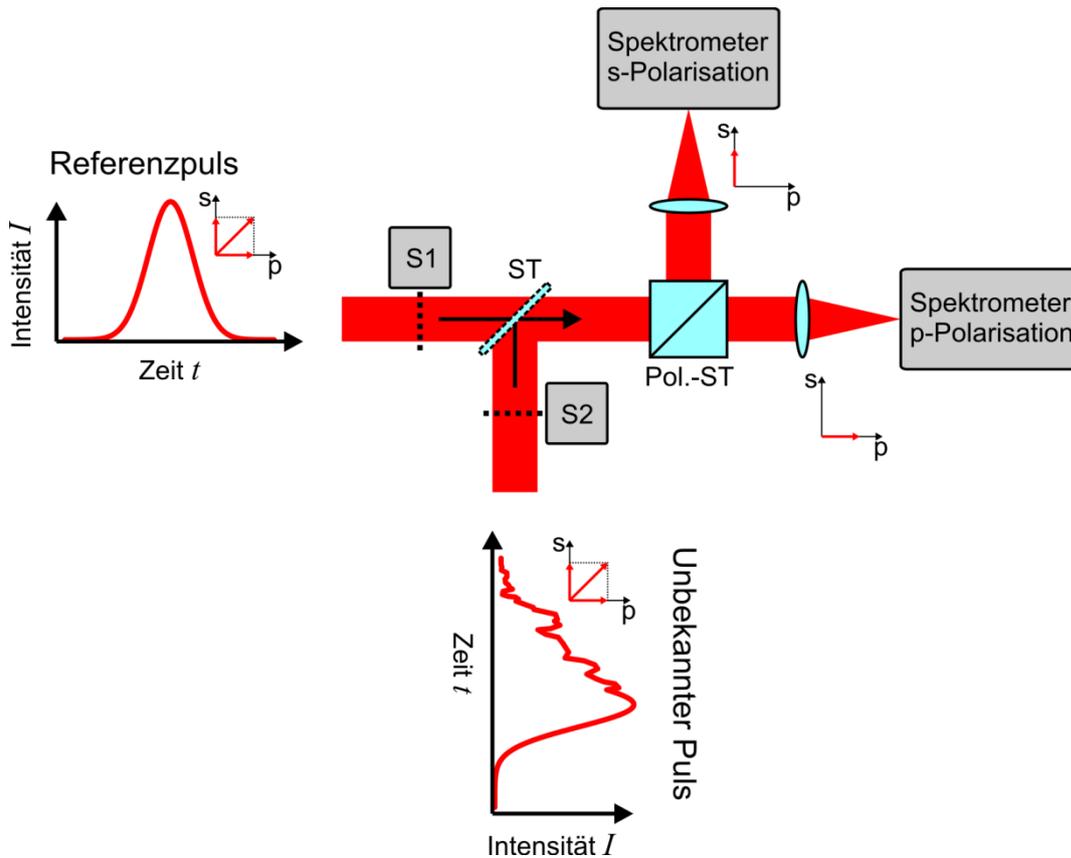


Abb. 6: Aufbau der spektralen Interferometrie. Der Referenzpuls weist Intensitäten in s- und p-Polarisation auf. Der unbekannte Puls weist eine beliebige zeitliche Struktur auf, die auch in der Polarisation beliebige Variationen aufweisen kann. Zur Messung des SI-Signals werden sie am Strahlteiler (ST) räumlich und zeitlich zur Interferenz gebracht. Ein Computer steuert die Strahlblocker S1 und S2, so dass die Spektrometer die zur Phasenrekonstruktion notwendigen Spektren aufnehmen können.

Zur Charakterisierung des SI-Messaufbaus und der Auswerterroutine wurde die bekannte Dispersion eines Quarzglases vermessen. Dazu wurde als unbekannter Puls der Ausgang des Vektorfeldsynthesizers (VFS) verwendet. Der VFS wurde so eingestellt, dass der unbekannte Puls eine Nullphase aufweist. Diese wurde mit der SI gemessen und ist in Abbildung 7 für die s- und p-Polarisationskomponente (durchgezogene schwarze bzw. rote Linien) dargestellt. Die GVD der Restphase der s-Polarisation wurde bestimmt, indem eine Polynomfunktion der dritten Ordnung an die Messdaten angepasst wurde. Sie berechnet sich dann nach Gleichung 2.14 und beträgt für die s-Polarisation $1 \text{ fs}^2 \text{ mm}^{-1}$ und für die p-Polarisation $-2 \text{ fs}^2 \text{ mm}^{-1}$. Anschließend wurde ein Quarzglas in den Strahlengang des unbekanntes Strahls eingeführt. Die GVD von Quarzglas bei 800 nm beträgt $36.2 \text{ fs}^2 \text{ mm}^{-1}$ [36] und die Dicke des Materials beträgt $1.1 \pm 0.05 \text{ mm}$, wodurch eine GVD von $39.8 \pm 1.8 \text{ fs}^2 \text{ mm}^{-1}$ zu erwarten wäre. Durch eine erneute SI-Messung wird nun die spektrale Phase, die das Glas einführt, gemessen (gestrichelte Linien). Sie beträgt $42 \text{ fs}^2 \text{ rad}^{-1}$ für die s-Polarisation und $38 \text{ fs}^2 \text{ rad}^{-1}$ für die p-Polarisation. Da noch geringe GVD-Anteile in der Restphase vorhanden waren, wird nun die Differenz

zwischen der vom Glas eingeführten GVD und der noch vorhandenen GVD der Restphase gebildet. Das ergibt dann die durch das Glas eingeführte GVD. Sie beträgt $41 \text{ fs}^2 \text{ mm}^{-1}$ für die s-Polarisation und $40 \text{ fs}^2 \text{ mm}^{-1}$ für die p-Polarisation des Lichtes. Die Werte liegen im Rahmen des Fehlers, der sich aus der Unsicherheit der Schichtdicke des Glases ergibt.

Diese exemplarische Phasenrekonstruktion zeigt, dass spektrale Phasen durch den verwendeten SI-Aufbau und Rekonstruktionsalgorithmus mit großer Genauigkeit gemessen werden können.

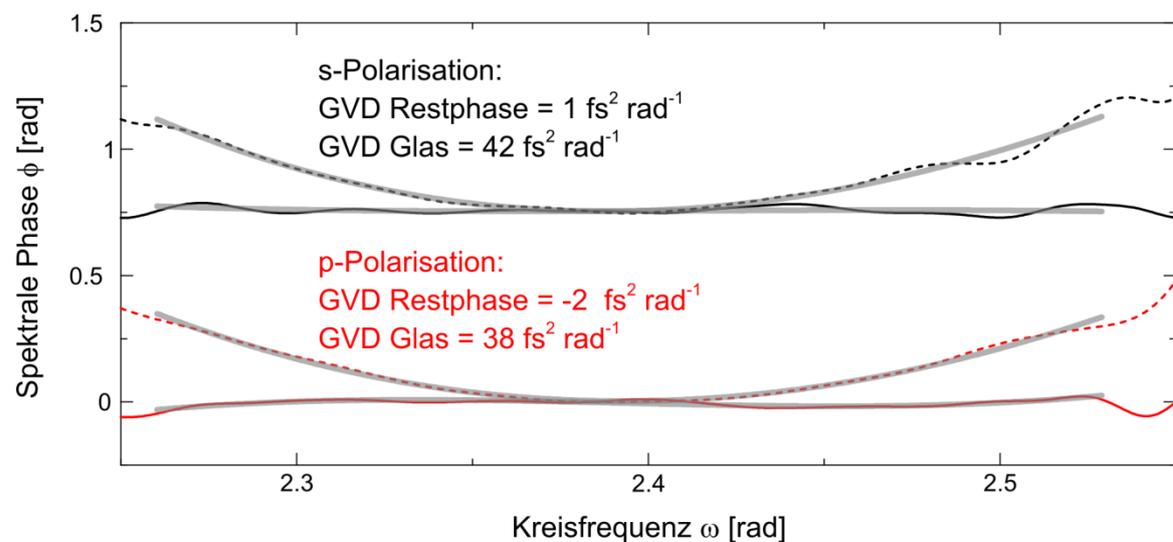


Abb. 7: Spektrale Phasen ϕ des unbekanntes Pulses am Ausgang des VFS ohne Glas im Strahlengang (durchgezogene Linien) und mit Glas im Strahlengang (gestrichelte Linien) für die s- (schwarz) und p-Polarisationskomponente (rot). Die polynomialen Anpassungsfunktionen dritter Ordnung sind als graue Linien eingezeichnet.

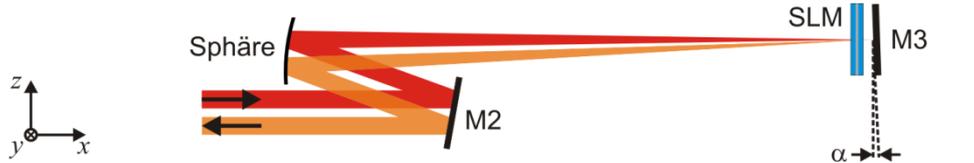
4 Vektorfeldsynthesizer

Die Fähigkeit, ultrakurze Lichtpulse gezielt zu manipulieren, erweitert deren Einsatzgebiet und ermöglicht beispielsweise Anwendungen in der kohärenten Kontrolle und Ultrakurzzeitspektroskopie [37–40]. Zur Manipulation von ultrakurzen Laserpulsen hat sich eine Vielzahl von Methoden etabliert, die entweder Phasen- und Amplitudenformung [41] oder Phasen- und Polarisationsformung [42] umsetzen können. Bei diesen Methoden der Pulsformung können jedoch nicht alle beliebigen Polarisationszustände erreicht werden. Um alle Polarisationszustände und damit die maximal mögliche Anzahl an Freiheitsgraden einstellen zu können, benötigt man die gleichzeitige Formbarkeit der Amplituden und Phasen des Lichtfeldes in beiden Polarisationskomponenten. Es hat sich in verschiedenen Arbeiten zur kohärenten Kontrolle gezeigt, dass die Polarisationspulsformung den Grad der Kontrolle erhöhen kann [43–45]. Die Polarisationspulsformung kann mit einem Vektorfeldsynthesizer (VFS) [41, 42, 46, 47] realisiert werden. Der hier vorgestellte VFS wurde von Michael Birlo mithilfe von numerischen Berechnungen in einem optischen Simulationsprogramm (Zemax) geplant, optimiert und anschließend aufgebaut. Im Rahmen dieser Arbeit wurde der Pulsformer justiert, kalibriert, charakterisiert und die notwendige Softwareanbindung an die schon bestehende Laborumgebung hergestellt. Im folgenden Kapitel 4.1 wird der Aufbau des VFS beschrieben. Dort wird auch die zum Betrieb des VFS notwendige aktive Phasenstabilisierung zur Kompensation mechanischer Instabilitäten vorgestellt. Exemplarische Eichungen zur Kalibration des VFS werden in Kapitel 4.2 gezeigt. Anschließend wird in Kapitel 4.3 die vollständige Funktionsfähigkeit durch verschiedene Charakterisierungsmethoden belegt.

4.1 Experimenteller Aufbau des Vektorfeldsynthesizers

Der Aufbau des VFS beruht auf dem Konzept, das in [42] vorgestellt wird. Das Design wird hier darauf ausgelegt, größtenteils reflektive Optiken zu verwenden. Das hat den Vorteil, dass keine zusätzliche Dispersion in den Strahl eingeführt wird, die später durch den VFS kompensiert werden müsste. Im Gegensatz zu alternativen Designs wird nur ein SLM-Display (Spatial Light Modulator) benötigt. Es dient dazu, die spektrale Phase des Lichtes für beide Polarisationskomponenten zu manipulieren. Die Funktionsweise des hier verwendeten SLM-Displays (Jenoptik, SLM-S640d) wird in Kapitel 4.1.1 genauer beschrieben. Der Aufbau des VFS ist in Abbildung 8 dargestellt.

Seitenansicht:



Aufsicht:

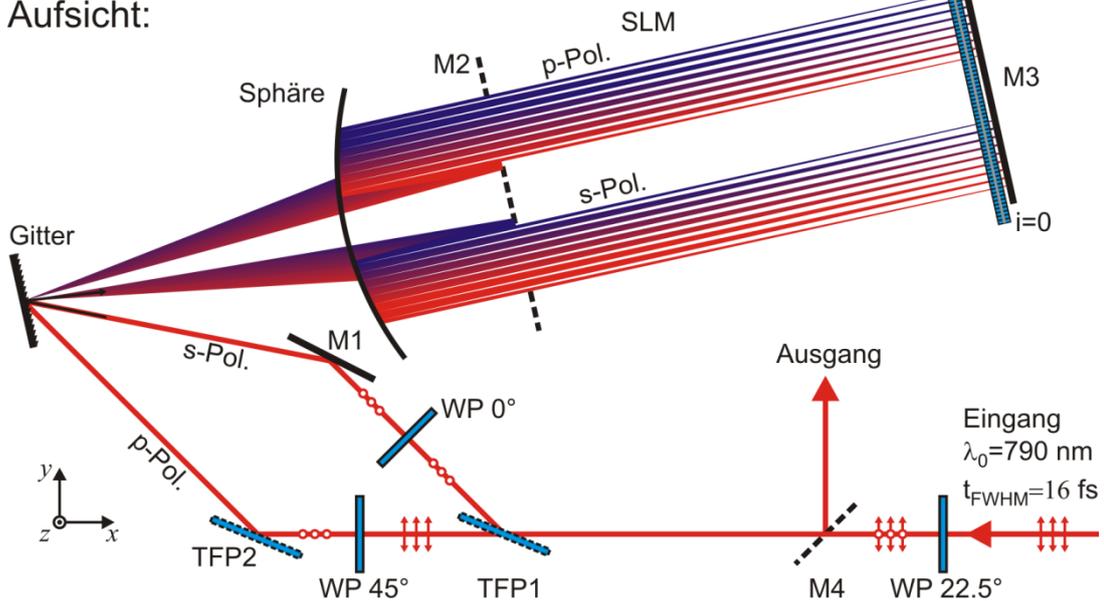


Abb. 8: Schematische Darstellung des VFS. In der Aufsicht ist der gesamte Strahlengang des Ultrakurzpulslasers im VFS gezeigt. Vom Eingang des VFS bis zum Gitter sind die Polarisationszustände durch Pfeile an den Teilstrahlen markiert. Die spektrale Aufspaltung des Lichtes am Gitter ist durch einen Farbverlauf von rot (große Wellenlängen) zu blau (kurze Wellenlängen) angedeutet. Für einzelne Wellenlängen ist die Fokussierung durch die Sphäre gezeigt. In der Seitenansicht ist die Faltung des Aufbaus verdeutlicht. Dazu ist der Spiegel M2 gegenüber dem einfallenden Strahl (rot) verkippt. Zur Separation der Strahlen wird ein kleiner Winkel α am Spiegel M3 eingeführt. Der zurücklaufende Strahl (orange) lässt sich dann durch den höhenversetzten Spiegel M4 abgreifen.

Die Polarisation des eingehenden Laserstrahls kann über eine Wellenplatte (WP) so eingestellt werden, dass am nachfolgenden Dünnschichtpolarisator (TFP) die Leistung gleichmäßig in s- und p-polarisierten Strahl aufgeteilt wird. Die beiden Strahlengänge werden im Folgenden als „s-Arm“ und „p-Arm“ bezeichnet. Der am TFP in den s-Arm reflektierte Strahl ist nun rein s-polarisiert. Der durch den TFP in den p-Arm transmittierte Strahl ist p-polarisiert, jedoch mit einem schlechten Auslöschungsverhältnis. Die Polarisation des Lichtes wird durch eine um 45° gedrehte WP um 90° gedreht. Das nun s-polarisierte Licht wird anschließend an einem weiteren TFP reflektiert, wodurch ein großes Auslöschungsverhältnis, wie auch im s-Arm, erreicht wird. Das hat zudem den Vorteil, dass nun in beiden Armen die gleiche Polarisation vorliegt, wodurch die Reflektions- oder Transmissionseffizienzen nachfolgender Optiken nur für s-polarisiertes Licht optimiert sein müssen. Um gleiche Laufzeiten in beiden Armen zu erreichen, wird in den s-Arm ebenfalls eine WP unter 0° eingefügt. Die

Teilstrahlen werden anschließend unter verschiedenen Einfallswinkeln auf ein Gitter geschickt. Die spektral aufgespaltenen Teilstrahlen verlassen dann unter verschiedenen Winkeln das Gitter und treffen auf den Faltungsspiegel M2. Die nachfolgende Sphäre ist entgegengesetzt verkippt, wodurch ein Parallelversatz des Strahlenganges in der Höhe erreicht wird. Die Faltungsgeometrie muss konstruktionsbedingt eingeführt werden, um die Kombination aus Sphäre und SLM-Display im Strahlengang zu realisieren. Durch die Sphäre wird jede Wellenlänge auf das SLM-Display fokussiert. Das Spektrum wird so auf die einzelnen Pixel i des SLM-Displays verteilt. An jedem der 640 Pixel des SLM-Displays kann ein Phasenwert separat eingestellt werden. Dadurch kann die Phase im gesamten spektralen Bereich des verwendeten Lichtes manipuliert werden. Wie groß die dabei erreichbare spektrale Auflösung ist, hängt von der Pixeldichte und der spektralen Auffächerung ab. Dies wird im Rahmen der Wellenlängeneichung in Kapitel 4.2.1 deutlich. Das SLM-Display ist nicht exakt im Fokus, sondern etwa 10 mm davor. Der Fokus liegt auf dem Endspiegel M3. Das ist notwendig, da sonst der zurücklaufende Strahl einen zusätzlichen Divergenzwinkel erfahren würde. Am Endspiegel M3 wird ein kleiner Winkel α eingeführt, um einen Höhenversatz des zurücklaufenden Strahles zu erreichen. Dadurch kann der geformte Laserpuls vom Eingangsstrahl separiert werden. Der rücklaufende Strahl durchläuft das SLM-Display erneut, wodurch sich die Größe der aufgeprägten Phase verdoppelt. Auf dem Rückweg treffen beide Teilstrahlen an der gleichen Stelle am Gitter auf, wodurch die einzelnen spektralen Komponenten des s- bzw. p-Armes wieder kollinear verlaufen. Anschließend wird der TFP durchlaufen, an dem dann eine vom SLM-Display eingeführte Polarisationsdrehung in eine Amplitudenformung umgesetzt wird. Das wird detailliert in Kapitel 4.1.1 beschrieben. Dadurch ergibt sich ein beliebig in Amplitude, Phase und Polarisation geformter Laserpuls, der am Spiegel M4 abgegriffen werden kann und für Experimente zur Verfügung steht. Der Rückweg durch den VFS verläuft mit einem Unterschied identisch zum Hinweg: Auf dem Rückweg wird im p-Arm ein Paar Glaskeile durchlaufen. Sie dienen zur Stabilisierung der Konstanten Phase zwischen s-Arm und p-Arm. Die Phasenstabilisierung des VFS wird in Kapitel 4.1.2 behandelt.

4.1.1 Funktionsweise des SLM-Displays

Der verwendete räumliche Lichtmodulator (SLM, engl. Spatial Light Modulator) (Jenoptik, SLM-S640d) arbeitet mit zwei hintereinander geschalteten nematischen Flüssigkristalldisplays. Der Aufbau des SLM ist in Abbildung 9 dargestellt. Die spektral aufgefächerten Anteile des s- und p-polarisierten Strahles werden gleichmäßig auf die 64 mm messende Frontfläche verteilt (vgl.: Abbildung 8). Die genaue Zuordnung der Lichtwellenlängen auf die SLM-Pixel wird in Kapitel 4.2.1 ermittelt. Der Transmissionsgrad für den sichtbaren und nahinfraroten Spektralbereich liegt bei über

75%. Ein einzelnes SLM-Pixel beinhaltet zwei separat über Elektroden schaltbare Flüssigkristallzellen.

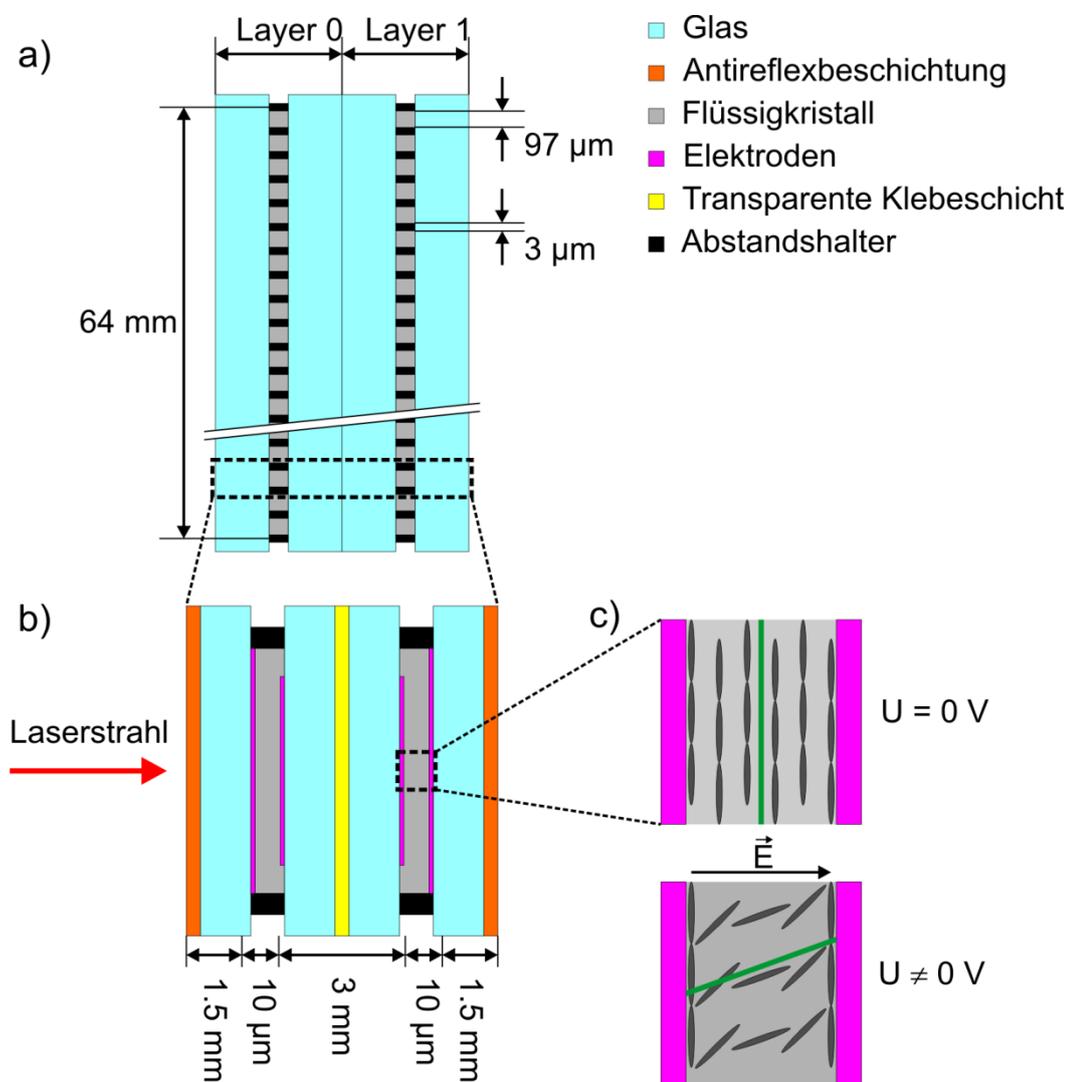


Abb. 9: Schematische Darstellung des SLM-Displays. a) Aufsicht auf das SLM-Display. Es ist die sequenzielle Anordnung beider Layer und die Aneinanderreihung der Pixelzellen hervorgehoben. b) Aufsicht auf ein einzelnes SLM-Pixel. c) Ausrichtung der Flüssigkristalle mit und ohne Spannung (grüne Linie). Die Kristalle am Rand der Zelle bleiben durch eine Orientierungsschicht ausgerichtet.

Die Spannung kann an jedem Pixel von 0-8 V mit einer 12 bit-Auflösung (entspricht 4096 Spannungscouts) eingestellt werden. Dadurch richten sich die Moleküle des Flüssigkristalls entlang des angelegten Feldes zwischen den Elektroden aus. Die Ausrichtung der Flüssigkristalle definiert die optische Achse eines SLM-Pixels. Propagiert Licht durch ein SLM-Pixel, so erfahren die Polarisationsanteile, die parallel und orthogonal zur optischen Achse ausgerichtet sind, unterschiedliche Brechungsindizes. Der parallele Polarisationsanteil wird als außerordentlicher Strahl, der orthogonale Polarisationsanteil als ordentlicher Strahl bezeichnet. Das Licht, welches durch das

SLM-Display propagiert, erfährt also einen effektiven Brechungsindex. Der ist davon abhängig, wie das Licht polarisiert ist. Trifft der linear polarisierte Laserstrahl unter einem Winkel von 45° zur optischen Achse auf die Flüssigkristallzelle, wird er zu gleichen Teilen in einen ordentlichen und einen außerordentlichen Strahl aufgespalten. Für den außerordentlichen Teilstrahl kann nun der Brechungsindex über die angelegte Spannung an der Flüssigkristallzelle variiert werden. Das führt zu einer Phasenverschiebung zwischen den Teilstrahlen. Diese ist gegeben durch:

$$\Delta\phi = \phi_e - \phi_o = d_{LC} \frac{\omega}{c} \Delta n(\omega, U) \quad (4.1)$$

Dabei ist ϕ_o die Phasenverschiebung des ordentlichen Strahls und ϕ_e die spannungsabhängige Phasenverschiebung des außerordentlichen Strahls. d_{LC} ist die Dicke des Flüssigkristalls in Strahlrichtung und $\Delta n(\omega, U) = n_{LC}(\omega, U) - n_{0,LC}(\omega)$ ist die Differenz des Brechungsindex vom Flüssigkristall für den außerordentlichen Strahl $n_{LC}(\omega, U)$ und für den ordentlichen Strahl $n_{0,LC}(\omega)$.

Ein Pixel ist zusammengesetzt aus zwei Flüssigkristallzellen, deren optische Achse um 90° zueinander verdreht ist. Nach dem Durchgang durch die erste Flüssigkristallzelle wird der ordentliche Strahl zum außerordentlichen Strahl in der zweiten Flüssigkristallzelle. Für diesen kann nun in der zweiten Flüssigkristallzelle auch eine Phasenverschiebung eingestellt werden. Somit kann für ordentlichen und außerordentlichen Anteil des eintreffenden Strahles eine Phasenverschiebung über das SLM-Display realisiert werden.

Im VFS-Aufbau wird das Licht nach dem ersten Durchgang durch das SLM-Display über einen Spiegel reflektiert und durchläuft das SLM-Display ein weiteres Mal in umgekehrter Richtung. Dadurch erfahren der ordentliche und der außerordentliche Strahl in beiden Flüssigkristallzellen noch einmal die gleichen Phasenverschiebungen wie beim ersten Durchgang. Nach dem zweiten Durchgang ist die Phasenverschiebung somit doppelt so groß, wie in Gleichung 4.1 angegeben.

Durch die Phasenverschiebungen $\Delta\phi_0$ in Layer 0 und $\Delta\phi_1$ in Layer 1 des SLM-Displays, können der Polarisationszustand und eine konstante Phasenverschiebung beider Polarisationsanteile eingestellt werden. Das Licht trifft anschließend auf den Dünnschichtpolarisator TFP1. Der manipulierte Polarisationszustand wird an diesem auf eine Polarisationsachse projiziert und übersetzt sich in eine Amplitudenmodulation A . Die konstante Phasenverschiebung bleibt erhalten. Die Phasenmodulation ist dann

$$\phi = \frac{\Delta\phi_0 + \Delta\phi_1}{2} \quad (4.2)$$

$$\text{mit } \Delta\phi_0 = \phi + \arccos(A) \text{ und } \Delta\phi_1 = \phi - \arccos(A). \quad (4.3)$$

Die Amplitudenmodulation ergibt sich durch

$$A = \cos\left(\frac{\Delta\phi_0 - \Delta\phi_1}{2}\right) \quad (4.4)$$

Somit ist es möglich, gleichzeitig die spektrale Amplitude und spektrale Phase der s- und p-Polarisationskomponente eines Laserpulses zu manipulieren. Die dazu noch notwendigen Eichungen des SLM-Displays werden im Kapitel 4.2 vorgestellt.

4.1.2 Aktive Phasenstabilisierung

Der VFS formt die s- und p-Polarisation räumlich getrennt und überlagert später beide Teilstrahlen an einem TFP (siehe Abbildung 8). Zur Überlagerung muss daher eine interferometrische Stabilität gegeben sein. Infolge von Vibrationen oder thermischen Effekten kann es zu Änderungen in den Weglängen des s- oder p-Arms kommen. Die Weglängenänderungen können dabei, in Abhängigkeit von der Art der Störung, größer als $1 \mu\text{m}$ sein. Dadurch variiert auch der Polarisationszustand der geformten Laserpulse am Ausgang des VFS. Die Stabilität des Aufbaus ist somit nicht ausreichend groß und muss erhöht werden.

Um die nötige interferometrische Stabilität zu erreichen, wurde eine Vibrationsquelle am Aufbau, ein Lüfterpaar am SLM-Display, entfernt. Diese dienen eigentlich zur Temperaturstabilisierung der Ansteuerungselektronik und des SLM-Displays. Nach dem Einschalten des SLM-Displays muss deshalb erst eine gewisse Zeit gewartet werden, bis sich ein thermisches Gleichgewicht innerhalb des Gerätes eingestellt hat.

Um weitere Instabilitäten zu kompensieren, wurde eine aktive Phasenstabilisierung, analog zu der in [48] gezeigten Stabilisierung, in den VFS eingefügt. Sie beruht auf einem cw-Laserstrahl (engl. Continuous Wave), der aufgespalten und durch beide Polarisationsarme des VFS geführt wird. Anschließend werden die Strahlen zur Interferenz gebracht. Aus dem Interferenzsignal kann dann auf die Weglängendifferenz δ geschlossen werden. Zur Veranschaulichung wurde in Abbildung 10 der Strahlengang des Stabilisierungslasers (grün) in den aus Abbildung 8 bekannten Aufbau eingezeichnet. Das Licht einer cw-Laserdiode wird zuerst durch einen Faraday-Rotator geschickt, damit Rückreflektionen aus dem Aufbau nicht zurück zur Diode gelangen und sich stehende

Moden ausbilden können. Die Leistung des nun p-polarisierten Lichtes wird über die Photodiode PD1 kontinuierlich gemessen. Dies ist notwendig, um zu erkennen, wann die Laserdiode im thermischen Gleichgewicht ist und keine Leistungsschwankungen mehr auftreten. Mithilfe einer Wellenplatte wird die Polarisation um 45° gedreht, so dass am TFP der Laserstrahl in den s-Arm und den p-Arm aufgeteilt wird. Ab dort verläuft der Strahlengang in beiden Polarisationsarmen kollinear mit dem Kurzpuls laser, bis die Laserstrahlen am Gitter gebeugt werden. Die Wellenlänge des Stabilisierungslasers wurde so gewählt, dass sie nicht mit dem Spektrum des Kurzpuls lasers überlappt und somit auf ungenutzte Pixel des SLM-Displays trifft.

Für den Rückweg durch den VFS wird der Strahl des Stabilisierungslasers ebenfalls durch den gekippten Spiegel M3 geringfügig in seiner Höhe versetzt. Der höhenversetzte Anteil des p-Arms verläuft, genau wie der entsprechende Anteil des Kurzpuls lasers, durch ein Paar Glaskeile. Davon ist einer auf einem Piezo-Verschiebetisch montiert, was die Einstellung des Propagationsweges durch das Glas ermöglicht. Infolge der Dispersion im Glas kann so der Verzögerungsweg δ' des p-polarisierten Lichtes gegenüber dem s-polarisierten Licht eingestellt werden. Um die notwendige Verschiebung des Piezo-Verschiebetisches zu bestimmen, werden beide Strahlen des cw-Lasers wieder am TFP überlagert. Der Polarisationszustand des Lichtes ist nun durch deren Weglängendifferenz δ gegeben. Bei einem Weglängenunterschied von 670 nm rotiert der Feldvektor um genau 360° .

Durch den Höhenversatz ist es möglich, den Strahl des Stabilisierungslasers am Ausgang des VFS über den höhenversetzten Spiegel M5 umzulenken. Er durchläuft dann einen Polarisator, dessen optische Achse um 45° gegenüber dem p-polarisierten Licht gedreht ist. Dadurch wird die Projektion des s- und p-polarisierten Lichtes auf diese Achse gebildet. Die Photodiode PD2 misst dann das resultierende Interferenzsignal. Das ist schematisch unterhalb der Phasenregelung gezeigt. Ändert sich die Weglängendifferenz von δ_1 auf δ_2 , so kommt es zu einer Spannungsänderung am Ausgang der Photodiode von U_1 auf U_2 . Dieses Spannungssignal wird zur Regelung genutzt, indem ein PID-Regler (engl. Proportional-Integral-Derivative) über den Piezo-Verschiebetisch den Glasweg im Strahlengang variiert, so dass eine feste Sollspannung U_{soll} gehalten wird. Der PID-Regler wurde auf einem „Field Programmable Gate Array“ (cRio, National Instruments) programmiert. Dadurch ist eine flexible Anbindung an die bestehende Programmstruktur möglich. Es wird eine Regelbandbreite erreicht, die groß genug ist, um typische Weglängenschwankungen auszugleichen.

Bei der Regelung ist zu beachten, dass durch die auftretenden Weglängendifferenzen nicht das angrenzende Minimum oder Maximum der PD-Spannung U überschritten wird. In dem Fall würde die resultierende PD-Spannung U von dem PID-Regler falsch interpretiert werden: Es käme zu einem Sprung der Weglängendifferenz, bis ein angrenzender Bereich des periodischen PD-Spannungssignals getroffen wird, der die gleiche Steigung wie der Bereich aufweist, in dem die Sollspannung U_{soll} liegt. Die Regelparameter konnten so gewählt werden, dass die Regelung auch bei größeren

Erschütterungen am Lasertisch stabil bleibt. Die Stabilität hängt nun maßgeblich von der Leistungsstabilität der cw-Laserdiode ab, während die Regelbandbreite von der mechanischen Trägheit des Piezo-Verschiebetisches limitiert wird. Die erreichbare Stabilität wird in Kapitel 4.3.1 untersucht.

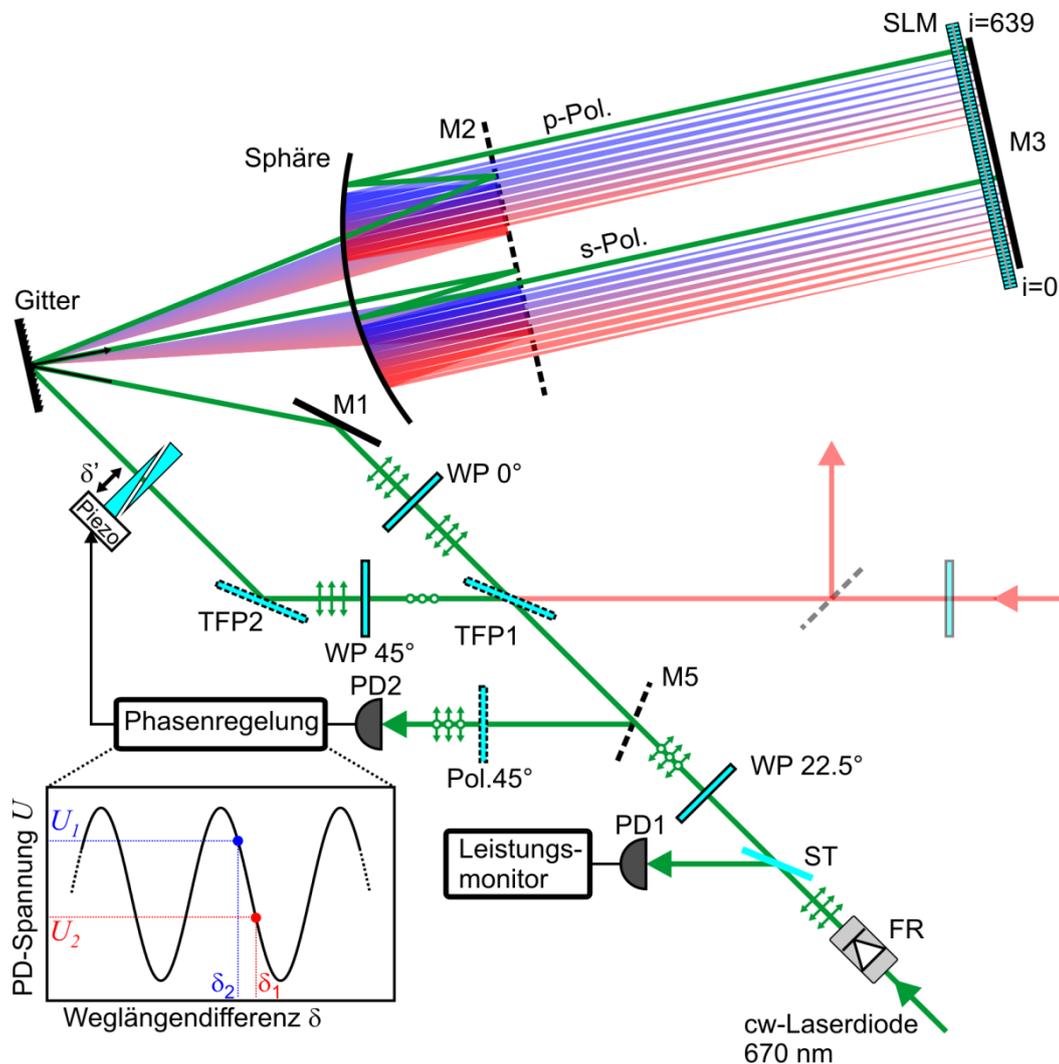


Abb. 10: VFS mit Strahlengang des Stabilisierungslasers und Phasenregelung. Die Glaskeile sind höhenversetzt angebracht, so dass sie nur von dem Strahlengang durchlaufen werden, der den VFS verlässt. Das von der PD2 als PD-Spannung U gemessene Interferenzsignal, welches zur Phasenregelung genutzt wird, ist schematisch dargestellt.

4.1.3 Ansteuerung des Pulsformers

Zur Ansteuerung des Pulsformers wurde LabView verwendet. Es zeichnet sich dadurch aus, dass auf einfache Weise komplexe graphische Bedien- und Anzeigemöglichkeiten

genutzt werden können. Für die Hardwareansteuerung stehen größtenteils Programme des Herstellers zur Verfügung. LabView wurde zur Ansteuerung und Auswertung aller folgenden Experimente verwendet. Um die Abfolge der Ansteuerungs-, Mess- und Datenverarbeitungsprozesse in einem Experiment zu erstellen, wurde ein übergeordnetes Programm erstellt. Dieses beinhaltet die folgenden Funktionalitäten:

- Geräteansteuerung
- Geräteeichungen
- Eingabemaske für multidimensionale Messungen
- Vernetzung der Messcomputer und des cRIO
- Datenverarbeitung und Auswertung

Um die Messabläufe aus der Eingabemaske an die Hardware zu übergeben, werden diese in ein XML-Format überführt. Dies ist notwendig, um Speicherauslastungen durch zu komplexe Datenstrukturen in LabView zu verhindern. Die Messabläufe im XML-Format werden von einem Interpreter in ein hardwarekompatibles Format überführt.

4.2 Eichung des Vektorfeldsynthesizers

Das SLM-Display kann, wie in Kapitel 4.1 beschrieben, benutzt werden, um die Phase und Amplitude für verschiedene Wellenlängen einzustellen. Je nach Justage der optischen Elemente im VFS kann sich die Position der Wellenlänge auf den einzelnen Pixeln des SLM-Displays ändern. Deshalb muss die Zuordnung der Wellenlängen auf die SLM-Pixel gemessen werden. Diese Zuordnung wird im Folgenden als Wellenlängeneichung bezeichnet. Die Durchführung und Verwendung der Wellenlängeneichung wird in Kapitel 4.2.1 beschrieben. Die Änderungen von Phase und Amplitude werden durch die Spannungswerte an den Layern 0 und 1 des SLM-Displays bestimmt. Für jedes Pixel des SLM-Displays ist diese Änderung leicht unterschiedlich und muss vermessen werden. Diese Zuordnung von Spannungswerten an Layer 0 und 1 zu Phasen und Amplitudenänderung wird im Folgenden als Phaseneichung bezeichnet und in Kapitel 4.2.2 behandelt.

4.2.1 Wellenlängeneichung

Um zu bestimmen, welche Wellenlänge des Laserpulses auf welches Pixel des SLM-Displays trifft, wurde ein spektraler Kamm angelegt. Jedes dritte Pixel wird dazu auf maximale Transmission gesetzt, die restlichen Pixel auf minimale Transmission. Die am Ausgang des Pulsformers resultierenden Spektren sind in Abbildung 11 gezeigt und als „Eichdaten s-Polarisation“ bzw. „Eichdaten p-Polarisation“ bezeichnet. Jeweils zwei Pixel in der s- und p-Polarisation wurden auf etwa die halbe statt der vollen Transmission gesetzt. Die spektrale Position beider Pixel wurde anschließend bestimmt (schwarze Pfeile). Das ist notwendig um die spektrale Position der verbleibenden Pixel maximaler Transmission mithilfe eines automatisierten Programms der entsprechenden Wellenlänge

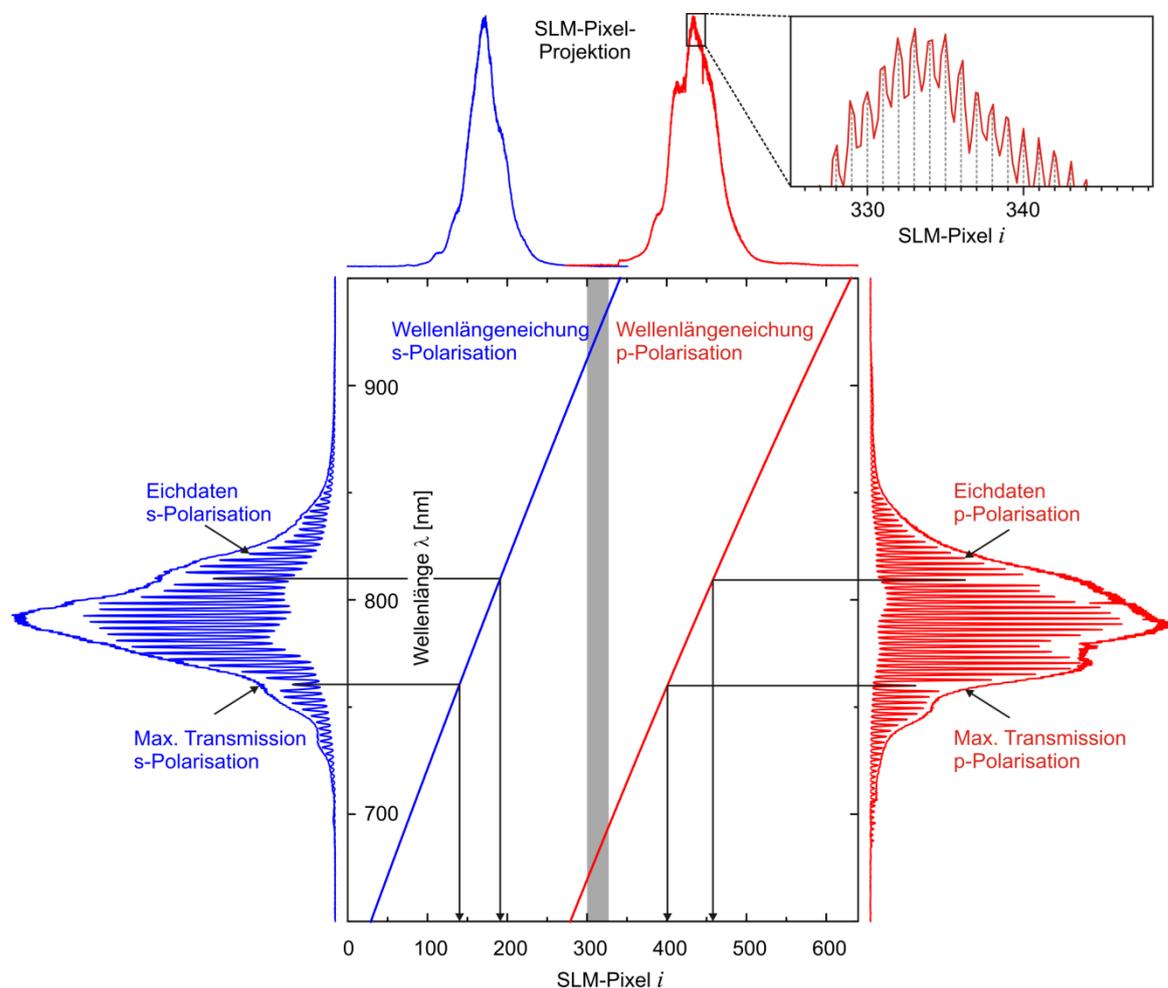


Abb. 11: Wellenlängeneichung des SLM-Displays für den s-polarisierten und p-polarisierten Teilstrahl. Links und rechts vom Diagramm sind die spektralen Intensitäten der Eichkurven (modulierte Signale) über die Wellenlängenachse dargestellt. Die Spektren für die s- und p-Polarisation am Ausgang des Pulsformers umschließen die Eichkurven. Oberhalb des Diagramms sind die Ausgangsspektren auf die SLM-Pixel projiziert worden. Die Vergrößerung zeigt die Modulation der Ausgangsspektren durch die Trennschichten zwischen einzelnen SLM-Pixeln.

zuordnen zu können. Die Zuordnungen werden mit einem Polynom zweiten Grades approximiert. Die resultierende Funktion wird als „Wellenlängeneichung“ bezeichnet und ordnet jedem SLM-Pixel einen Wellenlängenwert zu (siehe Abbildung 11).

Die maximale Transmission wurde für beide Polarisationskomponenten gemessen und ist über die Wellenlängeneichung aufgetragen (vertikale Achse). Anschließend wurde sie mithilfe der Wellenlängeneichung auf die SLM-Pixelpositionen (horizontale Achse) transformiert. Ein Teil des projizierten p-Polarisationsspektrums ist vergrößert dargestellt. Dort ist eine Intensitätsmodulation im Spektrum zu erkennen. Diese Modulation kommt dadurch zustande, dass zwischen jedem SLM-Pixel ein 3 μm dünner Streifen eingefügt ist, welcher die Pixel voneinander separiert. Dort ist die Transmission durch das Display verringert und es kommt zu einer Abdunkelung im Spektrum. Die Auflösung des Spektrometers ist noch ausreichend gut, um dies sichtbar zu machen. Die Positionen der Maxima wurden durch gestrichelte Linien markiert. Jedes Maximum fällt genau mit einer Pixelposition zusammen. Die gute Übereinstimmung zwischen den Positionen der Maxima und den SLM-Pixelpositionen zeigt, dass die Wellenlängeneichung genauer als eine SLM-Pixelposition ist.

4.2.2 Phaseneichung

Die Phasenänderung, die innerhalb der SLM-Pixel durch Anlegen einer Steuerspannung erreicht werden kann, wird im Folgenden bestimmt. Sie unterscheidet sich für alle Pixel geringfügig, da die Doppelbrechung wellenlängenabhängig ist. Die Steuerspannung kann mit einer Auflösung von 12 Bit, was 4096 verschiedenen Spannungswerten entspricht, variiert werden. Die Spannungswerte werden auch als „counts“ bezeichnet. Zur Kalibration wird die Steuerspannung an allen SLM-Pixeln eines Layers von 0 counts bis 4095 counts schrittweise erhöht (aktiver Layer) und jedes Mal ein Spektrum am Ausgang des Pulsformers gemessen. Der andere Layer wird konstant auf einem Spannungswert von 1500 counts gehalten (passiver Layer). Über die bekannte Wellenlängeneichung kann jedes Spektrum auf die SLM-Pixel projiziert werden. Der Polarisationszustand des Lichtes, das auf ein SLM-Pixel trifft, wird durch die Änderung der Steuerspannung gedreht und am Polarisator TFP1 durch die Projektion auf eine Polarisationsachse in eine Amplitudenänderung übersetzt. Die gemessene spektrale Amplitude am Pulsformerausgang oszilliert dadurch sinusförmig wie in Abbildung 12 gezeigt (oberer Graph). Dabei wurde ein Fourier-Filter angewendet, um hochfrequente Rauschbeiträge zu eliminieren. Aus diesem Verlauf kann die Phasenverschiebung wie folgt berechnet werden:

$$\Delta\phi = 2k\pi + 2 \arcsin \sqrt{T_{norm}} \quad (4.5)$$

Dabei wird das k -te Maximum zu abfallenden Spannungswerten hin gezählt. Die normierte Transmission T_{norm} erhält man, indem jeder Teilbereich der Kurve auf die Höhen der angrenzenden Extrema normiert wird. Die Lage der Maxima bzw. Minima ist durch Kreise bzw. Rechtecke markiert. Nach Anwendung von Gleichung 4.5 erhält man die im unteren Graphen gezeigten Phasenverläufe $\Delta\phi_0$ für den aktiven Layer 0, bzw. $\Delta\phi_1$ für den aktiven Layer 1.

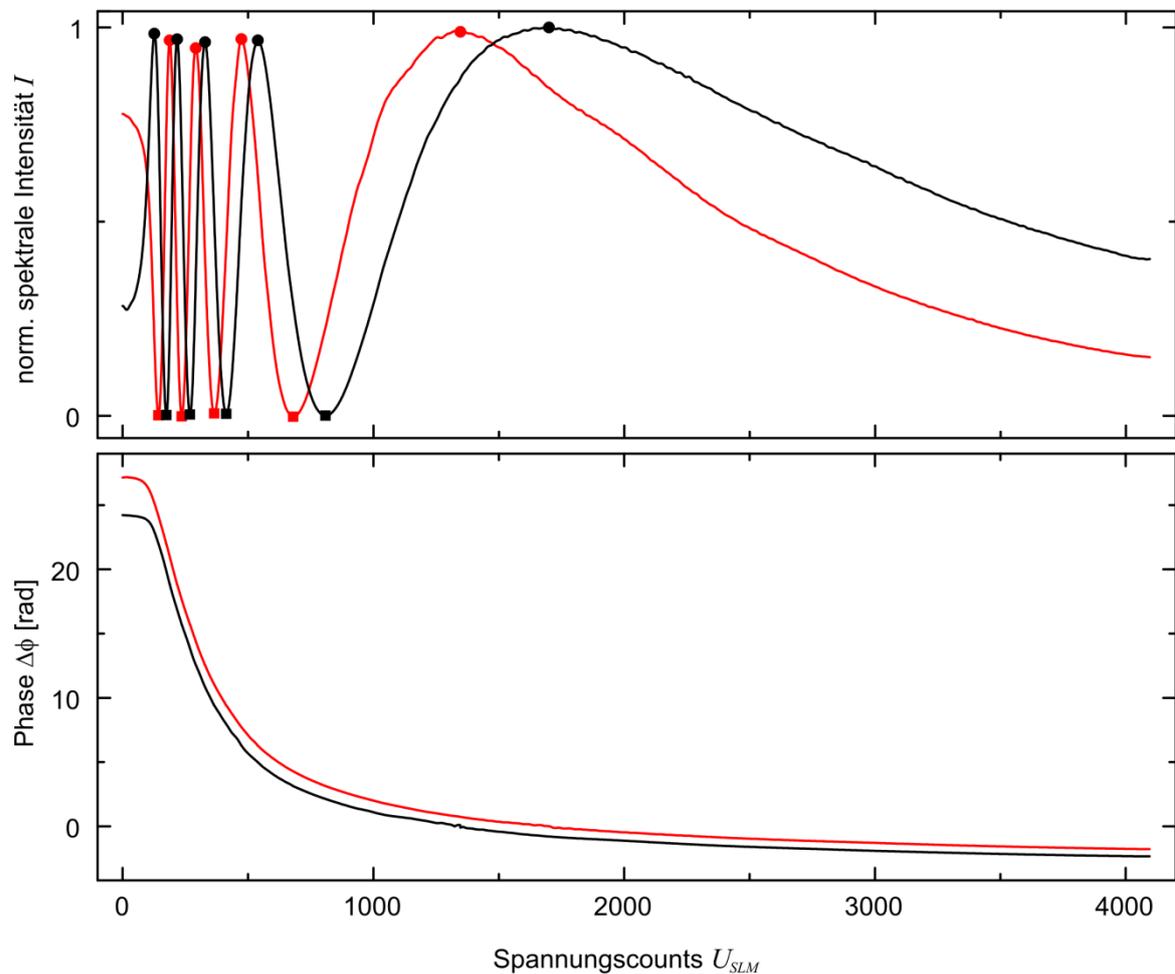


Abb. 12: Oben: Rohdaten der Phaseneichung für SLM-Pixel 170 (s-Polarisation) für den aktiven Layer 0 und inaktiven Layer 1 (schwarze Kurve) bzw. aktiven Layer 1 und inaktiven Layer 0 (rote Kurve) mit identifizierten Maximalwerten (Kreise) und Minimalwerten (Rechtecke). Unten: Rekonstruierte kontinuierliche Phasen $\Delta\phi_0$ und $\Delta\phi_1$.

Was bisher exemplarisch für ein SLM-Pixel gezeigt wurde, wird nun für alle Pixel ausgewertet und es ergibt sich die Phaseneichung, wie sie in Abbildung 13 dargestellt ist. In den ausgegrauten Bereichen ist die Eichung nicht definiert, da die spektrale Intensität

des Lasers dort zu niedrig ist. Diese Bereiche werden konstant auf hohe Transmission gesetzt, um den Durchgang des Stabilisierungslasers zu gewährleisten. Es wurden die vielfachen Werte von 2π schwarz eingefärbt. Dadurch werden die Isoklinien sichtbar. Die Isoklinie bei $\Delta\phi=0$ rad weist deutliche Schwankungen auf. Dies ist nach Herstellerangaben auf Interferenzen an den Schichtsystemen des SLM-Displays zurückzuführen. Die Verkippung der restlichen Isoklinien tritt aufgrund der Frequenzabhängigkeit der Brechungsindizes der SLM-Pixel auf.

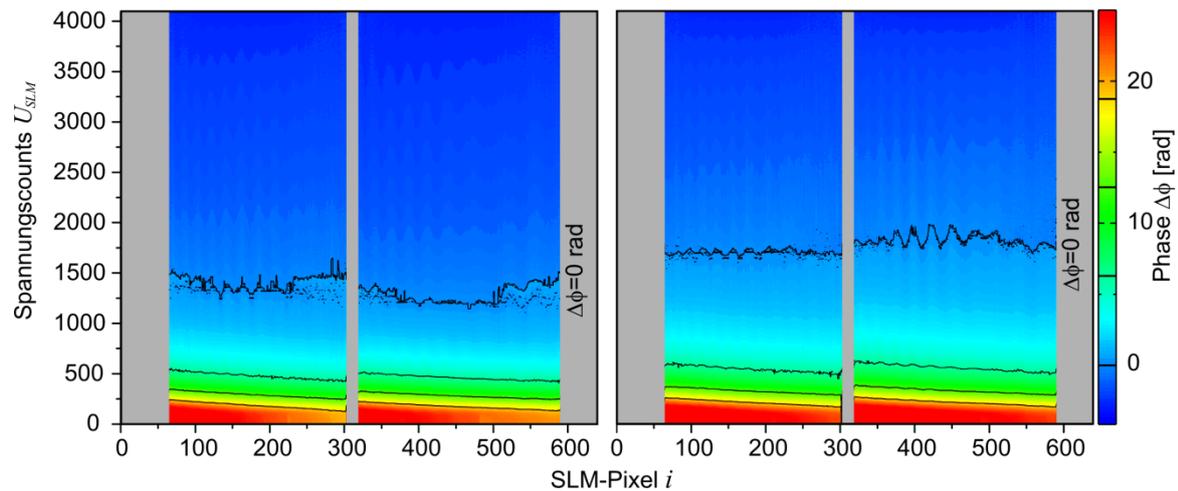


Abb. 13: Phaseneichung Layer 0 (links) und Layer 1 (rechts). Bereiche, in denen die Eichung nicht definiert ist, sind grau dargestellt.

Mithilfe der Phaseneichung können nun die Spannungscounts an den beiden SLM-Layern je nach benötigter Amplituden oder Phasenform eingestellt werden. Dabei steht für die Phase am SLM-Display ein maximaler Wert von 6π zur Verfügung. Wenn größere Werte benötigt werden, muss die Phase Modulo 6π eingestellt werden und es kommt zu einem Phasensprung. Dadurch treten Artefakte im Ausgangsspektrum des Pulsformers auf, da an benachbarten SLM-Pixeln stark unterschiedliche Spannungswerte angelegt werden. Diese beeinflussen sich gegenseitig und es wird nicht die voreingestellte Phase erreicht. Um das Auftreten von Phasensprüngen zu minimieren, wurde ein Algorithmus implementiert, der die angelegte Phasenwerte für beide SLM-Layer analysiert und eventuell diese um ein vielfaches von 2π verschiebt, um die Phasensprünge aus dem Zentralbereich des Spektrums zu entfernen.

4.3 Charakterisierung des Vektorfeldsynthesizers

Zur Charakterisierung des VFS werden verschiedene Methoden angewendet. In Kapitel 4.3.1 wird die zeitliche Stabilität und die Restphase am Ausgang des Pulsformers gemessen. Anschließend werden verschiedene Pulsformen erzeugt, um die volle Funktionsfähigkeit des VFS zu präsentieren. In Kapitel 4.3.2 werden dazu Punkte in der gesamten Poincaré-Ebene angesteuert und in Kapitel 4.3.3 ein Puls geformt, der gleichzeitig die volle Phasen- und Amplitudenformung voraussetzt.

4.3.1 Zeitliche Stabilität und Restphase

Der Vektorfeldsynthesizer prägt einem ihn durchlaufenden Laserpuls auch eine Phase auf, wenn am SLM-Display keine Spannung anliegt. Das liegt zum größten Teil an Dispersion durch Glas im Strahlengang, aber auch an Abbildungsfehlern des sphärischen Fokussier spiegels und dem Gitter. Für beide Polarisationskomponenten können diese Restphasen unterschiedlich sein. Um einen konstanten Phasenverlauf am Ausgang des Pulsformers zu erreichen, muss die Restphase durch eine spektrale Interferometrie-Messung (SI) bestimmt und anschließend subtrahiert werden. Im Idealfall würde sich für beide Polarisationskomponenten eine konstante Phase ergeben. Die konstante Phasendifferenz zwischen beiden Polarisationskomponenten ist über deren Stabilität zueinander bestimmt. Eine wiederholte Messung der Nullphase am Ausgang des Pulsformers kann somit auch aufzeigen, wie groß die Schwankungen der Phasenstabilisierung sind.

Dafür wurde 35 mal die Nullphase am Ausgang des Pulsformers durch eine SI-Messung bestimmt (siehe Abbildung 14). Zur Übersichtlichkeit wurde eine konstante Phasenverschiebung von etwa -0.9 rad/fs in der s-Polarisation eingeführt. Eine SI-Messung dauert 3 Sekunden, der gesamte Zeitraum beträgt somit 105 Sekunden. Die konstante Phase wird stets bezüglich zur p-Polarisation angegeben, wodurch sämtliche interferometrischen Instabilitäten, welche die Phasenstabilisierung nicht ausgleichen kann, sich ausschließlich auf die s-Polarisation auswirken. Schwankungen in der Phase der p-Polarisation kommen dementsprechend aus Mess- und Rekonstruktionsfehlern der Phasenrekonstruktion. Für jede Kreisfrequenz ω wurde die Standardabweichung bezüglich der 35 Messungen bestimmt und als Fehlerintervall um den Mittelwert eingezeichnet. Für die Phase der p-Polarisation ergibt sich eine geringe Schwankungsbreite von etwa $\Delta\phi_p(t) = \pm 5 \text{ mrad}$. Sie ist bei der Zentralfrequenz

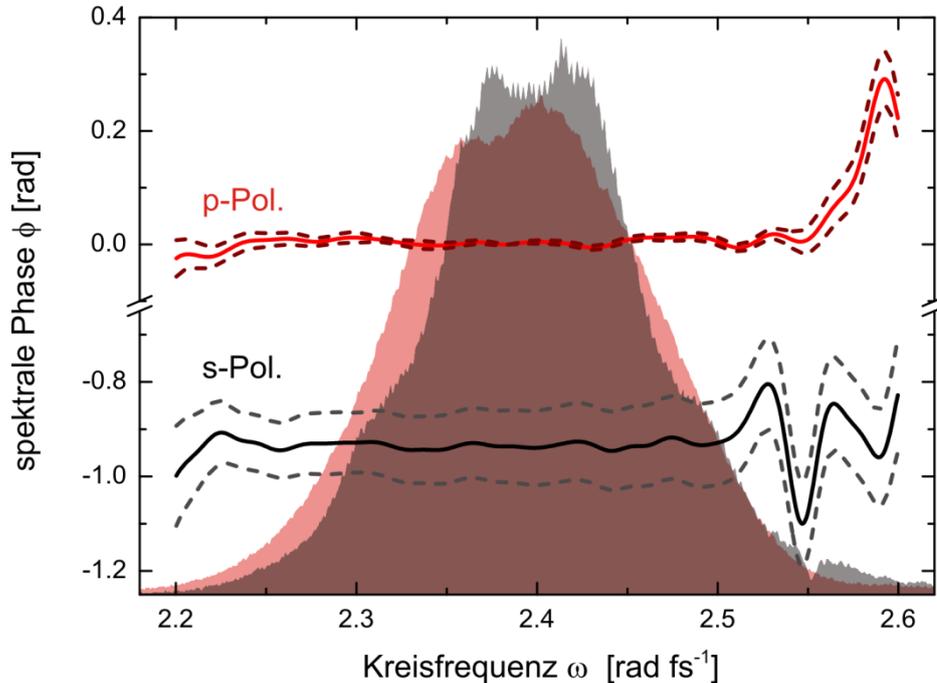


Abb. 14: Mittelung über 35 Phasenmessungen (durchgezogene Kurven) für p-Polarisation (rot) und s-Polarisation (schwarz) und deren Standardabweichung (gestrichelte Kurven). Die Standardabweichung der gemittelten Phase zwischen 2.25 rad und 2.5 rad beträgt für s-Polarisation 6.5 mrad und für p-Polarisation 5.3 mrad. Als schattierte Flächen sind die spektralen Intensitäten für p-Polarisation (rot) und s-Polarisation (schwarz) eingezeichnet.

$\omega_0 = 2.35 \text{ rad fs}^{-1}$ am geringsten und nimmt nach außen hin zu. Der Grund dafür ist, dass die unbestimmte lineare Phase im SI-Rekonstruktionsalgorithmus durch eine Taylor-Entwicklung um die Zentralfrequenz bestimmt und anschließend subtrahiert wird. Im Vergleich dazu sind die Schwankungen in der Phase der s-Polarisation mit $\Delta\phi_s(t) = \pm 75 \text{ mrad}$ größer. Die spektrale Phase des p-polarisierten Lichtes dient immer als Referenz zur Bestimmung des konstanten Phasenterms. Deshalb ist dieser Fehler als Schwankung der Phase der s-Polarisation gegenüber der Phase der p-Polarisation zu verstehen. Das wird hauptsächlich durch die thermische Instabilität des Stabilisierungslasers verursacht. Die Schwankungen in der Ausgangsleistung des Stabilisierungslasers verursachen Schwankungen in der PD-Spannung U (siehe Abbildung 10). Von der Regelung wird das als Weglängendifferenz δ aufgefasst und fälschlicherweise entgegen geregelt.

Für jede Einzelmessung wurde im Spektralbereich $2.25 \text{ rad fs}^{-1} < \omega < 2.5 \text{ rad fs}^{-1}$ eine Schwankung der Phase von $\Delta\phi_p(\omega) = \pm 7 \text{ mrad}$ bzw. $\Delta\phi_s(\omega) = \pm 15 \text{ mrad}$ bestimmt. Das ist die Abweichung zu der an den VFS angelegten Nullphase bzw. konstanten Phase. Mit zunehmender Entfernung von diesem Intervall werden die Abweichungen von einer konstanten Phase immer größer. Eine Ursache ist die geringere spektrale Intensität, die sich auf zwei Arten niederschlägt. Zum einen wird die Rekonstruktion der Phase erschwert, da das SI-Signal in die Größenordnung des Rauschens des Spektrometers

gelangt. Zum anderen ist aus demselben Grund die Phaseneichung in diesem Bereich weniger genau. Bei $\omega = 2.55 \text{ rad fs}^{-1}$ tritt in der s-Polarisation außerdem ein Phasensprung auf. Es wird ein Ende der Eichkurve erreicht und in einem Vielfachen von 2π weiter vorne auf der Eichkurve fortgesetzt. Die sich daraus ergebenden Spannungssprünge im SLM-Display und Ungenauigkeiten in der Eichung führen dann zu Fehlern in der spektralen Phase und Intensität.

4.3.2 Abtastung der Poincaré-Ebene

Der Unterschied zwischen einem reinen Phasen-Amplituden oder Phasen-Polarisations-Pulsformer und einem VFS wird auch in der Poincaré-Ebene deutlich. Nur der VFS kann theoretisch alle Punkte in der Poincaré-Ebene erreichen. Um dies zu überprüfen, wurde in der Poincaré-Ebene ein äquidistantes Gitter mit je 30 Stützstellenpunkten in Richtung der Elliptizität ε und Hauptachsenorientierung θ definiert. Anschließend steuerte der VFS einen Punkt an und es wurde eine SI-Messung durchgeführt. Von dem rekonstruierten Zeitverlauf wurde ein 5 fs langes Zeitfenster, welches um die zeitliche Null zentriert ist

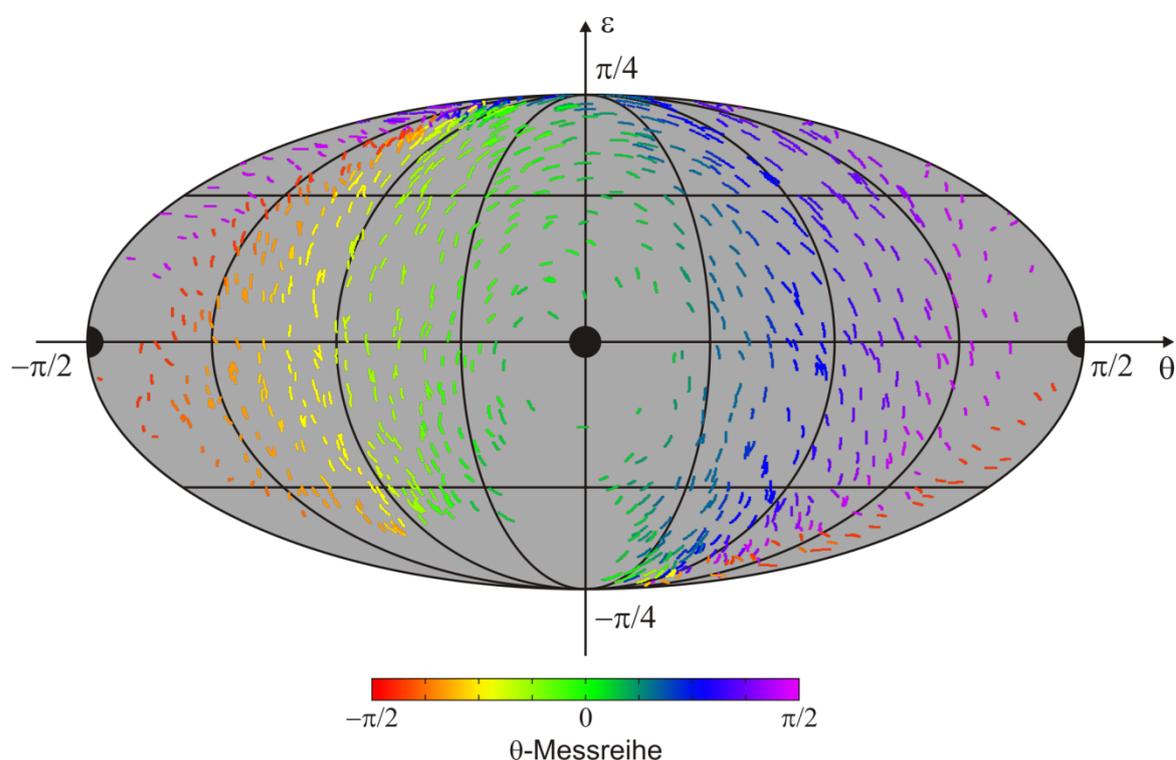


Abb. 15: Scan der Poincaré-Ebene. Messungen für variable ε und konstante θ sind einfarbig zusammengefasst.

und die Spitzenintensität des Pulses beinhaltet, in die Poincaré-Ebene transformiert. Die transformierten Pulse in der Poincaré-Ebene sind als Mollweide-Projektion in Abbildung 15 gezeigt. Messungen mit konstanten Werten für θ und variablen ε wurden als θ -Messreihe zusammengefasst und mit einer Farbe kenntlich gemacht.

Da der VFS die Intensität in einer Polarisation nicht vollständig auslöschen kann, ist eine vollständige Polarisation nicht erreichbar. Diese Bereiche der Poincaré-Ebene wurden durch schwarz gefüllte Kreise markiert. Der Großteil der Poincaré-Ebene kann erreicht werden. Lediglich in einem kleinen Bereich bei $\varepsilon < -\pi/8$ und $\theta < 0$ befinden sich keine Messwerte. Als Ursache dafür könnten Ungenauigkeiten in der Phaseneichung oder der vollautomatisierten SI-Rekonstruktion in Frage kommen. Da dieser Bereich jedoch nahe an der Polstelle bei zirkularem Licht befindet, wirken sich kleine Fehler in der Amplitudenformung stark auf die Position in der Poincaré-Ebene aus.

4.3.3 Polarisationsdrehung eines spektralen Fensters

Eine weitere Methode, um die gleichzeitige Formbarkeit von spektralen Phasen und Amplituden zu demonstrieren, ist in [49] gezeigt. Die Messung ist in ähnlicher Weise hier

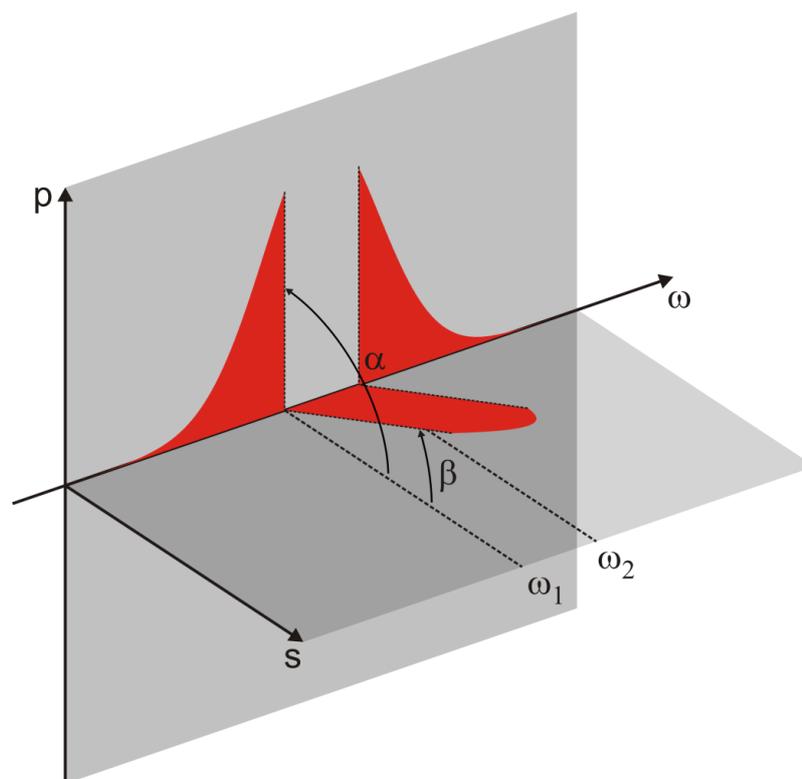


Abb. 16: Schematische Darstellung der Polarisationsdrehung eines spektralen Fensters. Der zentrale Bereich des Spektrums $\omega_1 \leq \omega \leq \omega_2$ ist um den festen Winkel β gedreht. Der Rest des Spektrums wird kontinuierlich um den Drehwinkel α gedreht. Adaptiert aus [49].

durchgeführt worden. Dazu wird ein zentraler Bereich des Spektrums von $\omega_1 = 2.37 \text{ rad fs}^{-1}$ bis $\omega_2 = 2.43 \text{ rad fs}^{-1}$ durch den VFS um einen konstanten Winkel β gedreht (siehe Abbildung 16). Der Drehwinkel, um den das spektrale Fenster gekippt ist, wurde hier zu $\beta = 30^\circ$ gewählt.

Der restliche Spektralbereich wird anschließend durch den VFS kontinuierlich um den Drehwinkel α in der Polarisationsrichtung rotiert. Für jeden Drehwinkel α wird anschließend eine SI-Messung durchgeführt, um die vom VFS erreichten Winkel α' und β' experimentell zu bestimmen. Exemplarisch ist das für die Drehwinkel $\alpha = 0^\circ$ und $\alpha = 90^\circ$ in einer Quasi-3D-Darstellung in Abbildung 17 a) gezeigt. Ein Drehwinkel von $\alpha = 0^\circ$ bedeutet, dass der außerhalb des Fensters $\omega_1 \leq \omega \leq \omega_2$ liegende Spektralbereich ausschließlich einen s-polarisierten Anteil aufweist. Die gemessene Orientierung des Spektrums ist für diesen Drehwinkel fast ausschließlich innerhalb der s-Polarisationsebene (rote Kurve). Für einen Drehwinkel von $\alpha = 90^\circ$ würde man ausschließlich p-polarisiertes Licht erwarten, was auch in der Messung zu sehen ist (blaue Kurve). Das innerhalb des spektralen Fensters liegende Spektrum ist unabhängig von α und konstant um einen Drehwinkel $\beta = 30^\circ$ gegenüber der s-Polarisationsebene rotiert. Dabei ist qualitativ erkennbar, dass der Drehwinkel β nicht über das gesamte spektrale Fenster konstant ist. In der Mitte des Fensters vergrößert er sich, während er an dessen Rändern abnimmt. Diese Ungenauigkeit resultiert vermutlich aus einem Phasensprung, der innerhalb dieses Spektralbereiches stattgefunden hat.

Der Drehwinkel α wurde in 1° Schritten von 0° bis 180° variiert. Die spektralen Amplituden und spektralen Phasen wurden durch eine SI-Messung für jeden Drehwinkel α gemessen. Sie sind in Abbildung 17 a) gezeigt. Das um einen konstanten Drehwinkel β rotierte spektrale Fenster ist durch eine gestrichelte Linie markiert. Die spektrale Amplitude und Phase sind in diesem Fenster konstant gehalten worden, wodurch auch der Winkel β konstant bleibt. Die außerhalb liegenden spektralen Amplituden variieren hingegen mit dem Drehwinkel α . Die Drehung der Polarisation des Spektralbereiches von $\alpha = 0^\circ$ bis $\alpha = 90^\circ$ geschieht dabei durch reine Amplitudenformung ohne Phasendifferenz zwischen den Polarisationskomponenten. Um diese weiter von 90° bis 180° zu drehen, muss die Phasendifferenz auf π eingestellt werden. Das ist in der Phase der s-Polarisation ab einem Winkel von 90° zu sehen. Für $\alpha = 58^\circ$ ist der Phasenwert der s-Polarisation um einen konstanten Wert größer als Null. Vermutlich kam dieser durch eine Erschütterung am Lasertisch zustande, die von der Phasenstabilisierung nicht kompensiert werden konnte.

Im Folgenden wird der gemessene Drehwinkel aus den Amplitudenverhältnissen bestimmt:

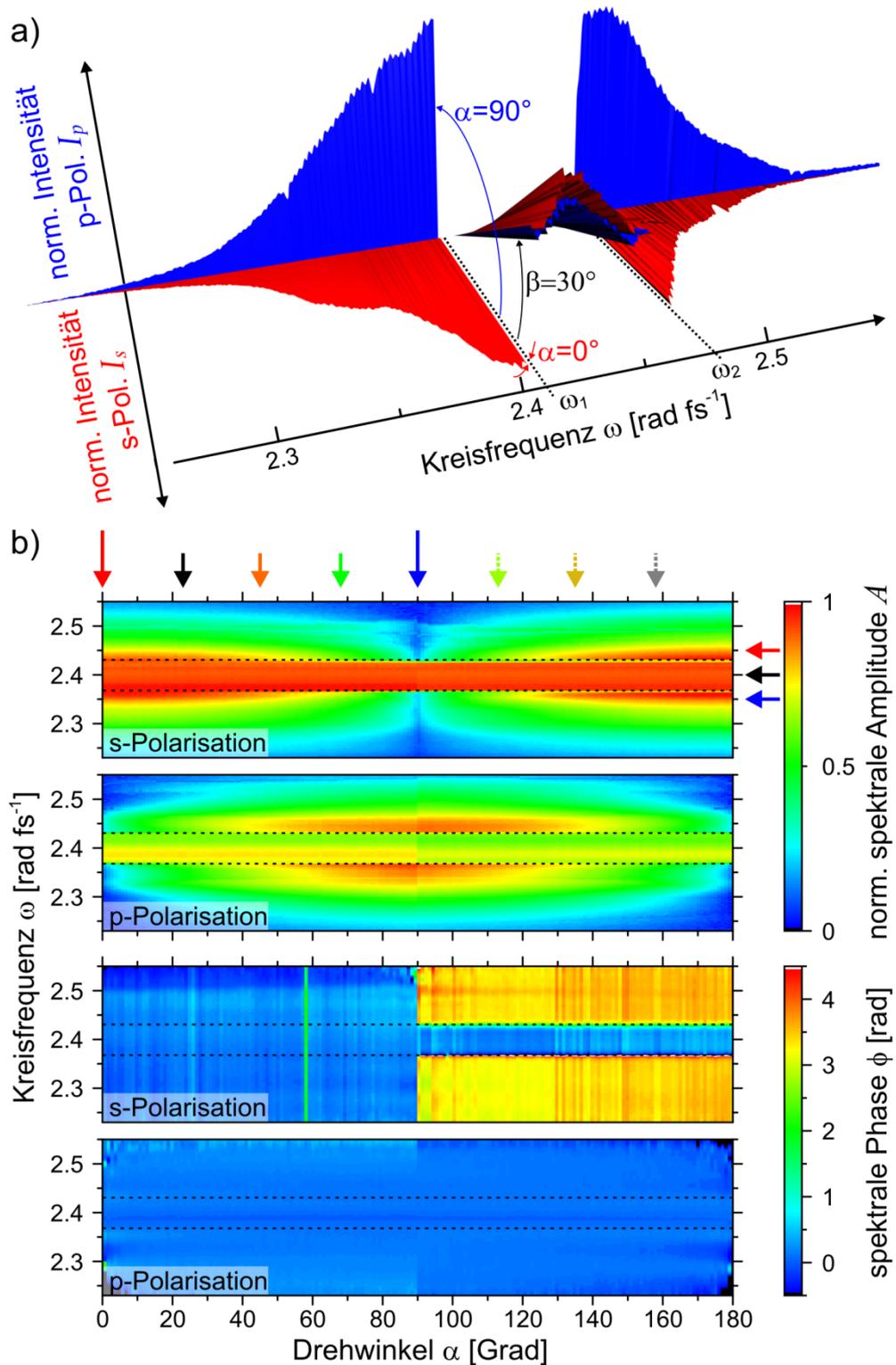


Abb. 17: a) Quasi-3D-Darstellung der gemessenen spektralen Intensitäten für die Drehwinkel $\alpha = 0^\circ$ und $\alpha = 90^\circ$. Der s- und p-Polarisationsanteil sind orthogonal zueinander aufgetragen. b) Spektrale Amplitude und Phase für verschiedene Drehwinkel α . Die Position der in a) gezeigten Spektren wurde auf der Drehwinkel-Achse durch einen verlängerten blauen und roten Pfeil markiert.

$$\alpha' = \arctan \frac{I_p(\omega)}{I_s(\omega)} \quad (4.6)$$

Dabei ist $I_p(\omega)$ die spektrale Intensität des p-polarisierten Lichtes und dem entsprechend $I_s(\omega)$ die des s-polarisierten. Auf den zusätzlichen Phasensprung von π , welcher im Bereich von $\alpha > 90^\circ$ in der Phase der s-Polarisation eingeführt wurde, wird im Folgenden aus Gründen der Darstellung verzichtet. In Abbildung 18 a) ist für eine Kreisfrequenz $\omega_{\text{schwarz}} = 2.40 \text{ rad fs}^{-1}$, die innerhalb des spektralen Fensters liegt, und zwei Kreisfrequenzen $\omega_{\text{rot}} = 2.36 \text{ rad fs}^{-1}$ und $\omega_{\text{blau}} = 2.44 \text{ rad fs}^{-1}$, die außerhalb des spektralen Fensters liegen, der gemessene Drehwinkel α' aufgetragen.

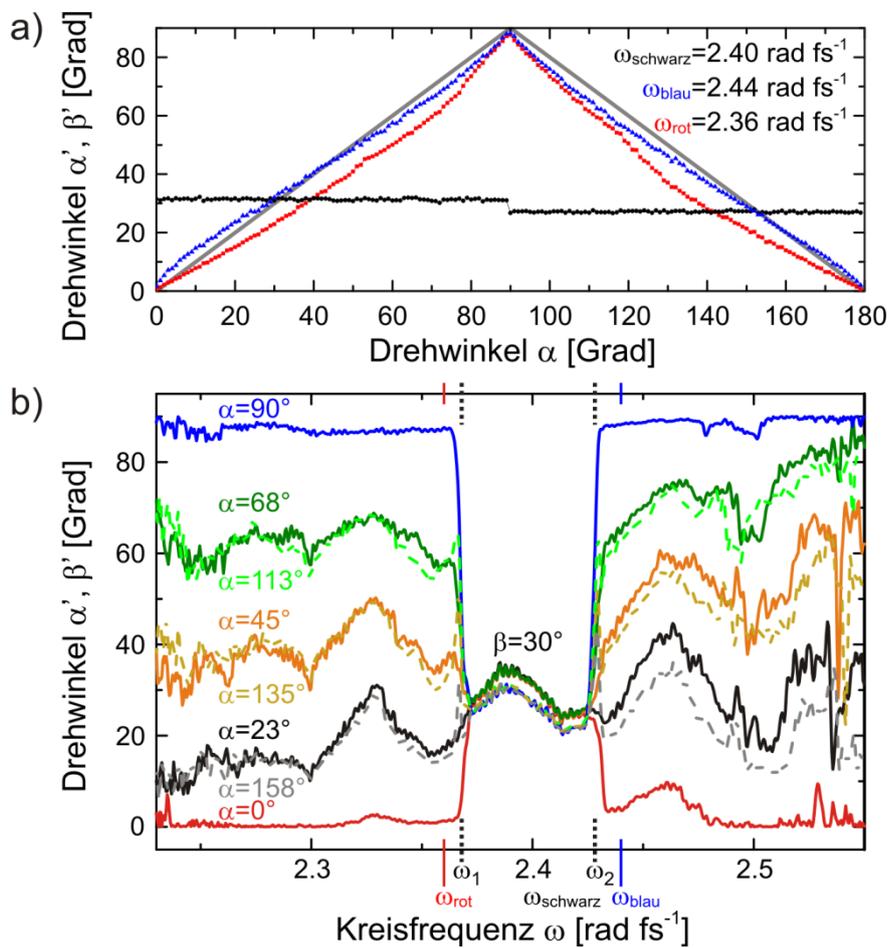


Abb. 18: a) Gemessene Drehwinkel α' und β' gegenüber eingestellten Drehwinkel α für eine Kreisfrequenzposition ω_{schwarz} innerhalb des spektralen Fensters (schwarze Kurve) und zwei Positionen außerhalb ω_{rot} und ω_{blau} (rote und blaue Kurve). Die spektralen Positionen sind in Abbildung 17 an der Kreisfrequenzachse mit entsprechend farbigen Pfeilen markiert. b) Spektral aufgelöste gemessene Drehwinkel α' und β' für verschiedene vorgegebene Drehwinkel α . Die ausgewählten Drehwinkel sind in Abbildung 17 entlang der Abszisse durch farbige entsprechende Pfeile markiert.

Es ergibt sich für $\omega_{schwarz}$ ein Drehwinkel des spektralen Fensters von $\beta' = 31^\circ$ für $\alpha < 90^\circ$ und $\beta' = 27^\circ$ für $\alpha \geq 90^\circ$. Der Sprung des Drehwinkels β' bei $\alpha = 90^\circ$ ist ein Artefakt der Phaseneichung. Wenn für $\alpha \geq 90^\circ$ die konstante Phase π zusätzlich angelegt wird, versucht ein Optimierungsalgorithmus Artefakte durch Phasensprünge zu minimieren (siehe Kapitel 4.2.2). Dabei kann die Phasenfunktion um den konstanten Wert 2π verschoben werden und man erreicht eine entsprechend verschobene Stelle der Phaseneichung. Ungenauigkeiten in der Phaseneichung werden dadurch sichtbar. Für die gemessenen Drehwinkel α' würde man einen linearen Verlauf erwarten (graue durchgezogene Linie). Bei beiden ausgewählten Kreisfrequenzen ω_{rot} und ω_{blau} treten Abweichungen von diesem Verlauf auf. Für ω_{rot} beträgt die Standardabweichung $\Delta\alpha'_{rot} = 3.3^\circ$ und für ω_{blau} ist $\Delta\alpha'_{blau} = 1.5^\circ$.

Die gemessenen Drehwinkel α' und β' werden im Folgenden frequenz aufgelöst für ausgewählte Drehwinkel α betrachtet, siehe Abbildung 18 b). Die Werte von α sind im Diagramm angegeben und in Abbildung 17 b) durch entsprechende Pfeile auf der Drehwinkel-Achse gekennzeichnet. In allen gemessenen Drehwinkeln α' und β' sind ähnlich ausgeprägte Abweichungen zu erkennen, die sich um bis zu 25° vom eingestellten Wert α unterscheiden. Sie haben Ähnlichkeiten zu den wellenförmigen Abweichungen in der Phaseneichung (vgl.: Kapitel 4.2.2, Abbildung 13). Das lässt auf einen systematischen Fehler in der Phaseneichung schließen. Es wird vermutet, dass solche Abweichungen auftreten, wenn der Unterschied zwischen den an den Layern angelegten Spannungscounts groß, im Verhältnis zu den konstanten Spannungscounts ist, für die die Phaseneichung erstellt wurde. Dies würde auf eine Fehlfunktion des SLM-Displays hinweisen. Bei der Phaseneichung wird ein Layer stets auf konstanten Spannungscounts gehalten. Führt man die Phaseneichung bei einem anderen konstanten Spannungscounts durch, sollte dies laut Herstellerangaben die Phaseneichung nicht maßgeblich beeinflussen. Es wurden jedoch Unterschiede in den Phaseneichungen beobachtet, wenn sie bei unterschiedlichen konstanten Spannungscounts durchgeführt wurden (hier nicht gezeigt). Für zukünftige Phaseneichungen sollte dieser Effekt quantitativ untersucht werden.

4.4 Zusammenfassung

In diesem Kapitel konnte die volle Funktionsfähigkeit eines VFS präsentiert werden. Dieser wurde durch eine geeignete Software-Umgebung vollständig in schon bestehende Experimente integriert und kann dadurch sehr flexibel eingesetzt werden. Die vorgestellten Prozedere zur Phasen- und Amplitudeneichung sind in hohem Maße automatisiert, wodurch Zeit bei der Kalibrierung gespart wird.

Die interferometrische Stabilität des Systems wurde durch eine aktive Phasenstabilisierung sichergestellt. Durch die Messung der spektralen Phasen des s- und p-polarisierten Anteils konnte eine Stabilität von $\Delta\phi_s(t) = \pm 75 \text{ mrad}$ gegenüber der Phase des p-polarisierten Lichtes bestimmt werden. Diese ist genau so gering, wie in vergleichbaren phasenstabilisierten VFS [50, 51]. Es konnte des Weiteren gezeigt werden, dass fast alle Punkte in der Poincaré-Ebene durch die gleichzeitige Amplituden- und Phasenmodulation erreichbar sind. Ein kleiner Bereich konnte nicht angesteuert werden, was vermutlich auf Ungenauigkeiten in der Phaseneichung zurückzuführen ist.

Als weitere Demonstration der simultanen Phasen und Amplitudenformung wurde ein spektrales Fenster in einer Polarisationsrichtung fixiert, während das verbleibende Spektrum kontinuierlich in seiner Polarisationsrichtung gedreht wurde. Durch die Analyse der gemessenen Drehwinkel und den Vergleich zu den vorgegebenen Drehwinkeln konnten Fehler in der Phaseneichung identifiziert werden. Deren Ursache konnte jedoch nicht abschließend geklärt werden. Es sind vermutlich systematische Fehler, die in der Messung der Eichspektren auftreten oder Artefakte, die innerhalb des SLM-Displays erzeugt werden. Die hier identifizierten Artefakte in der der Pulsformung führen jedoch zu nur geringen Abweichungen, so dass sie in den Experimenten keinen signifikanten Einfluss haben.

Der VFS wird in Kapitel 7 zur Erzeugung komplex geformter Laserpulse eingesetzt. Er dient dann dazu, den Lichtpulsen verschiedene spektrale Phasenfunktionen aufzuprägen, die von einem Algorithmus vorgegeben werden.

5 Anderson-Lokalisierung in nanotexturierten Absorberschichten

Es wird fortwährend nach Methoden gesucht, die Effizienz von Solarzellen zu erhöhen und gleichzeitig die Absorberschichten sehr dünn zu gestalten, um bei der Produktion Material einzusparen. Bei Dünnschichtsolarzellen ist die Absorberschicht nur noch 200-300 nm dünn [52]. Bei so geringen Schichtdicken wird unter senkrechtem Lichteinfall nur ein Bruchteil des Lichtes absorbiert. Ein Großteil durchdringt das Schichtsystem, ohne absorbiert zu werden, und ist somit für die Stromerzeugung verloren. Das fundamentale Problem besteht darin, dass der Wellenvektor des Lichtes idealerweise innerhalb der Ebene der Absorberschicht orientiert sein muss, um vollständige Absorption zu erreichen. Bisher gibt es keinen Ansatz, um die Lichtbrechung so zu manipulieren, dass dies für alle Einfallrichtungen und Wellenlängen des Lichtes gelingt. Gitterstrukturen können beispielsweise effizient die Propagationsrichtung manipulieren, jedoch nur für eine feste Einfallrichtung und Wellenlänge [14, 53]. Eine Methode zur Steigerung der Lichtausbeute ist der Einsatz von randomisierten Grenzflächentexturierungen [54-56]. Der in solchen Schichtsystemen zugrunde liegende Absorptionsmechanismus wurde bisher im Rahmen der klassischen Strahlenoptik diskutiert. Ursprünglich wurde die theoretisch erreichbare obere Grenze für die Absorption einer Absorberschicht mit texturierten Grenzflächen durch das Yablonovitch-Limit definiert [57-59]. Diese klassische strahlenoptische Abschätzung sagt ein oberes Limit für die Absorption vorher. In darauffolgenden theoretischen Arbeiten konnte jedoch gezeigt werden, dass dieses Limit überwunden werden kann [5, 6]. Dies wird erreicht, indem die volle Wellennatur des Lichtes berücksichtigt wird.

Ein Überblick über die bestehenden theoretischen Arbeiten zur Überschreitung des Yablonovitch-Limits wird im nachfolgenden Kapitel 5.1 gegeben. Es gibt den Grund zu der Annahme, dass der Absorptionsmechanismus in Absorberschichten mit randomisierten Nanostrukturen auf einem Effekt beruht, welcher durch die klassische Strahlenoptik nicht beschrieben werden kann. Dieser Absorptionsmechanismus kann später durch Messungen als Anderson-Lokalisierung identifiziert werden. Die Anderson-Lokalisierung wird in Kapitel 5.2 beschrieben. Durch die in Kapitel 5.3 vorgestellten orts aufgelösten Streulichtspektroskopiemessungen und die zeitliche Rekonstruktion des Streulichtes kann nachgewiesen werden, dass sich innerhalb von Dünnschichtsolarzellen Anderson-lokalisierte Moden ausbilden. Zur weiteren Untersuchung dieser Moden werden in dem Kapitel 5.3.6 räumlich hochaufgelöste PEEM-Messungen (Photoemissionselektronen-Mikroskop) und FDTD-Simulationen (engl. Finite-Difference Time-Domain) der Dünnschichtsolarzellen vorgestellt. Anschließend werden in Kapitel 5.4 Laserablationsverfahren eingesetzt, um Absorberschichten aus amorphem Silizium mit einer Oberflächentexturierung zu

versehen. Durch diese Texturierungen kann eine Verstärkung der Anderson-Lokalisierung in den Absorberschichten nachgewiesen werden.

5.1 Überwindung des Yablonovitch-Limits

Zur Konstruktion einer Solarzelle ist es essenziell zu wissen, ob eine weitere Erhöhung der Effizienz aufgrund von verstärkter Lichteinkopplung zu erwarten ist. In theoretischen Rechnungen wird versucht diese Frage zu klären. Eine erste wichtige Abschätzung zur maximal erreichbaren Absorption in einer Absorberschicht wurde von Eli Yablonovitch aufgestellt [58]. Der Absorptionsmechanismus ist dort durch einen statistischen strahlenoptischen Ansatz realisiert. Dazu wird eine Absorberschicht mit einem Brechungsindex n angenommen, die beidseitig texturiert ist. Die Texturierung ist derart beschaffen, dass die Streuung an der Grenzfläche zu einer Lambert'schen Abstrahlcharakteristik führt. Die weitere Ausbreitung der Lichtstrahlen ist dann ergodisch. Dies bedeutet, dass die zeitlich gemittelte Intensität des Lichtes der statistischen Phasenraum-Intensitätsverteilung entspricht. Als Konsequenz breitet sich ein Lichtstrahl, der in das Material eindringt, unabhängig von seiner Einfallsrichtung aus. Unter diesen Annahmen ergibt sich, mithilfe des Planckschen Strahlungsgesetzes, die folgende Beziehung zwischen der Intensität des einfallenden Lichtes $I_{ext}(\omega, x)$ und der Intensität des Lichtes in der Absorberschicht $I_{int}(\omega, x)$ zu:

$$I_{int}(\omega, x) = n^2(\omega, x) I_{ext}(\omega, x) \quad (5.1)$$

Der Brechungsindex n ist dabei sowohl von der Kreisfrequenz ω als auch vom Ort x abhängig. Wird auf die Rückseite nun noch ein perfekter Spiegel angebracht, der die transmittierte Strahlung zurück in die Absorberschicht reflektiert, so erhöht sich die Lichtintensität in dieser um den Faktor zwei und es ergibt sich:

$$I_{int}(\omega, x) = 2 n^2(\omega, x) I_{ext}(\omega, x) \quad (5.2)$$

Unter der Annahme kleiner Absorptionskoeffizienten und einer Verlängerung des optischen Weges um den Faktor $\sqrt{2}$, erhöht sich die Absorption in der Schicht um den Faktor $4n^2$. Dieses Modell kann zudem für beliebige Absorptionskoeffizienten erweitert werden [59].

Mithilfe dieser Abschätzung lässt sich voraussagen, wie weit sich die Effizienz von Solarzellen mithilfe von strahlenoptischen Ansätzen, wie z. B. Antireflexbeschichtungen [60] oder „light trapping“-Texturierungen steigern lässt. An eine nach dem Lambert'schen Gesetz streuende Fronttextur kommt „Black Silicon“ nahe heran [61]. Auch in Experimenten, die mit diesem Material durchgeführt wurden, ist die Absorption erhöht [62]. Der Herstellungsprozess macht jedoch eine hohe Dotierungskonzentration notwendig, was die Konversions- und Quanteneffizienz verringert.

Ein großer Nachteil der Absorptionsabschätzung nach Yablonovitch ist, dass sie Wellenphänomen und Interferenzeffekte nicht berücksichtigt. Sie gewinnen jedoch enorm an Bedeutung, wenn die Schichtdicke des Absorbers bzw. die Strukturgrößen der Oberflächentexturierung in der Größenordnung der Wellenlänge des Lichtes sind. Die Berücksichtigung weiterer Lokalisationsphysik kann somit neue Methoden zur Erhöhung der Absorption aufzeigen. Dazu wurden bereits theoretische Arbeiten durchgeführt. Einige vielversprechende Ansätze werden im Folgenden vorgestellt.

Texturierung mit periodischen Streustrukturen

Ein grundlegendes Problem besteht darin, den Wellenvektor des Lichtes zu manipulieren, welches frontseitig auf eine Absorberschicht fällt. In der Absorberschicht sollte im besten Fall der Wellenvektor des Lichtes innerhalb der Schichtebene liegen. Eine elegante Lösung für dieses Problem wird in [5] vorgestellt und im Folgenden beschrieben.

Für eine unendlich ausgedehnte Schicht divergiert der zurückgelegte optische Weg im Material und das Licht wird vollständig absorbiert. Um dies zu erreichen, wird in dem vorgestellten Ansatz die Absorberschicht rückseitig mit einer Gitterstruktur versehen. Trifft monochromatisches Licht als ebene Welle unter einem festen Winkel auf das Gitter, kommt es zur Beugung. Durch die Wahl einer geeigneten Gitterkonstante propagiert das gebeugte Licht in der Schichtebene. Dies wird auch als „geführte Resonanz“ bezeichnet [63]. Geführte Resonanzen bilden sich aufgrund der vom Schichtsystem gegebenen strukturellen Randbedingungen und koppeln an die entsprechende einfallende ebene Welle. In einem solchen Schichtsystem treten bei verschiedenen Anregungswellenlängen mehrere derartige Resonanzen auf. Deren Gesamtzahl wird mit N bezeichnet und es wird angenommen, dass sie auch untereinander koppeln. Mithilfe der zeitlich gekoppelten Modentheorie wird in diesem Ansatz für solch ein Schichtsystem ein oberes Limit für die Absorption A_{\max} angegeben. Unter der Annahme, dass das Absorbermaterial nur schwach absorbiert und die spektrale Breite des Spektrums der einfallenden Strahlung $\Delta\omega$ größer ist als die der intrinsischen Verlustrate γ_i , ergibt sich:

$$A_{\max} = \frac{1}{\Delta\omega} \sum_{m=0}^N \frac{2\pi \gamma_{i,m}}{N} \quad (5.3)$$

Dabei wird über alle Resonanzen m im Spektralbereich $\Delta\omega$ summiert. Angewandt auf die oben beschriebene Absorberschicht mit Gitterstruktur kann das Yablonovitch-Limit reproduziert werden. Dazu muss gelten, dass die Periodizität des Gitters nicht in der gleichen Größenordnung der Lichtwellenlänge liegt und die Schichtdicke größer als die Lichtwellenlänge ist.

Wählt man die Periodizität des Gitters in der Größenordnung der Wellenlänge, bildet sich für diese Wellenlänge eine Resonanz und die Absorption steigt an. Dies ist jedoch stark vom Einfallswinkel und der Wellenlänge abhängig. In der Praxis sollte die Absorption sowohl für einen breiten Spektralbereich als auch für einen großen Winkelbereich hoch sein. Um dies zu erreichen, wurde eine 5 nm dünne Absorberschicht (wellenlängenunabhängige Absorptionslänge $l_{abs} = 25\mu\text{m}$) mit einer komplexen Streustruktur auf der Oberseite ausgestattet, siehe Abbildung 19 a). Trifft Licht auf dieses Schichtsystem, so kommt es zu komplexen Beugungen an der Streuschicht. Dies passiert analog zu dem oben beschriebenen Schichtsystem mit Gitter und es bilden sich wieder geführte Resonanzen. Die Berechnungen dazu wurden im Streumatrix-Formalismus numerisch durchgeführt. Infolge des „Slot-Waveguide“-Effekts [64] konzentriert sich die Fundamentalmode in der Absorberschicht und es kommt dort zur Feldüberhöhung. Das ist in Abbildung 19 b) dargestellt. Sie zeichnet sich außerdem durch eine große spektrale Breite aus, siehe Abbildung 19 c). Das für diese Struktur berechnete Yablonovitch-Limit liegt mit einer Absorptionserhöhung von $F = 50$ deutlich unterhalb der gemittelten Absorptionserhöhung von $F = 119$. Die Absorptionserhöhung F ist dabei als Verstärkung der Absorption gegenüber der Absorption infolge eines einfachen Durchlaufs durch das Schichtsystem definiert. Um zu zeigen, dass dieser Effekt auf die Nanolokalisierung in der Absorberschicht zurückzuführen ist, wurde deren dielektrische Konstante mit derjenigen der Streuschicht gleich gesetzt. Dadurch wird der Slot-Waveguide-Effekt verhindert und es tritt keine Feldüberhöhung in der Absorberschicht mehr auf. Dementsprechend fällt die mittlere Absorptionserhöhung nun mit dem Yablonovitch-Limit zusammen. Des Weiteren wurde für die Streustruktur die Absorptionserhöhung als Funktion des Polarwinkels für Lichteinfall unter 0° (Abbildung 19 e)) und 45° azimuthaler Richtung (Abbildung 19 f)) bestimmt. In beiden Fällen ist eine überwiegend homogene Erhöhung der Absorption für alle Einfallswinkel zu beobachten.

Es muss jedoch auch zur Kenntnis genommen werden, dass der Brechungsindex des Absorbermaterials mit $n = \sqrt{\varepsilon} = 1.6$ zu gering für ein Halbleitermaterial angesetzt ist. Je größer der Unterschied zwischen dem Brechungsindex der Absorberschicht und dem der Zwischenschicht ist, desto größer wird die Feldüberhöhung in der Absorberschicht. Ein realistischer Brechungsindex würde den beobachteten Effekt somit verringern.

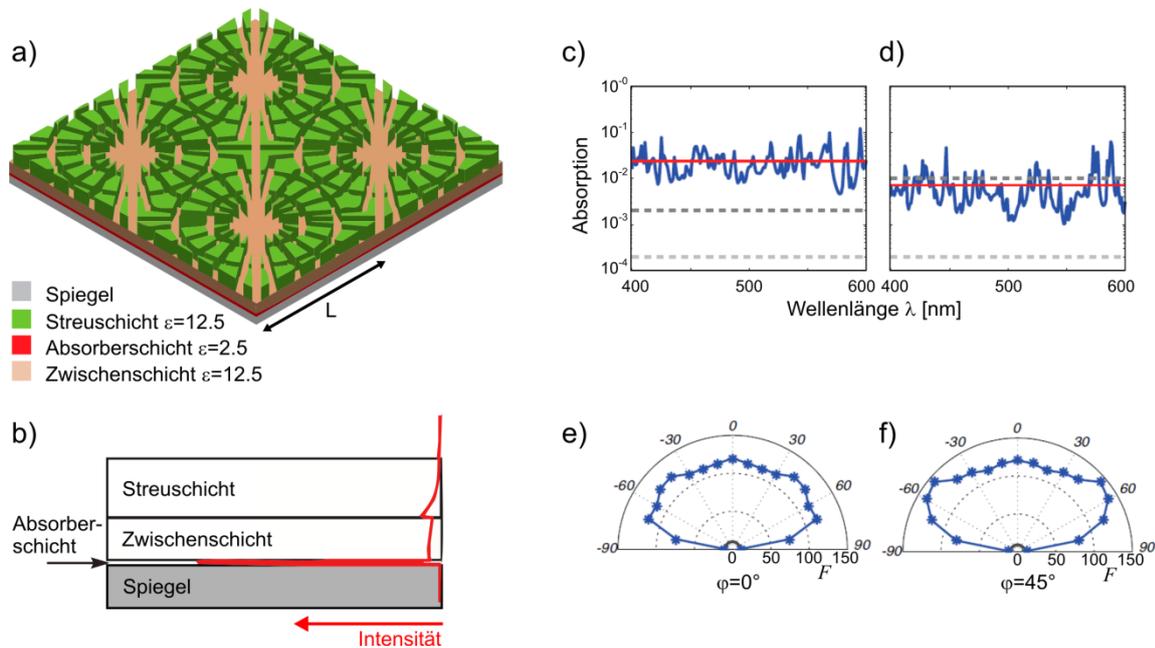


Abb. 19: a) Absorberschicht mit Streuschicht. Die Periodizität der Streustruktur beträgt $L = 1200$ nm. Die Dicke der Streuschicht, Zwischenschicht und Absorberschicht sind 80 nm, 60 nm und 5 nm. Die dielektrische Konstante ϵ der jeweiligen Materialien ist unterhalb der Struktur angegeben. b) Schnittbild durch das Schichtsystem. Die Intensität des elektrischen Feldes ist als rote Kurve eingezeichnet. c) Absorptionsspektrum der in a) gezeigten Struktur (blaue Linie) und dessen Mittelwert (rote Linie). Das Yablonovitch-Limit (dunkelgraue gestrichelte Linie) und die Absorption für einen einfachen Durchgang durch das Schichtsystem (hellgraue gestrichelte Linie) sind eingezeichnet. d) Absorptionsspektrum der in a) gezeigten Struktur, wobei die dielektrische Konstante gleich der in der Streuschicht gesetzt wurde. Bezeichnungen wie in c). e), f) Gemittelte Absorptionserhöhung, die sich durch Lichteinfall unter $\varphi = 0^\circ$ (e) und $\varphi = 45^\circ$ (f) azimutalem Winkel für verschiedene Polarrichtungen ergibt. Der graue Halbkreis repräsentiert das Yablonovitch-Limit. Adaptiert aus [5]

Die Autoren haben in dieser theoretischen Arbeit gezeigt, dass mithilfe einer speziell designten zusätzlichen Streuschicht die Absorption innerhalb einer dünnen Absorberschicht deutlich erhöht werden kann. Dies gelang, indem ein Modell von statistisch gekoppelten Moden verwendet wurde. Dadurch wird berücksichtigt, dass strahlenoptische Ansätze nicht mehr gültig sind, sobald die Absorberschichtdicke und Streuobjekte in der Größenordnung der Wellenlänge liegen.

Randomisierte Streustrukturen

Es wird nun wiederum im Rahmen des Modenmodells eine Absorberschicht betrachtet, die deutlich dünner als die Wellenlänge des Lichtes ist. Im Gegensatz zum vorherigen Ansatz wird jedoch keine periodische, lichtstreuende Struktur zusätzlich auf die

Absorberschicht aufgebracht. In dem hier vorgestellten Ansatz [17] fungiert die Absorberschicht gleichzeitig als Licht konzentrierende Streustruktur.

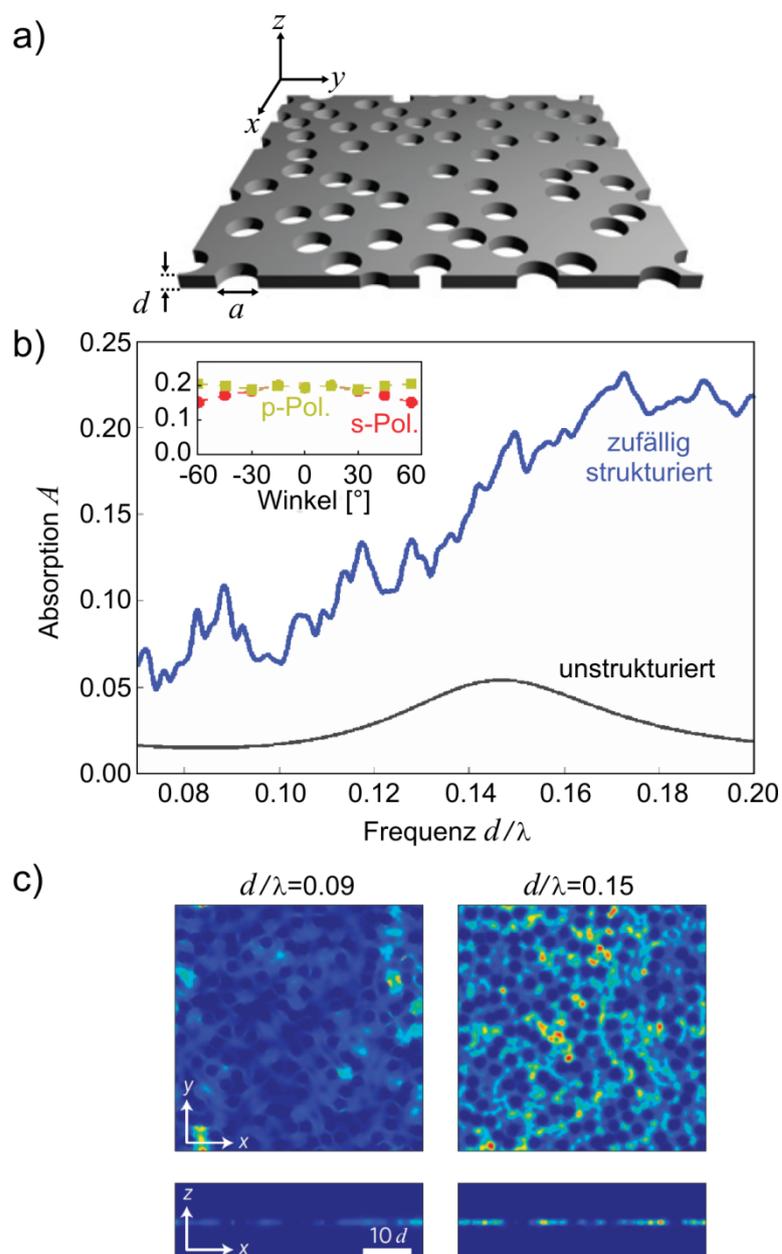


Abb. 20: Lichtabsorption in einer dünnen, zufällig strukturierten Absorberschicht. a) Darstellung des Schichtsystems. b) Absorptionsspektrum der Absorberschicht ohne Strukturierung (schwarze Kurve) und mit zufälliger Strukturierung (blaue Kurve) für senkrechten Lichteinfall. Die Polarisation des Lichtes ist entlang der x -Achse. Eingefügt ist die Winkelabhängigkeit der Absorption bei $d/\lambda = 0.15$ für s- und p-polarisiertes Licht. c) Draufsicht und Seitenansicht der räumlichen Verteilung der elektromagnetischen Energiedichte bei $d/\lambda = 0.09$ (links) und $d/\lambda = 0.15$ (rechts). Es wurde auf die jeweils höchste Energiedichte normiert. Adaptiert aus [17].

Die strukturierte Absorberschicht ist in Abbildung 20 a) dargestellt. Es handelt sich um eine Schicht der Dicke d , welche eine Permittivität von $\varepsilon=12$ und eine Absorptionslänge von $l_{abs}=33d$ aufweist. Damit ist die Schicht vergleichbar mit amorphem Silizium bei einer Anregung im roten Spektralbereich [65]. Sie ist durchzogen von Löchern mit einem Durchmesser von $a=2.7d$ und einem Füllfaktor von $f=30\%$. Angemerkt sei, dass durch die Strukturierung die Materialmenge der Absorberschicht um den genannten Füllfaktor reduziert wird. Die numerischen Berechnungen wurden mithilfe von dreidimensionalen FDTD-Simulationen durchgeführt. Für die Schicht wurde anschließend die Absorption berechnet (siehe Abbildung 20 b)). Für eine unstrukturierte Absorberschicht ist die Absorption stets $A<0.05$. Das Maximum bei $d/\lambda=0.145$ kommt durch eine Fabry-Pérot-Mode zustande. Im Fall einer zufällig strukturierten Absorberschicht zeigt sich hingegen eine deutlich erhöhte Absorption. Gemittelt über den betrachteten Spektralbereich wird sie mit einer Erhöhung um den Faktor $F=4.8$ gegenüber der unstrukturierten Absorberschicht angegeben. Um den Mechanismus der Lichtlokalisierung zu klären, wurde die elektromagnetische Energiedichte in der strukturierten und unstrukturierten Absorberschicht berechnet. Beleuchtet wurde unter senkrechtem Einfall mit in x -Richtung polarisiertem Licht. Für diese Rechnung wurde die Absorption als vernachlässigbar angenommen, die strukturellen Parameter aber sonst beibehalten. Die Energiedichte ist orts aufgelöst für die Frequenzen $d/\lambda=0.09$ und $d/\lambda=0.15$ in Abbildung 20 c) dargestellt. Erkennbar ist eine komplexe Nahfeldverteilung, dessen räumliche Fluktuationen mit höherer Frequenz (rechtes Bild) zunehmen. Es entsteht durch die Interferenz verschiedener Streupfade innerhalb der Schicht. Die räumliche Ausdehnung der Nahfelder ist etwa ein Viertel der Anregungswellenlänge.

Infolge der zufälligen Strukturierung des Absorbermaterials dient es selbst als Antenne für die eintreffende Strahlung. Die Strahlung wird dann in eine Nahfeldverteilung überführt, die zu lokal erhöhten Energiedichten führt. Diese Moden bewirken letztendlich die Erhöhung der Absorption in der Absorberschicht. Die Feldüberhöhung wird dabei auf eine chaotische Modenbildung innerhalb der randomisierten Struktur zurückgeführt. Vieles in diesem Beispiel weist Analogien zu Anderson-lokalisieren Moden auf, wobei sie dort nicht als solche bezeichnet werden. Die räumliche und zeitliche Lokalisierung von Licht in randomisierten Medien wird im nachfolgenden Kapitel im Rahmen der Anderson-Lokalisierung diskutiert.

5.2 Prinzip der Anderson-Lokalisierung

Im vorherigen Kapitel wurden Beispiele aufgeführt, die zeigen, dass zur Beschreibung der Lichtpropagation und Absorption im Material die Wellennatur des Lichtes

berücksichtigt werden muss. Dies führt zu neuartigen Propagationseffekten von Licht in Dünnschichtsolarzellen, die in der Strahlenoptik nicht erfasst werden. Der in dieser Arbeit in Dünnschichtsolarzellen beobachtete Effekt, die Anderson-Lokalisierung [66, 2], wird im Folgenden erläutert.

Die elektrische Leitfähigkeit wird im klassischen Drude-Modell [67] durch die Streuung von Elektronen an Gitterionen beschrieben. Für die Elektronen ergibt sich dadurch eine mittlere freie Weglänge l , welche die Propagationslänge zwischen zwei Stößen darstellt. Wenn l abnimmt, verringert sich auch die elektrische Leitfähigkeit σ . Dies ist auch als Ohmsches Gesetz bekannt. Dieses wird beim Auftreten von Anderson-Lokalisierung verletzt. Der Grund dafür ist die klassische Betrachtungsweise.

Innerhalb eines stark streuenden Mediums ist l klein und gelangt in die Größenordnung der de Broglie-Wellenlänge λ_B , wodurch bei der Streuung der Wellencharakter der Elektronen nicht mehr vernachlässigbar ist [19]. Es kommt zu Mehrfachstreuung, wodurch sich geschlossene Streu-Schleifen bilden können. Da die Weglänge für den Durchlauf einer Streu-Schleife unabhängig vom Umlaufsinn ist, kommt es zur konstruktiven Interferenz am Startpunkt. Die Wahrscheinlichkeit zurück an den Anfangspunkt der Streu-Schleife zu gelangen, erhöht sich um den Faktor zwei im Gegensatz zu allen anderen möglichen Streupfaden. Dieser Interferenzeffekt führt somit zum Verschwinden der Elektronendiffusion, da ein Elektron in solch einer Schleife „gefangen“ ist. Dies wird als Anderson-Lokalisierung oder auch starke Lokalisierung bezeichnet.

Der Übergang zur Lokalisierung tritt bei Elektronen auf, wenn die de-Broglie-Wellenlänge λ_B vergleichbar mit der mittleren freien Weglänge l ist. Dies wird formal durch das Ioffe-Regel-Kriterium [68] beschrieben: Lokalisierung tritt auf, wenn $kl < 1$ mit $k = 2\pi/\lambda_B$ gilt. Im quantenmechanischen Bild stellt man sich ein räumlich zufällig modulierte Potential $V(x)$ vor, welches für eine mittlere freie Weglänge l zu lokalisierten Zuständen führt. Da der Unordnungsgrad der räumlichen Modulation die mittlere freie Weglänge bestimmt, ist sie maßgeblich für die Lokalisierung verantwortlich. Elektronen, deren Wellenlänge oberhalb einer kritischen Wellenlänge liegt, tragen somit nicht zum Ladungstransport bei. Die Energie, welche zu dieser kritischen Wellenlänge korrespondiert, wird als Mobilitätslücke bezeichnet [69]. Sie charakterisiert den Übergang vom Metall zu einem Isolator bzw. von delokalisierten zu lokalisierten Zuständen.

Experimente zur Untersuchung des Energietransfers zwischen Kernspins und den Gitterphononen in dotierten Halbleitern bei starken Magnetfeldern zeigten ungewöhnlich lange Spin-Relaxationszeiten [70], welche mit einem Diffusionsmodell nicht vereinbar waren. Sie konnten jedoch später von Anderson durch ein „Tight-Binding-Model“ der

Elektronen in einem zufälligen Potential beschrieben werden [18]. Anschließend wurde dieses Modell erfolgreich zur Erklärung des „Metall-Isolator-Übergangs“ (MIT, engl. Metal Insulator Transition) verwendet [71]: Betrachtet man die elektrische Leitfähigkeit σ in einem Halbleiter, so verringert sich diese mit zunehmender Dotierungskonzentration. Bei einer gewissen Konzentration tritt jedoch ein Phasenübergang auf und die Leitfähigkeit verschwindet komplett. Unterhalb dieser Dotierungskonzentration tragen keine Elektronen mehr zum elektronischen Transport bei. Dieses Verhalten wird nur durch eine Erhöhung der Unordnung im Halbleiter hervorgerufen. Es ist von einem MIT in einem Mott-Isolator [72] zu unterscheiden, in dem Elektron-Elektron-Wechselwirkungen zu einer Bandlücke führen.

Da es sich bei der Anderson-Lokalisierung um ein reines Wellenphänomen handelt, ist es auch auf elektromagnetische Wellen anwendbar. Dies wurde in einer theoretischen Arbeit beschrieben [19]. Der dort angewandte Ansatz wird im Folgenden vorgestellt. Ein zufälliges Potential wird dazu durch eine fluktuierende dielektrische Funktion gebildet und die Lichtwellenlänge λ angenommen. Schematisch ist dies in Abbildung 21 a) gezeigt. Die dielektrische Funktion führt zur Lichtstreuung an Streuzentren, symbolisiert durch schwarze Punkte. Der gezeigte Bereich ist in zwei Hälften unterteilt: Lokalisierte Lichtmoden sind als blaue Pfade in der oberen Hälfte und als rote Pfeile in der unteren Hälfte dargestellt. Für die blaue Mode oben links ist der Einkopplungspunkt A gezeigt (grün hervorgehoben). Von dort aus kann die Lichtmode im Uhrzeigersinn (blauer Pfad) oder gegen den Uhrzeigersinn (grauer gestrichelter Pfad) propagieren, je nachdem ob in positiver oder negativer Zeitrichtung. Am Punkt A kommt es so stets zur konstruktiven Interferenz beider möglichen Streupfade. Auch für Photonen muss das Ioffe-Regel-Kriterium $kl < 1$ erfüllt sein, um Anderson-Lokalisierung zu erreichen. Setzt man die mittlere freie Weglänge $l = \lambda/2\pi$ in das Ioffe-Regel-Kriterium ein, so ergibt sich $2\pi l < \lambda$. Eine Lichtwelle wird also mehrfach gestreut, bevor sie eine vollständige Oszillation ausführt.

Jede der in Abbildung 21 a) gezeigten Lichtmoden zeichnet sich durch einen Lorentz-artigen spektralen Beitrag aus. Amplitude, Zentralfrequenz und Halbwertsbreite werden durch die zufällige Verteilung der Streuzentren bestimmt. In Abbildung 21 b) ist eine fiktive spektrale Amplitudenfunktion für die Moden in Domäne 1 (blau, oberer Graph) und die Moden in Domäne 2 (rot, unterer Graph) gezeigt. Die Halbwertsbreite einer Mode i ist mit $\delta\omega_i$ angegeben, der Abstand zwischen zwei spektral benachbarten Moden i und j wird mit $\Delta\omega_{ij}$ bezeichnet. Man erkennt, dass es verschieden stark ausgeprägte spektrale Überlappungen zwischen Moden aus Domäne 1 mit denen aus Domäne 2 gibt. Mit der Größe des Überlapps erhöht sich auch die Wahrscheinlichkeit, dass ein Photon von einer Mode aus Domäne 1 in eine Mode in Domäne 2 wechseln kann.

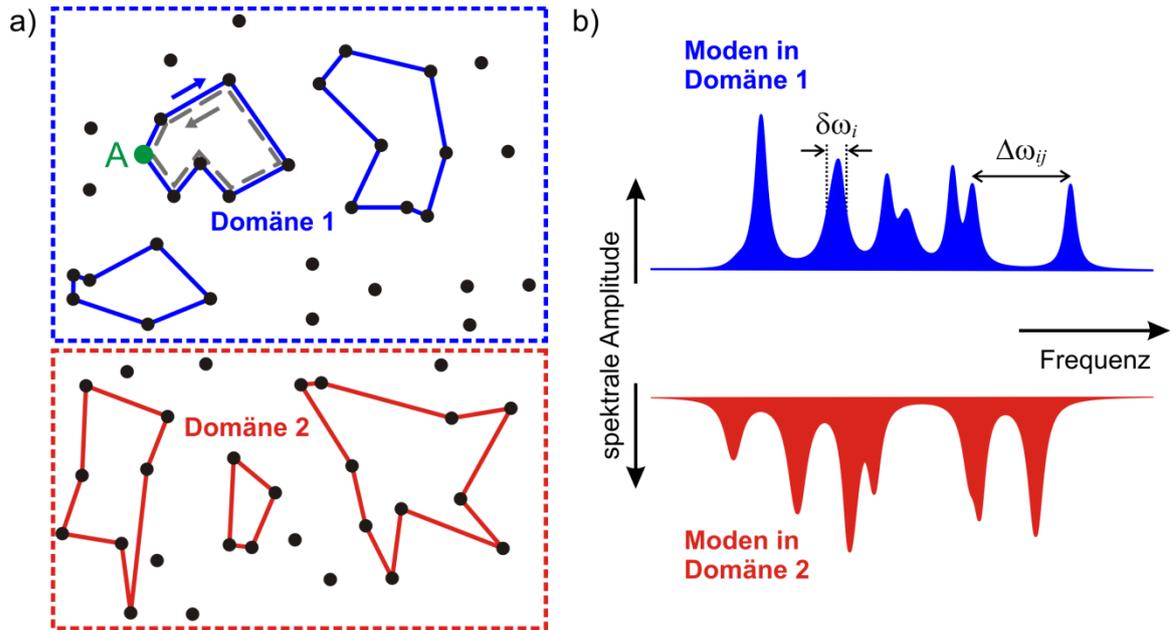


Abb. 21: Ausbildung von Anderson-lokalisierter Moden und deren spektralen Eigenschaften. a) Zufällig verteilte Streuzentren (schwarze Punkte) bilden eine Umgebung, in der sich Anderson-lokalisierte Moden ausbilden. Farbige Linien symbolisieren die Streupfade (blaue Linien in der oberen Domäne, rote Linien in der unteren Domäne). b) Fiktiver Verlauf spektraler Amplituden der Moden in Domäne 1 (oben) und Domäne 2 (unten).

Es stellt sich nun die Frage, wie stark die Streuumgebung die Propagation von Photonen durch das Medium beeinträchtigt. Um für Photonen die Wahrscheinlichkeit zu bestimmen von der Domäne 1 in die Domäne 2 zu propagieren, betrachtet man den statistischen Überlapp der spektralen Moden beider Domänen. Gemittelt über alle auftretenden Moden in einem Volumen ergibt sich der dimensionslose Leitwert [73] durch

$$g = \frac{\langle \delta\omega \rangle}{\langle \Delta\omega \rangle}. \quad (5.4)$$

Der Transport von Photonen ist unterdrückt, wenn die mittlere spektrale Halbwertsbreite $\langle \delta\omega \rangle$ kleiner ist als der mittlere Modenabstand $\langle \Delta\omega \rangle$, da dann der Überlapp der Moden zwischen den Domänen gering ist [73]. Dementsprechend ist dann $g < 1$ und man spricht von Anderson-Lokalisierung. Damit stellt die dimensionslose Leitfähigkeit g einen alternativen Zugang zum Ioffe-Regel-Kriterium dar, ist jedoch allgemeiner definiert und nicht auf dreidimensionale Systeme beschränkt.

Die Anderson-Lokalisierung wurde für elektronische Systeme in Experimenten untersucht [74, 75]. Für photonische Systeme wurde sie theoretisch vorhergesagt [19],

[76] und später in Experimenten in 1D- und 2D-Systemen [16, 77, 78] nachgewiesen. Somit ist es möglich, das Ioffe-Regel-Kriterium auch für Licht im sichtbaren Spektralbereich zu erfüllen. Im Vergleich zu Elektronen gibt es jedoch für Photonen einige Unterschiede in der Lokalisationsphysik. Photonen interagieren nicht miteinander, was die Experimente vereinfacht. Auch in der theoretischen Beschreibung führt die Spin-Wechselwirkung zu großen Problemen und wird meistens vernachlässigt. Für große Photonenenergien $l > \lambda$ mitteln sich Interferenzeffekte heraus, es kommt zum Übergang zur Strahlenoptik. Für das einfache Bild der Streuung an dielektrischen sphärischen Partikeln verringert sich entsprechend der Mie-Theorie [79] der Streuquerschnitt mit $\sigma_{scs}^{Mie} \sim \lambda^{-3}$ für kleine Photonenenergien $l < \lambda$ (Rayleigh-Streuung). Dadurch können sich keine geschlossenen Streu-Schleifen ausbilden. Während für Elektronen eine Verringerung der Energie zur Lokalisation führt, gibt es somit für Photonen einen Energiebereich, der Anderson-Lokalisierung zulässt.

Experimente zur Anderson-Lokalisierung von Licht in 3D-Systemen sind besonders schwierig. In 3D ist die Wahrscheinlichkeit geringer, dass sich Streupfade ausbilden als in 2D oder 1D Systemen. Dafür wurde die Lichtpropagation in stark streuenden Materialien, wie z. B. Pulver aus Galliumarsenid [80], Zinkoxid [81] oder Titandioxid-Nanopartikel [82] untersucht. Für Galliumarsenid-Pulver wurde eine freie Weglänge von $l \approx 0.17 \mu\text{m}$ gemessen und das Ioffe-Regel-Kriterium liefert mit $kl = 1.5$ den bisher kleinsten Wert für 3D-Systeme. Die experimentellen Ergebnisse zur Anderson-Lokalisierung in drei Dimensionen werden jedoch kontrovers diskutiert [2]. Es wird argumentiert, dass es in einem realen System stets zu Absorptionen kommt. Dies kann die Diffusionszeit, welche Licht benötigt, um eine Probe zu durchqueren, in gleicher Weise verändern wie es auch durch Anderson-Lokalisierung der Fall wäre. Es wird in den später gezeigten Experimenten nachgewiesen, dass es sich bei Dünnschichtsolarzellen um 2D-Systeme handelt. Außerdem wird gezeigt, dass die Materialabsorption in dem betrachteten Spektralbereich vernachlässigbar klein ist.

5.3 Anderson-Lokalisierung in Dünnschichtsolarzellen

In Kapitel 5.1 wurden verschiedene Ansätze beschrieben, wie das Yablonovitch Limit überwunden werden kann. Um dies zu erreichen, muss das Regime einfacher Streuung verlassen und die Wellennatur des Lichtes vollständig berücksichtigt werden. In den angeführten Beispielen wurden dazu Absorberschichten verwendet, deren Dicke vergleichbar mit der Wellenlänge des Lichtes bzw. noch geringer sind. Dünnschichtsolarzellen werden mit Absorberschichten hergestellt, die lediglich 200-300 nm dünn sind. Durch die geringe Schichtdicke sinkt auch die absorbierte Lichtmenge. Um dem entgegenzuwirken, werden sie mit einer randomisierten

Nanotexturierung hergestellt, welche die Absorption erhöht. Die Lichtausbreitung in solchen randomisierten dünnen Schichten ist sehr komplex, so dass sie zumeist nur mit Hilfe von numerischen Methoden wie z. B. FDTD-Rechnungen (siehe Kapitel 5.3.6) richtig beschrieben werden kann.

Die an der nanotexturierten Grenzfläche stattfindende Einfachstreuung und die Vielfachstreuung, die zur Ausbildung von Anderson-lokalisierten Moden führt, sind schematisch in Abbildung 22 dargestellt. Im Bild der Einfachstreuung wird das Licht an der nanotexturierten Grenzfläche gebeugt, sodass es zu einer Verlängerung des optischen Weges in der Absorberschicht kommt. Im Falle der Anderson-Lokalisierung wird das einfallende Licht in eine lokalisierte Mode eingekoppelt. Diese bildet sich durch eine Vielzahl an Streuzentren aus und in ihr befindliche Photonen bleiben gefangen, bis sie absorbiert wurden.

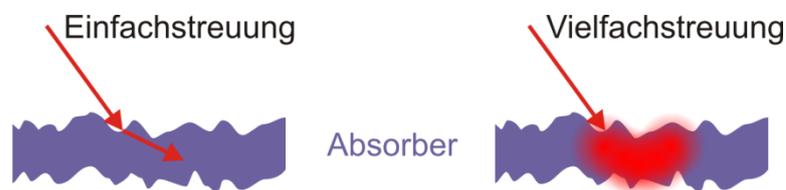


Abb. 22: Erhöhter Lichteinfang durch eine nanotexturierte Absorberschicht aufgrund von Einfachstreuung (links) und Vielfachstreuung (rechts).

Durch die Kombination verschiedener Messtechniken wird die Lichtpropagation in Dünnschichtsolarzellen untersucht und gezeigt, wie eine Nanotexturierung der Grenzflächen zur Ausbildung Anderson-lokalisierter Moden führt. Es kann dann nachgewiesen werden, dass das Licht vollständig innerhalb der lokalisierten Moden absorbiert wird.

Standardmäßig wird für Silizium basierte Dünnschichtsolarzellen hydrogenisiertes amorphes Silizium (a-Si:H) als Absorberschicht verwendet. Der Wasserstoff dient zur Sättigung offener Bindungen. Amorphes Silizium hat den Vorteil, dass es mithilfe der plasmaunterstützten chemischen Gasphasenabscheidung (PECVD) einfacher auf große Flächen aufgebracht werden kann, als es für kristallines (c-Si) Silizium der Fall ist [83]. In Abbildung 23 ist die Absorption, bzw. Eindringtiefe, in Abhängigkeit von der Lichtenergie für c-Si, mikrokristallines Silizium ($\mu\text{c-Si}$) und amorphes Silizium (a-Si:H) dargestellt. Die Absorption von a-Si:H ist im sichtbaren Spektralbereich höher, als die von c-Si und $\mu\text{c-Si}$, im infraroten Bereich jedoch niedriger. Dies ist eine Folge davon, dass die Bandlücke von a-Si:H zwischen Valenz- und Leitungsband mit 1.8 eV größer, als die von c-Si mit 1.1-1.2 eV ist [52]. Dieser Bereich wird auch als Mobilitätslücke bezeichnet und zeichnet sich, wie in Kapitel 5.2 beschrieben, durch die Lokalisierung der Ladungsträger aus. Durch die höhere Unordnung in a-Si:H treten außerdem

Defektzustände auf, welche in die Bandlücke hinein reichen und eine eingeschränkte Mobilität aufweisen.

Die im Folgenden durchgeführten Messungen werden an a-Si:H in dem Energiebereich von 1.57 eV bzw. 790 nm durchgeführt. Hier beträgt die Eindringtiefe des Lichtes mehrere 100 μm und die Absorption ist mit $\alpha < 100 \text{ cm}^{-1}$ gering. Die Eindringtiefe des Lichtes ist somit deutlich größer als die Schichtdicke, weshalb man die Absorberschicht als 2D-System betrachten kann.

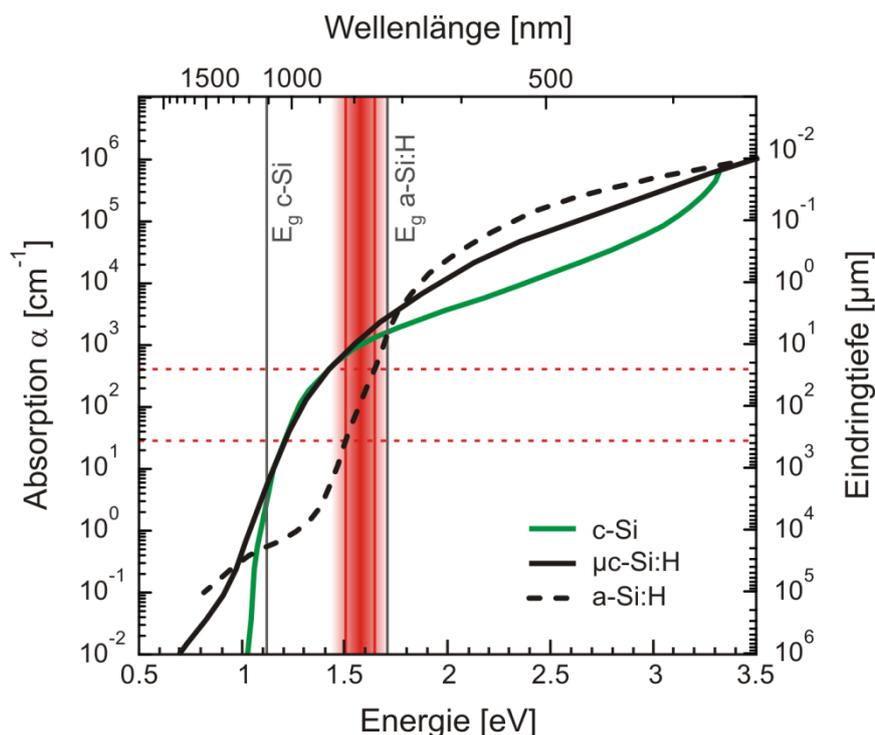


Abb. 23: Absorption bzw. Eindringtiefe als Funktion der Lichtwellenlänge und Energie für c-Si (grüne Kurve), $\mu\text{c-Si:H}$ (durchgezogene schwarze Kurve) und a-Si:H (gestrichelte schwarze Kurve). Der Beginn der Bandlücken von c-Si und a-Si:H ist durch graue Linien gekennzeichnet. Das Spektrum des Ultrakurzlasers ist rot schattiert dargestellt, wobei die Stellen mit halber Maximalintensität durch rote Linien markiert sind. Deren Schnittpunkte mit der Absorption bzw. Eindringtiefe von a-Si:H sind mit rot gestrichelten Linien gekennzeichnet. Übernommen aus [84].

Zur Untersuchung der Dünnschichtsolarzellen wurde eine Vielzahl verschiedener Charakterisierungsmethoden angewendet. Die Probenpräparation und UV-VIS-Spektroskopie wurde von Florian Lückermann in Kooperation mit Malibu durchgeführt. SEM-Bilder der Oberflächentopographie wurden von Babak Soleymanzadhe angefertigt. Zur weiteren Untersuchung der Oberflächentopographie sind AFM-Messungen durchgeführt worden. Diese Messungen werden in Kapitel 5.3.1 vorgestellt.

Zum Nachweis der Anderson-Lokalisierung wurden verschiedene Messmethoden miteinander kombiniert. Die ortsaufgelöste Streulichtspektroskopie in Kapitel 5.3.2 liefert Informationen über die zeitliche Dynamik des Lichtes, das aus Anderson-lokalisierten

Moden heraus gestreut wurde. Die vollständige zeitliche Feldrekonstruktion mithilfe der spektralen Interferometrie (SI) wird in Kapitel 5.3.3 vorgestellt. Oberflächendefektinduzierte Lokalisierungsphänomene können in Kapitel 5.3.4 durch die Untersuchung der AFM-Messungen ausgeschlossen werden. Der eindeutige Nachweis von Anderson-lokalisierten Moden gelingt in den Kapiteln 5.3.5 durch die Bestimmung des dimensionslosen Leitwertes g .

Die in Kapitel 5.3.6 gezeigten PEEM-Messungen wurden in Kooperation mit der Universität Würzburg von Matthias Hensen, Christian Kramer, Pascal Melchior, Martin Piecuch, Christian Schneider und Christian Strüber (für Details siehe [85]) durchgeführt. Sie bilden mit ihrer Subwellenlängen-Ortsauflösung eine wichtige Ergänzung zu der Streulichtspektroskopie. Von Matthias Hensen sind FDTD-Simulationen zur Lichtpropagation in Dünnschichtsolarzellen angefertigt worden, die zusätzliche Belege für Anderson-lokalisierte Moden liefern. Zur weiteren Interpretation der PEEM-Messungen wurde von Felix Becker und Matthias Hensen ein thermionisches Emissionsmodell durch numerische Simulationen an die Messdaten angepasst.

Die in diesem Kapitel gezeigten Ergebnisse wurden in [11] veröffentlicht. Des Weiteren wurde in [85] die Lokalisierung photonischer Moden in Dünnschichtsolarzellen hinsichtlich der Untersuchung mit der 2D-Nanoskopie diskutiert.

5.3.1 Charakterisierung von a-Si:H Dünnschichtsolarzellen

Es wurden insgesamt drei verschiedene Dünnschichtsolarzellen präpariert. Eine Probe weist glatte Grenzschichten auf, während zwei weitere mit einer Nanostrukturierung hergestellt wurden. Sie sind von Florian Lükermann in Kooperation mit Malibu hergestellt worden. Als Substrat dient jeweils Glas, auf das ein transparentes leitfähiges Oxid (TCO) aufgebracht wurde. Über die Abscheidungsbedingungen kann die Oberflächentextur der TCO-Schicht gezielt eingestellt werden. Darauf folgt eine a-Si:H-Absorberschicht, welche durch PECVD deponiert wird. Sie nimmt durch das konformale Wachstum die Oberflächentexturierung der darunter liegenden TCO-Schicht an. Für zwei der Proben wird darüber die Deckelektrode, ebenfalls eine TCO-Schicht, abgeschieden. Die Schichtsysteme sind in Abbildung 24 a) und b) dargestellt.

Zur Charakterisierung der Oberflächentopografie wurden AFM-Messungen durchgeführt. Das verwendete AFM wurde in der Arbeitsgruppe selbst konstruiert und funktioniert unter Umgebungsbedingungen. Zur Längskalibration wurde eine kommerzielle Kalibrationsprobe verwendet. Eventuell auftretende Verschiebungen zwischen den einzelnen Linienmessungen sind aus den Rohdaten entfernt worden. Um die Oberflächenverkipfung und sporadisch auftretendes Driften des Messkopfes in axialer

Richtung zu entfernen, wurde ein Polynom dritten Grades an die Rohdaten angepasst und von diesen subtrahiert bzw. Driftkorrekturverfahren angewandt.

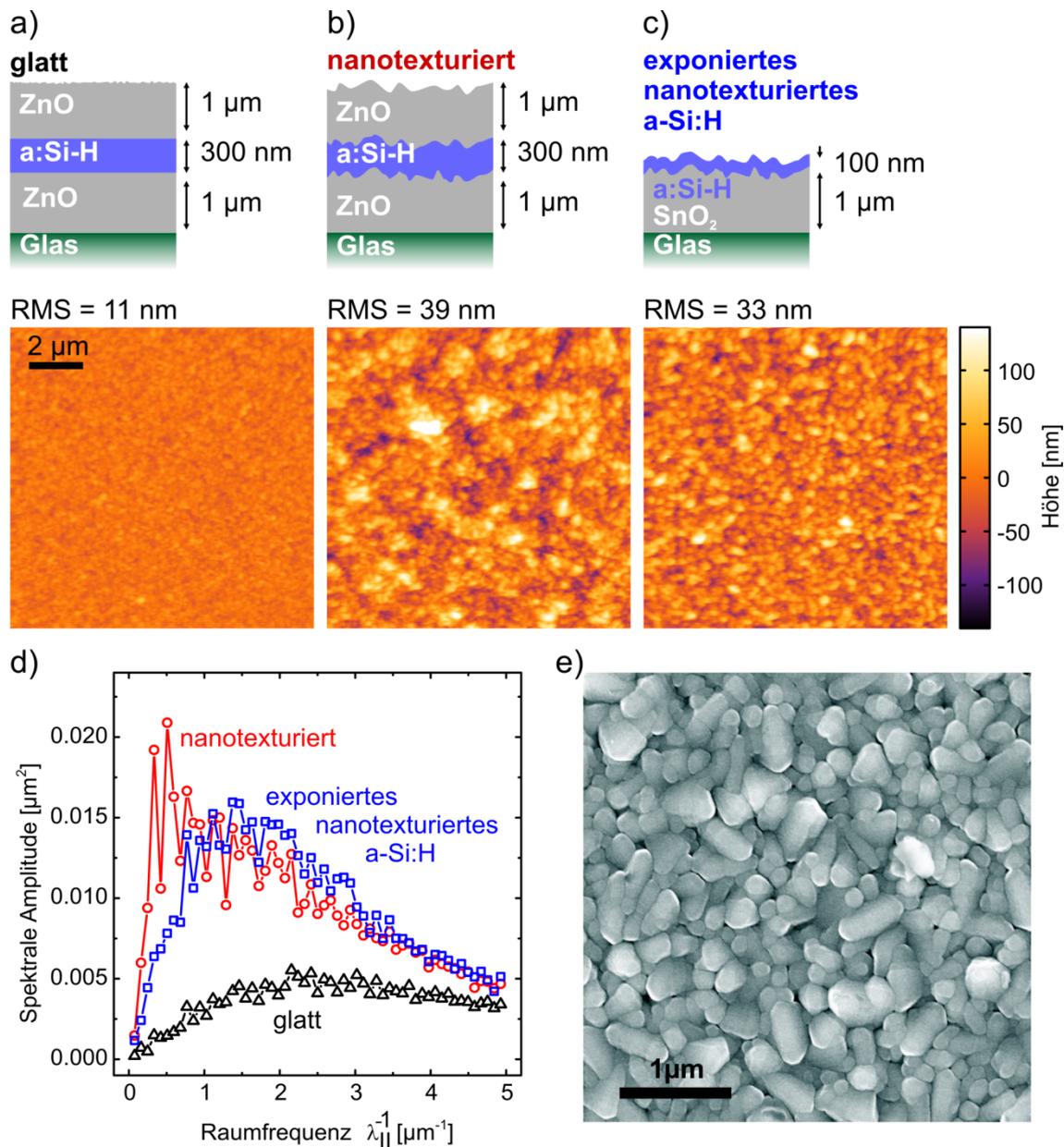


Abb. 24: Schematische Darstellung der Schichtsysteme und AFM-Messungen der Oberflächentopografie für die Proben a) „glatt“, b) „nanotexturiert“ und c) „exponiertes nanotexturiertes a-Si:H“. Für die Höhenprofile sind die quadratisch gemittelten Rauigkeiten (RMS) angegeben („axiale Rauigkeit“). d) Radial integrierte spektrale Amplitude der Raumfrequenzen („laterale Rauigkeit“) aus den in a)-c) gezeigten Höhenprofilen. Rasterelektronenmikroskop-Aufnahme der „exponierten nanotexturierten a-Si:H“ Probe. e) Repräsentative SEM-Aufnahme der „exponiert nanotexturierten a-Si:H“ Oberfläche. Adaptiert aus [11].

Die in a) gezeigte Probe weist eine möglichst geringe RMS-Oberflächenrauigkeit (engl. Root-Mean-Square) auf und wird im Folgenden mit „glatt“ bezeichnet. Die

RMS-Oberflächenrauigkeit wird aus den gezeigten AFM-Messungen berechnet, indem der RMS-Wert des Höhenprofils gebildet wird. Diese Rauigkeit wird im Folgenden als axiale Rauigkeit bezeichnet. Der TCO-Frontkontakt auf der Glasseite besteht aus ZnO:Al und wurde mittels Sputtertechnologie hergestellt. Beim Sputterprozess wurde ein keramisches Spendermaterial mit einem Al₂O₃-Anteil von 1% verwendet. Die Temperatur des Substrats wurde auf 300°C eingestellt. Mit diesen Parametern konnte eine glatte Schicht erzeugt werden, die eine axiale Rauigkeit von 4 nm aufweist.

Die in b) dargestellte Probe wurde mit einer Nanotexturierung ausgestattet und wird entsprechend als „**nanotexturiert**“ bezeichnet. Diese „light-trapping“-Struktur ist darauf optimiert, die Absorption der Solarzelle zu erhöhen. Frontseitig wurde die TCO-Schicht durch Niederdruck-CVD mit Diethylzink (C₂H₅)₂Zn und H₂O bei Temperaturen zwischen 150°C und 200°C hergestellt. Damit wird eine axiale Rauigkeit von etwa 50 nm erzielt. Zur Dotierung mit Bor wurde Diboran (H₆B₂) dem Prozessgas hinzugefügt.

An den Rückkontakten der Proben „glatt“ und „nanotexturiert“ können keine PEEM Messungen vorgenommen werden, da die ausgelösten Photoelektronen die Probe nicht durch die TCO-Schicht verlassen können. Aufgrund dessen wurde eine dritte, in c) gezeigte Probe hergestellt. Diese weist ebenfalls eine nanotexturierte Oberfläche auf. Der Frontkontakt wurde, durch CVD bei Atmosphärendruck durch die Deponierung von SnO₂:F hergestellt. Die axiale Rauigkeit ist dabei vergleichbar mit der „nanotexturierten“ Probe. Die Rückelektrode wurde bei dieser Probe weggelassen, wodurch die a:Si-H-Schicht direkt zugänglich ist und PEEM-Messungen vorgenommen werden können. Die a:Si-H-Schichtdicke beträgt hier 100 nm. Sie wird als „**exponiertes nanotexturiertes a-Si:H**“ bezeichnet.

Um Anderson-Lokalisierung in einem randomisierten Schichtsystem zu erreichen, ist die Oberflächentopographie von entscheidender Bedeutung. Diese charakterisiert sich nicht ausschließlich über eine axiale Rauigkeit, sondern auch über eine laterale Rauigkeit. Die Propagation von Licht innerhalb der Ebene der Absorberschicht wird maßgeblich von der lateralen Rauigkeit bestimmt [86]. Sie wurde für jede Probe aus der AFM-Topographie bestimmt, indem eine Fourier-Transformation durchgeführt wird. Dadurch erhält man Raumfrequenzen, welche jedoch noch die Richtungsinformationen enthalten. Über die verschiedenen Richtungen wird in der Fourier-Ebene radial, zentriert um die 0-Frequenz, gemittelt. Die so berechneten spektralen Amplituden sind über die lateralen Raumfrequenz λ_{\parallel}^{-1} in Abbildung 24 d) aufgetragen.

Die „glatte“ Probe weist eine größtenteils homogene Verteilung der Raumfrequenzen auf, mit einem Maximum bei 2-3 μm^{-1} . Im Gegensatz dazu treten bei der „nanotexturierten“ und „exponierten nanotexturierten a-Si:H“ Probe deutliche Maxima auf, deren spektrale Amplitude die der „glatten“ Probe um ein Vielfaches übersteigt. Die „nanotexturierte“ Probe weist im Bereich von 0.5-2 μm^{-1} einen maximalen Beitrag auf, was räumlichen Strukturgrößen von 0.5-2 μm entspricht. Für die „exponierte nanotexturierte a-Si:H“

Probe liegt das Maximum bei $1-3 \mu\text{m}^{-1}$. Das ist äquivalent zu Oberflächenstrukturen mit einer Ausdehnung von $0.3-1 \mu\text{m}$.

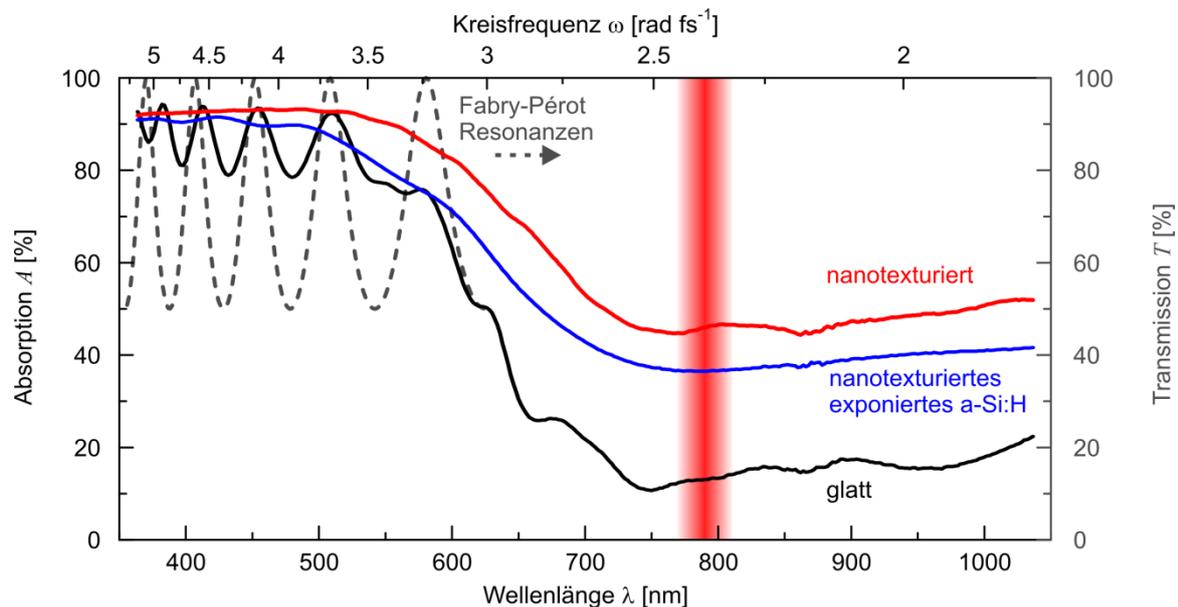


Abb. 25: Absolute Absorption im UV-VIS-Spektrum der in 24 a) – c) gezeigten Proben. Dargestellt ist die Absorption A der „glatten“ Probe (schwarze Kurve), der „nanotexturierten“ Probe (rote Kurve) und der „nanotexturierten exponierten a-Si:H“ Probe (blaue Kurve). Berechnete Transmission für einen planaren Fabry-Pérot Resonator mit einem Brechungsindex $n = 2$ und einer Schichtdicke von 949 nm bei senkrechtem Lichteinfall (grau gestrichelte Kurve). Die Zentralwellenlänge des Ultrakurzlasers ist rot hinterlegt. Adaptiert aus [11].

Es wurden UV-VIS-Messungen durchgeführt, um die Absorptionserhöhung durch eine Nanotexturierung der Dünnschichtsolarzellen zu bestimmen. Dazu wurde ein kommerzieller Aufbau (Perkin Elmer Lambda 950) verwendet. Die Dünnschichtsolarzelle wird von der Glasseite aus mit Licht variabler Kreisfrequenz ω bestrahlt. Gemessen wurde die Intensität des transmittierten Lichtes $T(\omega)$ und des reflektierten Lichtes $R(\omega)$. Daraus kann die Absorption $A(\omega)$ der Dünnschichtsolarzelle berechnet werden:

$$A(\omega) = 1 - T(\omega) - R(\omega) \quad (5.11)$$

Für den Spektralbereich von 350-1050 nm ist die Absorption der drei Dünnschichtsolarzellen in Abbildung 25 gezeigt.

Die Oszillationen bei der Probe „glatt“ werden durch Fabry-Pérot-Resonanzen im TCO hervorgerufen. Zum Vergleich ist für einen planaren Fabry-Pérot-Resonator in Form der TCO-Schicht die Transmission T berechnet worden. Für die aus ZnO bestehende TCO-Schicht wurde ein konstanter Brechungsindex von $n = 2$ und eine Schichtdicke von

$l = 949$ nm angenommen. Für senkrechten Lichteinfall berechnet sich die Transmission über

$$T = \left[1 + \sin^2 \left(\frac{2\pi n l}{\lambda} \right) \right]^{-1}, \quad (5.12)$$

wobei die Finesse nicht berücksichtigt wurde, da die Modulationstiefe hier nicht betrachtet wird. Sie würde durch den Betrag der Reflektion an den Grenzflächen bestimmt werden. Zudem befinden wir uns nicht im Bereich der kritischen Kopplung [87] und die obige Formel kann angewendet werden. Es ergibt sich ein sinusartiger Kurvenverlauf (grau gestrichelte Kurve), dessen spektrale Positionen der Absorptionsmaxima mit denen der „glatten“ Probe zusammenfallen. Dies ist zu erwarten, da bei einer hohen Transmission durch die TCO-Schicht mehr Licht in der a-Si:H-Schicht absorbiert werden kann.

Für Wellenlängen kleiner als 550 nm beträgt die Absorption für die nanotexturierten Proben etwa 90%. Die Probe „glatt“ erreicht im Mittel etwa 85%. Für größere Wellenlängen nimmt die Absorption für alle drei Proben ab. In diesem Bereich beginnt die Bandkante von a-Si:H (vgl.: Abbildung 23). Die Probe „glatt“ erreicht für Wellenlängen oberhalb von 700 nm nur noch eine Absorption von 20%, während die „nanotexturierte“ Probe noch Absorptionen von 40% bis 50% erreicht. Die Nanotexturierung verdoppelt somit die Absorption gegenüber einer unstrukturierten Probe. Des Weiteren weisen die „nanotexturierte“ und „nanotexturiert exponierte a-Si:H“ Probe trotz der Unterschiede in den Schichtsystemen vergleichbare Absorptionen auf. Dies ist bemerkenswert, da sich die Dicken der Absorberschichten mit 300 nm bzw. 100 nm deutlich voneinander unterscheiden. Die Absorption wird somit nicht maßgeblich von der Absorberschichtdicke beeinflusst, sondern durch die Oberflächentexturierung bestimmt. Es wird deshalb für beide Proben der gleiche Absorptionsmechanismus angenommen. Dieses Resultat wird später für die Interpretation der Streulichtmessungen in Kapitel 5.3.2 und der PEEM-Messungen in Kapitel 5.3.6 benötigt.

5.3.2 Spektrale Moden im Streulicht von Dünnschichtsolarzellen

Die in Kapitel 5.3.1 gezeigten UV-VIS-Messungen haben bereits gezeigt, dass eine Nanotexturierung die Absorption der Solarzelle bis hinein in den Bereich der Bandlücke erhöhen kann. Im Folgenden soll untersucht werden, welche physikalischen Effekte die Absorptionserhöhung innerhalb der Bandlücke verursachen. Dazu werden ultrakurze

Laserpulse bei einer Zentralwellenlänge von 790 nm über einen Parabolspiegel auf die Dünnschichtsolarzellen fokussiert, siehe Abbildung 26 a). Der Fokusbereich wurde mithilfe einer Strahldiagnostik-Kamera (Data Ray: WinCamD) bestimmt und beträgt $d = 15 \mu\text{m} \pm 5 \mu\text{m}$.

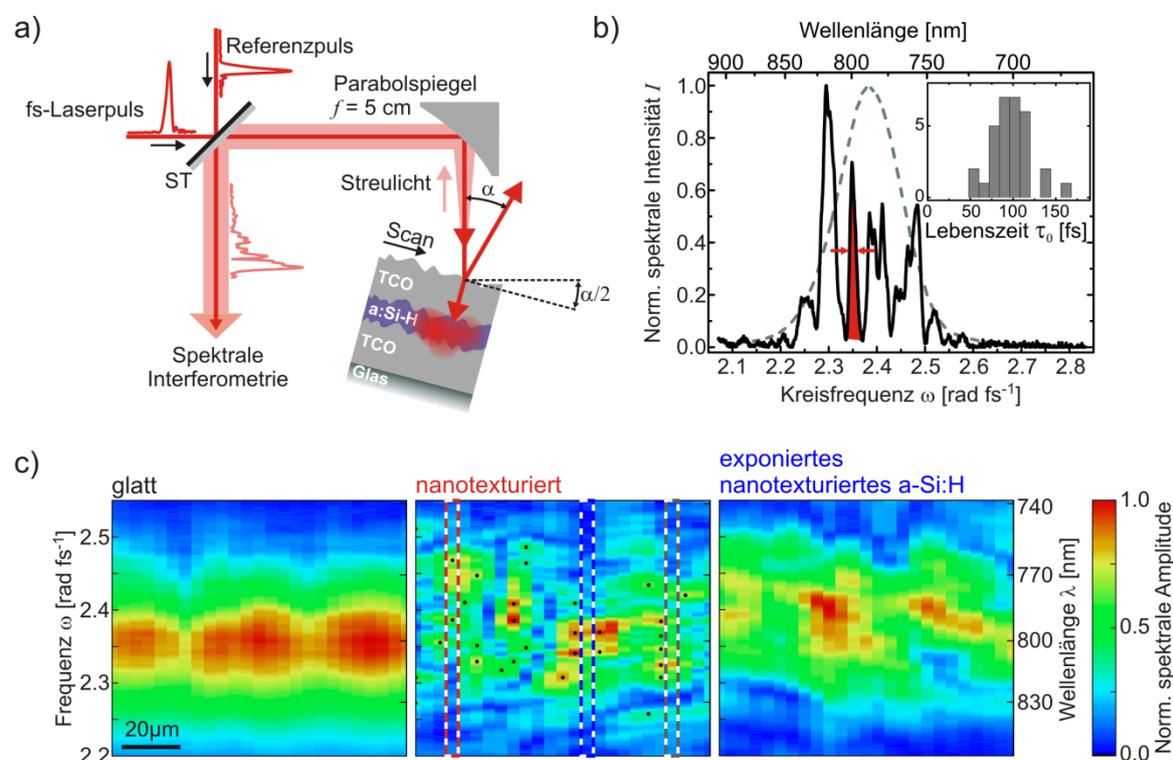


Abb. 26: Spektrale Moden im Streulicht von Dünnschichtsolarzellen. a) Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus zur Detektion und Charakterisierung des Streulichts. Ein bandbreitebegrenzter fs-Laserpuls (25 fs FWHM Pulsdauer, 790 nm Zentralwellenlänge und 80 MHz Repetitionsrate) wird über einen Parabolspiegel auf die Probe fokussiert ($\sim 15 \mu\text{m}$ Fokusbereich bei $1/e^2$ -Intensitätsabfall). Die Probe ist um einen Winkel $\alpha/2 = 2^\circ$ gegenüber dem einfallenden Licht gekippt. Die Probe kann orthogonal zu ihrer Oberflächennormalen verfahren werden („Scan“-Richtung). Das Streulicht wird über den Parabolspiegel aufgesammelt (Öffnungswinkel für Streulicht $\sim 11^\circ$) und mit einem Referenzpuls zur Interferenz gebracht, um in der SI charakterisiert zu werden. b) Spektrale Intensität des rückgestreuten Lichtes der „nanotexturierten“ Probe (schwarze Kurve). Eine einzelne Mode ist rot schattiert hervorgehoben. Die spektrale FWHM-Breite ist mit roten Pfeilen markiert und beträgt $0.013 \text{ rad fs}^{-1}$, was einer bandbreitebegrenzten Lebenszeit von $\tau_0 = 160 \text{ fs}$ entspricht. Die spektrale Intensität des Anregungslichtes ist grau gestrichelt dargestellt. Eingefügtes Histogramm: Absolute Häufigkeit der Lebenszeiten, bestimmt aus 25 Spektren der in c) gezeigten „nanotexturierten“ Probe. c) Räumliche Variation der spektralen Streulichtamplitude der drei Proben. Sie wurden über einen Bereich von $100 \mu\text{m}$ an 25 äquidistant verteilten Positionen gemessen. Die zeitlichen Rekonstruktionen der rot-, blau- und grau-gestrichelt markierten Spektren der „nanotexturierten“ Probe folgen in Abbildung 27 a). Einzelne spektrale Moden sind bei der „nanotexturierten“ Probe durch schwarze Punkte markiert. Adaptiert aus [11].

Die Frontseite der Solarzellen wird durch das Glassubstrat gebildet. Um Dispersionseffekte zu vermeiden, wurde das Licht über die Rückseite der Solarzelle

eingekoppelt. Zur Anregung wurde p-polarisiertes Licht verwendet. Die Probe kann über eine Goniometeranordnung gegenüber dem einfallenden Strahl um einen Winkel $\alpha/2$ gekippt werden. Gleichzeitig kann der Fokuspunkt mithilfe eines einachsigen Piezo-Verschiebetisches (maximaler Verschiebeweg $100\ \mu\text{m}$) über die Probe verschoben werden. Das von der Probenoberfläche spekulär reflektierte Licht enthält keine Informationen über die Lichtpropagation innerhalb der Probe und gelangt durch die Verkippung der Probe nicht zurück auf den Parabolspiegel. Ein großer Teil des Lichtes wird in der Probe absorbiert oder transmittiert, ein kleiner Teil des Lichtes wird jedoch aus dem Schichtsystem heraus zurück auf den Parabolspiegel gestreut. Dieses Licht wird im Folgenden als „Streulicht“ bezeichnet. Es wird über den Parabolspiegel aufgesammelt, am Strahlteiler mit einem Referenzpuls zur Interferenz gebracht und anschließend mithilfe der SI charakterisiert. Der Winkel des Streulichtes gegenüber dem spekulär reflektierten Licht beträgt $\alpha = 4^\circ$. Im Folgenden wird ausschließlich die p-polarisierte Streulichtkomponente gezeigt. Deren Intensität ist etwa um einen Faktor zehn größer als die des s-polarisierten Streulichtes. Im Streulicht beider Polarisationskomponenten lassen sich die gleichen physikalischen Effekte beobachten.

Ein typisches Streulichtspektrum, gemessen an der „nanotexturierten“ Probe, ist in Abbildung 26 b) gezeigt. Im Gegensatz zum Gauß-förmigen Spektrum des Anregungslichtes (grau gestrichelte Kurve) weist es eine Vielzahl voneinander separierter, schmalbandiger, spektraler Moden auf. Die spektrale Breite einer Mode spiegelt die minimale Lebenszeit einer angeregten Resonanz innerhalb des Schichtsystems wider. Für Lorentz-artige Moden gilt der folgende Zusammenhang:

$$\gamma = \frac{2}{\tau_0} \quad (5.13)$$

Die Modenbreite γ wird aus der FWHM-Breite Halbwertsbreite (FWHM, engl. Full Width at Half Maximum) der spektralen Intensität der photonischen Mode bestimmt. Überführt man eine Lorentz-artige spektrale Mode durch eine Fourier-Transformation vom Frequenzraum in den Zeitraum, so ergibt sich ein charakteristischer zeitlich abfallender Amplitudenverlauf. Die Zeit, bis die Amplitude auf den $1/e$ -Teil der Maximalamplitude abgefallen ist, wird als die Lebenszeit τ_0 bezeichnet. In diese Betrachtung gehen keine Phaseneffekte ein, welche die Lebenszeit eventuell noch weiter vergrößern könnten. Es wurde hier das zeitliche Abklingen der Feldamplitude gewählt, um die Ergebnisse vergleichbar mit später folgenden Auswertungen zu halten. Häufig wird das zeitliche Abklingen der Intensität betrachtet, wodurch der Faktor 2 in Gleichung 5.13 entfällt.

Um eine statistische Analyse des Streulichtes durchzuführen, wurde an 25 Positionen, verteilt auf 100 μm entlang der Verschieberichtung, Streulichtspektren aufgenommen und die spektrale Amplitude gegen den Ort aufgetragen. Die Resultate sind in Abbildung 26 c) dargestellt. Für jede Probe wurde auf den größten auftretenden Wert der spektralen Amplitude normiert. Der räumliche Abstand zwischen zwei Positionen ist 4 μm , während der Fokusbereich etwa 15 μm beträgt, wodurch es zu einem räumlichen Überlapp kommt. Für die Probe „glatt“ variiert die spektrale Amplitude mit dem Ort, die spektrale Form ist jedoch Gauß-förmig und es tritt kaum eine Veränderung in der spektralen Breite auf. Dahingegen treten bei der „nanotexturierten“ Probe, wie oben bereits beschrieben, spektrale Moden auf. Für jede Position ändert sich das Spektrum stark und es treten stets andere Moden mit unterschiedlicher spektraler Zentralposition, Breite und Amplitude auf. Der räumliche Überlapp, der zwischen den einzelnen Positionen durch die Auflösung und den Fokusbereich zustande kommt, ist in diesen Streulichtspektren erkennbar. Die spektrale Struktur von Moden eines Streulichtspektrums tritt auch in den direkt räumlich benachbarten Streulichtspektren auf. Bei einer statistischen Auswertung ist dies zu berücksichtigen, da sie sonst mehrfach zur Auswertung beitragen. Die Probe „nanotexturiert exponiertes a-Si:H“ weist ebenfalls eine komplexe Modenstruktur auf, die spektrale Breite der Moden ist jedoch größer als bei der „nanotexturierten“ Probe.

In c) wurden für die „nanotexturierte“ Probe nur die Hauptmaxima der spektralen Moden identifiziert und durch schwarze Kreise kenntlich gemacht. Die spektrale Modenbreite γ wurde für jede identifizierte Mode bestimmt und über Formel 5.13 in eine Lebenszeit τ_0 umgerechnet. Deren Häufigkeit ist in Abbildung 26 b) als Balkendiagramm eingefügt. Es ergibt sich eine Häufung bei Lebenszeiten von $\tau_0 = 100$ fs. In der a-Si:H-Schicht legt das Licht in dieser Zeit eine Weglänge von 7.7 μm zurück. Für einen vertikalen Durchlauf durch die a-Si:H-Schicht (Hin- und Rückweg) bräuchte es lediglich 7.9 fs. Solche Moden können durch die Ausbildung von geschlossenen Streupfaden innerhalb der a-Si:H-Schicht zustande kommen. Durch evaneszente Felder würde es zu Verlustkanälen der Moden kommen, welche dann als Streustrahlung gemessen werden würden.

Für die Probe „nanotexturiert exponiertes a-Si:H“ beträgt die durchschnittliche Lebenszeit $\tau_0 \approx 70$ fs. Die geringere Lebenszeit wird vermutlich durch die, im Vergleich zur „nanostrukturierten“ Probe, geringere a-Si:H-Schichtdicke verursacht. Die Unterschiede zwischen den Proben „nanotexturiert“ und „nanotexturiertes exponiertes a-Si:H“ sind jedoch sowohl in der Lebenszeit als auch in der Ausprägung der spektralen Moden gering. Es liegt somit nahe zu behaupten, dass in beiden Proben die Modenbildung durch die gleichen physikalischen Effekte verursacht wird. Dadurch ist eine gute Vergleichbarkeit für die später in Kapitel 5.3.6 gezeigten PEEM-Messungen gegeben.

5.3.3 Zeitliche Rekonstruktion des Streulichtes

Die Analyse der spektralen Modenbreite in Kapitel 5.3.2 gibt erste Einblicke in die zeitliche Dynamik des Streulichtes. Um aber auch eventuelle Phaseneffekte zu berücksichtigen, ist eine vollständige Rekonstruktion des zeitlichen Feldverlaufes notwendig. Da für jede Probenposition eine vollständige SI-Messung durchgeführt wurde, ist die Rekonstruktion über die in Kapitel 3 beschriebenen Methoden möglich. Die Resultate können dann direkt mit den in Kapitel 5.3.2 bestimmten Lebenszeiten verglichen werden, da stets die Feldamplituden betrachtet wurden.

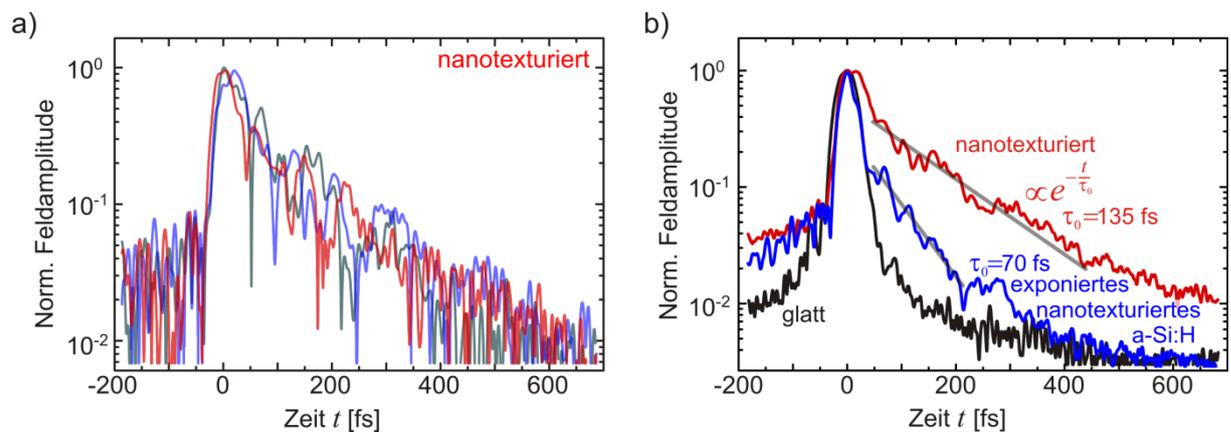


Abb. 27: a) Zeitliche Rekonstruktion aus SI-Messungen für die drei in Abbildung 26 c) markierten Positionen (gleiche Farbzunordnung) auf der „nanotexturierten“ Probe. b) Inkohärente Summe über alle zeitlich rekonstruierten Streulichtsignale der 25 Positionen der in Abbildung 26 c) gezeigten Proben. Die abfallenden Flanken bei positiven Zeiten wurden mit der angegebenen Exponentialfunktion angepasst, um die Lebenszeiten zu bestimmen. Das Streulicht wurde unter einem Winkel von $\alpha = 4^\circ$ gegenüber dem einfallenden Licht detektiert. Adaptiert aus [11].

Für drei exemplarische Positionen auf der nanotexturierten Probe sind die zeitlich rekonstruierten Feldamplituden in Abbildung 27 a) gezeigt. Die Lichtpulse starten bei $t = -20$ fs mit einem schnellen Anstieg der Feldamplitude. Das Maximum der Feldamplitude wurde für jeden Lichtpuls als Zeitnullpunkt $t = 0$ fs gesetzt und die Feldamplitude auf diesen Wert normiert. Es handelt sich dabei um spekulär reflektiertes Licht. Dieses kann als zeitlicher Marker genutzt werden, da der Reflektionszeitpunkt von der Probenoberfläche für die verschiedenen Probenpositionen identisch ist. Nach dem spekulären Beitrag folgt der reine Streulichtanteil ab etwa $t = 50$ fs. Ab diesem Zeitpunkt fällt die Feldamplitude exponentiell ab, wobei es zu Schwebungszuständen durch die Vielzahl spektraler Moden kommt. Die Schwebungen sind in den Oszillation des Signalverlaufs in Abbildung 27 a) sichtbar.

Für jede der drei Proben wurde nun die inkohärente Summe über die normierten Feldamplituden aller 25 Probenpositionen (vgl.: Abbildung 26 c)) gebildet. Dabei wurde

für jede Probenposition der Zeitnullpunkt der Feldamplitude wie oben beschrieben festgelegt. Die Feldamplituden sind als Funktion der Zeit in Abbildung 27 b) dargestellt. Für die „glatte“ Probe ergibt sich, infolge der reinen Einfachreflektion, ein kurzer Lichtpuls, der eine zeitliche FWHM-Breite von etwa 20 fs in der Feldamplitude aufweist. Dabei zeigt die „nanotexturierte“ Probe einen deutlichen exponentiellen Abfall nach dem spekularen Beitrag. Durch Approximation mit einer exponentiellen Funktion ergibt sich eine Lebenszeit von $\tau_0 = 135$ fs. Für die „exponierte nanotexturierte a-Si:H“ Probe ist die abfallende Flanke der Streulichtamplitude steiler und es ergibt sich über die Anpassungsfunktion eine Lebenszeit von $\tau_0 = 70$ fs. Die über die SI bestimmten Lebenszeiten sind im Einklang mit den Lebenszeiten, die in Kapitel 5.3.2 aus den spektralen Modenbreiten bestimmt wurden („nanotexturierte“ Probe: $\tau_0 = 100$ fs, „exponierte nanotexturierte a-Si:H“ Probe: $\tau_0 = 70$ fs). Eine größere Lebenszeit, wie sie für die „nanotexturierte“ Probe gemessen wurde, war zu erwarten, da nun auch Phaseneffekte berücksichtigt wurden.

5.3.4 Ausschluss von Strukturanomalien als Ursache der Lichtlokalisierung

Für die Anderson-Lokalisierung ist der Grad der Unordnung entscheidend. Ist die statistische Oberflächenfluktuation zu groß oder zu klein verschwindet die Lokalisierung. Tritt jedoch eine lokale Anomalie auf, kann sie zu einer erhöhten Streuung und Lokalisierung führen. Als Anomalien werden im Folgenden Abweichungen von einer rein statistischen Unordnung bezeichnet. Um zu zeigen, dass die Anderson-Lokalisierung infolge einer randomisierten Oberflächentextur auftritt, muss die Lokalisierung durch solche Anomalien ausgeschlossen werden. Dazu wird die Oberflächentopographie (vgl.: AFM-Messung in Kapitel 5.3.1) der „exponierten nanotexturierten a-Si:H“ Probe untersucht. Tritt in der Oberflächentopographie ein Gebiet auf, welches eine Abweichung in der statistischen Oberflächenfluktuation aufweist, unterscheidet es sich von der durchschnittlichen Oberflächentopographie der Probe. Eine Anomalie muss eine ähnliche räumliche Ausdehnung haben, wie die lokalisierten Moden, also einen Durchmesser von 1-2 μm . Ein Algorithmus zur Erkennung von Anomalien mit einer solchen räumlichen Ausdehnung muss somit einen Ausschnitt entsprechender Größe mit der gesamten Oberflächentopographie vergleichen. Anschließend kann evaluiert werden, ob die Defektdichte mit der Modendichte übereinstimmt. Diese Methode wird im Folgenden vorgestellt.

In Abbildung 28 a) ist ein Ausschnitt der AFM-Oberflächentopographie der Probe „exponiertes nanotexturiertes a-Si:H“ gezeigt. Durch einen Kreis ist eine Stelle markiert, welche als Anomalie identifiziert wurde. Zur Überprüfung des Algorithmus wurde in

selbiger Messung eine zusätzliche, künstliche Anomalie eingefügt. Das ist dargestellt in Abbildung 28 b), markiert durch einen gestrichelten Kreis. Beide Anomalien sind im Schnittbild in Abbildung 28 c) gezeigt. Das Schnittbild der in a) identifizierten Anomalie weist bei der Position $7.5 \mu\text{m}$ eine lokale Erhöhung um 150 nm mit einer FWHM-Breite von etwa $0.75 \mu\text{m}$ auf. Der Schnitt durch die künstlich erzeugte Anomalie aus b) ist im Höhenprofil um 200 nm versetzt dargestellt. Zur Erzeugung der künstlichen Anomalie wurde eine Gauß-Funktion mit einer FWHM-Breite von 584 nm und einer Amplitude von 133 nm zu dem gemessenen Höhenprofil hinzuaddiert. Das resultierende Höhenprofil mit künstlicher Anomalie ist vergleichbar mit der vorhandenen lokalen Erhöhung.

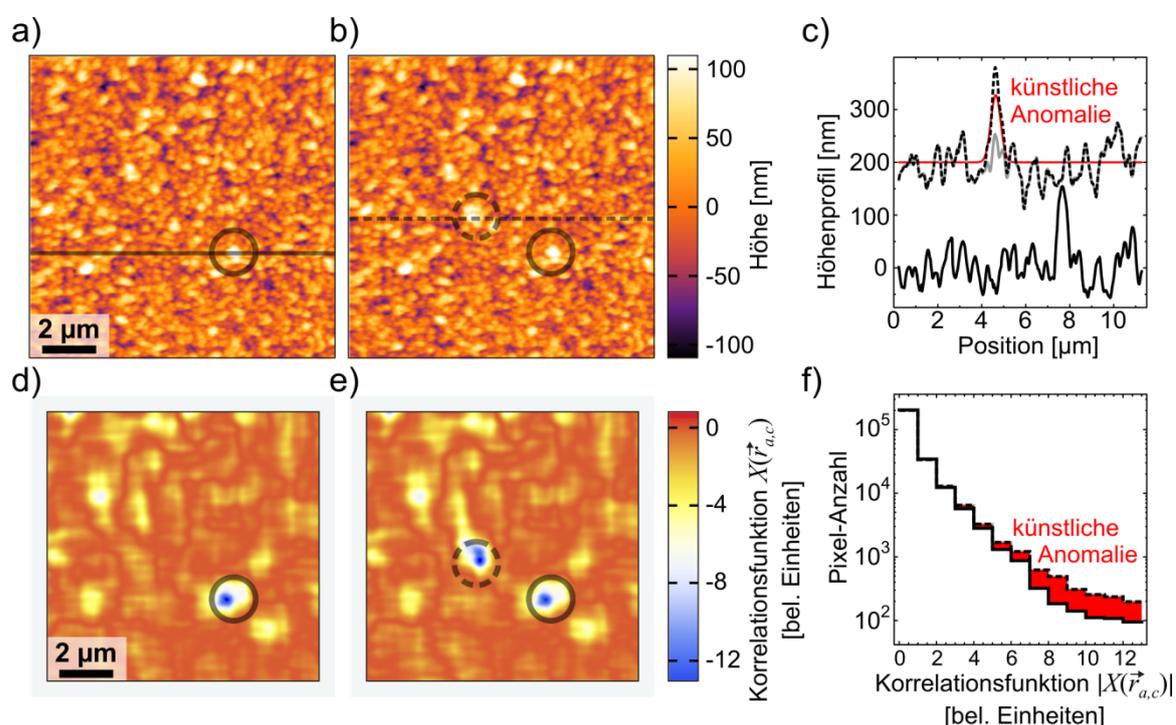


Abb. 28: Ausschnitt ($11.5 \times 11.5 \mu\text{m}^2$) der AFM-Oberflächentopographie der a) „exponierten nanotexturierten a-Si:H“ Probe mit identifizierter Anomalie (Kreis, durchgezogene Linie) und b) mit künstlich erzeugter Anomalie (Kreis, gestrichelte Linie). Die Positionen der Schnittbilder sind durch horizontale Linien gekennzeichnet. c) Schnittbilder durch die Oberflächentopographien aus a) (untere, schwarz durchgezogene Kurve) und durch die künstliche Anomalie aus b) (oben, schwarz gestrichelte Linie). Die ursprüngliche Topographie ist als graue Linie eingezeichnet, die künstliche Anomalie (rote Linie) wurde zu dieser hinzuaddiert. c) Korrelationsfunktion $X(\vec{r}_{a,c})$ der Oberflächentopographien aus a). e) Korrelationsfunktion $X(\vec{r}_{a,c})$ der Oberflächentopographien aus b). f) Histogramm über die Korrelationsfunktionen aus d) (durchgezogene Linie) und e) (gestrichelte Linie). Der durch die künstliche Anomalie hervorgerufene Beitrag ist rot eingefärbt. Adaptiert aus [11].

Wie oben beschrieben, sollte sich eine Anomalie dadurch auszeichnen, dass sie keine Ähnlichkeit zur umgebenden Topografie der Probe aufweist. Als Maß für die Ähnlichkeit von zwei verschiedenen Topografie-Funktionen wird deren Kreuzkorrelation definiert. Dazu wird ein quadratisches Fenster der Topografie mit einer Kantenlänge von $1.3 \mu\text{m}$

ausgewählt und die Kreuzkorrelation mit der gesamten Topografie berechnet. Die Fenstergröße wurde somit größer als die üblichen Strukturgrößen gewählt. Da die Kreuzkorrelation ein integrales Signal ist, mitteln sich Regelmäßigkeiten der Oberflächenstruktur weg. Die Kreuzkorrelation beinhaltet auch die Autokorrelation des Fensters. Diese muss subtrahiert werden, da nur die Ähnlichkeit zur Umgebung von Interesse ist.

Sei die Topografie der Probe bezeichnet als

$$T = T(\mathbf{r}_{i,j}), \quad (5.16)$$

wobei $\mathbf{r}_{i,j}$ der Ortsvektor ist, der die i, j -dimensionale Pixelabbildung der AFM-Oberflächentopographie abdeckt.

Das quadratische Fenster $F(\mathbf{r}_{i,j})$ mit $\mathbf{r}_{a,c}$ als Starteckpunkt und $\mathbf{r}_{b,d}$ als gegenüberliegenden Eckpunkt sei definiert als

$$F(\mathbf{r}_{i,j}) = \begin{cases} T(\mathbf{r}_{i,j}) & \text{für } a \leq i \leq b \text{ und } c \leq j \leq d \\ 0 & \text{sonst} \end{cases} \quad (5.17)$$

und hat eine Größe von $1.3 \times 1.3 \mu\text{m}$. Für die weitere Berechnung erweist es sich als sinnvoll, den Fensterbereich in der Topographie Null zu setzen:

$$\tilde{T}(\mathbf{r}_{i,j}) = \begin{cases} 0 & \text{für } a \leq i \leq b \text{ und } c \leq j \leq d \\ T(\mathbf{r}_{i,j}) & \text{sonst} \end{cases} \quad (5.18)$$

Dann ergibt sich die Kreuzkorrelation C des Fensters mit der Umgebung wie folgt:

$$C(\mathbf{r}_{k,l}) = T(\mathbf{r}_{i,j}) * F(\mathbf{r}_{i,j}) - F(\mathbf{r}_{i,j}) * F(\mathbf{r}_{i,j}) \quad (5.19)$$

Dies kann noch umgeschrieben werden zu

$$C(\mathbf{r}_{k,l}) = (T(\mathbf{r}_{i,j}) - F(\mathbf{r}_{i,j})) * F(\mathbf{r}_{i,j}) = \tilde{T}(\mathbf{r}_{i,j}) * F(\mathbf{r}_{i,j}), \quad (5.20)$$

wodurch die Autokorrelation des Fensters nicht mehr berechnet werden muss. Über diese Kreuzkorrelation $C(\mathbf{r}_{k,l})$ wird summiert, was ein Maß für die Ähnlichkeit der Struktur im Fensterbereich $F(\mathbf{r}_{i,j})$ zu der restlichen Probenoberfläche $\tilde{T}(\mathbf{r}_{i,j})$ darstellt:

$$X(\mathbf{r}_{i,j}) = \sum_{k,l} C(\mathbf{r}_{k,l}) \quad (5.21)$$

Auf alle Stützstellen der AFM-Oberflächentopografie in Abbildung 28 a) angewandt ergibt sich eine Karte der Korrelationsfunktion $X(\mathbf{r}_{i,j})$, wie sie in d) gezeigt ist. Die Karte weist einen Rand von der halben Fenstergröße auf, in dem die Korrelationsfunktion nicht definiert ist. Die meisten Areale zeigen Werte im Bereich von $0 \leq X(\mathbf{r}_{i,j}) \leq 2$. Das bedeutet, dass es keine großen Unterschiede in der topographischen Unordnung gibt. Es tritt jedoch ein kleines Areal auf, in dem die Korrelationsfunktion einen Wert von $X(\mathbf{r}_{i,j}) < -12$ annimmt. Das bedeutet, dass dieses sich stark von der durchschnittlichen Unordnung der Topographie unterscheidet. Diese Anomalie ist durch einen schwarzen Kreis in d) und a) gekennzeichnet und wurde oben bereits als lokale Erhöhung identifiziert.

Zur Demonstration der Funktionsfähigkeit dieser Methode wurde zudem die künstlich erzeugte, Gauß-förmige Anomalie in b) auf diese Weise untersucht. Das Ergebnis der Berechnung ist in Abbildung 28 d) gezeigt. An der markierten Stelle (gestrichelter Kreis) erscheint ein lokales Minimum in der Korrelationsfunktion $X(\mathbf{r}_{i,j})$. Die eindeutige Identifizierbarkeit belegt die Zuverlässigkeit des Algorithmus. In der Oberflächentopographie $T(\mathbf{r}_{i,j})$ hingegen sind beide Anomalien kaum von anderen lokalen Überhöhungen zu unterscheiden.

Betrachtet man die Histogramme der Funktion $|X(\mathbf{r}_{i,j})|$ für die gemessene Oberflächentopographie und die mit künstlich erzeugter Anomalie (siehe Abbildung 28 f)), so zeigt sich ein deutlicher Unterschied für große Funktionswerte. Durch das Hinzunehmen der künstlichen Anomalie ergibt sich eine Pixel-Anzahl von 200. In dem Histogramm ohne künstliche Anomalie wird etwa eine Pixel-Anzahl von 100 erreicht. Es kann also maximal die identifizierte Anomalie vorkommen. Daher wird geschlussfolgert, dass die Oberflächentopographie einen statistisch homogenen Grad der Unordnung aufweist und die Defektdichte in der Größenordnung von $10^{-2} \mu\text{m}^{-2}$ liegt. Als statistisch homogen wird dabei die Verteilung der Raumfrequenzen angenommen, die in Abbildung 24 d) gezeigt ist. Dahingegen ist die Dichte lokalisierter Moden trotz der schmalen spektralen Bandbreite des Anregungslasers in der Größenordnung von $0.5 \mu\text{m}^{-2}$ (siehe Modenverteilung in Abbildung 32 b)). Sie wird in Kapitel 5.3.6 durch PEEM-Messungen bestimmt. Die Modendichte übersteigt somit die Defektdichte um den Faktor 50, wodurch eine defektinduzierte Lichtlokalisierung ausgeschlossen werden kann.

5.3.5 Bestimmung des dimensionslosen Leitwertes g

In Kapitel 5.2 wurde der dimensionslose Leitwert g eingeführt. Dieser kann durch den dort angegebenen Zusammenhang (siehe Gleichung 5.4) aus der spektralen Modenbreite bestimmt werden. Alternativ kann g auch durch ein statistisches Auswerteverfahren gewonnen werden. Beide Methoden werden im Folgenden angewandt.

Bestimmung von g aus spektraler Modenbreite

Es wird nun ein Nachweis der Anderson-Lokalisierung durch die Betrachtung des dimensionslosen Leitwertes g angeführt. Dieser wurde in Kapitel 5.2 eingeführt und ist definiert durch $g = \langle \delta\omega \rangle / \langle \Delta\omega \rangle$. Dabei ist $\delta\omega$ die mittlere spektrale Breite und $\Delta\omega$ der Modenabstand. Zur Berechnung wird die orts aufgelöste Messung der Streulichtamplituden der „nanotexturierten“ Probe aus Kapitel 5.3.2 verwendet. Die Messwerte sind in Abbildung 26 c) (Mitte) dargestellt. Um den Modenabstand zu bestimmen, müssen die Positionen der Maxima der spektralen Moden identifiziert werden. Es ist zu erkennen, dass spektrale Moden stets in benachbarten Spektren auftauchen. Dies tritt auf, da der Fokusdurchmesser größer ist als die Positionsabstände auf der Probe. Um eine Mehrfachzählung einzelner Moden zu verhindern, wurde für jede Mode das Maximum sowohl in Positionsrichtung als auch in Richtung der Kreisfrequenzachse bestimmt. Wenn spektral benachbarte Moden sich überlappen, verschieben sich die spektralen Positionen der Maxima. Zur Auswertung wurde dann ein räumlich benachbartes Spektrum herangezogen, in dem der spektrale Überlapp durch die Abnahme der spektralen Amplituden benachbarter Moden kleiner ist. Alle auf diese Weise identifizierten Maxima sind mit schwarzen Punkten markiert. Die Modenabstände $\Delta\omega$ werden für die Maxima bestimmt, welche an identischen räumlichen Positionen auftreten. Zur Bestimmung der spektralen Breite $\delta\omega$ wird an jeder Mode eines Maximums eine Gauß-Funktion angepasst und dessen Halbwertsbreite bestimmt. Über alle Halbwertsbreiten wird dann der Mittelwert gebildet. Damit ergibt sich der Wert für den Leitwert zu $g_M = 0.67 \pm 0.4$. Der Index M macht hier deutlich, dass der Wert direkt aus den spektralen Modenbreiten und Modenabständen bestimmt wurde. Um das Kriterium für Anderson-Lokalisierung zu erfüllen, muss $g < 1$ gelten, was hier aufgrund des großen Messfehlers nicht gegeben ist. Im folgenden Kapitel wird deshalb ein statistischer Ansatz zur Bestimmung des dimensionslosen Leitwertes g vorgestellt, welcher eine größere statistische Signifikanz liefert.

Statistische Bestimmung von g

Im Folgenden wird der dimensionslose Leitwert g über ein statistisches Verfahren [88] berechnet. Dies ist möglich, wenn das Streulichtspektrum für einen Zeitpunkt bekannt ist, an dem das einfach gestreute Licht die Probe verlassen hat. Nur die im reinen Mehrfachstreuanteil auftretenden spektralen Moden werden durch die Anderson-Lokalisierung hervorgerufen und werden zur Berechnung verwendet. Wenn das Streulichtspektrum noch Einfachstreuanteile beinhaltet, würde es die Berechnung verfälschen. Die statistische Bestimmung von g wird zuerst an den in Kapitel 5.3.2 vorgestellten Streulichtspektren (vgl.: Abbildung 26) durchgeführt. Es wird gezeigt, dass der in Kapitel 5.3.5 durch die Bestimmung von spektraler Modenbreite und Modenabstand gewonnene Wert für g reproduziert werden kann. Aufgrund des geringen Detektionswinkels von nur $\alpha = 4^\circ$ beinhalten die Messungen noch spekulare Anteile, welche herausgefiltert werden müssen. Der verwendete Filteralgorithmus wird im folgenden Abschnitt beschrieben.

Von den untersuchten Proben wurden sowohl orts aufgelöst Streulichtspektren detektiert als auch die dazugehörigen SI-Messungen durchgeführt. Dadurch ist eine vollständige zeitliche Rekonstruktion des gestreuten Laserpulses möglich (siehe Kapitel 5.3.3). Ein exemplarischer zeitlicher Feldverlauf ist in Abbildung 29 a) dargestellt. Bei den zeitlich rekonstruierten Pulsen treten infolge der Kausalität die spekulare reflektierten Anteile bei kleinen Zeiten (unter 50 fs) auf. Zu größeren Zeiten (über 50 fs) dominiert das Streulicht der langlebigen Moden. Durch Multiplikation mit einer sigmoidialen Filterfunktion lässt sich der spekulare Anteil aus dem Zeitsignal entfernen. Die verwendete Filterfunktion hat ihren Wendepunkt bei 50 fs. Da der Anregungspuls nur 20 fs kurz ist, wird so sichergestellt, dass nur Streulicht (rote Kurve) übrig bleibt. Nach 400 fs wird die Streulichtamplitude so gering, dass sie ins Rauschen übergeht. Deshalb geht die Filterfunktion bei 400 fs wieder durch einen sigmoidialen Abfall auf 0, wodurch das Zeitsignal für $t > 400$ fs gleich Null gesetzt wird.

Durch eine Fourier-Transformation wird das Streulichtsignal in den Spektralraum überführt. Für den exemplarischen Lichtpuls aus a) ist das Spektrum vor und nach Anwendung der Filterfunktion in Abbildung 29 b) gezeigt. Man erkennt, dass einige der schmalbandigen spektralen Beiträge in ihrer Form und Position erhalten bleiben, andere jedoch verschwinden. Dies hängt damit zusammen, dass mit der Filterkante bei 50 fs auch erste Streulichtbeiträge entfernt werden. Die so gefilterten Streulichtspektren werden im Folgenden zur statistischen Bestimmung des dimensionslosen Leitwertes g verwendet.

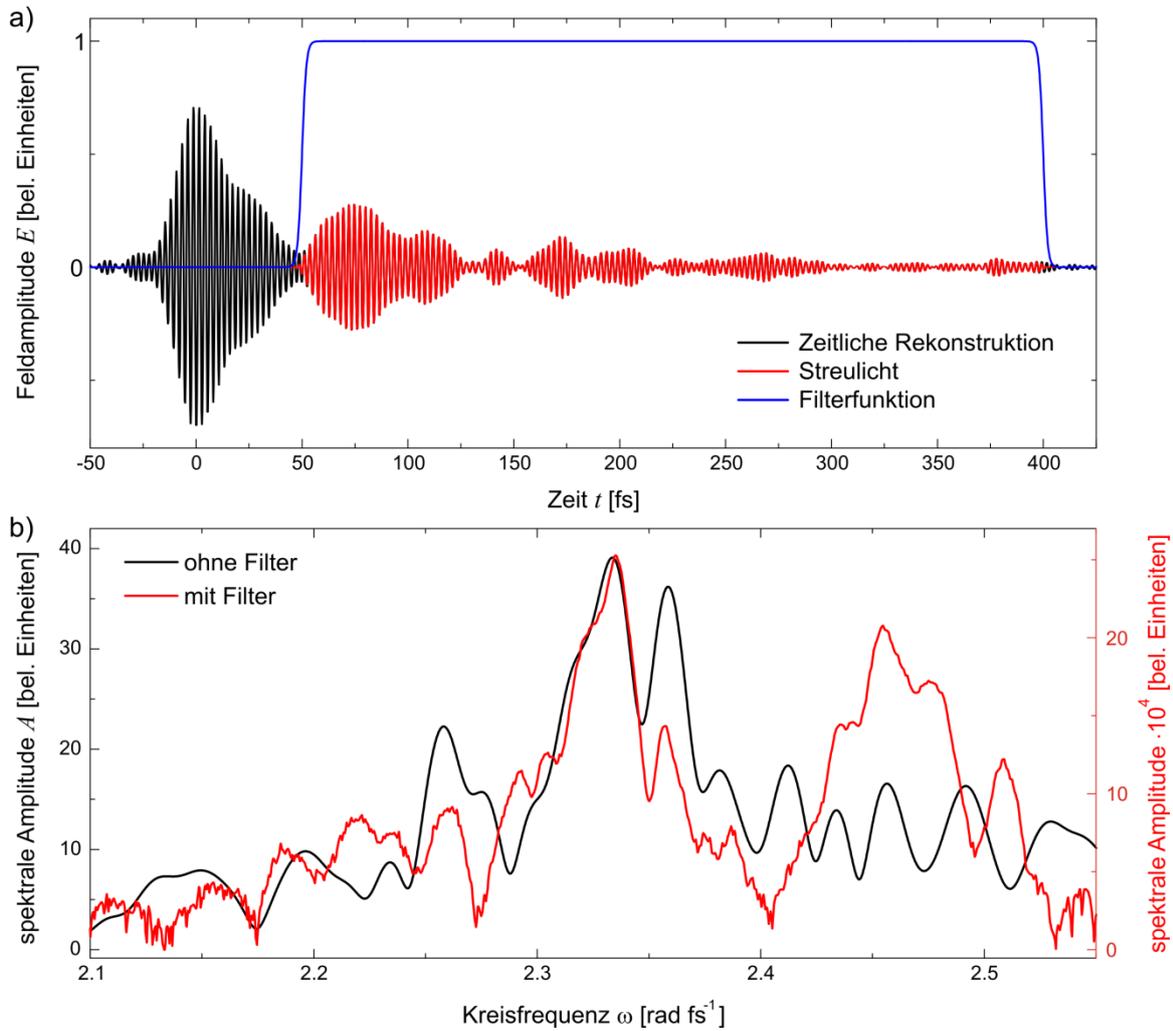


Abb. 29: a) Repräsentatives Beispiel für einen zeitlich rekonstruierten Puls (schwarze Kurve), gemessen an der „nanotexturierten“ Probe. Durch Multiplikation mit der Filterfunktion (blaue Kurve) bleibt der reine Streulichtanteil übrig (rote Kurve). Der Amplitudenverlauf geht nach 450 fs ins Rauschen über und ist nicht dargestellt. b) Streulichtspektrum des in a) gezeigten Pulses (schwarze Linie). Nach Anwendung der Filterfunktion im Zeitraum und anschließender Fourier-Transformation ergibt sich das reine Streulichtspektrum (rote Kurve). Die spektralen Amplitudenskalen sind nur untereinander vergleichbar.

Dazu wird der in [89] vorgestellte statistische Ansatz verwendet. Die Transmission t_{ab} durch eine Streuschicht ergibt sich durch das Verhältnis der Intensität in der Eingangsmode a zur Intensität in der Ausgangsmode b . Dadurch lässt sich die normierte spektrale Intensität s_{ab} bestimmen als

$$s_{ab} = t_{ab} / \langle t_{ab} \rangle. \quad (5.22)$$

Hier geht ein Ensemble-Mittelwert ein, welcher seine Gültigkeit verliert, wenn es zum Grenzwert kleiner Zahlen kommt. Wenn Anderson-Lokalisierung auftritt, also $g < 1$ ist,

kommt der Transport vollständig zum Erliegen und die Transmission verschwindet theoretisch komplett. Dieser Fall muss im Folgenden beachtet werden.

Für nichtlokalisierte Zustände beschreibt g das Verhältnis zwischen der normierten spektralen Intensität s_{ab} und dessen statistischer Verteilung $p(s_{ab})$ [88]. In dem Regime und bei moderaten Werten von s_{ab} wird der Zusammenhang durch das Rayleigh-Gesetz beschrieben. Für große Werte von s_{ab} ergibt sich

$$p(s_{ab}) \sim \exp(-2\sqrt{g s_{ab}}). \quad (5.23)$$

Im Fall kleiner Werte für g würde der Ausdruck in Gleichung 5.22 seine Gültigkeit verlieren, da die Anzahl an Transportkanälen verschwindet. Es kann jedoch gezeigt werden, dass auch in diesem Fall der statistische Zusammenhang aus Gleichung 5.23 gilt [90]. Er wird häufig zur Bestimmung von g herangezogen, um Anderson-Lokalisierung nachzuweisen [16].

Im Experiment wird nicht die durch eine Schicht transmittierte Strahlung t_{ab} gemessen, sondern die in Rückrichtung gestreute Strahlung detektiert. Dabei wird wie oben diskutiert sichergestellt, dass kein einfach gestreutes oder schwach lokalisiertes Licht in die Streulichtspektren mit eingeht. Die normierte spektrale Intensität s_{ab} ergibt sich dann analog zu Gleichung 5.22 aus

$$s_{ab} = I_{\omega}(x) / \langle I_{\omega}(x) \rangle_x. \quad (5.24)$$

Dabei ist $I_{\omega}(x)$ die spektrale Streulichtintensität bei einer festen Kreisfrequenz ω und für verschiedene Probenpositionen x . Der Mittelwert wird über die spektralen Intensitäten $I_{\omega}(x)$ an verschiedenen Probenpositionen x gebildet. Die statistische Verteilung $p(s_{ab})$ wird dann aus den normierten spektralen Intensitäten s_{ab} aller Kreisfrequenzstützstellen ω_i gebildet.

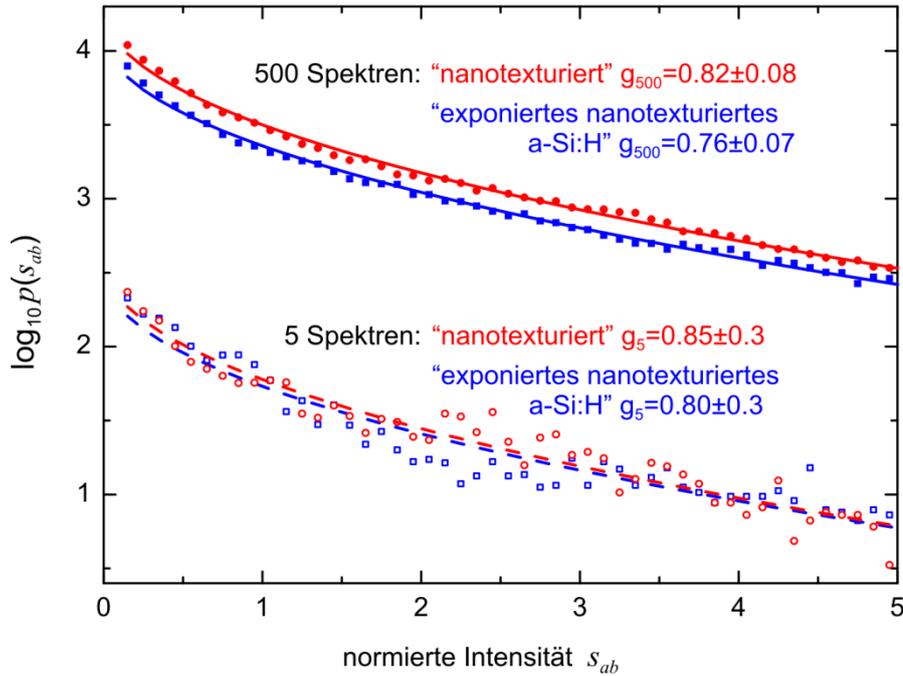


Abb. 30: Repräsentative Histogramme von $p(s_{ab})$ über s_{ab} der in Kapitel 5.3.2 gezeigten Streulichtspektren für die „nanotexturierte“ Probe (rote offene Kreise) und die „exponiert nanotexturierte a-Si:H“ Probe (blaue Rechtecke). Jede fünfte Probenposition mit äquidistantem Abstand von 20 μm geht in die Auswertung ein (insgesamt fünf Spektren). Anpassungen der in Gleichung 5.23 angegebenen Funktion an die Histogramme sind als gestrichelte Linien eingezeichnet. Entsprechende Histogramme, die sich aus bis zu 500 Streulichtspektren (Beschreibung im Text) beider Proben (gefüllte Kreise und Quadrate) und deren Anpassungsfunktionen (durchgezogene Kurven) ergeben, sind dargestellt. Adaptiert aus [11].

Bei den in Kapitel 5.3.2 gezeigten Streulichtspektren sind die Positionsabstände auf der Probe kleiner als der Fokusbereich. Dadurch erscheinen spektrale Peaks in benachbarten Spektren. Um dies zu vermeiden wird nur jedes fünfte Spektrum für die Bildung eines Histogramms verwendet. In Abhängigkeit davon, bei welchem Spektrum begonnen wird, ergeben sich fünf verschiedene Histogramme, da die Probenpositionen bei allen Kombinationen miteinander unkorreliert sind. Für die Proben „nanotexturiert“ und „exponiertes nanotexturiertes a-Si:H“ ist jeweils ein repräsentatives Histogramm in Abbildung 30 gezeigt. Die Histogrammfunktionen wurden durch Gleichung 5.23 approximiert (gestrichelte Kurven), wodurch der Leitwert g bestimmt werden konnte. Gemittelt über alle fünf Histogramme ergibt sich ein Wert von $g_5 = 0.85 \pm 0.3$ für die „nanotexturierte“ Probe und $g_5 = 0.80 \pm 0.3$ für die „exponierte nanotexturierte a-Si:H“ Probe. Der Index bezeichnet hier die Anzahl an Streulichtspektren, die in die Auswertung eingegangen sind. Das stimmt, im Rahmen des Anpassungsfehlers, mit dem in Kapitel 5.3.5 bestimmten Leitwert $g_M = 0.67 \pm 0.4$ überein.

Das Fehlerintervall ist auch bei diesen Messungen so groß, dass das für Anderson-Lokalisierung notwendige Kriterium $g < 1$ nicht eindeutig gezeigt werden kann. Aus

diesem Grund wurde eine weitere Messung durchgeführt, die eine wesentlich größere Anzahl an Streulichtspektren umfasst. Für diese Messungen wurde ein ähnlicher, in Kapitel 5.4.2 genauer beschriebener, Messaufbau (siehe Abbildung 37) verwendet. Der Detektionswinkel wurde hierbei auf $\alpha = 22^\circ$ gegenüber der spekularen Reflektion gewählt. Er ist so groß, dass kein Filteralgorithmus zur Entfernung des einfach reflektierten Lichtes notwendig ist. Die Detektion findet weiterhin in Reflektionsrichtung statt. Der Fokusbereich beträgt hier $d < 2\mu\text{m}$. Es wurden 500 Streulichtspektren an verschiedenen Probenpositionen aufgenommen. Als räumlicher Abstand zwischen den Positionen auf einer Probe wurden $4\mu\text{m}$ gewählt. Das Anregungslicht ist p-polarisiert, die Detektion des Streulichtes erfolgte ebenfalls für die p-Polarisation. Untersucht wurden wieder die „glatte“, „nanotexturierte“ und „exponierte nanotexturierte a-Si:H“ Probe. Die gemessenen Streulichtspektren sind in Abbildung 31 dargestellt. Wie bereits bei den in Abbildung 26 c) gezeigten Streulichtmessungen tritt bei der „glatten“ Probe hauptsächlich das in der Amplitude modulierte Anregungsspektrum auf. Die spekularen Reflektionen treten an Oberflächendefekten auf. Die Öffnungsweite der Blende, welche den Detektionswinkel bestimmt, war hier etwas größer als bei den Messungen an den texturierten Proben. Da die Größe der Blendenöffnung nicht abgelesen werden kann, ist es nicht möglich zu bestimmen, wie viel kleiner die Amplitude der Streulichtspektren der „glatten“ Proben gegenüber den texturierten Proben skaliert sein müsste. Für die „nanotexturierte“ und „exponierte nanotexturierte a-Si:H“ Probe werden über den

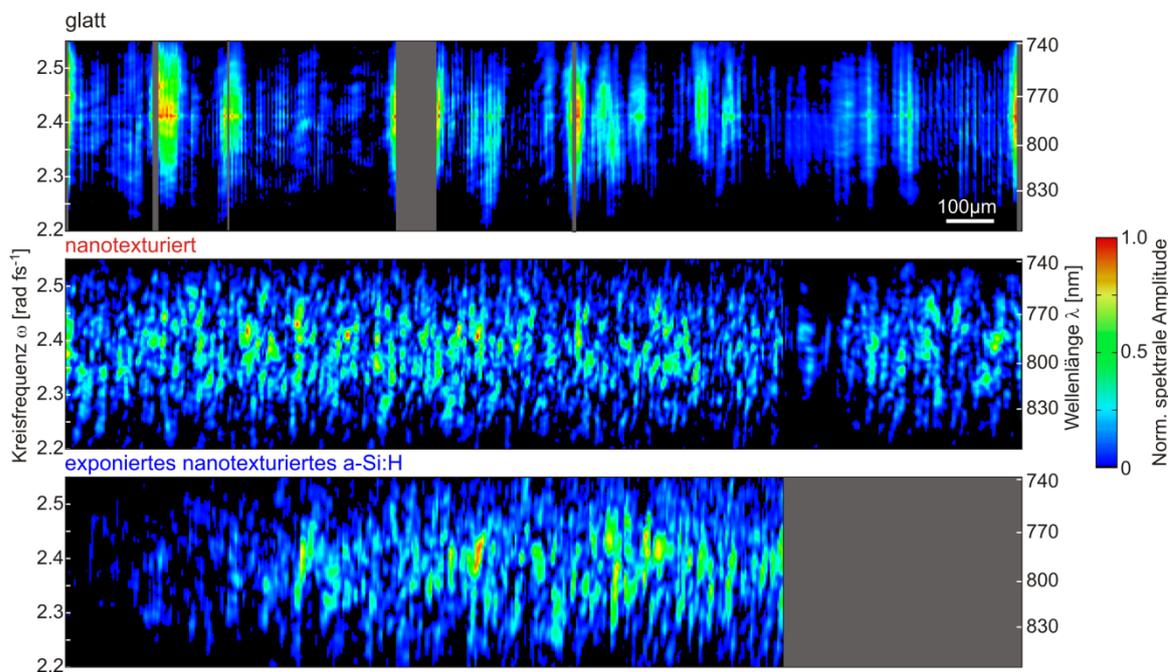


Abb. 31: Streulichtspektren aufgenommen an 500 Positionen, die äquidistant verteilt über 2 mm entlang einer Linie auf der jeweiligen Probenoberfläche sind. Der Detektionswinkel beträgt $\alpha = 10^\circ$. Spektren, die nicht zur Auswertung verwendet werden konnten, sind ausgegraut. Für die „glatte“ Probe handelt es sich um Überbelichtungen des Detektors, bei der „exponierten nanotexturierten a-Si:H“ Probe hat sich eine Leiterbahn im Messbereich befunden, wodurch die spektrale Intensität zu stark reduziert wurde. Normiert wurde auf die höchste spektrale Amplitude einer Probe.

gesamten Messbereich spektrale Moden sichtbar. Die Blendenöffnung ist bei beiden Messreihen identisch. Bei genauerer Betrachtung fällt auf, dass spektrale Moden an einer Ortsposition auch in benachbarten Spektren auftreten. Wie groß dieser Anteil ist, hängt zum einen von der Größe des Fokusbereichs und zum anderen von der Art der Einkopplung in die spektralen Moden ab.

Die aus diesen Messungen berechneten normierten spektralen Intensitäten s_{ab} sind in Abbildung 30 für die drei Proben als Histogramm dargestellt. Ein Untergrundrauschen würde, infolge der Normierung der Spektren, einen großen Einfluss auf die Statistik ausüben. Deshalb wurde von den spektralen Intensitäten ein Untergrund von 0.5% des Dynamikbereichs des Detektors abgezogen. Eine Anpassung nach Gleichung 5.23 ergibt für die „nanotexturierte“ Probe einen dimensionslosen Leitwert von $g_{500} = 0.82 \pm 0.08$ und für die „exponierte nanotexturierte a-Si:H“ Probe $g_{500} = 0.76 \pm 0.07$. Beide Werte sind nun auch im Rahmen des Fehlers kleiner als eins und bringen damit den Nachweis für Anderson-Lokalisierung. Interessanterweise stimmen die dimensionslosen Leitwerte g_5 und g_{500} miteinander überein, obwohl sie unter verschiedenen Streuwinkeln aufgenommen wurden. Das belegt die Robustheit dieser Methode.

5.3.6 Alternativer Nachweis der Modenlokalisierung

Die zeitliche Propagationsdynamik konnte durch die Charakterisierung des Streulichtes in den Kapiteln 5.3.2 und 5.3.3 aufgezeigt werden. In Kapitel 5.3.5 konnte nachgewiesen werden, dass es sich bei den spektralen Moden um Leckstrahlung von Anderson-lokalisierten Moden handelt. Aus den Messungen konnte jedoch nicht die räumliche Ausbreitung der Moden bestimmt werden. Um dies zu untersuchen, muss auf Mikroskopiemethoden mit höherer räumlicher Auflösung zurückgegriffen werden. Hierfür ist die kohärente 2D-Nanoskopie [91] besonders gut geeignet. Für tiefere Details zur Messung und Auswertung sei an dieser Stelle auf die Dissertation von Christian Strüber [85] verwiesen. Um die gemessene räumliche Ausdehnung der spektralen Moden weiter zu untersuchen, wurden FDTD-Simulationen (Lumerical Solutions) von Matthias Hensen [92] durchgeführt und ausgewertet.

2D-Nanoskopie-Messungen

Mithilfe von ultrakurzen Lichtpulsen werden Photoelektronen in der Probe erzeugt, welche anschließend abgebildet werden können, siehe Abbildung 32 a). Zur Abbildung

der Photoelektronen wird ein PEEM im Ultrahochvakuum (UHV) verwendet. Da es sich somit um ein rein elektronenoptisches Abbildungsverfahren handelt, ist das räumliche Auflösungsvermögen von der Wellenlänge der Photoelektronen abhängig und nicht von der Wellenlänge des Anregungslichtes. Folglich können Auflösungen von bis zu 40 nm [11] erreicht werden. Messungen können jedoch nur an der „exponierten nanotexturierten a-Si:H“ Probe durchgeführt werden, da eine TCO-Schicht undurchlässig für die ausgelösten Photoelektronen ist. Ein exemplarisches PEEM-Bild ist in Abbildung 32 b) gezeigt. Die Elektronen-Emissionsausbeute $Y(\vec{r})$ ist räumlich inhomogen und zeigt lokalisierte starke Anstiege, im Folgenden als „Hot-Spots“ bezeichnet. Sie weisen eine räumliche Ausdehnung von weniger als 1 μm im Durchmesser auf.

Durch die Verwendung von ultrakurzen Laserpulsen kann auch die zeitliche Dynamik untersucht werden. Dazu wird eine Abfolge von drei Laserpulsen auf die Probe fokussiert. Durch die Variation der Zeitabstände zwischen den Pulsen ergibt sich für jeden Ortspunkt des PEEM-Bildes eine von τ und t abhängige Elektronen-Emissionsausbeute $Y(\vec{r}, \tau, t)$. Durch eine Fourier-Transformation wird sie in ein lokales 2D Nanoskopie-Spektrum überführt. Dies wird exemplarisch in Abbildung 32 a) gezeigt. Durch ein 2D-Lorentz-Modell kann dieses Spektrum angenähert werden, woraus sich die in Abbildung 32 c) und d) gezeigten Zentralfrequenzen ω_0 bzw. Lebenszeiten τ_0 ergeben. Die Hot-Spots unterscheiden sich in der Lage der Zentralfrequenzen und der Länge der Lebenszeiten. Innerhalb eines Hot-Spots sind deren Werte jedoch, im Rahmen des Messfehlers, konstant. Die Lebenszeiten der Hot-Spots variieren zwischen 40-140 fs und sind damit im Einklang mit der in Kapitel 5.3.3 bestimmten mittleren Lebenszeit von $\tau_0 = 70$ fs. Die Zentralfrequenz der Hot-Spots variiert über den Spektralbereich des Anregungslasers von 790-805 nm. Aus diesen Übereinstimmungen mit den Streulichtmessungen wird der Schluss gezogen, dass die in der 2D-Nanoskopie-Messung detektierten Hot-Spots durch das Auftreten von spektralen Moden zustande kommen. Die Hot-Spots sind auf einen Durchmesser von weniger als 1 μm beschränkt und weisen eine individuelle Zentralfrequenz bzw. Lebenszeit auf. Es wird deshalb davon ausgegangen, dass es sich um lokalisierte photonische Moden handelt. Aus diesen Messungen kann jedoch nicht auf Anderson-Lokalisierung geschlossen werden.

Weitere Erkenntnisse lassen sich gewinnen, wenn die Elektronen-Emissionsausbeute $Y(\vec{r})$ als Funktion der Anregungsleistung P des Lasers für $\tau = t = 0$ fs betrachtet wird. Diese steigt nichtlinear mit der Anregungsleistung an und wurde an jedem Ortspunkt mit der Funktion $Y \sim P^n$ angenähert, wodurch sich die orts aufgelöste Nichtlinearität n , wie in Abbildung 32 e) gezeigt, ergibt. Dabei wurde der Untergrund von $Y(\vec{r})$ bei ausgeschaltetem Licht zuvor abgezogen. Es ergeben sich Nichtlinearitäten im Bereich von $n = 8$. Es gibt mehrere Elektronenemissionsprozesse, die durch hohe Nichtlinearitäten charakterisiert sind. Bei einem Multiphotonen-Emissionsprozess würden die Photoelektronen den dominanten Signalbeitrag leisten, welche energetisch gerade oberhalb der Austrittsarbeit liegen. Für a-Si:H beträgt die Austrittsarbeit 5.8 eV [93],

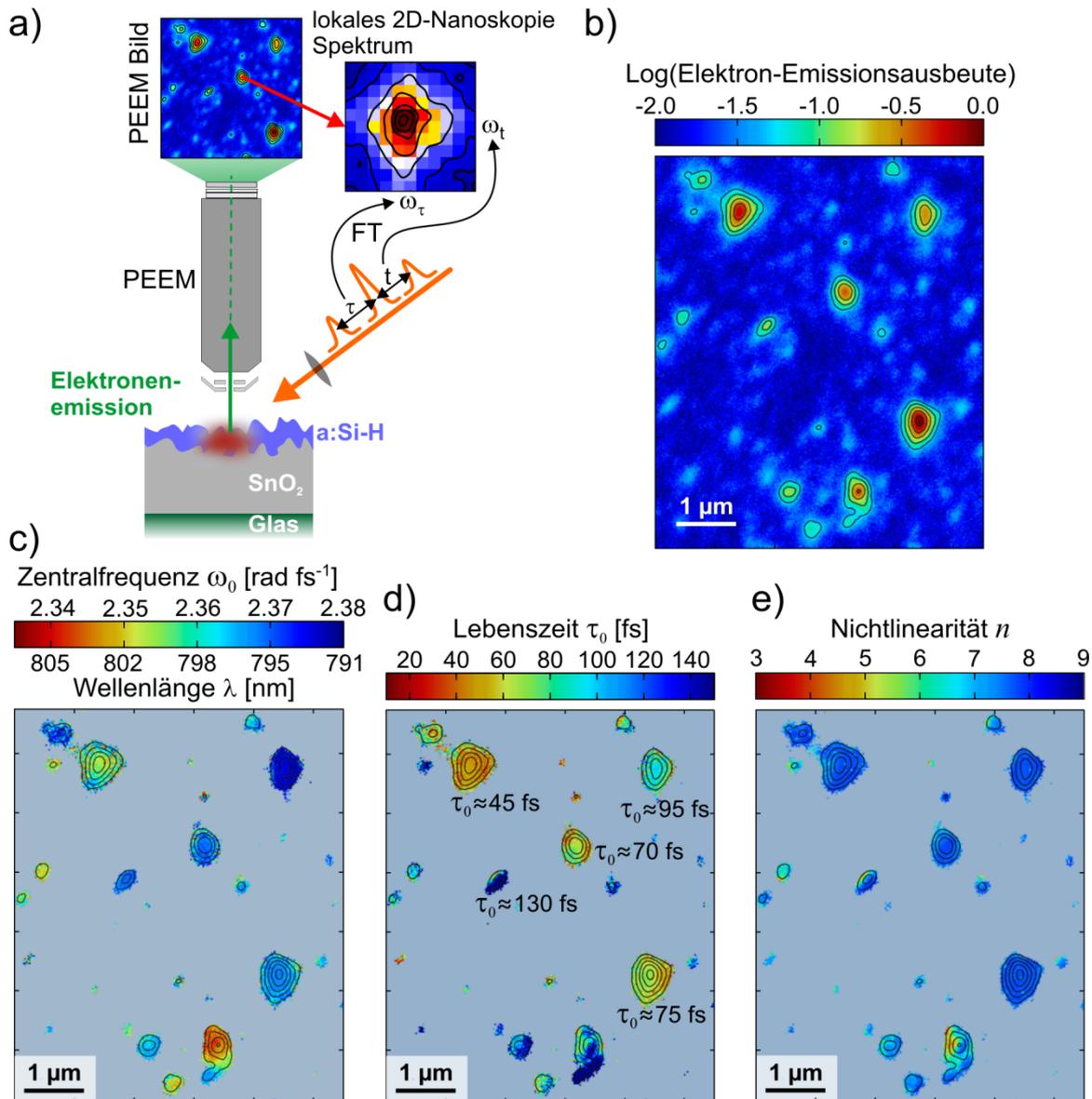


Abb. 32: Kohärente 2D-Nanoskopie an der „exponierten nanotexturierten a-Si:H“ Probe zur Charakterisierung lokalisierter Moden. a) Experimenteller Aufbau zur orts aufgelösten Abbildung von Photoelektronen, welche nach Anregung durch eine Sequenz von drei ultrakurzen Laserpulsen (60 fs, 796 nm, 80 MHz, 50 μm FWHM-Breite der Intensität des Laserfokus auf der Probe) emittiert werden. Die Laserpulse weisen einen relativen zeitlichen Versatz von τ und t zueinander auf. Ein im UHV befindliches PEEM detektiert orts aufgelöst die Anzahl ausgelöster Photoelektronen (PEEM-Bild). Das lokale 2D-Nanoskopie-Spektrum ergibt sich durch Fourier-Transformation der Elektronenausbeute als Funktion von τ und t . b) PEEM-Bild für $\tau = t = 0$ fs. c, d) Anpassung von Lorentzlinien an die 2D-Nanoskopie-Spektren führen für jeden Ortspunkt im PEEM-Bild zu einer Zentralfrequenz ω_0 (c) und der kohärenten Lebenszeit τ_0 (d) der lokalisierten photonischen Moden. e) Lokale Nichtlinearität n , ermittelt aus der Elektronen-Emissionsausbeute, in Abhängigkeit von der Anregungsleistung. Bereiche, deren Elektronen-Emissionsausbeute weniger als 5% des Maximalwertes betragen, sind ausgegraut, da keine Datenauswertung möglich ist. Adaptiert aus [11].

womit vier Photonen ausreichen um Photoelektronen zu erzeugen. Damit würde die Nichtlinearität dieser schwelennahen Elektronenemission entsprechend $n = 4$ betragen.

Elektronenemission oberhalb der Austrittsarbeit (Above Threshold Photoemission) kann ausgeschlossen werden, da deren Beitrag, verglichen mit der schwelennahen Elektronenemission, gering ist [94]. Starkfeldeffekte [95] zeigen gegenüber dem Multiphotonen-Emissionsprozess geringere Nichtlinearitäten und können ebenfalls ausgeschlossen werden.

Zur Erklärung der hohen Nichtlinearitäten wird das thermionische Emissionsmodell, basierend auf der Richardson-Dushman-Gleichung, angewandt [11, 96]. Es wird davon ausgegangen, dass die räumlich lokalisierten photonischen Moden hauptsächlich innerhalb der Hot-Spots absorbiert werden. Regt ein ultrakurzer Laserpuls eine Mode an, führt das zu einer lokalen Aufheizung des Elektronengases. Dadurch kommt es zur thermischen Emission von Elektronen. Dies ist schematisch in Abbildung 33 a) dargestellt.

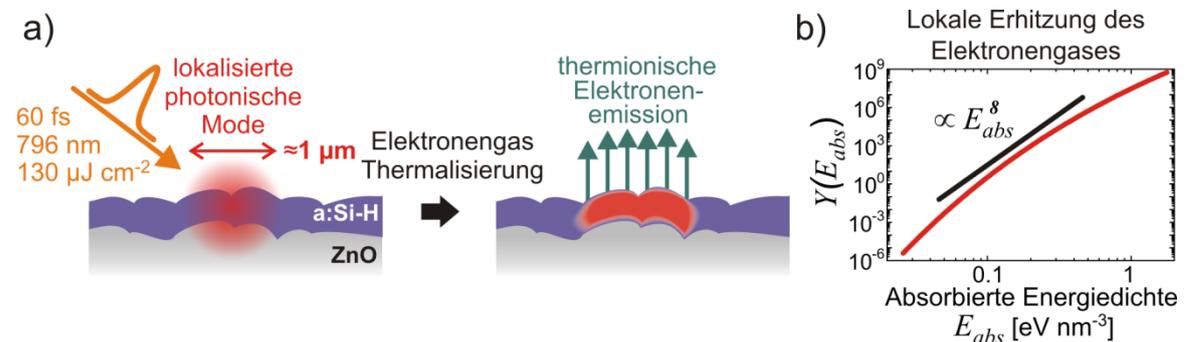


Abb. 33: a) Schematische Darstellung der Anregung lokalisierter photonischer Moden. Nach der Thermalisierung des Elektronengases kommt es zur thermionischen Emission von Elektronen. b) Abhängigkeit der Elektronen-Emissionsausbeute Y von der absorbierten Energiedichte E_{abs} . Die schwarze Linie markiert eine nichtlineare Abhängigkeit der Elektronen-Emissionsausbeute mit $n = 8$.

Die Elektronen-Emissionsausbeute Y hängt dann wie folgt von der Elektronengastemperatur T_{el} ab:

$$Y = A_0 T_{el}^2 e^{-\frac{W_{ef}}{k_B T_{el}}} \quad (5.25)$$

Dabei beträgt die Richardson-Konstante $A_0 = 3.7 \cdot 10^6$ elektronen $s^{-1} K^{-2} nm^{-2}$ und es wurde eine effektive Austrittsarbeit von $W_{ef} = 4.9 eV$ angenommen.

Des Weiteren kann die absorbierte Energiedichte E_{abs} berechnet werden, die benötigt wird, um das Elektronengas von einer Anfangstemperatur T_0 auf die maximal Temperatur T_{el}^{max} zu erhitzen. Für Temperaturen $T_{el}(\vec{r}) < T_{el}^{max}(\vec{r})$ verringert sich infolge

der hohen Nichtlinearität der Richardson-Dushman-Gleichung die Elektronen-Emissionsausbeute $Y(\vec{r})$ so stark, dass sie vernachlässigt werden kann. Damit ergibt sich:

$$E_{abs}(T_{el}^{max}, T_0) = \int_{-\infty}^{\infty} E D_{el}(E) \left\{ \frac{1}{1 + e^{\frac{E-E_{Fermi}}{k_B T_{el}^{max}}}} - \frac{1}{1 + e^{\frac{E-E_{Fermi}}{k_B T_0}}} \right\} (E - E_{Fermi}) dE \quad (5.26)$$

Die elektronische Zustandsdichte D_{el} wurde, wie in [97] und [98] beschrieben, theoretisch bestimmt. Für die Fermi-Energie E_{Fermi} wurde angenommen, dass sie in der Mitte der Bandlücke liegt. Durch Gleichung 5.25 und 5.26 kann nun die Elektronen-Emissionsausbeute $Y(E_{abs})$ in Abhängigkeit von der absorbierten Energiedichte E_{abs} ausgedrückt werden. Der Zusammenhang ist in Abbildung 33 b) gezeigt. Die Steigung dieser Kurve ist gegeben durch $n = dY(E_{abs})/dE_{abs}$. Die Steigung der schwarzen Kurve gibt die häufigste aus den PEEM-Messungen bestimmte Nichtlinearität von $n = 8$ wieder. Somit kann jeder Nichtlinearität eine absorbierte Energiedichte zugeordnet werden. Dieser Zusammenhang ist eindeutig, da $Y(E_{abs})$ eine monoton steigende Funktion ist. Für die in Abbildung 32 vorgestellte PEEM-Messung an der „nanotexturierten exponierten a-Si:H“ Probe ist die Nichtlinearität in eine absorbierte Energiedichte umgerechnet worden, siehe Abbildung 34. Die Hot-Spots der in a) gezeigten Elektronen-Emissionsausbeute treten in gleicher Weise in der absorbierten Energiedichte in b) auf.

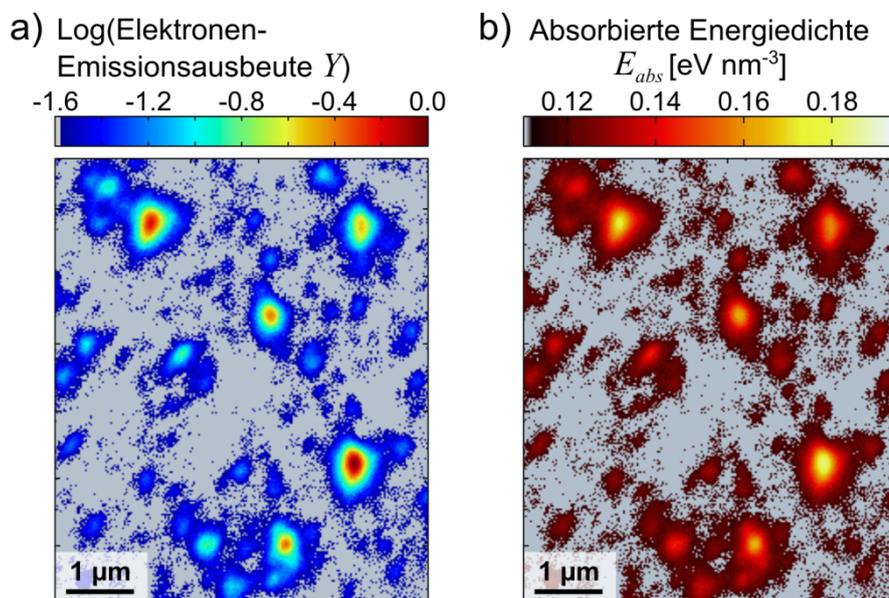


Abb. 34: a) PEEM-Bild der „exponierten nanotexturierten a-Si:H“ Probe. Die Elektronen-Emissionsausbeute ist logarithmisch dargestellt. b) Absorbierte Energiedichte, berechnet nach dem Modell der thermionischen Emission. Bereiche mit einer Elektronen-Emissionsausbeute unterhalb von 25% des Maximalwertes wurden ausgegraut und nicht zur Berechnung verwendet. Adaptiert aus [11].

Die räumlich gemittelte absorbierte Energiedichte der in Abbildung 34 b) gezeigten Verteilung beträgt $\langle E_{abs} \rangle = 0.06 \text{ eV nm}^{-3}$. Die absorbierte Energiedichte in den ausgegrauten Bereichen zwischen den Hot-Spots ist so gering, dass sie vernachlässigt werden kann und geht nicht in die Mittelung ein. Unter Annahme einer mittleren Absorberschichtdicke von 100 nm ergibt sich durch Multiplikation eine absorbierte Fluenz von 0.1 mJ cm^{-2} . Die auf die Probe eingestrahlte Fluenz betrug 0.13 mJ cm^{-2} . Es wurden somit 75% der Strahlung von der Solarzelle absorbiert. In Anbetracht der Ungenauigkeiten der Messungen und der theoretischen Modellierung ist das in guter Übereinstimmung mit der aus den UV-VIS-Messungen bestimmten Absorption von 30%. Das Licht wird somit zum größten Teil innerhalb der lokalisierten Moden absorbiert, wodurch die Absorptionserhöhung der „nanotexturierten“ Solarzellen erklärt werden kann.

Dementsprechend hoch ist auch der Absorptionsquerschnitt σ_{abs} der lokalisierten Moden. Er kann mit $\sigma_{abs} = 1.8 \mu\text{m}^2$ angegeben werden [11]. Aus Abbildung 34 b) lässt sich der Durchmesser der Moden mit der größten Elektronen-Emissionsausbeute mit etwa $d_{Mode} = 1 \mu\text{m}$ angeben, was einer Fläche von $A_{Mode} = 0.8 \mu\text{m}^2$ entspricht. Somit wird jedes Photon, das auf eine lokalisierte spektrale Mode trifft, absorbiert. In Kapitel 5.3.5 wurde gezeigt, dass die Absorption durch Anderson-lokalisierte Moden maßgeblich bestimmt wird. Die hier durch PEEM-Messungen detektierten lokalisierten Moden führen in gleicher Weise zur Absorptionserhöhung. Es wird deshalb davon ausgegangen, dass die in der 2D-Nanoskopie beobachteten Moden ebenfalls Anderson-lokalisiert sind. Es wurde in Kapitel 5.3.1 beobachtet, dass die Absorption in der „nanotexturierten“ und der „exponierten nanotexturierten a-Si:H“ Probe durch den gleichen Absorptionsmechanismus hervorgerufen wird. Diese Annahme wurde durch den Nachweis von Anderson-lokalisieren Moden in beiden Proben bestätigt. Es wird deshalb davon ausgegangen, dass die in den PEEM-Messungen beobachteten lokalisierten Moden ebenfalls in beiden Proben auftreten.

FDTD-Simulationen

Um die Lichtpropagation in den Schichtsystem zu simulieren, wurde ein $5 \times 5 \mu\text{m}^2$ großer Ausschnitt der „exponierten nanotexturierten a-Si:H“ Probe dreidimensional modelliert. Dazu wurde die Oberflächentopographie aus den AFM-Messungen für die Absorberschicht verwendet. Da es sich um nahezu konformal gewachsene Schichten handelt, wird die Oberflächentopographie sowohl für die Grenzschicht zwischen Vakuum und a-Si:H als auch für die zwischen ITO und a-Si:H verwendet. Die optischen Parameter von ITO und a-Si wurden der in [11] angegebenen Literatur entnommen. Da die optischen Parameter für a-Si statt a-Si:H verwendet wurden, verschiebt sich der Wellenlängenbereich, in dem die gesuchten Nahfeldeffekte auftreten, im Vergleich zu dem in den Messungen verwendeten Wellenlängenbereich. Die Schichtdicken sind analog

zu den in Abbildung 24 a) - c) angegebenen gewählt. Die durch Anregung mit zwei verschiedenen Wellenlängen auftretenden Intensitätsverteilungen sind in Abbildung 35 a) gezeigt. Lippmann-Interferenzen [99] führen auf der Vakuumseite zu einer erhöhten Intensität. Für Anregung mit $\lambda = 820$ nm ist die Intensität in der a-Si-Schicht etwa $I = 1$, was der Intensität der einfallenden Strahlung entspricht. Bei Anregung mit $\lambda = 890$ nm (mit Absorption) bilden sich hingegen Feldüberhöhungen innerhalb der a-Si-Schicht aus. Sie weisen eine um den Faktor vier höhere Intensität als das einfallende Licht auf. Deren lateraler Abstand ist vergleichbar mit der halben Lichtwellenlänge im a-Si (Brechungsindex $n \approx 4$), die $\lambda/2 = 110$ nm beträgt. Des Weiteren weisen benachbarte Feldüberhöhungen entgegengesetzte Phasen auf (hier nicht gezeigt), wodurch man auf ein stehendes Modenbild schließen kann. Die in der rechten Hälfte des Simulationsausschnittes auftretenden Feldüberhöhungen haben insgesamt eine Ausdehnung von $1.5 \mu\text{m}$, was in guter Übereinstimmung mit der aus den PEEM-Messungen bestimmten Modengröße $d_{Mode} = 1 \mu\text{m}$ ist. Die Feldüberhöhungen befinden sich ausschließlich innerhalb der Absorberschicht. Die Absorberschicht kann somit als planares 2D-System angesehen werden, was die Wahrscheinlichkeit für die

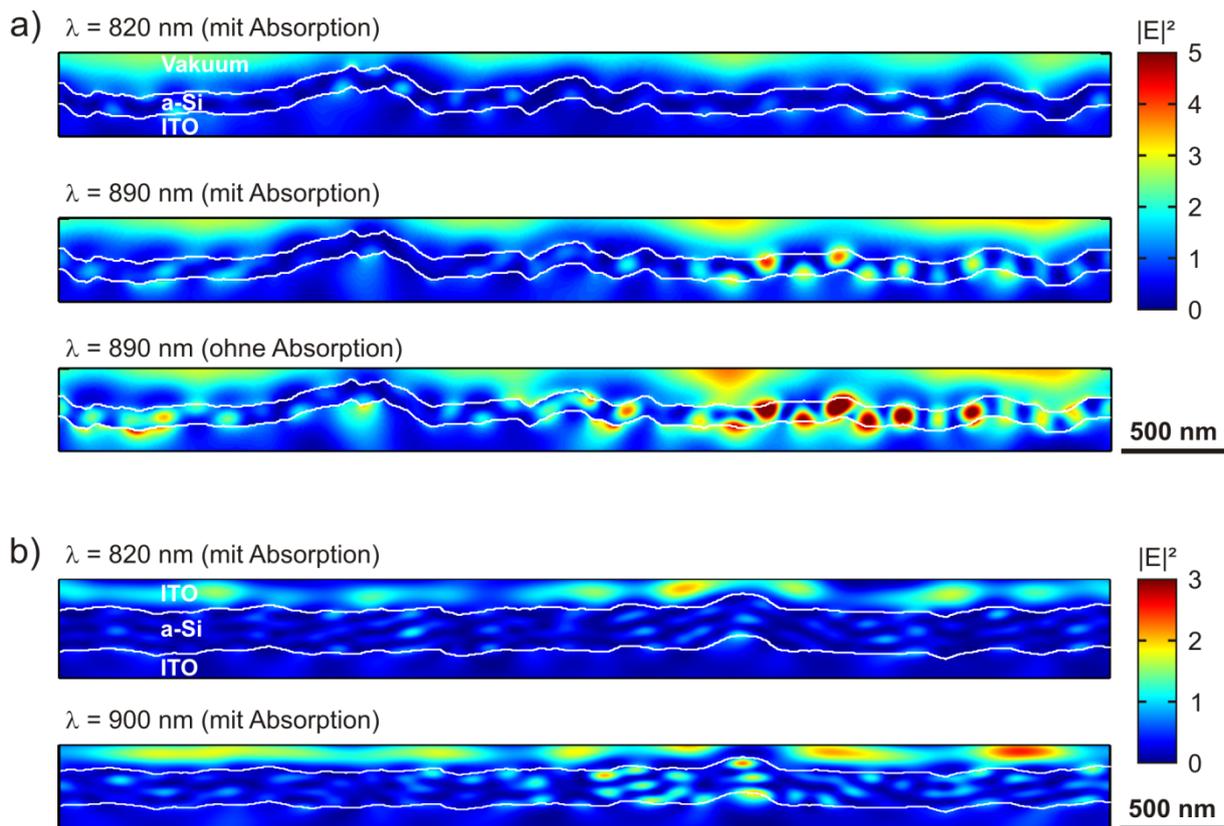


Abb. 35: FDTD-Simulation der elektrischen Felder in einem repräsentativen Schnittprofil. a) Intensitätsverteilung in der „exponierten nanotexturierten a-Si:H“ Probe für Anregung mit Licht der Wellenlänge 820 nm (oben) und 890 nm mit Absorption (Mitte) sowie 890 nm ohne Absorption (unten). b) Intensitätsverteilung in der „nanotexturierten“ Probe für Anregung mit Licht der Wellenlänge 820 nm (oben) und 900 nm (unten). Beleuchtet wurde mit einer ebenen Welle (Polarisation orthogonal zur Bildebene) unter senkrechtem Einfall von der Vakuumseite aus. Adaptiert aus [11].

Ausbildung von Anderson-lokalisierter Moden deutlich erhöht. Nach der Theorie sind in einem 2D-System alle Zustände Anderson-lokalisiert, in einem 3D-System ist die Ausbildung geschlossener Streupfade hingegen weniger wahrscheinlich [100].

Zum Vergleich wurde die Anregung mit $\lambda = 890 \text{ nm}$ ohne Absorption berechnet. Wie es im Bild der lokalisierten Moden zu erwarten wäre, erhöht sich die Intensität in den Feldüberhöhungen, da das Licht nun eine längere Zeit innerhalb der Mode eingeschlossen ist. Die räumliche Ausprägung ist unbeeinflusst von der fehlenden Absorption. Die Absorption ist folglich so gering, dass sie die Lichtausbreitung in der Absorberschicht nicht signifikant erhöht. Dies ist entscheidend, da Anderson-Lokalisierung nur bei geringer Absorption zu erwarten ist, was für die Absorberschicht demnach gegeben ist.

Die Simulationen wurden nun in gleicher Weise für die „nanotexturierte“ Probe wiederholt, siehe Abbildung 35 b). Dementsprechend wurde deren Oberflächentopographie aus der AFM-Messung verwendet. Für Anregung mit Licht der Wellenlänge $\lambda = 820 \text{ nm}$ ist auch hier die Intensität in der a-Si-Schicht gleich der einfallenden Strahlung. Für $\lambda = 900 \text{ nm}$ bilden sich ebenfalls Feldüberhöhungen. Infolge der dickeren Absorberschicht treten nun stehende Wellen höherer Ordnung auf. Das ist an den zumeist drei orthogonal zur Oberfläche aufgereihten Feldüberhöhungen zu erkennen. Die größere Schichtdicke und hohe Rauigkeit der Oberflächentopographie führt zu einer sehr komplexen Intensitätsverteilung. Der Vergleich zu einer lokalisierten Mode durch die Bestimmung zusammengehörender Intensitätsüberhöhungen ist dadurch nicht mehr so eindeutig. Es liegt jedoch die Vermutung nahe, die Häufung von Intensitätsüberhöhungen leicht rechts von der Mitte des Bildausschnittes als eine Mode zu interpretieren. Deren räumliche Ausdehnung wäre dann $1 \mu\text{m}$ im Durchmesser, was in guter Übereinstimmung mit der in der 2D-Nanoskopie beobachteten Modengröße $d_{\text{Mode}} = 1 \mu\text{m}$ ist.

Die Simulationen lassen sich als Hinweise auf lokalisierte Moden in der Absorberschicht der „nanotexturierten“ und „exponierten nanotexturierten a-Si:H“ Probe verstehen. Ein vollständiger Nachweis der Anderson-lokalisierten Moden ist durch diese Simulationsergebnisse jedoch nicht gegeben. Es müsste beispielsweise ausgeschlossen werden, dass es sich hier um lokale Feldüberhöhungen an Spitzen der Oberflächentextur handelt. Dazu könnten zukünftig orts aufgelöste Simulationen der Feldverteilung innerhalb der Absorberschicht-Ebene durchgeführt werden. Damit könnte ausgeschlossen werden, dass spitzeninduzierte Nahfeldüberhöhungen das gezeigte Modenbild bestimmen.

5.4 Anderson-Lokalisierung in lasertexturierten a-Si:H-Schichten

In den vorherigen Abschnitten von Kapitel 5.3 konnte die Anderson-Lokalisierung in nanotexturierten Dünnschichtsolarzellen nachgewiesen werden. Die Lokalisierung wird maßgeblich durch die Zufälligkeit der Oberflächentextur vorgegeben. Durch die Variation der Prozessparameter im Herstellungsprozess für die „nanotexturierte“ Probe wurde die Oberflächentextur auf maximale Absorption optimiert. Eine weitere Absorptionserhöhung ist mit der eingesetzten Methode der Oberflächenstrukturierung nicht zu erwarten. Um den Lichtlokalisierungseffekt noch weiter zu verstärken, müssen andere Verfahren zur Oberflächenstrukturierung eingesetzt werden, die Zugang zu alternativen Nanotexturen eröffnen. In diesem Kapitel wird die Nanotexturierung der Oberfläche mithilfe von ultrakurzen verstärkten Laserpulsen untersucht. Dieses Verfahren wird im Folgenden als „Lasertexturierung“ bezeichnet. Als Ausgangsmaterial dient eine glatte a-Si:H-Schicht auf einem Glassubstrat. Sie wurde in Kooperation mit Malibu hergestellt.

Die Probenpräparation und die Lasertexturierung der Oberfläche werden in Kapitel 5.4.1 beschrieben. Sie wurden von Babak Soleymanzadeh durchgeführt und werden genauer im Rahmen seiner Dissertation [101] beschrieben. Die Oberflächencharakterisierungen durch Lichtmikroskopie, Raman-Spektroskopie und AFM-Messungen wurden ebenfalls von Babak Soleymanzadeh durchgeführt und sind in Kapitel 5.4.2 gezeigt. Zudem werden ortsaufgelöste Streulichtspektroskopie- und SI-Messungen vorgestellt, welche anschließend in Kapitel 5.4.3 genutzt werden, um die zeitliche Struktur des Streulichtes zu rekonstruieren. Des Weiteren werden diese Messungen in Kapitel 5.4.4 verwendet, um Anderson-Lokalisierung von Licht innerhalb der Lasertexturierung durch die Bestimmung des dimensionslosen Leitwertes g zu belegen. Die Ergebnisse sind in [102] und [103] veröffentlicht.

5.4.1 Laserinduzierte Nanotexturierung auf a-Si:H-Schichten

An die Lasertexturierung einer a-Si:H-Absorberschicht werden verschiedene Anforderungen gestellt. Es wird eine Erhöhung der Lichtabsorption innerhalb der Absorberschicht angestrebt. Die Absorptionserhöhung soll außerdem durch die Ausbildung von Anderson-lokalisierter Moden erreicht werden. Dies würde sich in einer weiteren Verringerung des dimensionslosen Leitwertes g , im Vergleich zu den in Kapitel 5.3.5 gemessenen Werten, äußern. Des Weiteren ist eine spektral breitbandige Absorptionserhöhung erstrebenswert. Um diese Ziele zu erreichen, wurden planare a-Si:H-Schichten mit unterschiedlichen Laserpulsen bearbeitet und die resultierenden Schichtveränderungen untersucht.

Die a-Si:H-Schichten wurden durch PECVD auf Quarzglas abgeschieden. Der Wasserstoffgehalt beeinflusst maßgeblich das Ablationsverhalten, was genauer in [102] untersucht wird. Ein hoher Wasserstoffgehalt begünstigt das Ablationsverhalten, weshalb die hier verwendeten Schichten bei Raumtemperatur abgeschieden wurden, um einen hohen Wasserstoffanteil von etwa 30% zu erreichen. Auf die elektrische Kontaktierung der Absorberschicht durch TCO-Schichten wird verzichtet. Es wurde bereits gezeigt, dass sie die Ausbildung lokalisierter Moden nicht maßgeblich beeinflussen (siehe Kapitel 5.3).

Zur Lasertexturierung wird ein einzelner, verstärkter fs-Laserpuls verwendet. Als Quelle dient ein kommerzieller Multipass Ti:Sa-Verstärker (Femtopower PRO CEP). Die Ausgangsfluenz kann durch ND-Filter eingestellt und die spektrale Phase mithilfe eines Prismenkompressors manipuliert werden. Dadurch steht eine Vielzahl von Parametern zur Verfügung, um den Ablationsprozess zu steuern und die gewünschte Nanotexturierung auf der Oberfläche zu erreichen. Die Auswirkungen dieser Parameter auf den Ablationsprozess werden in [102] systematisch beschrieben. Die Laserpulse werden über eine plan-konvexe Linse (Fokuslänge $f = 1\text{m}$) unter senkrechtem Einfall auf die Probenoberfläche fokussiert. Der Fokusbereich beträgt $d = 420\mu\text{m}$ ($1/e^2$ Breite des Intensitätsprofils) und wurde mithilfe einer CCD-Kamera gemessen (TaperCam-UCD12 DataRay Inc.).

Eine schematische Darstellung des Lasertexturierungsprozesses ist in Abbildung 36 a) gezeigt. Nachdem ein einzelner, bandbreitebegrenzter Laserpuls mit einer Spitzenfluenz von 150 mJ cm^{-2} auf die Oberfläche getroffen ist, kommt es lokal zur Veränderung der Oberfläche. Dabei ist zu beachten, dass der Laserpuls räumlich ein Gauß-förmiges Intensitätsprofil aufweist. Die angegebene Spitzenfluenz wird somit nur im Zentrum des Pulses erreicht, nach außen hin nimmt die Intensität ab. Der lasertexturierte Bereich wurde anschließend mit einem Lichtmikroskop in reflektiver und transmittiver Anordnung untersucht, siehe Abbildung 36 b) und c).

In reflektiver Anordnung erkennt man das unstrukturierte a-Si:H an der grünen Färbung. Im lasertexturierten Bereich erscheint es hingegen rötlich, im zentralen Bereich bräunlich und es lassen sich kleine räumliche Inhomogenitäten erkennen. Die vertikale helle Linie im Zentrum wurde durch die Bestimmung der Oberflächenrauigkeit mittels Profilometer erzeugt und nicht durch den Laserbearbeitungsprozess. Die Reflektivität ist im zentralen Bereich geringer (reflektive Anordnung). Die Transmission ist dort ebenfalls verringert (transmittive Anordnung). Während die geringere Reflektivität noch durch eine erhöhte Lichteinkopplung und Streuung erklärt werden könnte, ist die verringerte Transmission auf eine größere Absorption zurückzuführen. Das verwendete Objektiv (NA 0.75) sammelt auch noch Licht ein, welches unter großen Winkeln von der Probe gestreut wird. Verluste durch Streuung können damit weitestgehend vernachlässigt werden, so dass eine Absorptionserhöhung plausibel ist. Im folgenden Kapitel 5.4.2 wird diese Lasertextur mithilfe verschiedener Charakterisierungsmethoden untersucht.

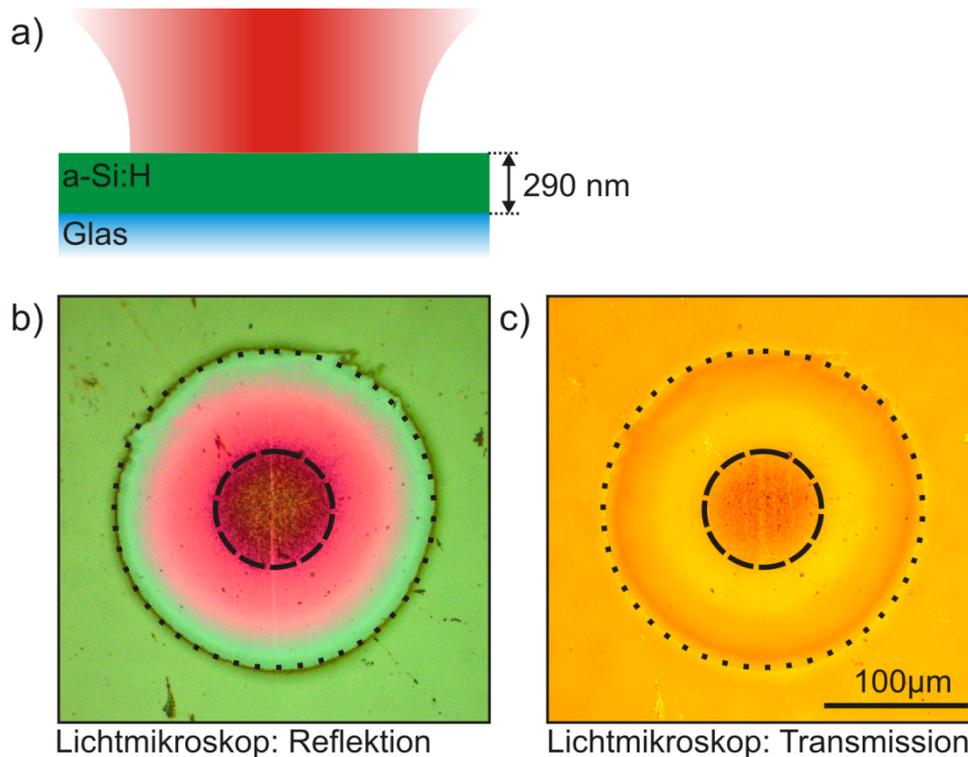


Abb. 36: a) Schema der Femtosekunden-Materialbearbeitung. Auf eine 290 nm dicke a-Si:H-Schicht (30% Wasserstoffgehalt), welche auf einem Glassubstrat abgeschieden wurde, trifft ein einzelner, verstärkter fs-Laserpuls (Zentralwellenlänge 795 nm, Pulsdauer 30 fs, Pulsfluenz 150 mJ cm^{-2} und Fokusbereich 420 μm , rote Schattierung). b) Lichtmikroskopbild des mit einem fs-Laserpuls bearbeiteten Bereiches in reflektiver (b) und transmittiver (c) Geometrie. Die gestrichelten Linien umschließen das Zentrum des bearbeiteten Bereiches, in dem die Absorption erhöht ist. Die gepunkteten Linien markieren den äußersten Randbereich der Materialbearbeitung. Adaptiert aus [103].

5.4.2 Charakterisierung der Nanotexturierung

Zur Charakterisierung der laserinduzierten Nanotexturierung kommen verschiedene Methoden zum Einsatz. Die in Kapitel 5.3.2 angewandte ortsaufgelöste Streulichtmikroskopie und in Kapitel 5.3.3 verwendete SI werden an diesen Proben ebenfalls durchgeführt. Des Weiteren werden Profilometrie, Ellipsometrie, mikro-Raman-Spektroskopie und SEM-Messungen zur Charakterisierung eingesetzt. Der Aufbau zur ortsaufgelösten Streulichtmikroskopie und SI ist in Abbildung 37 gezeigt.

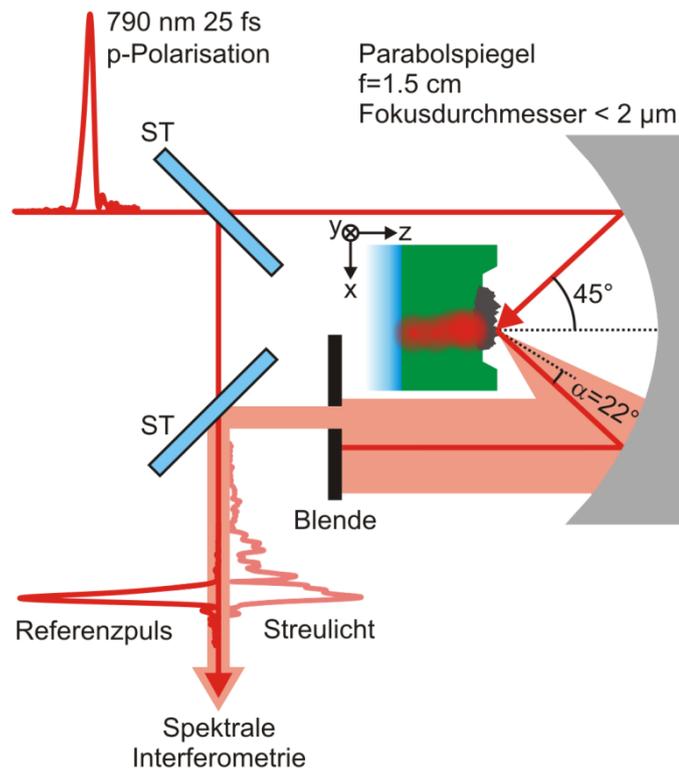


Abb. 37: Schemazeichnung des spektro-mikroskopischen Aufbaus zur Streulichtmessung und spektralen Interferometrie. Über einen Parabolspiegel werden fs-Laserpulse auf die Probe fokussiert. Diese ist auf einem Drei-Achsen-Piezoverschiebetisch angebracht und im Schnittbild gezeigt. Der laserbearbeitete Bereich ist grau schattiert dargestellt. Die rote Schattierung zeigt die Tiefenverteilung des eingefangenen Lichtes. Das Streulicht wird über den gleichen Parabolspiegel aufgefangen. Ein über eine verschiebbare Blende gewählter Winkel des Streulichtes wird über einen Strahlteiler mit einem Referenzpuls zur Interferenz gebracht. Der Detektionswinkel beträgt $\alpha = 22^\circ$ gegenüber dem spekulär reflektierten Licht. In der spektralen Interferometrie kann die zeitliche Entwicklung des Streulichtes rekonstruiert werden. Adaptiert aus [103].

Der wesentliche Unterschied zu dem in Kapitel 5.3.2, Abbildung 26 a), gezeigten Aufbau besteht vor allem in einem deutlich kleineren Fokusbereich. Die Detektion des Streulichtes erfolgt in Richtung des spekulär reflektierten Lichtes. Der Winkel, unter dem das Streulicht detektiert wird, kann über eine verschiebbare Blende gewählt werden. Für die hier gezeigten Streulicht- und SI-Messungen beträgt der Winkel $\alpha = 22^\circ$.

In Abbildung 38 a) ist ein schematischer Querschnitt durch den lasertexturierten Bereich gezeigt. Das Intensitätsprofil des Strukturierungslasers ist rot schattiert dargestellt und entsprechend der Positionenachse skaliert. Da die Spitzenfluenz nur im zentralen Bereich des Pulses erreicht wird, tritt auch nur dort die gewünschte Nanotexturierung auf (grau schattierte Fläche). Die folgende Diskussion wird sich auf diesen Bereich konzentrieren. Nach außen hin nimmt die Fluenz ab und Ablationseffekte überwiegen, wodurch es zu einem Materialabtrag kommt. Die Raman-Messungen werden mit zwei verschiedenen

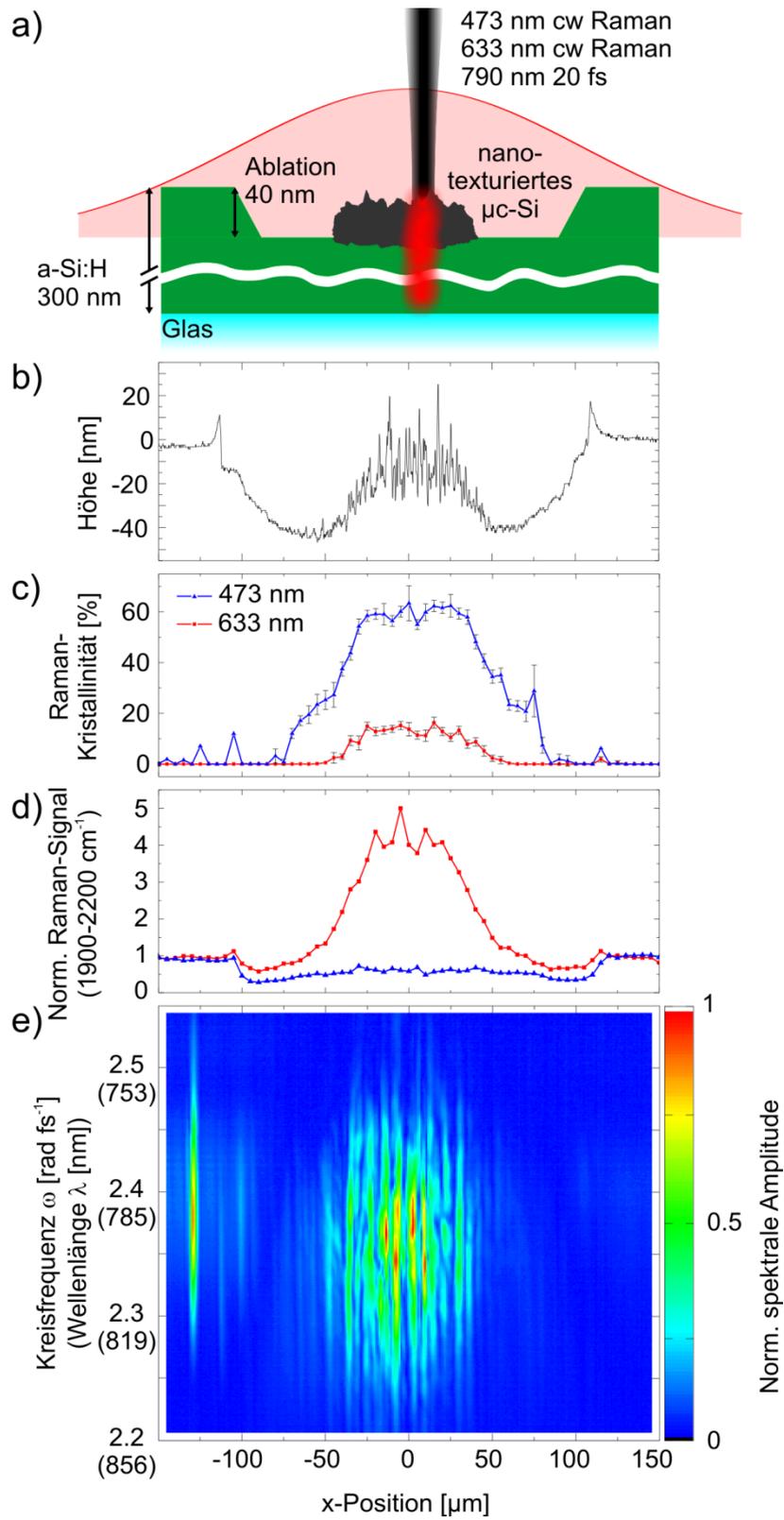


Abb. 38: Bildunterschrift: Siehe nächste Seite.

Abb. 38: a) Schematischer Querschnitt durch den lasertexturierten Bereich der a-Si:H-Schicht. Das Intensitätsprofil des Strukturierungslasers ist als rot schattierte Fläche im Hintergrund eingezeichnet. Die Anregung durch die cw-Raman-Laser (engl. Continuous Wave) und dem zur Streulichtmessung verwendeten fs-Laser werden durch die schwarz schattierte Fläche symbolisiert. Innerhalb des lasertexturierten Bereiches ist rot schattiert die Tiefenverteilung des eingefangenen Lichtes bei Beleuchtung mit fs-Laserpulsen und 633 nm (cw) eingezeichnet. b) Höhenprofil durch den lasertexturierten Bereich, gemessen mit einem Profilometer (DekTak 3030 ST). c) Ortsaufgelöste Kristallinität über den lasertexturierten Bereich, gemessen durch Raman-Spektroskopie bei Anregung mit 633 nm und 473 nm cw-Laserlicht. Die Kristallinität ergibt sich für jede der beiden Anregungswellenlängen aus dem Quotienten des Raman-Signals bei 520 cm^{-1} und 505 cm^{-1} , multipliziert mit dem integrierten Raman-Signal zwischen 460 cm^{-1} und 530 cm^{-1} Stokes-Verschiebung. d) Ortsaufgelöste Messung des normierten Raman-Signals. Die Messung der a-Si:H Streckschwingungsmode ($2000\text{--}2100\text{ cm}^{-1}$) wurde mit 633 nm bzw. 473 nm cw-Beleuchtung durchgeführt. Sie wurde auf die Amplitude des Raman-Signals an einem unbehandelten Oberflächenbereich normiert. e) Ortsaufgelöste Streulichtmessung bei Anregung mit fs-Laserpulsen (2.38 rad fs^{-1} Zentralkreisfrequenz, Streuwinkel $\alpha = 22^\circ$) unter Verwendung des in Abbildung 37 gezeigten Aufbaus. Es wurde auf den maximalen Beitrag der gezeigten Messungen normiert. Die Spektren wurden auf die Kreisfrequenzachse projiziert, die Wellenlängen sind in Klammern angegeben. Adaptiert aus [103].

Anregungswellenlängen (473 nm und 633 nm) durchgeführt. Die Streulichtmessungen erfolgen mit 20 fs kurzen Oszillatorpulsen bei einer Zentralwellenlänge von 790 nm.

Das durch ein Profilometer gemessene Höhenprofil ist in Abbildung 38 b) gezeigt. Die glatte a-Si:H-Oberfläche ist bei $x < -125\mu\text{m}$ bzw. $x > 125\mu\text{m}$ zu erkennen. Bei $x = \pm 120\mu\text{m}$ ist eine lokale Erhöhung von 15 nm zu erkennen, die durch den Ablationsprozess gebildet wird. Sie ist in Abbildung 36 b) und c) durch eine gepunktete Linie markiert. Sie zeigt die Grenze des Ablationsprozesses. Vergleicht man dies mit dem gemessenen Intensitätsprofil des Strukturierungslasers, so lässt sich die Ablationsschwelle zu 40 mJ cm^{-2} bestimmen. Im Zentrum des lasertexturierten Bereiches, bei $-50\mu\text{m} < x < 50\mu\text{m}$ treten starke Modulationen des Höhenprofils auf, welche etwa 30 nm betragen. Es ist zu beachten, dass das gemessene Höhenprofil durch die endliche Ausdehnung der Messspitze mit deren Form gefaltet ist. Das wirkliche Höhenprofil kann somit noch größere Modulationstiefen aufweisen. Dies hat auch zur Folge, dass die Höhe zum Zentrum hin zunimmt, da die Messspitze nicht die tieferen Senken erreicht. Die Zwischenbereiche $-120\mu\text{m} < x < -50\mu\text{m}$ und $50\mu\text{m} < x < 120\mu\text{m}$ sind um etwa 40 nm gegenüber dem unbearbeiteten Bereich vertieft. Das Material wurde hier durch die Laserstrahlung abladiert.

Zur weiteren Untersuchung des lasertexturierten Bereichs wurden Raman-Messungen durchgeführt. Die Si-Si-Vibrationsmode tritt für amorphes Silizium bei 480 cm^{-1} und für kristallines Silizium bei 505 und 520 cm^{-1} auf. Durch die mikro-Raman-Messung der Vibrationsmoden können beide Silizium-Konfigurationen im lasertexturierten Bereich ortsaufgelöst bestimmt werden. Dies ist in Abbildung 38 c) dargestellt. Für beide Anregungswellenlängen steigt die Kristallinität zum Zentrum hin an. Für die Anregung mit 633 nm wird eine maximale Kristallinität von 15% erreicht, für Anregung mit 473 nm

sind es 65%. Die unterschiedlichen Werte lassen sich durch die verschiedenen Eindringtiefen der Anregungslaser erklären. Daraus lässt sich auch abschätzen, dass die Dicke der kristallinen Schicht etwa 50 nm beträgt [103]. Im Zentrum des lasertexturierten Bereiches hat sich somit das amorphe Silizium im Rahmen einer Festphasen-Kristallisation in mikrokristallines Material mit nanotexturierter Oberfläche umgewandelt. Es ist für die in Abbildung 36 c) beobachtete Absorptionserhöhung verantwortlich.

Des Weiteren wurde die Konzentration der Si-H-Schwingungsmode durch Messung der Raman-Stokes-Linien im Bereich von 1900 cm^{-1} bis 2250 cm^{-1} bestimmt (siehe Abbildung 38 d)). Das Signal wurde auf den unbearbeiteten Bereich der Probe normiert. Für Anregung mit 633 nm ist die Wasserstoff-Konzentration im Zentrum um den Faktor 4 gegenüber dem unbearbeiteten Bereich erhöht. Bei Anregung mit 473 nm kommt es hingegen zu einer leichten Verringerung der Wasserstoff-Konzentration. Beide Signale verringern sich erst, nachdem der Rand des lasertexturierten Bereiches zum Zentrum hin überschritten wird. Dies wird durch das Aufbrechen von Si-H-Bindungen hervorgerufen. Die relative Erhöhung der Wasserstoff-Konzentration im zentralen Bereich, wurde durch Anregung mit 633 nm gemessen. Sie impliziert eine Wasserstoff-Konzentration von 120%. Die ursprüngliche Konzentration beträgt jedoch nur 30%. Dieser hohe Wert ist physikalisch nicht plausibel und kann somit nicht alleinig von der Wasserstoff-Konzentration verursacht werden. Es muss jedoch beachtet werden, dass das Raman-Signal sowohl durch die Si-H Bindungen als auch durch die 4te Potenz des Feldes verursacht wird. Wenn das Anregungslicht mehrfach gestreut wird, statt die Probe zu verlassen, kann es das Raman-Signal vielfach verstärken. Dies wäre der Fall, wenn beispielsweise Anderson-lokalisierte Moden im lasertexturierten Silizium auftreten würden. Diese Annahme wird später für die Anregung mit Licht der Wellenlänge 800 nm bestätigt, indem der dimensionslose Leitwert g gemessen wird. Dieser nimmt Werte an, die auf Anderson-Lokalisierung im zentralen Bereich der Lasertexturierung schließen lassen (siehe Kapitel 5.4.4). Die Absorption von a-Si:H ist für 633 nm um etwa einen Faktor zehn größer als für 800 nm. Umso erstaunlicher wäre die Ausbildung Anderson-lokalisierter Moden für Licht der Wellenlänge 633 nm.

Alternativ wird noch die Möglichkeit betrachtet, dass die Absorberschicht als Fabry-Pérot-Resonator wirkt. Geht man davon aus, dass der Anregungslaser mit einer Wellenlänge von 633 nm unter senkrechtem Einfall auf eine glatte Luft-a-Si:H-Grenzschicht ($n_{Luft} = 1$ und $n_{a-Si:H} = 4.2$) trifft, so gelangen $T_{in} = 63\%$ des Lichtes in die a-Si:H-Schicht. Das dann erzeugte Raman-Licht wird auf umgekehrte Weise aus der Schicht ausgekoppelt, so dass $T_{out} = 63\%$ angenommen wird. Es ergibt sich eine maximal mögliche Signalerhöhung von $1/(T_{in} T_{out}) = 2.5$, wenn das Licht an der nanotexturierten Grenzfläche reflektionslos ein- und ausgekoppeln würde. Dieser Wert ist geringer als die beobachtete Erhöhung um den Faktor 4, was einen anderen photonischen Mechanismus nahe legt.

Bei Anregung mit 473 nm nimmt die Wasserstoff-Konzentration Werte unter eins an. Das ist plausibel, da die Absorption von a-Si:H in diesem Spektralbereich deutlich größer ist und man keine Ausbildung von lokalisierten Moden erwarten würde. Infolge der geringeren Eindringtiefe wird die oberflächennahe Wasserstoffkonzentration charakterisiert. Die Si-H-Bindungen werden durch den Energieeintrag des Laserpulses im Schichtsystem aufgebrochen und sammeln sich in Hohlräumen unter hohem Druck an. In Kombination mit einem Rekristallisationsprozess entsteht die beobachtete Lasertexturierung der Oberfläche.

Zur Untersuchung der Lichtpropagation in der lasertexturierten Schicht wurden ortsaufgelöste Streulichtmessungen durchgeführt. Der verwendete Versuchsaufbau ist in Abbildung 37 gezeigt. Die aufgenommenen Streuspektren sind in Abbildung 38 e) als Konturplot dargestellt. Im Zentrum bei $-50\mu\text{m} < x < 50\mu\text{m}$ treten spektrale Moden auf. Für drei verschiedene Positionen sind die Spektren in Kapitel 5.4.3, Abbildung 40 (oben rechts) als Diagramm gezeigt. Außerhalb des lasertexturierten Bereiches wird an Oberflächendefekten ($x = -130\mu\text{m}$) das breitbandige Anregungsspektrum des fs-Lasers gemessen (schwarze Kurve), während im Zentralbereich spektrale Moden detektiert werden (rote Kurve). Zwischen diesen Bereichen ist ein Übergang zu beobachten, wo auf einem Gauß-förmigen Untergrund erste Modenstrukturen sichtbar werden (blaue Kurve).

Die Ausprägung der spektralen Moden weist große Ähnlichkeit zu den in Kapitel 5.3 gemessenen Anderson-lokalisierten Moden auf (vgl.: Abbildung 26 c)). Für die hier gezeigten lasertexturierten Proben wurden keine 2D-Nanoskopie-Messungen durchgeführt. Der Anregungsfokus ist jedoch mit einem Durchmesser von $d_{Fokus} = 2\mu\text{m}$ sehr klein. Aus den ortsausgelösten Spektren (siehe Abbildung 38 e)) kann dadurch ein maximaler Wert für die Ausdehnung der spektralen Moden abgeschätzt werden. Dazu wird für jeden Frequenzstützpunkt ω , der in Abbildung 38 e) gezeigten Spektren $A(x)$, die Autokorrelation (AC) $(A * A)(\kappa)$ über den Ort x gebildet und über alle Autokorrelationen gemittelt

$$\zeta = \langle (A * A)(\kappa) \rangle_{\omega}, \quad (5.27)$$

wobei κ die AC-Verschiebung ist. Dabei muss beachtet werden, dass die räumliche Verteilung der Spektren $A(x)$ gemessen wird, indem der Gauß-förmige Fokus des Anregungslasers über die Probenoberfläche verschoben wird. Die räumliche Verteilung der Spektren $A(x)$ ergibt sich somit durch die Faltung des Strahlprofils im Fokus mit der räumlichen Struktur der lokalisierten Moden. Das auf eins normierte AC-Signal ζ ist in Abbildung 39 dargestellt. Das AC-Signal weist periodische Modulationen auf. In der räumlichen Verteilung der Moden wechseln sich also Bereiche mit spektralen Moden und Bereiche ohne spektrale Moden ab. Das ist auch in der ortsaufgelösten Modenverteilung

in Abbildung 38 e) zu erkennen. Es wäre möglich, dass die Oberfläche beim Prozess der Nanotexturierung nicht homogen bearbeitet wurde. Durch Beugungseffekte könnte das Strahlprofil des Lasers, der zur Nanotexturierung verwendet wurde, periodische Inhomogenitäten aufweisen.

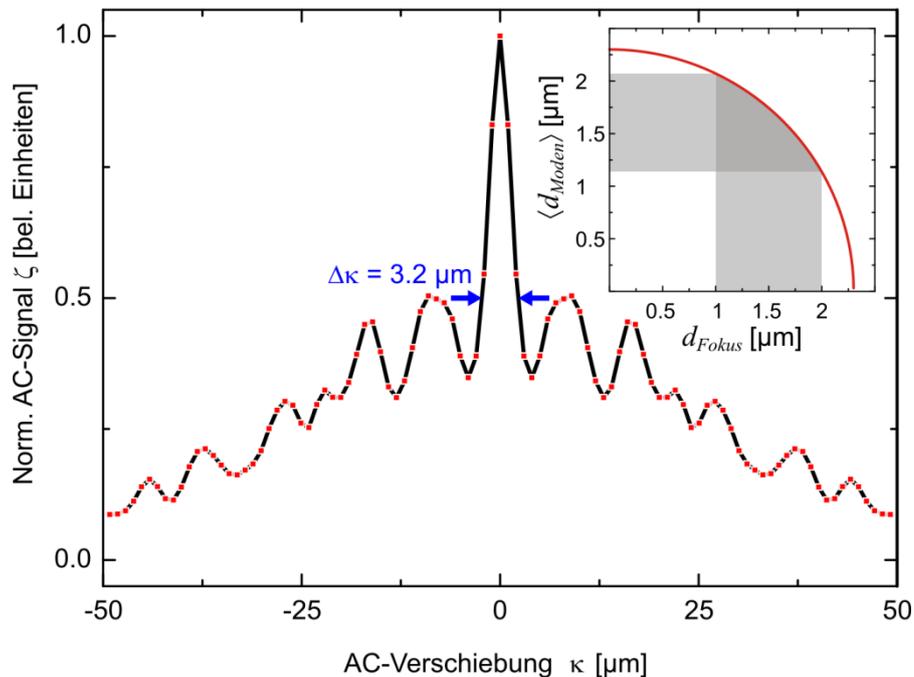


Abb. 39: Normierte, spektral gemittelte AC über die x-Position der in Abbildung 38 e) gezeigten Spektren. Datenpunkte sind rot markiert, dazwischen wurde linear interpoliert (schwarze Kurve). Die FWHM-Breite des Hauptmaximums $\Delta\kappa$ ist durch blaue Pfeile markiert und im Bild angegeben. Eingefügt ist die Abhängigkeit des mittleren Modendurchmessers $\langle d_{Moden} \rangle$ vom Fokusbildweite d_{Fokus} nach Gleichung 5.29. Der abgeschätzte Bereich, in dem der Fokusbildweite liegt, ist grau schattiert dargestellt.

Das Hauptmaximum des AC-Signals beschreibt die mittlere Korrelationslänge der räumlichen Verteilung der Spektren. Wenn davon ausgegangen wird, dass die räumliche Ausdehnung der Spektren entlang der x-Achse durch eine Gauß-Funktion mit der FWHM-Breite Δx beschrieben werden kann, dann besteht folgender Zusammenhang:

$$\Delta x = \Delta\kappa / \sqrt{2} = 2.3 \mu\text{m} \quad (5.28)$$

Das ist die mittlere räumliche Ausdehnung der in Abbildung 38 e) gezeigten Spektren und noch nicht der mittlere Durchmesser der spektralen Moden $\langle d_{Moden} \rangle$. Die Ausdehnung einer spektralen Mode wird als Gauß-förmig angenommen mit der FWHM-Breite $\langle d_{Moden} \rangle$. Zur Bestimmung von $\langle d_{Moden} \rangle$ muss noch das Gauß-förmige Strahlprofil des Anregungslaser berücksichtigt werden. Dazu wird angenommen, dass

dieses eine FWHM-Breite von d_{Fokus} aufweist und die gemessenen Spektren durch die Faltung beider Gauß-Funktionen zustande kommen. Durch die Entfaltung beider Gauß-Funktionen ergibt sich der folgende Zusammenhang:

$$\langle d_{Moden} \rangle = 2 \sqrt{2 \ln 2 \left(\left(\frac{\Delta x}{2} \right)^2 \frac{1}{2 \ln 2} - \frac{d_{Fokus}^2}{8 \ln 2} \right)} \quad (5.29)$$

Es wurde $\langle d_{Moden} \rangle$ in Abhängigkeit von d_{Fokus} berechnet und als Graph in Abbildung 39 oben rechts eingefügt (rote Kurve). Der Fokusbereich konnte nur zu $d_{Fokus} < 2 \mu\text{m}$ bestimmt werden. Aufgrund des Strahldurchmessers vor dem Fokussierspiegel und dessen numerischer Apertur kann davon ausgegangen werden, dass zusätzlich $d_{Fokus} > 1 \mu\text{m}$ gilt. Der Fokusbereich liegt somit zwischen $1 \mu\text{m}$ und $2 \mu\text{m}$, was durch einen grau schattierten Bereich angedeutet ist. Dadurch ergibt sich eine obere Grenze für den Modendurchmesser von $\langle d_{Moden} \rangle < 2 \mu\text{m}$. Dies ist in guter Übereinstimmung mit dem in Kapitel 5.3.6 durch PEEM-Messungen bestimmten Wert für die Modendurchmesser von $d_{Mode} = 1 \mu\text{m}$.

5.4.3 Zeitliche Pulspropagation

Zusätzlich zu den in Abbildung 38 e) gezeigten spektralen Amplituden wurden mithilfe der SI auch die dazugehörigen spektralen Phasen bestimmt. Dadurch ist es, wie in Kapitel 3 beschrieben, möglich, an jedem Ortspunkt die Zeitentwicklung des gestreuten Lichtpulses zu bestimmen. Für drei repräsentative Positionen sind die rekonstruierten Zeitsignale (Feldoszillation und Feld-Einhüllende) in Abbildung 40 dargestellt. Die Maxima der zeitlich abklingenden Feldamplituden wurden durch eine exponentiell abfallende Funktion $A(t) \sim \exp(-t/\tau)$ angenähert. Außerhalb des lasertexturierten Bereiches wird ein kurzer Puls gemessen (schwarze Linien), dessen zeitliche Länge $\tau = 20 \text{ fs}$ mit dem Anregungspuls vergleichbar ist. Im Zentrum der Lasertexturierung treten starke Modulationen in Form eines Abklingverhaltens auf (rote Linien). Die Abklingzeit beträgt hier $\tau = 100 \text{ fs}$ und ist in guter Übereinstimmung mit den in Kapitel 5.3.3 gemessenen Lebenszeiten der Anderson-lokalisierter Moden ($\tau_0 = 135 \text{ fs}$). Innerhalb dieser Zeit legt das Licht einen Weg von $9 \mu\text{m}$ in der Absorberschicht zurück. Bei einer räumlichen Ausdehnung der spektralen Moden von weniger als $2 \mu\text{m}$ (siehe Kapitel 5.3.2) liegt der Schluss nahe, dass sich innerhalb der randomisierten lasertexturierten Schicht photonische Moden ausbilden. Die Leckstrahlung der Moden

wird dann als Streustrahlung gemessen. Am Rand des kristallisierten zentralen Bereichs können noch Lebenszeiten von $\tau = 40$ fs gemessen werden (blaue Linien).

Die Verlängerung der Verweilzeit des Lichtes in der Absorberschicht führt hier zu einer Erhöhung der Absorption. Dies würde sowohl die in Abbildung 36 c) beobachtete Absorptionserhöhung als auch das erhöhte Raman-Signal bei Anregung mit 633 nm im Zentrum der Lasertextur (siehe Abbildung 38 d)) erklären.

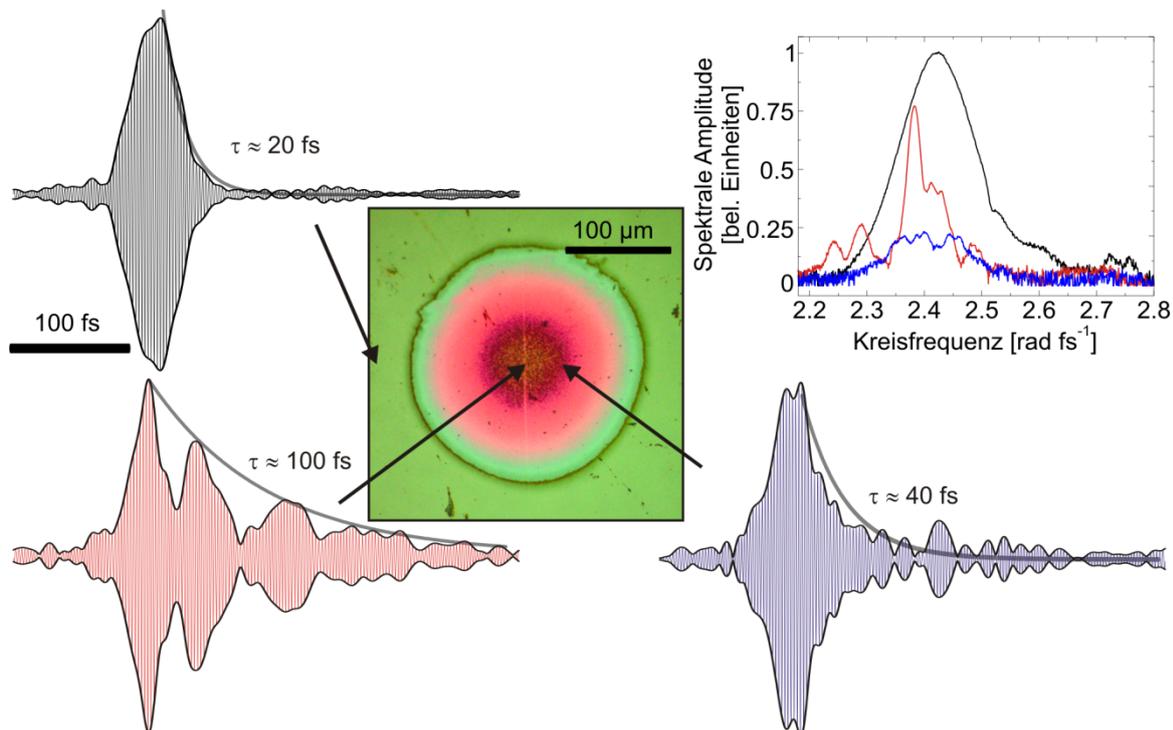


Abb. 40: Zeitliche Rekonstruktion der Feldoszillationen des Streulichtes an repräsentativen Probenpositionen (siehe Pfeile). Die mit fortschreitender Zeit abnehmenden Einhüllenden der Feldoszillationen wurden durch einen exponentiellen Abfall angenähert (graue Linien). Die sich aus der Anpassung ergebenden Zeitkonstanten τ sind für jeden Streulichtpuls angegeben. Die spektralen Amplituden sind als Funktion der Kreisfrequenz ω oben rechts eingefügt. Der Detektionswinkel beträgt $\alpha = 22^\circ$. Adaptiert aus [103].

5.4.4 Dimensionsloser Leitwert g in laserstrukturierten Solarzellen

Um Anderson-Lokalisierung nachzuweisen, wird der dimensionslose Leitwert g berechnet. Dafür wird das in Kapitel 5.3.5 vorgestellte statistische Verfahren angewandt. Gemessen wurden beide Polarisationskomponenten des Streulichtes, sowohl für Anregung mit p-polarisiertem Licht als auch für Anregung mit s-polarisiertem Licht. Die aus den Streulichtspektren berechneten Histogrammverteilungen sind in Abbildung 41

dargestellt. Da die Beleuchtung des Schichtsystems unter einem Winkel stattfindet, ist die Einkopplungseffizienz polarisationsabhängig. Dementsprechend ändert sich auch die Intensität des Streulichtes, das vom Spektrometer detektiert wird. Dadurch kommt es zu Unterschieden in den Intensitätsverteilungen $p(s_{ab})$ für die detektierten Polarisationskomponenten.

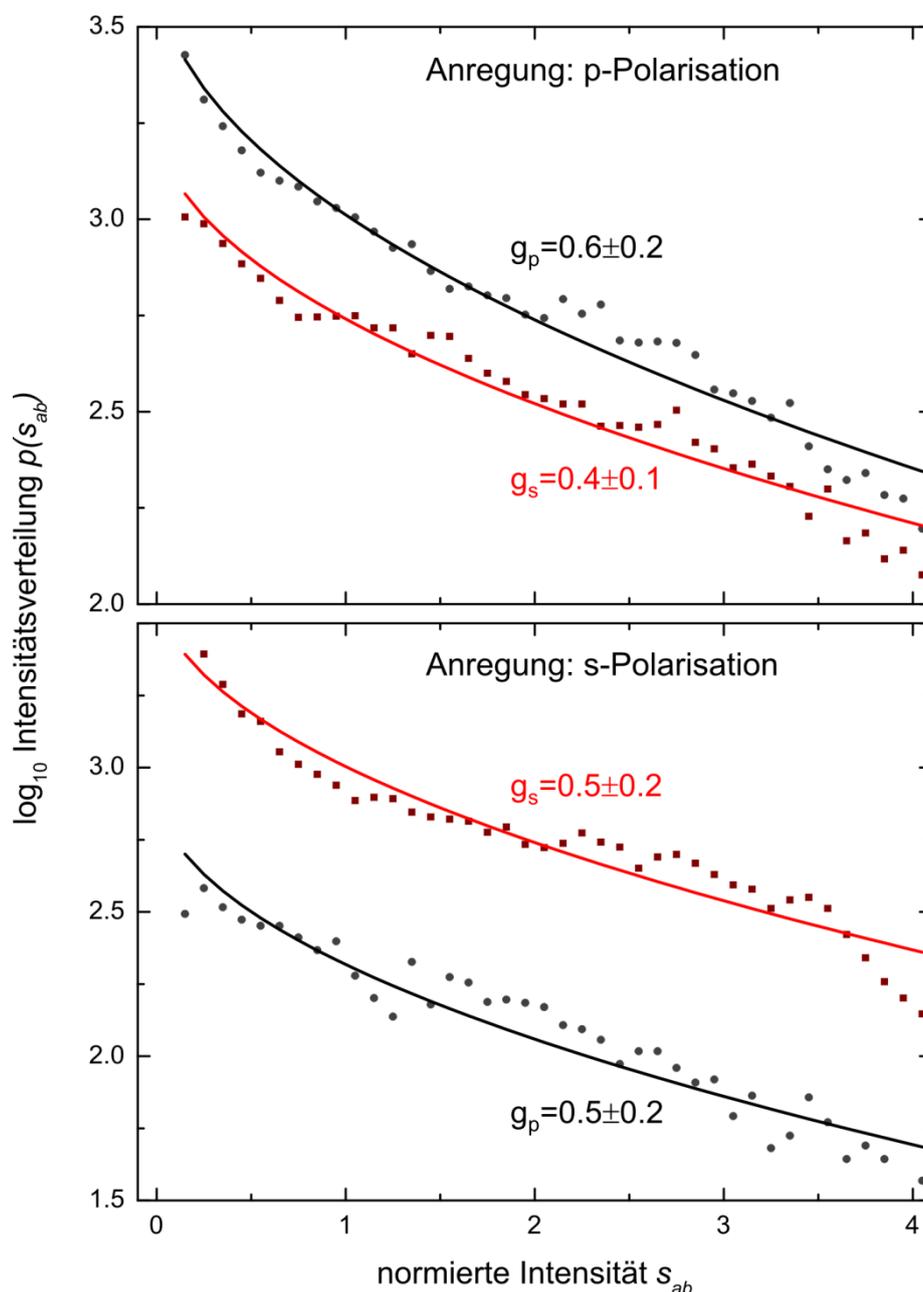


Abb. 41: Histogramme von $p(s_{ab})$ über s_{ab} , bestimmt aus Streulichtspektren des lasertexturierten Bereiches bei Anregung mit p-polarisiertem Licht (oben) und s-polarisiertem Licht (unten). Der Detektionswinkel beträgt $\alpha = 22^\circ$. Detektiert wurde für beide Anregungspolarisationen das s-polarisierte (rote Rechtecke) und p-polarisierte (schwarze Kreise) Licht. Anpassungen der in Gleichung 5.23 angegebenen Funktion an die Histogramme sind als durchgezogene Linien eingezeichnet. Für Anregung mit p-polarisiertem Licht und Messung der p-Polarisation sind die Streulichtspektren in Abbildung 38 e) gezeigt.

Die Histogramme wurden anschließend mit der in Gleichung 5.23 angegebenen Funktion angenähert. Dabei fällt auf, dass häufig eine Abfolge mehrerer Datenpunkte oberhalb bzw. unterhalb der zugehörigen Anpassungsfunktion liegt. Es treten somit Anteile im Streulicht auf, die nicht durch die in Gleichung 5.23 angenommene statistische Verteilung beschrieben werden. Deren relativer Anteil an der Häufigkeitsverteilung ist jedoch gering und eine Datenanpassung ist möglich.

Für Anregung mit p-polarisiertem Licht ergeben sich für die beiden Detektionskanäle die dimensionslosen Leitwerte $g_p = 0.6 \pm 0.2$ und $g_s = 0.4 \pm 0.1$. Bei Anregung mit s-polarisiertem Licht ergibt sich $g_p = g_s = 0.5 \pm 0.2$. Damit konnte gezeigt werden, dass sowohl unabhängig von der Polarisation des Anregungslichtes als auch von der detektierten Polarisation des Streulichtes, der dimensionslose Leitwert stets $g < 1$ ist. Demnach tritt auch in der lasertexturierten a-Si:H-Schicht Anderson-Lokalisierung auf und führt zu einer Erhöhung der Lichtabsorption. Im Vergleich mit den in Kapitel 5.3.5 für die Solarzellen bestimmten Werten fällt auf, dass die durch Lasertexturierung erreichten dimensionslosen Leitwerte geringer sind. Dieser Unterschied ist in Anbetracht der Fehlerintervalle gering, eine Tendenz ist jedoch erkennbar. Damit konnte gezeigt werden, dass mithilfe der Lasertexturierung Oberflächenstrukturen geschaffen werden können, die eine stärkere Ausprägung der Anderson-Lokalisierung ermöglichen. Auf diese Weise können maßgeschneiderte Streuumgebungen geschaffen werden, um die Absorption in a-Si:H-Schichten durch Anderson-lokalisierte Moden zu erhöhen.

5.5 Zusammenfassung

In Dünnschichtsolarzellen werden a-Si:H-Absorberschichten eingesetzt, welche eine verringerte Absorption im infraroten Spektralbereich aufweisen. Um die Absorption zu erhöhen, werden deren Grenzflächen mit einer Nanotextur versehen. Mittels der ortsaufgelösten Streulichtspektroskopie wurde das aus der Absorberschicht gestreute Licht charakterisiert. Für die „nanotexturierte“ und „exponierte nanotexturierte a-Si:H“ Probe konnten spektrale Moden im Streulicht identifiziert werden. Unter Vernachlässigung von Phaseneffekten wurde aus deren Breite eine Lebenszeit von etwa 100 fs abgeschätzt. Die vollständige zeitliche Rekonstruktion des Streulichtes durch die SI lieferte eine mittlere Lebenszeit von $\tau_0 = 135$ fs für die „nanotexturierte“ Probe und $\tau_0 = 70$ fs für die „exponierte nanotexturierte a-Si:H“ Probe. Das Licht ist somit für diese Zeit innerhalb der Dünnschichtsolarzelle gefangen.

Aus den ortsaufgelösten Streulichtspektren konnte über ein statistisches Verfahren der dimensionslose Leitwert g bestimmt werden. Für die „nanotexturierte“ Probe ergab sich ein Wert von $g_{500} = 0.82 \pm 0.08$ und für die „exponierte nanotexturierte a-Si:H“ Probe $g_{500} = 0.76 \pm 0.07$. Für die beiden Proben konnte somit $g < 1$ gezeigt werden, was ein

Nachweis für die Anderson-Lokalisierung von Licht innerhalb der Absorberschicht ist. Mittels hochauflösender PEEM-Messungen konnte die räumliche Ausdehnung der spektralen Moden bestimmt werden. Durch die Verwendung eines thermionischen Emissionsmodells wurde der Absorptionsquerschnitt der Moden berechnet. Der Vergleich des Absorptionsquerschnittes mit dem geometrischen Querschnitt ergab, dass diese gleich groß sind. Jedes Photon, das auf eine Mode trifft, wird also absorbiert. Dies macht die Anderson-lokalisierten Moden zu perfekten Absorbern.

Um den Lokalisierungsgrad weiter zu erhöhen, wurde die Oberfläche von a-Si:H-Absorberschichten von verstärkten ultrakurzen Laserpulsen strukturiert. In den resultierenden Lasertexturen konnten durch die ortsaufgelöste Streulichtspektroskopie Anderson-lokalisierte Moden nachgewiesen werden. Für Anregung mit p-polarisiertem Licht ergaben sich die dimensionslosen Leitwerte zu $g_p = 0.6 \pm 0.2$ und $g_s = 0.4 \pm 0.1$. Bei Anregung mit s-polarisiertem Licht wurde ein Wert von $g_p = g_s = 0.5 \pm 0.2$ ermittelt. Die dimensionslosen Leitwerte g lagen teilweise noch unterhalb der für die Dünnschichtsolarzellen gemessenen Werte. Dies hat Auswirkungen auf das Design zukünftiger Absorberschichten für Dünnschichtsolarzellen. Eine weitere Maximierung der Absorption im nahinfraroten Spektralbereich könnte zukünftig durch eine höhere Dichte der Anderson-lokalisierten Moden innerhalb der Absorberschicht via Lasertexturierung realisiert werden.

6 Ultraschnelle Nanolokalisierung in randomisierten Medien

In Kapitel 5 wurden randomisierte nanostrukturierte Oberflächen zur Erzeugung einer Streuenumgebung verwendet, welche die Ausbildung von Anderson-lokalisierten Moden ermöglichten. Im Folgenden werden ebenfalls randomisierte Nanostrukturen und ihre Interaktion mit äußeren Lichtfeldern betrachtet. Statt Anderson-lokalisierter Moden werden nun die Nahfeld-Eigenschaften optischer Lichtfelder ausgenutzt. Die räumliche und zeitliche Nahfeldentwicklung in einer randomisierten Nanostruktur wird nun gezielt gesteuert. Elektromagnetische Nahfelder bilden sich an der Oberfläche von metallischen Nanostrukturen aus. Eine Besonderheit ist, dass deren räumliche Ausdehnung deutlich geringer ist als die von Fernfeldern. Die raumzeitliche Kontrolle solcher optischen Nahfelder ist von großem Interesse, beispielsweise für die Kombination von photonischen und mikroelektronischen Systemen. Die Strukturgrößen in mikroelektronischen Systemen betragen einige 10 nm, während Licht mit herkömmlichen Mitteln nur auf etwa die Hälfte seiner Wellenlänge fokussiert werden kann. Das entspricht im sichtbaren Spektralbereich einigen 100 nm. Da die Ausdehnung optischer Nahfelder von der Größe der Nanostreuenumgebung abhängt, gelangt man so in den Längenbereich, der für mikroelektronische Systeme relevant ist.

Wie die Kopplung zwischen Optik und Elektronik aussehen könnte, wurde in einer theoretischen Arbeit in [104] gezeigt. Dazu wurde ein optischer Empfänger in Form einer Gold-Nanoantenne mit einem Gold-Nanoemitter verbunden. Die Kopplung zwischen dem Empfänger und dem über einen Mikrometer entfernten Emitter wurde über eine wenige Nanometer dicke Wellenleiterstruktur realisiert. Das ist die einfachste Umsetzung eines plasmonischen Wellenleitersystems, welches zur Steuerung plasmonischer Anregungen genutzt werden kann. Die Manipulation der plasmonischen Nahfelder um eine Antenne eröffnet neue Wege der Quantenkontrolle.

Die raumzeitliche Ausprägung der optischen Nahfelder zu steuern, ist eine große Herausforderung. Wie in den erwähnten Beispielen werden dazu meist hochpräzise funktionelle Nanostrukturen gefertigt. Mit zunehmender Komplexität der Nanostrukturen steigt auch die Anzahl an Freiheitsgraden, die zur Manipulation der raumzeitlichen Entwicklung der Nahfelder zur Verfügung stehen. Sobald der Parameterraum der Freiheitsgrade groß wird, ist es nicht mehr ohne weiteres möglich, die Nahfeldausprägung für alle Parameterkombinationen systematisch zu betrachten. Für diesen Fall haben sich adaptive Optimierungsverfahren als besonders nützlich erwiesen. In [25] wurden durch die adaptive Optimierung (AO) die optischen Nahfelder in ihrer räumlichen Ausprägung innerhalb einer funktionalisierten Nanostruktur kontrolliert. Zur Detektion der Nahfelder wurde die in Kapitel 5.3.6 beschriebene Photoemissionselektronen-Mikroskopie (PEEM) eingesetzt. Dieser Ansatz wurde erweitert, so dass gleichzeitig die räumliche und die zeitliche Kontrolle auf der Femtosekunden-Zeitskala mithilfe der AO demonstriert werden konnte [21]. In [105] und [106] wurde gezeigt, dass die Kontrollierbarkeit

optischer Nahfelder in Nanostrukturen noch verbessert werden kann, wenn die Anzahl an Freiheitsgraden (die zeitabhängige Polarisierung des Anregungslichtes) weiter erhöht wird.

Ein Nachteil regulärer Nanostrukturen ist, dass sobald Abweichungen oder Fehler in der Struktur auftreten, sie ihre Funktionalität verlieren. Die Nahfelder bilden sich dann nicht mehr in der gewünschten Weise aus. Randomisierte Nanostrukturen zur Steuerung der optischen Nahfelder einzusetzen, erscheint zunächst nicht sinnvoll. Die strukturelle Komplexität ist sehr hoch und verschiedene randomisierte Nanostrukturen unterscheiden sich vollkommen in der Art und Weise, wie Licht in ihnen propagiert. Es wird im Folgenden gezeigt, dass gerade diese strukturelle Komplexität von großem Vorteil ist. Sie bringt eine Vielzahl von Freiheitsgraden mit sich, welche zur Manipulation der Nahfeldverteilungen verwendet werden können. Zur effektiven Nutzung dieser Freiheitsgrade wurde in [107] vorgeschlagen, geformte ultrakurze Lichtpulse einzusetzen. Wie in den oben aufgezeigten Beispielen kann die Kontrolle des Nahfeldes dann durch AO-Verfahren erfolgen.

Als Alternative zur AO wird in Kapitel 6.1 die Nahfeldkontrolle durch das Prinzip der Zeitumkehr (TR, engl. „Time Reversal“) vorgestellt. Die dazu notwendigen Betrachtungen der Maxwell-Gleichungen werden in Kapitel 6.2 diskutiert. Anschließend wird in Kapitel 6.3 eine randomisierte Nanostreustruktur generiert und charakterisiert. Sie wird für sämtliche gezeigten Berechnungen verwendet. An dieser werden Simulationen zur Nahfeldkontrolle durch AO- und TR-Verfahren unter Beleuchtung aus einer Raumrichtung durchgeführt. Es wird dabei zwischen der räumlichen Refokussierung in Kapitel 6.5 und raumzeitlichen Refokussierung in Kapitel 6.6 unterschieden. Anschließend werden unter Verwendung multipler Beleuchtungsrichtungen die räumliche Refokussierung in Kapitel 6.7 und die raumzeitliche Refokussierung in Kapitel 6.8 betrachtet. Dabei werden die Abhängigkeiten von der Beleuchtungsrichtung genauer untersucht. Zur Vollständigkeit wird in Kapitel 6.9 gezeigt, dass eine Wiederhallkammer im optischen Spektralbereich für das TR-Verfahren ungeeignet ist.

Für die Anwendung des TR-Verfahrens ist es notwendig, verschiedene Näherungen zu machen. Dabei geht ein Teil der Information verloren, der im TR-Algorithmus zur Refokussierung des Lichtes verwendet wird. Bisher wurde jedoch nicht untersucht, wie viel der im Fernfeld vorhandenen Information nötig ist, um eine effiziente Refokussierung zu erreichen. Dieser Aspekt wird anhand der durchgeführten Simulationen diskutiert.

6.1 Prinzip der Zeitumkehr

Eine Methode der raumzeitlichen Nahfeldkontrolle ist das Prinzip der Zeitumkehr. Es basiert auf der in Kapitel 6.2 beschriebenen Zeitumkehrsymmetrie der Maxwell-Gleichungen. Dafür werden die Propagationseigenschaften von Licht innerhalb einer randomisierten metallischen Nanostruktur ausgenutzt. Fernfelder können sehr effizient an Nahfelder innerhalb der Nanostruktur koppeln: Ausgehend von einer Nahfeldmode mit Subwellenlängenausdehnung kann eine propagierende Fernfeldmode angeregt werden, welche mit fortschreitender Zeit die Nanostruktur verlässt. Dreht man nun jedoch die Zeitrichtung um, wird das Fernfeld zurück auf die Nanostruktur fokussiert. Es koppelt dann in zeitlich umgekehrter Weise an das Nahfeld und wird so auf den Ursprungsbereich lokalisiert, welcher deutlich kleiner als das Auflösungsvermögen sein kann. Um eine vollständige Zeitumkehr zu erreichen, müsste jedoch das Fernfeld in allen Raumrichtungen invertiert werden. Nur dann ist gewährleistet, dass die Nahfeldmoden innerhalb der Nanostruktur derart überlagert werden, dass sämtliche Energie des Lichtfeldes wieder am Ursprungspunkt ankommt. In einer praktischen Umsetzung ist es nicht möglich, alle Raumrichtungen des Fernfeldes derart in ihrer zeitlichen Propagation zu invertieren. Deshalb muss sich auf eine gewisse Anzahl beschränkt werden. Zur Umsetzung der Zeitumkehr wird ein Zeitumkehrspiegel (TRM, engl. Time Reversal Mirror) verwendet. Dieser dient dazu, die Ausbreitungsrichtung des propagierenden Fernfeldes umzukehren und zudem die spektrale Phase zu negieren. Das ist gleichbedeutend mit einer Umkehr der Zeitentwicklung. Ein TRM besteht aus einer Anzahl an Antennen, die das Fernfeld detektieren, Amplituden und Phasen charakterisieren und entsprechend dem Zeitumkehralgorithmus wieder abstrahlen können. Das Licht wird damit zurück auf seinen Emissionsort gesendet. Im Folgenden werden Beispiele aufgeführt, in denen erfolgreich die Subwellenlängenfokussierung durch Zeitumkehr sowohl theoretisch als auch experimentell gezeigt werden konnte.

Da die Zeitumkehr ein reines Wellenphänomen ist, ist es auch auf akustische Wellen anwendbar. In der Tat konnte die Refokussierung durch Zeitumkehr für akustische Wellen nachgewiesen und erste Anwendungsmethoden gezeigt werden [108]. Dazu wurde ein TRM verwendet, um Informationssignale akustisch unterhalb der Wasseroberfläche zwischen zwei Schiffen auszutauschen. Im Vergleich zu herkömmlichen Kommunikationsprotokollen konnte so die Signalleistung an einen Empfänger über eine größere Entfernung stärker fokussiert werden.

Es konnte ebenfalls die experimentelle Umsetzung der Zeitumkehr für elektromagnetische Wellen im Mikrowellenbereich ($\lambda=12$ cm) demonstriert werden [109]. Dazu wurde ein TRM bestehend aus acht Antennen ungefähr 10λ entfernt von einer Emitter-Empfänger-Anordnung platziert. Dies ist schematisch in Abbildung 42 dargestellt. Von einem der Emitter wird ein 10 ns kurzer Mikrowellenpuls emittiert und im Nahfeldbereich von den Kupferkabeln gestreut. Anschließend propagiert der gestreute

Puls ins Fernfeld. Eine Wiederhallkammer sorgt dafür, dass auch Streupfade, welche nicht direkt auf den TRM zulaufen, zu diesem hin gestreut werden. Dadurch vergrößert sich die Anzahl detektierter Raumrichtungen und das Fernfeld wird genauer erfasst, was zu einer Verbesserung der Zeitumkehr führen sollte. Am TRM wird an den acht Antennen das elektromagnetische Feld zeitaufgelöst gemessen. Für jede Antenne ergibt sich eine andere zeitliche Struktur, da die Streuung im Nahfeld zu einer Anisotropie des Streufeldes führt. Anschließend wird das elektromagnetische Feld zeitlich invertiert vom TRM abgestrahlt. Durch die Überlagerung der von den Antennen abgestrahlten Wellen können auch die Propagationsrichtungen der Wellen in guter Näherung invertiert werden. Die abgestrahlten Pulse propagieren nun zurück zum Emitter/Empfänger-Array und treffen dort auf die Streustruktur. An dieser kommt es zur Konversion der Fernfelder in Nahfeldkomponenten und dadurch zu einer Refokussierung am Ursprungsemitter des Pulses. Diese Methode der raumzeitlichen Subwellenlängenfokussierung wird im Folgenden als „TR-Algorithmus“ bezeichnet.

Exemplarisch wurde ein Puls von Emitter 3 bzw. Emitter 4 ausgesendet und mithilfe des TRM zeitlich invertiert zurück auf die Emitter-Empfänger-Struktur geschickt. Anschließend wurde das elektromagnetische Feld dort detektiert. Dabei wurde nur an den jeweiligen Ursprungsemittern eine signifikante Feldüberhöhung in Form eines kurzen Pulses gemessen, nicht jedoch an den nur bis zu $\lambda/30$ entfernten Empfängern. Damit konnte zum einen die räumliche und zeitliche Fokussierung mittels Zeitumkehr unterhalb des Beugungslimits gezeigt werden und zum anderen eine unabhängige Adressierung von zwei nur $\lambda/30$ voneinander entfernten Emittern.

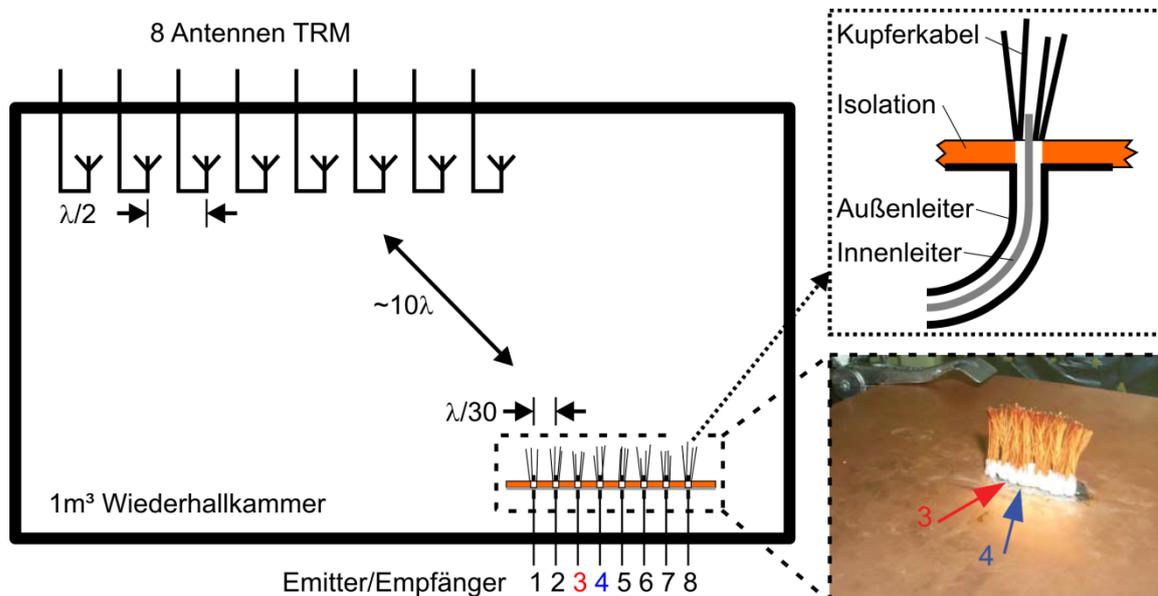


Abb. 42: Versuchsaufbau zur Lichtfokussierung unterhalb des Beugungslimits durch Zeitumkehr. Innerhalb einer Wiederhallkammer sind eine Anordnung aus acht Emittern/Empfängern und ein TRM im Abstand von 10λ zueinander positioniert. Eine einzelne Emitter/Empfänger-Einheit ist vergrößert dargestellt. Ein Bild des Emitter/Empfänger-Arrays ist unten rechts gezeigt. Adaptiert aus [109].

Für den optischen Bereich des elektromagnetischen Spektrums konnte bisher keine experimentelle Umsetzung gezeigt werden. Dies wäre jedoch von großem Interesse, da die Subwellenlängenfokussierung von Licht in Streuumgebungen ein häufig auftretendes Problem ist [110]. Es gibt eine steigende Anzahl an Methoden (z. B. SNOM [111], SIM [112], STORM [113]), um das Beugungslimit zu unterschreiten und Strukturen aufzulösen, deren Ausdehnung unterhalb der Lichtwellenlänge liegt. Mit diesen Methoden ist eine gezielte Manipulation der Nahfelder jedoch nicht möglich oder es werden, wie bei SNOM-Messungen, große Mengen Metall in den Nahfeldbereich eingebracht, wodurch sich die optischen Eigenschaften des Systems massiv verändern.

Im Folgenden wird das Prinzip der Zeitumkehr auf den sichtbaren Spektralbereich des Lichtes angewandt. Im Unterschied zur experimentellen Demonstration im Mikrowellenbereich wird vorerst keine Wiederhallkammer verwendet. Dies wäre für den sichtbaren Spektralbereich nicht realisierbar, da sie mit einer Größe von lediglich $\sim 10\lambda$ hergestellt werden müsste. Im theoretischen Ansatz wird davon ausgegangen, dass die plasmonischen Moden innerhalb der Nanostruktur miteinander in Wechselwirkung treten. Dadurch ersetzen sie die durch die Wiederhallkammer erzeugten Mehrfachstreuungen. [28]

Theoretische Simulationen im optischen Bereich sind bereits vielversprechend [28]. Dort wurde die raumzeitliche Nahfeldkontrolle in einer randomisierten planaren Nanostruktur, bestehend aus $2 \times 2 \times 2 \text{ nm}^3$ kleinen Metallkuben, gezeigt. Dafür wurde innerhalb der Nanostruktur ein Emissionspunkt ausgezeichnet, von dem ein ultrakurzer Lichtpuls mit dipolartiger Abstrahlungscharakteristik ausgeht. Das von der Nanostruktur gestreute Licht wird an einem Aufpunkt im Fernfeld berechnet. Infolge der Streuung weist das Lichtfeld starke zeitliche Modulationen und Polarisationsabhängigkeiten auf, welche erst nach über 200 fs abklingen. Dieses komplexe Feld wird anschließend in Form einer ebenen Welle zeitlich invertiert auf die Nanostruktur zurück propagiert. Die resultierende Feldverteilung in der Nanostruktur weist dann einen maximalen Wert beim Emissionspunkt auf. Des Weiteren wurde gezeigt, dass das elektrische Feld an diesem Punkt auch zeitlich fokussiert wird.

In der beschriebenen theoretischen Arbeit wurden jedoch einige Annahmen getroffen, die nicht in einem Experiment umgesetzt werden können. Der Emissionspunkt wird in Bereichen besonders hoher Nahfelder, sogenannter Hot-Spots, platziert. Die Hot-Spots werden durch Anregung mit einem ultrakurzen Puls, propagierend aus Richtung des Aufpunktes, bestimmt. Es wird somit im Vorfeld identifiziert, an welche Nahfeldmoden die Fernfeldmode aus der festgelegten Raumrichtung koppeln kann. Experimentell wäre die gezielte Platzierung eines Emitters in einen Hot-Spot nur schwer umsetzbar. Die Emission findet zudem ohne einen materiellen Emitter statt. Die Simulation sollte beinhalten, dass dieser als Lichtquelle Teil der Nanostruktur ist und ebenfalls zur

Streuung beiträgt. Ein weiterer Aspekt ist, dass die Effizienz des TR-Algorithmus nicht mit anderen Methoden verglichen wird.

6.2 Zeitumkehrinvarianz der Maxwell-Gleichungen

Die Invertierbarkeit der Zeitachse ist die fundamentale Annahme, durch welche es zu einer Subwellenlängenfokussierung durch Zeitumkehr kommen kann. Die zeitlich zu invertierenden Wechselwirkungen, die hier betrachtet werden, sind elektromagnetischer Natur. Dabei kommt es zu einer Interaktion von geladenen Teilchen mit elektromagnetischer Strahlung. Die Interaktion wird durch die Maxwell-Gleichungen (siehe Gl. 2.1 bis Gl. 2.4, Kapitel 2.1) und die Lorentz-Kraft

$$\vec{F} = q(\vec{E} + \vec{v} \times \vec{B}) \quad (6.1)$$

beschrieben. Bei einer Zeitumkehr unterscheidet man zwischen einer passiven und einer aktiven Zeitumkehr [114]. Eine passive Zeitumkehr beschreibt die Umkehr der Zeitrichtung, also die Koordinatentransformation

$$(x, y, z, t) \xrightarrow{t \rightarrow -t} (x, y, z, t'). \quad (6.2)$$

Die Zeit im transformierten Koordinatensystem verläuft nun entgegengesetzt zur Zeit im ursprünglichen Koordinatensystem und damit verlaufen auch sämtliche Vorgänge in umgekehrter Reihenfolge ab. Bei einer aktiven Zeitumkehr bleibt das Koordinatensystem hingegen unverändert. Stattdessen werden die Vorgänge in ihrer zeitlichen Abfolge invertiert. Dies geschieht unter der Randbedingung, dass die Lösungen der Gleichungen Gl. 2.1 bis Gl. 2.4 und Gl. 6.1 weiterhin Lösungen und „nicht-Lösungen“ keine Lösungen bleiben.

Beide Transformationen sind in ihrer physikalischen Wirkung äquivalent zueinander, praktisch umgesetzt werden kann aber nur die aktive Zeitumkehr. Als Beispiel dazu wird nun die aktive Zeitumkehr einer ebenen Welle durchgeführt. Die Propagation einer monochromatischen ebenen Welle sei gegeben durch:

$$E(x, t) = A e^{-i(kx - \omega t - \Phi)} \quad (6.3)$$

Durch die Umkehr der Propagationsrichtung $k \rightarrow -k$ und Negierung der spektralen Phase $\Phi \rightarrow -\Phi$ ergibt sich:

$$E^{aktiv}(x, t) = Ae^{i(kx + \omega t - \Phi)} \quad (6.4)$$

Physikalisch relevant ist der Realteil, also

$$\Re(E^{aktiv}(x, t)) = A \cos(kx + \omega t - \Phi). \quad (6.5)$$

Betrachtet man analog dazu das Resultat einer passiven Zeitumkehr

$$\Re(E^{passiv}(x, t')) = \Re(Ae^{-i(kx + \omega t - \Phi)}) = A \cos(kx + \omega t - \Phi) \quad (6.6)$$

so sieht man, dass die resultierenden ebenen Wellen identisch sind. Das Ergebnis kann aufgrund des Superpositionsprinzips auf ultrakurze Lichtpulse übertragen werden und ist nicht auf ebene Wellen beschränkt. Es können also beliebige zeitlich und räumlich modifizierte Lichtfelder in ihrer zeitlichen Entwicklung umgekehrt werden. Die aktive Zeitumkehr erfordert die Umkehr des Wellenvektors. Dies ist experimentell leicht umzusetzen. Die Negierung der Phase hingegen erfordert bei kompliziert geformten Laserpulsen einen Vektorfeldsynthesizer (VFS), so wie er in Kapitel 4 vorgestellt wurde.

Dieser Ansatz verliert seine Gültigkeit, sobald es zur Energiedissipation kommt oder wenn magnetische Felder einen dominierenden Einfluss haben. Die Gleichungen verlieren dann ihre Symmetrieeigenschaften unter einer Zeitumkehr. Für die hier vorgestellten numerischen Simulationen wird angenommen, dass beide Effekte vernachlässigbar klein sind.

6.3 Konstruktion und Charakterisierung der Streustruktur

Die in Kapitel 6.1 vorgestellte theoretische Arbeit [28] zur Subwellenlängenfokussierung von Licht durch den Zeitumkehralgorithmus wies u. a. einige Punkte auf, die eine experimentelle Umsetzung erschweren. Dazu zählt die gezielte Platzierung der Emitter

und dass Emittler nicht materiell in der Simulation vorhanden sind. Der Ansatz wurde deshalb abgewandelt und ist schematisch in Abbildung 43 dargestellt. In eine Nahfeldstreustruktur (graue Partikel) werden zwei Emittlerpartikel eingebettet. Sie werden im Folgenden als Emittler „rot“ (roter Partikel) und als Emittler „blau“ (blauer Partikel) bezeichnet und sind zufällig in der Streustruktur platziert. Deren Abstand zueinander ist dabei deutlich geringer als die Wellenlänge des Lichtes. Die Emittler werden aus den gleichen Materialien wie auch die Partikel der Streustruktur erstellt. Wenn von dem Emittler *rot* ein kurzer fs-Puls emittiert wird, kommt es zur Streuung und es bilden sich Nahfelder aus (orange Schattierung). Zu diesem Streuprozess tragen auch die Emittlerpartikel bei. Die gestreute Welle propagiert ins Fernfeld und deren spektrale Intensität $I(\omega)$ und spektrale Phase $\Phi(\omega)$ wird in der Raumrichtung \mathbf{k}_0 am Aufpunkt 0 berechnet. Dort wird, gemäß dem Zeitumkehralgorithmus, die spektrale Phase negiert und der zeitlich invertierte Lichtpuls in entgegengesetzter Richtung $-\mathbf{k}_0$ auf die Streustruktur zurück geschickt. Anschließend wird die raumzeitliche Refokussierung des Lichtes innerhalb eines gewissen Radius um den Emittler *rot* herum untersucht. Im Idealfall sollte dort wieder ein zeitlich kurzer Puls ankommen und die Energie hauptsächlich in dessen unmittelbarer Nähe lokalisiert werden. Die Lichtrefokussierung wird dann in gleicher Weise für die Lichtemission von Emittler *blau* untersucht. Analog zu der Refokussierung von Mikrowellen, welche in Kapitel 6.1 vorgestellt wurde, kann dann bewertet werden, ob das Licht am Ursprungsemitter raumzeitlich refokussiert wird.

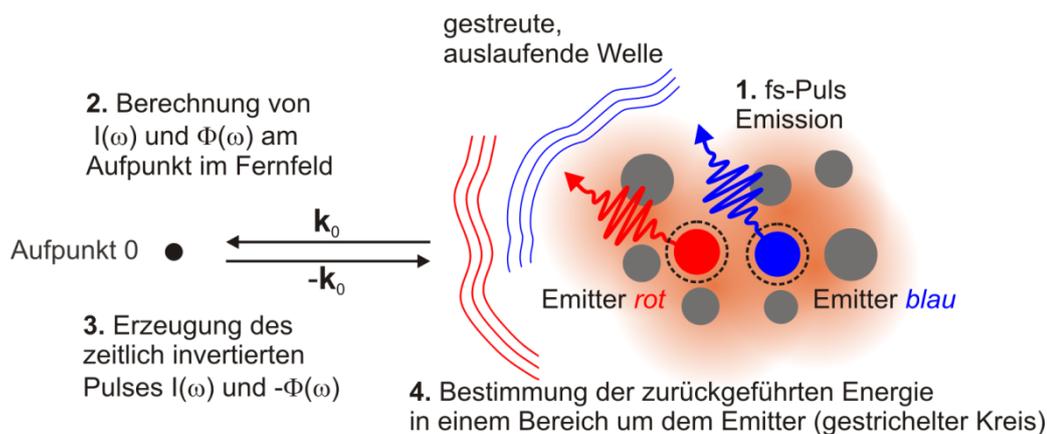


Abb. 43: Prinzip der Subwellenlängenfokussierung durch Zeitumkehr. In Schritt 1 werden fs-Pulse (nicht maßstabsgetreu) von einem der Emittler emittiert. Es bilden sich Nahfeldmoden aus (orange schattiert). Das Streufeld wird in Schritt 2 am Aufpunkt 0 im Fernfeld berechnet. Im 3. Schritt propagiert der zeitlich invertierte Puls zurück auf die Streustruktur. Das Licht wird dann idealerweise an dem Ursprungsemitter raumzeitlich refokussiert. Zur Quantifizierung wird im 4. Schritt die raumzeitliche Energiefokussierung in einem Bereich um den Emittler (gestrichelter Kreis) analysiert.

Aufbauend auf dem beschriebenen Schema der Lichtrefokussierung durch den TR-Algorithmus wird im Weiteren eine geeignete Streustruktur erstellt und

charakterisiert. Weitere Details zu den durchgeführten Simulationen werden dann in Kapitel 6.4 vorgestellt. Die hier präsentierten Ergebnisse sind als Veröffentlichung [115] eingereicht. Vorausgegangene Arbeiten sind in [116] und [117] publiziert.

Eine selbstkonsistente Lösung der Maxwell-Gleichungen für die Lichtstreuung an Nanopartikeln wurde mit MESME (Multiple Elastic Scattering of Multipole Expansion) berechnet [118, 119]. Die Simulationsroutine wurde von F. J. García de Abajo zur Verfügung gestellt. Es bestimmt die Streuung von ebenen monochromatischen Wellen an sphärischen Partikeln analog zur Mie-Theorie. Die Streufelder liegen somit als Multipolentwicklungen vor und bieten damit die am besten geeignete Basis für sphärische Streuprobleme. Der MESME-Code ist auf Streuung an kugelförmigen Objekten beschränkt, um Vereinfachungen bei den Anschlussbedingungen der Felder an Oberflächen verwenden zu können. Da im Folgenden jedoch ausschließlich Agglomerationen von sphärischen Nanopartikeln betrachtet werden, ist dies keine Einschränkung. Ein weiterer Vorteil von MESME liegt darin, dass keine Oberflächendiskretisierungen, wie beispielsweise bei FDTD-Verfahren (engl. Finite-Difference Time-Domain), notwendig sind. Dadurch treten keine Artefakte in der Feldberechnung an krummen Oberflächen auf. Die in Kapitel 6.9 vorgestellte Simulation, in der zusätzlich eine Wiederhallkammer um die Streustruktur platziert wird, kann jedoch nicht mit MESME durchgeführt werden. Es wird deshalb ein kommerzielles FDTD-Verfahren (Lumerical) zur Lösung der Maxwell-Gleichungen eingesetzt.

Die klassische Auflösungsgrenze (nach Abbe, Rayleigh) liegt bei der halben Wellenlänge des verwendeten Lichtes. Die räumliche Ausdehnung von elektromagnetischen Nahfeldern an Metallen kann jedoch deutlich unterhalb der Wellenlänge des Lichtes sein. Elektromagnetische Nahfelder entstehen an einer Metalloberfläche durch die kollektive Auslenkung des Elektronengases gegenüber den Atomrümpfen. Diese kollektive Oszillation wird auch Oberflächenplasmon genannt [120]. Bei Betrachtung der Dispersionsrelationen zeigt sich, dass die Frequenz des Oberflächenplasmons stets geringer als die des anregenden Lichtes ist. Mit einer höheren Zahl an Raumfrequenzen ist somit eine höhere Auflösung erreichbar. Während die Intensität der Fernfeldkomponente eines zufällig orientierten zeitabhängigen Dipols bei zunehmendem Abstand mit r^{-1} abfällt, fällt die des Nahfeldes mit r^{-3} ab [121]. Bei der klassischen Mikroskopie im Fernfeld lassen sich die Nahfelder nicht mehr detektieren und es dominieren freipropagierende Wellen.

Durch eine geeignete Struktur von metallischen Nanopartikeln können jedoch Informationen des Nahfeldes in das Fernfeld übertragen werden. Als einfachstes Beispiel wird ein metallisches Nanopartikel-Dimer betrachtet. Bei Anregung der longitudinalen Oberflächenplasmon-Mode treten hohe Nahfelder zwischen den Partikeln auf (Gap-Mode) [122]. Die Anregung ist jedoch nur mit parallel zur Dimer-Achse polarisiertem Licht möglich, bei orthogonaler Polarisation schwächt sich das Nahfeld stark ab. Dieses

einfache Beispiel zeigt bereits, wie es möglich ist, durch Fernfelder die Nahfeldverteilung mittels einer Subwellenlängen-Streustruktur zu kontrollieren.

Neben der räumlichen Lichtlokalisierung wird auch die zeitliche Lichtlokalisierung betrachtet. Dafür werden ultrakurze Lichtpulse genutzt, die dementsprechend ein breites Spektrum aufweisen. Die Nahfeld-Fernfeld-Kopplung muss somit über den gesamten verwendeten Spektralbereich hin gegeben sein. Als Maß für diese Kopplung wird später der totale Streuquerschnitt (SCS, engl. Scattering Cross Section) σ_{scs} eingeführt, in welchem sich die Resonanzen der Oberflächenplasmonen in der Streustruktur identifizieren lassen. Der totale Streuquerschnitt gibt das Verhältnis zwischen dem Fluss der einfallenden Strahlung und dem räumlich integrierten Fluss der gestreuten Strahlung wieder [123]. Es wird eine ungeordnete Streuumgebung verwendet, um eine große Anzahl spektral unterschiedlicher Resonanzen und damit eine große Varianz in den auftretenden Nahfeldern zu erreichen.

Die Streustruktur muss verschiedene Randbedingungen erfüllen, damit das Prinzip der Refokussierung durch Zeitumkehr demonstriert werden kann. Eine Anforderung ist die experimentelle Umsetzbarkeit. Deswegen werden als Streuobjekte sphärische Nanopartikel verwendet, die standardmäßig synthetisiert werden können. Deren dreidimensionale Anordnung und Größenverteilung werden zufällig erstellt, so wie sie auch in einem Experiment auftreten würden. Das Spektrum des emittierten Lichtpulses ist an das Spektrum eines Ti:Sa-Ultrakurzpulslasersystems mit einer bandbreitebegrenzten Pulslänge von 5 fs und einer Zentralwellenlänge von 800 nm angepasst. Es werden zwei als Emitter ausgezeichnete Nanopartikel mit einem Abstand von 80 nm ($\lambda/10$) zueinander platziert. Die Emitterpartikel Emitter *rot* und Emitter *blau* sind entsprechend farblich dargestellt. Ein Emitter dient sowohl als Quelle für einen auslaufenden Lichtpuls als auch als Antenne, um aus dem Fernfeld einfallendes Licht wieder in der Streustruktur zu refokussieren. Der Radius der Emitter wird auf 25 nm festgelegt. Dies ist notwendig, da an beiden Emittern der gleiche kurze dipolartige Puls emittiert werden soll und somit die Randbedingungen für das elektrische Feld an den Oberflächen der Emitter identisch sein müssen. Auch für die Refokussierung des Lichtes müssen beide Emitter gleich groß sein, da sich sonst die Wirkungsquerschnitte unterscheiden würden, wodurch sie nicht mehr miteinander vergleichbar wären. Um die Emitter werden anschließend Partikel platziert, welche die Streuumgebung bilden. Verschiedene Ansichten der Struktur sind in Abbildung 44 gezeigt. Aus Darstellungsgründen ist im Folgenden das Koordinatensystem immer neben dem Gitter eingezeichnet. Der Koordinatenursprung $x = y = z = 0$ nm liegt hingegen genau zwischen den beiden Emitterpartikeln. Das Gitter, auf dem die Nahfeldverteilungen berechnet werden, ist um den Ursprungspunkt zentriert. Es reicht in der x - y -Ebene von $x = -100$ nm bis $x = 100$ nm und $y = -50$ nm bis $y = 50$ nm.

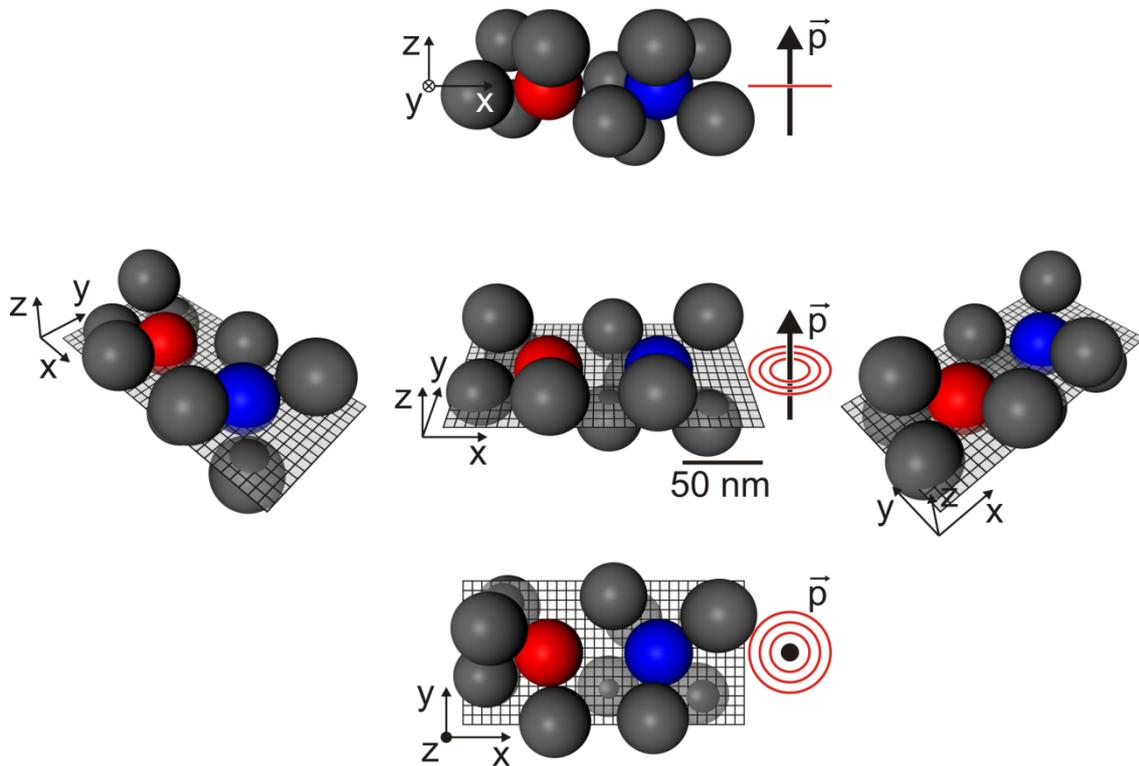


Abb. 44: Streustruktur mit den zwei Emittoren *rot* und *blau* aus verschiedenen Perspektiven. Das Gitter, auf dem die Felder berechnet werden, durchzieht die Streustruktur in der x - y -Ebene. Ein Gitterpunkt liegt im Zentrum eines Rechtecks. Die Abstrahlungscharakteristik der Emittoren ist durch die Dipolachse \vec{p} gekennzeichnet. Sie ist parallel zur z -Achse orientiert.

Die hier verwendeten Streupartikel haben einen Radius von etwa 25 nm und sind somit deutlich kleiner als die Zentralwellenlänge des verwendeten Lichtes. Die Plasmonresonanz tritt für ein Partikel aus Silber mit einem Radius von 25 nm bei einer Anregungswellenlänge von 360 nm (5.23 rad fs^{-1}) auf. Bei solch einer Resonanz vergrößert sich der totale Streuquerschnitt um ein Vielfaches. Dies kann ausgenutzt werden, um die Kopplung der Plasmonresonanzen an ein externes Strahlungsfeld zu erhöhen. Die Plasmonresonanz kann dazu verschoben werden, indem entweder der Partikelradius oder die elektrische Suszeptibilität variiert wird. Durch die Veränderung des Partikelradius gelangt man jedoch nicht nennenswert über eine Wellenlänge von 400 nm (4.71 rad fs^{-1}) hinaus. Bei Variation der elektrischen Suszeptibilität lässt sich die Resonanz zur gewünschten Anregungswellenlänge bei 800 nm (2.35 rad fs^{-1}) verschieben, aber man findet kein existierendes Material mit diesen optischen Eigenschaften. Dieses Problem kann gelöst werden, indem sogenannte Core-Shell-Partikel (Kern-Hülle-Partikel) verwendet werden. Diese weisen einen Kern aus einem Dielektrikum und eine Hülle aus einem Metall auf. Hier wurde für den Kern $\epsilon_1 = 6.35$ konstant gewählt. Das entspricht dem Wert für TiO_2 bei 800 nm (2.35 rad fs^{-1}). Für die Hülle wurde die Suszeptibilität für

Silber nach [124] verwendet. Die SCS für einzelne Core-Shell-Partikel mit unterschiedlichem Hüllradius sind in Abbildung 45 a) gezeigt (farbige Linien). Für einen Kernradius von $r_K = 21\text{nm}$ und einen Hüllradius von $r_H = 24.1\text{nm} - 25\text{nm}$ verschieben sich die Resonanzen in den Bereich von 700 nm (2.69 rad fs^{-1}) bis 800 nm (2.35 rad fs^{-1}).

Es werden insgesamt 10 Core-Shell-Partikel als Streuungsumgebung um die Emitter platziert. Der maximale Abstand zu den Emittoren wird dabei klein gehalten, um den Abstand zwischen allen Partikeln innerhalb der Streustruktur zu verringern. Je kleiner der Abstand b zwischen zwei Nanopartikeln ist, desto stärkere Resonanzen treten infolge von Gap-Moden auf. Mit dem Abstand ändern sich auch die spektralen Positionen dieser Resonanzen. Die Abhängigkeit ist für Dimere (Kernradius $r_K = 21\text{nm}$, Hüllradius $r_H = 25\text{nm}$) mit einem Gap von $b = 100\text{nm}$ und $b = 1\text{nm}$ in Abbildung 45 a) (grau schattierte Flächen) gezeigt. Für die Änderung der Gap-Größe verschiebt sich die Resonanzwellenlänge um 85 nm . Die Emitter werden ebenfalls aus Core-Shell-Partikeln konstruiert, da sie nach Emission eines kurzen Lichtpulses auch zur Streuung beitragen sollen.

Für die gesamte Streustruktur ist der Streuquerschnitt σ_{scs} als schwarze durchgezogene Kurve für Beleuchtung parallel zur z -Achse und schwarze gepunktete Kurve für Beleuchtung parallel zur x -Achse eingezeichnet, siehe Abbildung 45 a). Die Beleuchtungsrichtungen zur Berechnung der SCS sind in Abbildung 45 b) dargestellt. Beide Streuquerschnitte zeigen starke Variationen in einem Bereich von 700 nm (2.69 rad fs^{-1}) – 950 nm (1.98 rad fs^{-1}). Die Resonanzen der Einzelpartikel befinden sich zwischen 700 nm (2.69 rad fs^{-1}) und 800 nm (2.35 rad fs^{-1}) (farbige Kurven). Beiträge oberhalb von 800 nm (bzw. unterhalb von 2.35 rad fs^{-1}) müssen somit durch die Interaktion mehrerer Partikel entstehen. Um zu klären, wie sich die Resonanzen oberhalb von 800 nm bilden, wurden alle Partikel-Dimere in der Struktur identifiziert. Dafür wurden die Verbindungsgeraden von jedem Partikel zu allen anderen Partikeln bestimmt. Anschließend wurden diejenigen verwendet, bei denen kein Partikel die Verbindungsgerade schneidet. Auf diese Weise ergeben sich alle möglichen Dimer-Kombinationen. Die Partikelabstände b der Dimere sind als Histogramm in Abbildung 45 c) aufgetragen. Am häufigsten treten kleine Partikelabstände $b < 10\text{ nm}$ auf. Dies ist wichtig, da bei geringen Abständen die größten Nahfeldüberhöhungen erwartet werden. Partikelabstände mit $b > 50\text{ nm}$ treten selten auf und liefern nur einen kleinen Beitrag zu den lokalen Nahfeldern. Für jede Kombination wurden die winkelaufgelösten Streufelder bestimmt und anschließend die kohärente Summe über alle Streufelder berechnet, siehe Abbildung 45 a), hellgraue Kurve. Die räumliche Orientierung der Dimere innerhalb der Streustruktur wurde dabei beibehalten. Der Streuquerschnitt aller Dimere weist Modulationen im Bereich von 700 nm (2.69 rad fs^{-1}) bis 875 nm (2.15 rad fs^{-1}) auf. Die hohen SCS-Beiträge der Streustruktur bei 900 nm (2.09 rad fs^{-1}) sind weder durch einzelne Partikel noch durch Partikel-Dimere zu erklären. Diese SCS-Beiträge werden somit wahrscheinlich durch ausgedehnte Plasmonenmoden

hervorgehoben, welche aus der Interaktion mehrerer Partikel innerhalb der Streustruktur entstehen.

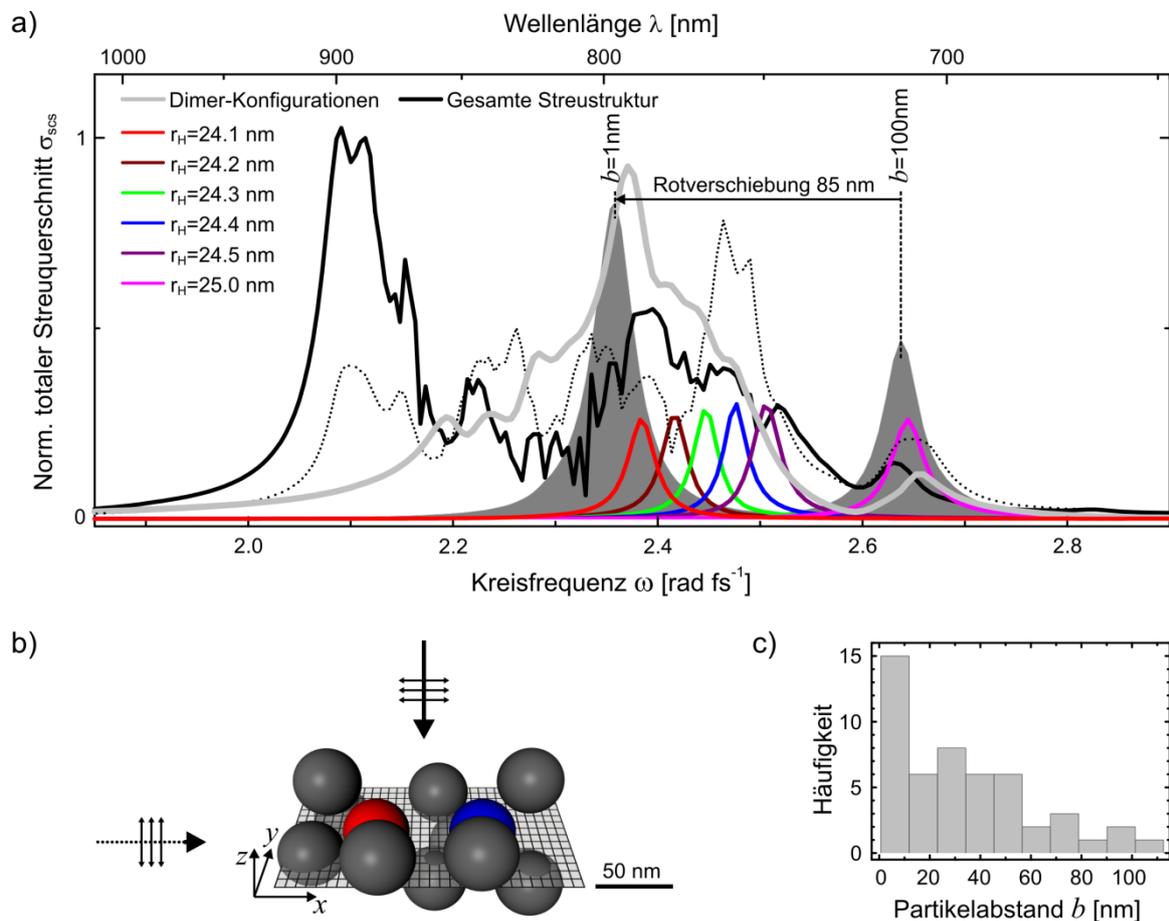


Abb. 45: a) Totaler Streuquerschnitt für einzelne Core-Shell-Partikel mit unterschiedlichen Außenradien (farbige Kurven) und die gesamte Streustruktur (schwarze Kurve). Die kohärente Summe über die totalen Streuquerschnitte für alle in der Struktur auftretenden Dipolanordnungen (graue Kurve) ist zum Vergleich mit der SCS der Streustruktur eingezeichnet. Die erreichbare Rotverschiebung durch Variation des Dipolabstandes b ist exemplarisch für einen großen ($b=100$ nm) und kleinen Abstand ($b=1$ nm) als grau hinterlegte Kurven gezeigt. b) Orientierung der Streustruktur zur Berechnung der SCS unter Lichteinfall aus z -Richtung (durchgezogene Linie) und x -Richtung (gestrichelte Linie). c) Die Häufigkeitsverteilung der Dipolabstände b ist als Histogramm dargestellt.

Letztendlich wird die spektrale Breite der SCS durch Partikelinteraktionen größer, als es durch die Summe der Einzelpartikel möglich wäre. Die zusätzlichen plasmonischen Moden können auch an Fernfeldmoden koppeln und werden die Anzahl freier Parameter zur Nahfeldkontrolle erhöhen. Die spektrale Breite stellt zudem experimentell kein Hindernis dar, denn moderne Ultrakurzpuls-Lasersysteme überspannen einen spektralen Bereich von mehr als einer Oktave. Erwähnenswert ist auch, dass die SCS der Streustruktur große Ähnlichkeit zur Verteilung akustischer Moden in Gasbläschen

aufweist, in denen das Prinzip der Zeitumkehr zur Subwellenlängenfokussierung erfolgreich gezeigt werden konnte [125].

Das verwendete Simulationsprogramm MESME approximiert die Streufelder in einer Multipolentwicklung. Trifft eine ebene Welle auf ein Streuobjekt, so wird das Streufeld in sphärische Hankelfunktionen entwickelt. Die Entwicklung wird bis zur Multipolordnung l_{\max} durchgeführt und dann abgebrochen. Die Multipolordnung gibt somit an, welche Entwicklungsordnung der sphärischen Hankelfunktionen zur Beschreibung von Streufeldern verwendet wird. Je größer die Multipolordnung gewählt wird, desto genauer kann das tatsächliche Streufeld beschrieben werden, wodurch aber auch die Rechenzeit ansteigt. Das Streufeld kann an anderen Streuobjekten gestreut werden und weitere Streufelder erzeugen. Die Anzahl an Streuprozessen, die berücksichtigt werden, wird als Streuordnung o bezeichnet. Auch bei der Wahl der Streuordnung muss beachtet werden, dass die Rechenzeit nicht zu groß wird und trotzdem die führenden Streuprozesse berücksichtigt werden.

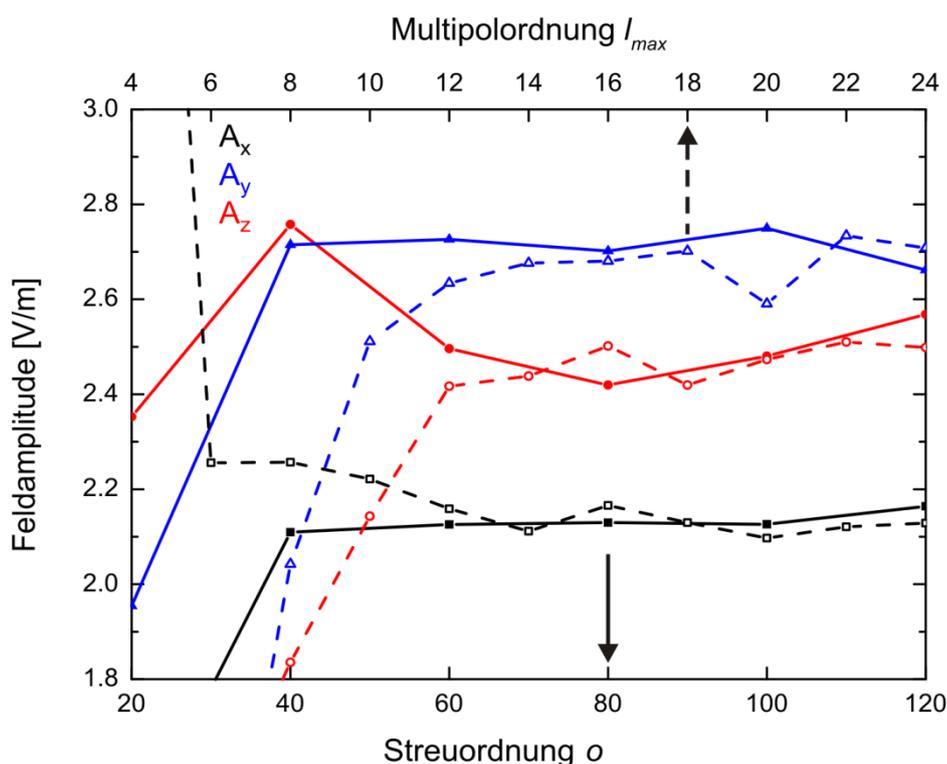


Abb. 46: Feldamplituden A_x , A_y und A_z am Ort $x = y = z = 0 \text{ nm}$ für variable Streuordnung o bei fester Multipolordnung $l_{\max} = 18$ (durchgezogene Kurven) und variable Multipolordnung l_{\max} bei fester Streuordnung $o = 80$ (gestrichelte Kurven).

Im Folgenden werden die Multipolordnung l_{\max} und Streuordnung o bestimmt, bei denen die Simulationen durchgeführt werden. Für den Raumpunkt $x = y = z = 0 \text{ nm}$

wurden die Parameter l_{\max} und o erhöht, bis sich die Komponenten der Feldamplitude kaum noch geändert haben. In Abbildung 46 ist die Variation der Streuordnung für $l_{\max} = 18$ (durchgezogene Kurven) und die der Multipolordnung für $o = 80$ (gestrichelte Kurven) gezeigt. Für Werte $l_{\max} \leq 12$ und $o \leq 60$ treten noch Variationen der elektrischen Feldamplituden auf. Zur Berechnung wurden $l_{\max} = 18$ und $o = 80$ gewählt, da sich die Feldamplituden für größere Parameter nur noch geringfügig ändern.

6.4 Simulationsdetails

In diesem Kapitel werden die Details der Simulation behandelt. Dazu werden im Folgenden die notwendigen Konventionen eingeführt. Die mathematische Umsetzung des TR-Algorithmus wird in Kapitel 6.4.1 vorgestellt. Dem schließt sich die Beschreibung des gentschen Algorithmus (GA) in Kapitel 6.4.2 an. In Kapitel 6.4.3 wird ein mathematisches Maß für die räumliche Lichtlokalisierung eingeführt.

Es wird vorerst die räumliche Refokussierung von Licht in der Subwellenlängen-Streustruktur durch Beleuchtung aus einer Raumrichtung betrachtet. Eine Übersicht der Simulation ist in Abbildung 47 dargestellt. Die von den Emitttern startenden Pulse haben eine zeitliche Länge von 5 fs (Halbwertsbreite FWHM, engl. Full Width at Half Maximum) und weisen identische, um 800 nm zentrierte gaußförmige Spektren auf. Die Abstrahlung erfolgt dipolartig, wird dann aber durch Mehrfachstreuung in der Streustruktur modifiziert. Die Entfernung vom Aufpunkt 0 bis zum Mittelpunkt des Gitters ($x = y = z = 0$), im Zentrum der Streustruktur, beträgt 20 μm . Diese Entfernung ist notwendig, um sicher zu stellen, dass die Nahfelder stark genug abgeklungen sind. Die an dem Aufpunkt berechneten Felder enthalten somit ausschließlich Fernfeldkomponenten. Dort ergeben sich die Streufelder separat für den Lichtpuls von Emitter *rot* und für den von Emitter *blau*. Sie werden im Folgenden als „**Puls rot**“ und „**Puls blau**“ bezeichnet. Deren zeitlichen Strukturen unterscheiden sich deutlich voneinander. Die momentanen Polarisationszustände, Feldamplituden und Momentanfrequenzen zeigen keine Übereinstimmungen. Als einzige Gemeinsamkeit lassen sich die ballistische Komponente zu Beginn der Pulse und der danach einsetzende stetige Abfall der Feldamplituden erkennen. Die im zeitlichen Verlauf invertierten Pulse sind darunter gezeigt. Sie ergeben sich durch die in Kapitel 6.2 beschriebene Zeitumkehr und werden als „**TR rot**“ (Time Reversal) bzw. „**TR blau**“ bezeichnet. Sie breiten sich in Form gestreuter Kugelwellen von der Streustruktur aus. In der Simulation werden sie dann als ebene Wellen auf die Streustruktur zurück geschickt. Dies ist durch den großen Abstand zur Streustruktur in guter Näherung möglich.

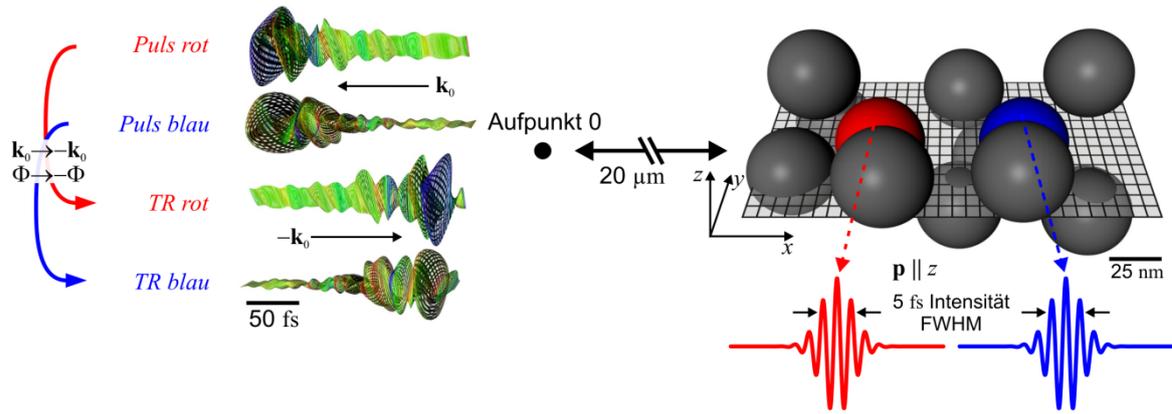


Abb. 47: In der Streustruktur wird ein bandbreitebegrenzter 5 fs kurzer Lichtpuls bei einer Zentralwellenlänge von 800 nm vom Emittor *rot* bzw. Emittor *blau* emittiert. In 20 μm Entfernung wird die Feldamplitude des gestreuten Lichtes separat für beide Emittor berechnet (*Puls rot* bzw. *Puls blau*). Durch Negierung der spektralen Phasen $\Phi_{rot/blau}(\omega, \mathbf{k}_0) \rightarrow -\Phi_{rot/blau}(\omega, \mathbf{k}_0)$ und Wellenvektoren $\mathbf{k}_0 \rightarrow -\mathbf{k}_0$ werden die zeitinvertierten Lichtpulse *TR rot* bzw. *TR blau* gebildet.

Das Spektrum des Streulichtes ist in Abbildung 48 über die Kreisfrequenz aufgetragen. Beide Polarisationskomponenten zeichnen sich spektral durch einen breiten Untergrund aus, auf dem separierte peakförmige Beiträge bei unterschiedlichen Kreisfrequenzen sichtbar sind. Die spektrale Position und Amplitude der Peaks sind sowohl für die Polarisationskomponenten als auch beide Pulse, unterschiedlich. Dies spiegelt den Einfluss der spektralen Moden in der SCS (siehe Abbildung 45 a)) auf die ausgehenden

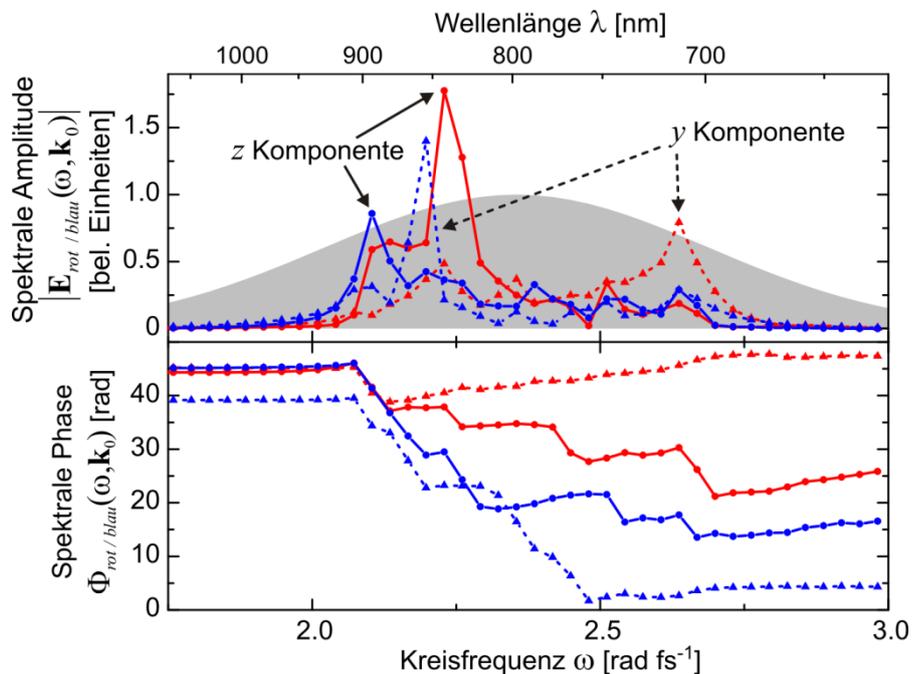


Abb. 48: Spektrale Amplitude (oben) und Phase (unten) der y -Komponente (Dreiecke, gestrichelte Linien) und z -Komponente (Kreise, durchgezogene Linien) der Streulichtfelder von Emittor *rot* und *blau*, berechnet am Aufpunkt 0. Das Spektrum der von beiden Emittoren emittierten kurzen Lichtpulse ist als graue Fläche dargestellt.

Pulse wider. Die plasmonischen Resonanzen koppeln je nach Emittter, Polarisation und Raumrichtung unterschiedlich effizient an entsprechende Fernfeldmoden und führen so Energie in selbige ab. Die spektrale Phase des Streulichtes zeigt ebenfalls ein komplexes Verhalten, in dessen Verlauf sich keine Regelmäßigkeiten erkennen lassen.

6.4.1 Zeitumkehr zur räumlichen Nanolokalisierung

Nachdem das Streulicht im Fernfeld berechnet wurde, werden die zeitinvertierten Pulse *TR rot* und *TR blau* in Form von ebenen Wellen zurück auf die Streustruktur propagiert. Zur Bestimmung der zeitinvertierten Pulse wird auf die Streufelder $\mathbf{E}_{rot/blau}(\omega, \mathbf{k}_0)$ der Zeitumkehralgorithmus angewandt:

$$\mathbf{E}_{rot/blau}^{TR}(\omega, \mathbf{k}_0) = \left| \mathbf{E}_{rot/blau}(\omega, -\mathbf{k}_0) \right| e^{-i\Phi_{rot/blau}(\omega, -\mathbf{k}_0)} \quad (6.7)$$

Für jeden der beiden Lichtpulse wird die lokale Feldverteilung an den Gitterpunkten bestimmt. An jedem Gitterpunkt \mathbf{r}_i wird die Antwortfunktion $\tilde{\mathbf{S}}(\mathbf{r}_i, \omega, \mathbf{k}_0)$ [126] durch den MESME-Algorithmus ermittelt. Dabei ist anzumerken, dass *TR rot* und *TR blau* Anteile des elektrischen Feldes $\mathbf{E}_{s/p,rot/blau}^{TR}(\omega, \mathbf{k}_0)$ in s- und p-Polarisation aufweisen. Für Anregung mit s- und p-polarisiertem Licht ergeben sich unterschiedliche Antwortfunktionen $\tilde{\mathbf{S}}_{s/p}(\mathbf{r}_i, \omega, \mathbf{k}_0)$. Das lokale elektrische Feld ergibt sich dann an einem Gitterpunkt zu:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{rot/blau}^{Lokal}(\mathbf{r}_i, \omega, \mathbf{k}_0) = & \tilde{\mathbf{S}}_s(\mathbf{r}_i, \omega, \mathbf{k}_0) \mathbf{E}_{s,rot/blau}^{TR}(\omega, \mathbf{k}_0) \\ & + \tilde{\mathbf{S}}_p(\mathbf{r}_i, \omega, \mathbf{k}_0) \mathbf{E}_{p,rot/blau}^{TR}(\omega, \mathbf{k}_0) \end{aligned} \quad (6.8)$$

6.4.2 Adaptive Optimierung zur räumlichen Nanolokalisierung

Der TR-Algorithmus garantiert nicht, die maximal mögliche raumzeitliche Lichtlokalisierung an einem Emittter zu erreichen. Durch die Komplexität des Streuprozesses ist es auch analytisch nicht möglich, diese zu bestimmen. Infolgedessen kommt ein AO-Verfahren zum Einsatz, wie es in [105, 106, 127] beschrieben wird. Hier wird ein GA angewandt, um die spektrale Phase zu bestimmen, die zu einer optimalen

Nanofokussierung führt. Ein genetischer Algorithmus folgt den evolutionären Grundprinzipien, die aus der Biologie bekannt sind. Individuen einer Population zeichnen sich durch ihre genetischen Merkmale aus, wodurch sie unterschiedlich gut an die Umgebungsbedingungen angepasst sind. Die genetischen Merkmale der Individuen, die am besten an die Umgebung angepasst sind, werden in die nächste Generation vererbt, die schlecht angepassten Individuen werden aussortiert.

Nach diesem Prinzip arbeitet auch der hier angewandte GA. Die genetischen Merkmale eines Individuums werden durch die spektralen Phasenfunktionen der s- und p-Polarisationskomponente, des auf die Streustruktur gestrahlten Lichtes repräsentiert. Um die Vergleichbarkeit zum TR-Algorithmus zu bewahren, werden die spektralen Amplituden, die am Aufpunkt 0 berechnet wurden, verwendet. Die Population besteht hier aus 30 Individuen, von denen jedes seine eigenen spektralen Phasenfunktionen besitzt. Der Lichtpuls, der sich aus den spektralen Phasenfunktionen eines Individuums ergibt, wird auf die Streustruktur geschickt und anschließend bewertet, ob die resultierende Nahfeldverteilung dem gewünschten Ergebnis entspricht. Die genetischen Merkmale der besten Individuen der Population gelangen durch Kreuzung in die nächste Generation. Zusätzlich werden die spektralen Phasenfunktionen geringfügig per Zufall variiert (Mutation). Die genetischen Merkmale der Population verändern sich bestenfalls über die Generationen hinweg so, dass das gewünschte Resultat erzielt wird.

Als genetische Merkmale dienen die 100 Stützstellen der spektralen Phase sowohl für die s- als auch die p-polarisierte Komponente des an dem Aufpunkt 0 berechneten Streulichtes. Die Verteilung der energetisch äquidistanten Stützstellen ist in Abbildung 48 zu sehen. Der GA startet mit einer Population, in der jedes Individuum eine Phasenfunktion besitzt, die für jeden Stützpunkt einen zufälligen Wert aufweist. Sie werden unabhängig voneinander optimiert. Im Fall mehrerer Aufpunkte werden die spektralen Phasen aller Raumrichtungen ebenfalls unabhängig voneinander optimiert. Die Anzahl freier Parameter steigt somit linear mit der Anzahl der Beleuchtungsrichtungen. Das durch den GA optimierte Streulicht von Emitter *rot* wird als „**AO rot**“, das von Emitter *blau* als „**AO blau**“ bezeichnet. Es wird als ebene Welle aus Richtung des jeweiligen Aufpunktes auf die Streustruktur geschickt. Der GA benötigt eine Fitnessfunktion, die ein quantitatives Maß für die Lichtlokalisierung angibt. Aufgrund dieser Fitnessfunktion werden die Individuen innerhalb einer jeden Generation bewertet. Sie wird im folgenden Kapitel 6.4.3 exemplarisch für die räumliche Lokalisierung definiert und erläutert. Die Bestimmung eines globalen Maximums kann durch den GA nicht garantiert werden. Aufgrund der begrenzten Anzahl an Individuen und Generationsdurchläufen kann es auch vorkommen, dass nur ein lokales Maximum gefunden wird.

6.4.3 Maß für die räumliche Lokalisierung

Wie im vorherigen Kapitel bereits erwähnt wurde, muss bestimmt werden, in welchem Maße das Licht an einem beliebigen Emitter mithilfe des TR-Algorithmus oder des GA fokussiert werden kann. Ein entscheidender Aspekt ist, dass das Licht an seinem Ursprungsemitter, dem aktiven Emitter, besonders gut fokussiert wird. Zum passiven Emitter, von dem kein Licht emittiert wurde, sollte zudem möglichst wenig Licht gelangen. Dafür wird später das Schaltverhältnis S eingeführt, wodurch die Effizienz beider Methoden vergleichbar wird.

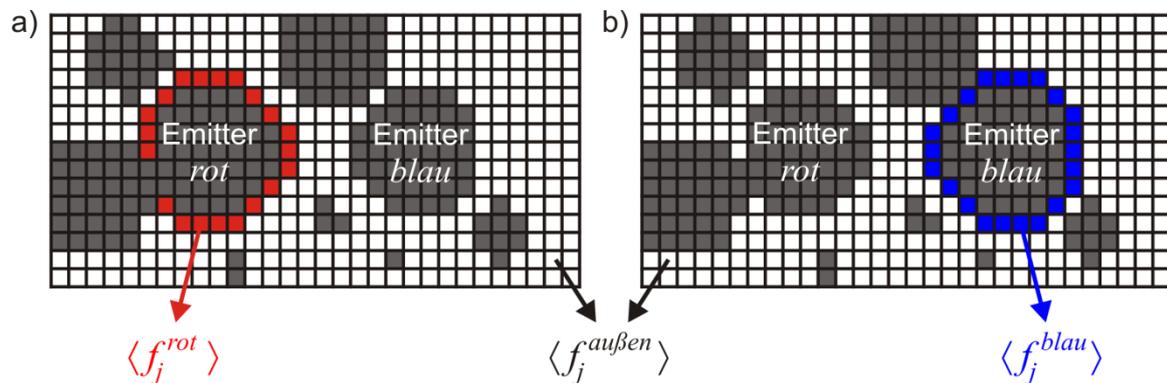


Abb. 49: Bestimmung des Fluenzverhältnisses. Von Partikeln besetzte Gitterpunkte sind ausgegraut. Gitterpunkte im Vakuum sind weiß dargestellt. Alle im Radius von 32 nm um einen Emitter befindlichen Gitterpunkte sind rot für den Emitter *rot* (a) bzw. blau für den Emitter *blau* (b) eingefärbt. Sie liegen außerhalb von Partikeln im Vakuum.

Als Maß der Lichtlokalisierung an einem Emitter wird die mittlere Fluenz innerhalb eines Radius von 32 nm (gemessen vom Zentrum ein Emitters aus) um einen Emitter ins Verhältnis zur mittleren Fluenz an allen anderen Gitterpunkten gesetzt. Das ist für die Refokussierung auf Emitter *rot* und *blau* in Abbildung 49 a) bzw. b) schematisch dargestellt. Die Mittelung ist durch die auftretenden Variationen in der räumlichen Feldverteilung notwendig. Die Lichtmenge an einem Gitterpunkt wird als Fluenz angegeben. Die gemittelte Fluenz um den Emitter *rot* wird als $\langle f_j^{rot} \rangle$ bezeichnet, entsprechend die um den Emitter *blau* als $\langle f_j^{blau} \rangle$. Die gemittelte Fluenz der Gitterpunkte außerhalb des Radius um einen Emitter wird als $\langle f_j^{außen} \rangle$ angegeben. Der Index j bezeichnet dabei, ob das lokale elektromagnetische Feld durch die zeitinvertierten Felder von Emitter *rot* bzw. *blau* oder die adaptiv optimierten Felder der Emitter *rot* bzw. *blau* hervorgerufen wurde, d. h. $j \in \{TR\ rot, TR\ blau, AO\ rot, AO\ blau\}$. Bei einer Fluenz handelt es sich um eine flächenbezogene Intensität. Die Fläche ergibt sich hier durch die Gitterpunktabstände. Sie ist für alle Punkte auf dem Gitter konstant und kann deshalb gleich eins gesetzt werden. Aus dem elektrischen Feld berechnet sich die Fluenz wie folgt:

$$f_j(\mathbf{r}_i) = \sum_{\omega} \left| \mathbf{E}_j^{Lokal}(\mathbf{r}_i, \omega, \mathbf{k}_0) \right|^2 \quad (6.9)$$

Um den Lokalisierungsgrad an einem Emitter zu bestimmen, wird die gemittelte Fluenz um einen Emitter $\langle f_j^{rot/blau} \rangle$ ins Verhältnis zur mittleren Fluenz der verbleibenden Gitterpunkte $\langle f_j^{au\beta en} \rangle$ gesetzt. Das Fluenzverhältnis für einen Emitter berechnet sich dann aus

$$F_j^{rot/blau} = \frac{\langle f_j^{rot/blau} \rangle}{\langle f_j^{au\beta en} \rangle}. \quad (6.10)$$

Von großem Interesse ist auch, wie stark sich die Fluenz infolge der Lichtlokalisierung von einem zum anderen Emitter verschieben lässt. Dazu wird das Schaltverhältnis S_j definiert:

$$S_{TR\ rot} = \frac{F_{TR\ rot}^{rot}}{F_{TR\ rot}^{blau}}, \quad S_{TR\ blau} = \frac{F_{TR\ blau}^{blau}}{F_{TR\ blau}^{rot}}, \quad S_{AO\ rot} = \frac{F_{AO\ rot}^{rot}}{F_{AO\ rot}^{blau}}, \quad S_{AO\ blau} = \frac{F_{AO\ blau}^{blau}}{F_{AO\ blau}^{rot}} \quad (6.11)$$

Das Schaltverhältnis wird als Fitnessfunktion für den GA dienen. Ein Wert von $S_{AO\ rot} > 1$ bedeutet beispielsweise, dass das Fluenzverhältnis für den Emitter *rot* größer ist, als für den Emitter *blau*. Es wird mehr Energie am Emitter *rot* deponiert und es findet eine starke Nanolokalisierung statt, während für $S_{AO\ rot} < 1$ das inverse Verhältnis auftritt. Analog verhalten sich die weiteren Schaltverhältnisse S_j .

6.5 Fluenzlokalisierung mittels eines Aufpunktes

Für die in Abbildung 47 gezeigte Anordnung der Streustruktur und des Aufpunktes 0 wurden die lokalen Felder $\mathbf{E}_{rot/blau}^{Lokal}(\mathbf{r}_i, \omega, \mathbf{k}_0)$ auf den Gitterpunkten \mathbf{r}_i mithilfe der Antwortfunktion $\tilde{\mathbf{S}}(\mathbf{r}_i, \omega, \mathbf{k}_0)$ und der Pulse *TR rot* $\mathbf{E}_{rot}^{TR}(\omega, \mathbf{k}_0)$ und *TR blau* $\mathbf{E}_{blau}^{TR}(\omega, \mathbf{k}_0)$, wie in Kapitel 6.4.3 beschrieben, bestimmt. Aus den lokalen Feldern wurden anschließend die lokalen Fluenzen $f_{TR\ rot}(\mathbf{r}_i)$ und $f_{TR\ blau}(\mathbf{r}_i)$ berechnet. Diese sind in Abbildung 50 (obere Reihe) orts aufgelöst gezeigt. Beim Vergleich zwischen den

Fluenzverteilungen ist zu erkennen, dass es zu einer Erhöhung der lokalen Fluenz um den Emitter *rot* für den Lichtpuls *TR rot* und um den Emitter *blau* für den Lichtpuls *TR blau* kommt. Dies zeigt, dass der TR-Algorithmus prinzipiell zum Schalten räumlicher Fluenzen im Subwellenlängenbereich geeignet ist. Wie stark die Fluenzlokalisierung um die Emitter ist, wird später durch die Berechnung des Schaltverhältnisses bestimmt. Bei diesem Resultat muss berücksichtigt werden, dass die zeitliche Entwicklung nicht eingeht. Diese wird in Kapitel 6.6 betrachtet.

Zum Vergleich wurde der genetische Algorithmus eingesetzt, um die Fluenzlokalisierung um die Emitter zu maximieren. Als Fitnessfunktion wurde das Schaltverhältnis $S_{AO\ rot/blau}$ verwendet. Es wurden die spektralen Amplituden der Streulichtspektren der von Emitter *rot* bzw. Emitter *blau* emittierten Pulse am Aufpunkt 0 benutzt. Sie unterscheiden sich deutlich voneinander (siehe Abbildung 48), wodurch sich wahrscheinlich auch deren Fähigkeit zur Nanolokalisierung voneinander unterscheidet. Um die Vergleichbarkeit zum TR-Algorithmus zu bewahren, werden die spektralen Amplituden nicht verändert. Die spektrale Phase wurde als freier Parameter betrachtet und variiert, bis ein Maximum im Schaltverhältnis $S_{AO\ rot/blau}$ gefunden wurde. Für die optimierten AO-Pulse sind die lokalen Fluenzen $f_{AO\ rot}(\mathbf{r}_i)$ und $f_{AO\ blau}(\mathbf{r}_i)$ in

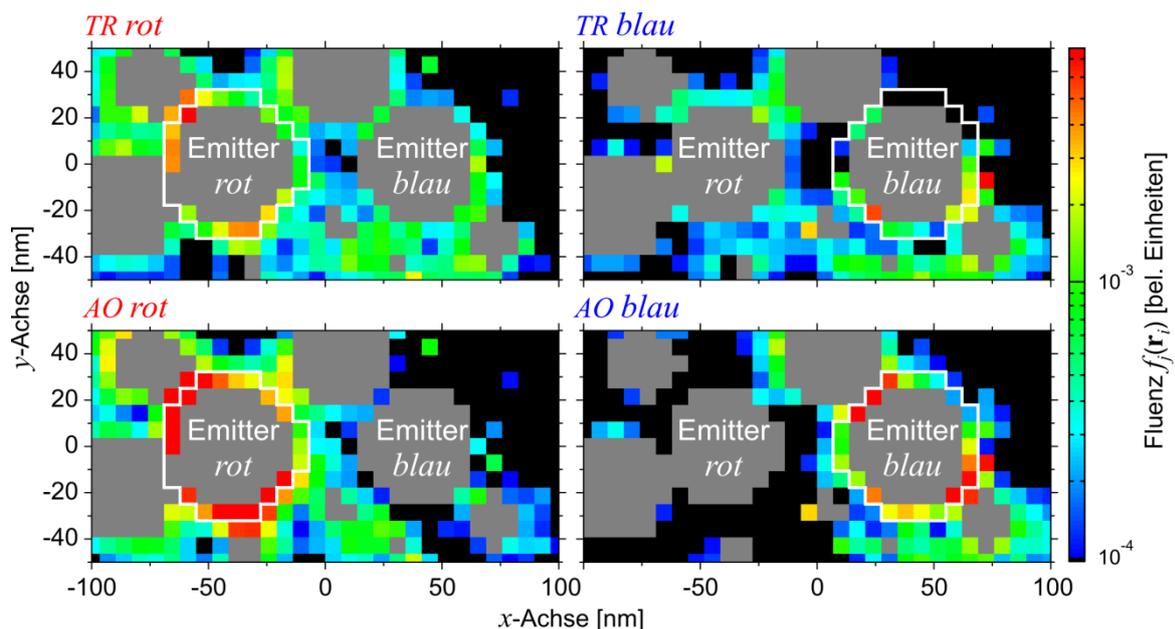


Abb. 50: Lokale Fluenzen $f_j(\mathbf{r}_i)$ ermittelt durch Beleuchtung mit dem TR-Puls von Emitter *rot* (oben links) und Emitter *blau* (oben rechts) bzw. AO-Puls *rot* (unten links) und AO-Puls *blau* (unten rechts). Die dem zugrundeliegenden Streufelder wurden am Aufpunkt 0 an der Position $(-20,0,0)$ μm berechnet. Die Fluenz ist logarithmisch aufgetragen, um den großen Wertebereich darstellen zu können. Die weißen Linien umranden die Gitterpunkte, die innerhalb eines 32 nm Radius um die Emitterpartikel liegen. Gitterpunkte, die innerhalb von Partikeln liegen, sind ausgegraut.

Abbildung 50 (untere Reihe) gezeigt. Die Fluenzstärke am jeweiligen Ursprungsemitter ist größer, als es bei der Zeitumkehrmethode der Fall ist. Zudem wird die Fluenzstärke am

nicht emittierenden Emitter gesenkt, was die Definition des Schaltverhältnisses als Fitnessparameter erreicht wird.

Zur Bewertung der Lichtlokalisierung sind das Fluenzverhältnis $F_j^{rot/blau}$ und das Schaltverhältnis S_j in Kapitel 6.4.3 eingeführt worden. Diese wurden für die Lokalisierung durch Zeitumkehr und den genetischen Algorithmus berechnet. Die Fluenzverhältnisse sind in Abbildung 51 durch Balkendiagramme für den TR-Algorithmus (oben) und den GA (unten) dargestellt. Fluenzverhältnisse, die durch den $TR\ rot$ und $AO\ rot$ berechnet wurden, sind oberhalb der schwarzen Linie als rote Balken dargestellt, die von $TR\ blau$ und $AO\ blau$ auf der entgegengesetzten Seite als blaue Balken. Die schwarz-weiß gestrichelten Linien zeigen durch ihren Abstand zur schwarzen Linie die mittlere Fluenz über alle Stützstellen des Gitters. Übersteigt ein Balken die mittlere Fluenz, bedeutet dies, dass die mittlere Fluenz am Emitter $\langle f_j^{rot/blau} \rangle$ größer ist, als die an den verbleibenden Gitterpunkten $\langle f_j^{außen} \rangle$.

Zuerst werden die Resultate des TR-Algorithmus betrachtet (Abbildung 51 oben). Der $TR\ rot$ induziert bei Emitter rot ein Fluenzverhältnis von $F_{TR\ rot}^{rot} \approx 5.5$ und der rote Balken übersteigt die mittlere Fluenz. Bei Emitter $blau$ hingegen ist $F_{TR\ rot}^{blau} \approx 1$ und der rote Balken erreicht genau die mittlere Fluenz. Das höhere Fluenzverhältnis am Ursprungsemitter äußert sich auch durch ein Schaltverhältnis von $S_{TR\ rot} = 5.8$. Durch Beleuchtung mit $TR\ blau$ kehren sich die Fluenzverhältnisse um und das Schaltverhältnis $S_{TR\ blau} = 2.2$ zeigt, dass mehr Energie bei Emitter $blau$ deponiert wird. Für beide zeitinvertierte Pulse kann eine Refokussierung auf den Ursprungsemitter erreicht werden. Des Weiteren zeigt ein Schaltverhältnis größer als eins, dass stets eine größere Fluenz am Ursprungsemitter erreicht wird und somit von einem Schaltprozess gesprochen werden kann.

Ein Beleg für die Funktion des TR-Algorithmus ist dadurch jedoch noch nicht gegeben. Es wäre auch möglich, dass die Refokussierung am Ursprungsemitter durch eine spektrale Filterwirkung der Streustruktur hervorgerufen wird. Abhängig von der Position eines Emitters in der Streustruktur gelangen nur bestimmte spektrale Beiträge ins Fernfeld. Wird das Licht durch den TR-Algorithmus zurück propagiert, wirkt die Streustruktur erneut als spektraler Filter und das Licht wird wellenlängenselektiv in der Streustruktur lokalisiert. Die spektrale Phase würde bei diesem Vorgang nur eine untergeordnete Rolle spielen. Zur Überprüfung wurden die am Aufpunkt 0 berechneten Streufelder $\mathbf{E}_{rot/blau}(\omega, \mathbf{k}_0)$ mit einer konstanten spektralen Phase zurück auf die Streustruktur propagiert. Die spektralen Amplituden entsprechen also denen, die im TR-Algorithmus verwendet wurden. Dadurch ergeben sich die Schaltverhältnisse $S_{konst. Phase\ rot} = 2.6$ und $S_{konst. Phase\ blau} = 3.3$. Für Emitter rot ist das Schaltverhältnis über einen Faktor zwei geringer, während es für Emitter $blau$ um 50% erhöht ist. Dieses Verhalten deutet darauf hin, dass Phaseneffekte zur Nanolokalisierung beitragen, aber auch andere Effekte einen großen Einfluss haben.

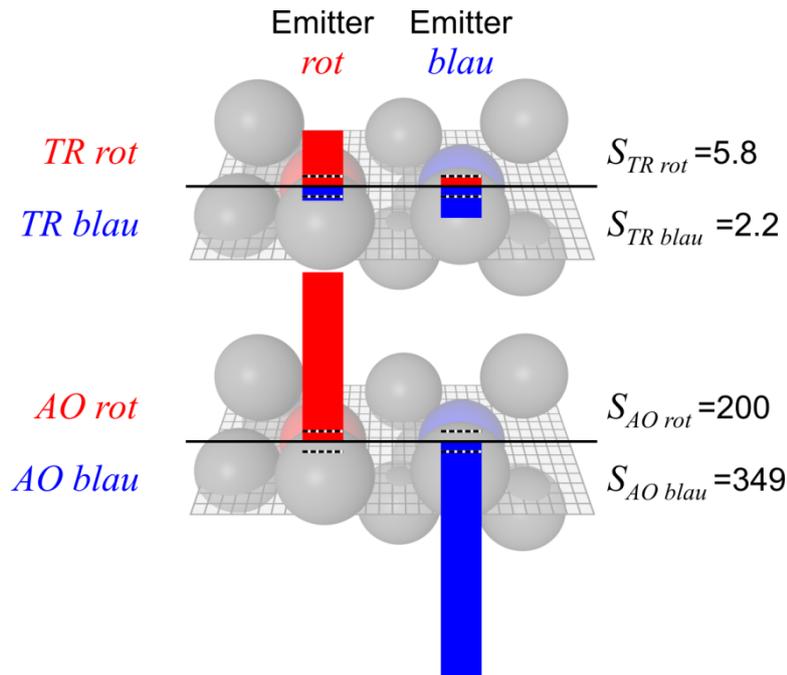


Abb. 51: Fluenzverhältnisse $F_j^{rot/blau}$ und Schaltverhältnisse S_j bei Beleuchtung mit ebenen Wellen aus Richtung von Aufpunkt 0 durch Anwendung des TR-Algorithmus (oben) und des GA (unten). Die Größe der Balken ist proportional zu den Fluenzverhältnissen $F_j^{rot/blau}$. Die schwarz-weiß gestrichelten Linien stellen die durchschnittliche Fluenz dar.

Die durch den GA optimierten Schaltverhältnisse und die daraus resultierenden Fluenzverhältnisse eröffnen nun die Möglichkeit, die Resultate des TR-Algorithmus zu bewerten. In Abbildung 51 (unten) sind die durch den GA maximierten Fluenzverhältnisse aufgetragen. Die erreichten Fluenzverhältnisse an den Ursprungsemittern sind deutlich größer als die durch den TR-Algorithmus berechneten. Gleichzeitig sind die Fluenzverhältnisse an den inaktiven Emittern stark verringert, sie lassen sich in der Abbildung nicht mehr darstellen. Entsprechend höher sind die Schaltverhältnisse mit $S_{AO\ rot} = 200$ und $S_{AO\ blau} = 349$. Sie sind um fast zwei Größenordnungen größer als die durch den TR-Algorithmus erreichten. Der Grund dafür liegt wahrscheinlich in der Kopplung zwischen Nahfeld- und Fernfeldmoden, die für diese Streustruktur sehr stark ist. Da es sich außerdem um eine komplizierte randomisierte Streustruktur handelt, bilden sich eine Vielzahl von Nahfeldmoden aus. Dadurch stehen dem GA eine Vielzahl von möglichen Nahfeld-Fernfeld-Kopplungen zur Verfügung und der GA kann diese effizient nutzen.

Durch die Verwendung einer Beleuchtungsrichtung konnte mit beiden Methoden die Nahfeldkontrolle in einer randomisierten Subwellenlängen-Streustruktur demonstriert werden. Die Fluenz wurde im großen Maße an dem Ursprungsemitter deponiert. Mit dem GA konnte jedoch ein um zwei Größenordnungen höheres Schaltverhältnis erreicht werden. Diese Erhöhung wurde durch eine reine Phasenformung erzielt und der Effekt ist

deutlich größer als der Unterschied zwischen den Schaltverhältnissen $S_{TR\ rot/blau}$ und $S_{konst. Phase\ rot/blau}$. Das verdeutlicht den signifikanten Einfluss der spektralen Phase.

6.6 Zeitliche Lokalisierung mittels eines Aufpunktes

Im Folgenden wird die raumzeitliche Lichtlokalisierung an den Emittlern, analog zur räumlichen Fluenzlokalisierung in Kapitel 6.5, betrachtet. Dem Prinzip des TR-Algorithmus folgend kommt es nicht nur zu einer räumlichen Lichtlokalisierung am Ursprungsort, sondern auch das zeitliche Profil des Ursprungspulses sollte dort wiederhergestellt werden. Dazu kann die zeitliche Feldentwicklung aus Gleichung 6.7 durch eine Fourier-Transformation gewonnen werden.

Es werden erneut die Refokussierungen durch den TR-Algorithmus und den GA miteinander verglichen. Dazu wird die gleiche Konfiguration von Aufpunkt 0 und Streustruktur, wie in Abbildung 47 gezeigt, verwendet. Für die Verwendung des GA muss nun eine Fitnessfunktion definiert werden, die auch die zeitliche Feldentwicklung beinhaltet. Als Maß wird das nichtlineare Fluenzverhältnis wie folgt definiert:

$$f_j^{nl}(\mathbf{r}_i) = \int \left| \text{FT} \left\{ \mathbf{E}_j^{lokal}(\mathbf{r}_i, \omega) \right\} \right|^4 dt \quad (6.12)$$

Ein hoher Wert wird nun sowohl durch eine hohe Fluenz als auch durch eine kurze Pulslänge erreicht. Als Fitnessfunktion für den GA dient jetzt das nichtlineare Schaltverhältnis S_j^{nl} . Es wird analog zu S_j berechnet (siehe Gleichung 6.11), nur dass jetzt die nichtlineare Fluenz $f_j^{nl}(\mathbf{r}_i)$ eingeht. Dementsprechend wird das in Gleichung 6.10 angegebene Fluenzverhältnis nun ebenfalls mit der nichtlinearen Fluenz berechnet.

Die durch den TR-Algorithmus erreichten nichtlinearen Fluenzen sind in Abbildung 52 c) und e) durch Beleuchtung mit *TR rot* bzw. *TR blau* dargestellt. Für beide Lichtpulse befinden sich die höchsten nichtlinearen Fluenzen an den Gitterpunkten um den jeweiligen Ursprungsemitter. Dies ist ebenso für Beleuchtung mit den GA-optimierten Lichtpulsen in d) und f) zu erkennen. Deutliche Unterschiede gibt es jedoch in der zeitlichen Struktur der Nahfelder an den Emittlern. Für zwei repräsentative Raumpunkte, die unmittelbar an Emitter *rot* bzw. *blau* angrenzen, sind die zeitlichen Intensitätsverläufe in Abbildung 52 für den TR-Algorithmus (a, g) und den GA (b, h) dargestellt (schwarze Linien). Zum Vergleich wurde für jeden zeitlichen Verlauf die bandbreitebegrenzte Zeitentwicklung berechnet (rot gestrichelte Linien), indem die spektrale Phase gleich Null

gesetzt wurde. Sie repräsentiert den kürzest möglichen Lichtpuls, den man bei den am jeweiligen Ortspunkt vorhandenen spektralen Feldamplituden erwarten kann.

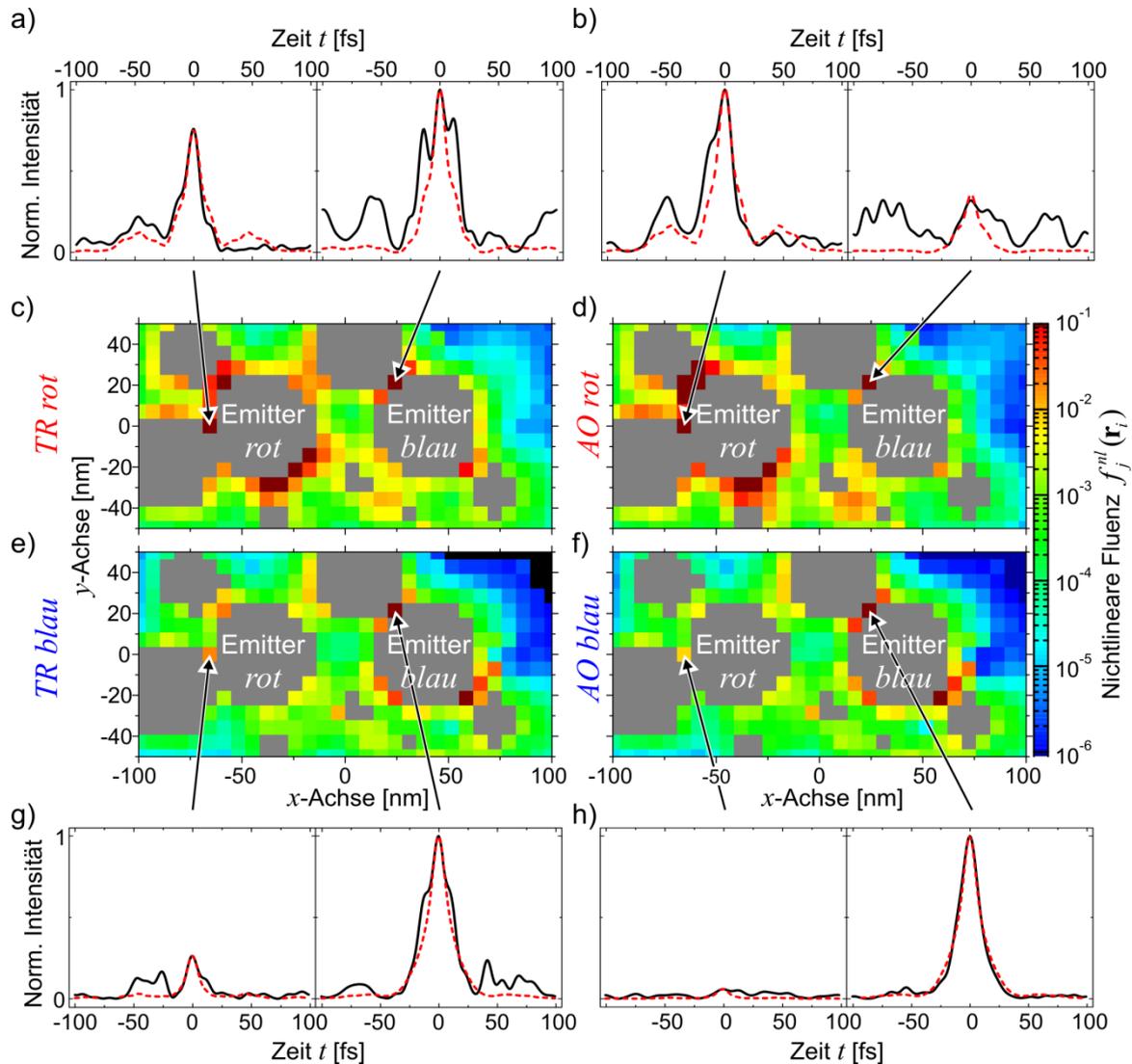


Abb. 52: Lokale zeitaufgelöste Intensitäten (a, b, g, h) (schwarze Linien) an zwei Gitterpunkten, die den Emitter *rot* bzw. *blau* angrenzen, markiert durch Pfeile. Sie sind auf die Maximalintensität innerhalb einer Abbildung normiert. Die Beleuchtung erfolgt aus Richtung von Aufpunkt 0 in Form ebener Wellen. Nichtlineare Fluenzen $f_j^{nl}(\mathbf{r}_i)$ sind durch Anwendung des TR-Algorithmus in c) und e) gezeigt, die durch den GA induzierten in d) und f). Zum Vergleich sind die bandbreitebegrenzten zeitlichen Intensitätsverläufe (rote gestrichelte Kurven) eingezeichnet. Sie wurden auf die Maximalintensität des korrespondierenden Zeitsignals normiert, um die zeitliche Breite vergleichbar zu machen.

Durch Beleuchtung mit dem Lichtpuls *TR rot* ergeben sich an Emitter *rot* und *blau* fast bandbreitebegrenzte kurze Pulse. Durch *TR blau* wird am Emitter *blau* ebenfalls ein nahezu bandbreitebegrenzter Puls erzeugt, während am Emitter *rot* die zeitliche Intensität über einen großen Zeitbereich verteilt ist. Das von *TR blau* hervorgerufene zeitliche Verhalten deckt sich mit den Erwartungen an den TR-Algorithmus, dass am

Ursprungsemitter wieder ein raumzeitlich komprimierter Puls lokalisiert wird. An anderen Raumpunkten sollte dahingegen ein zeitlich unkorreliertes Verhalten auftreten, was für *TR rot* nicht gegeben ist. Dementsprechend betragen die nichtlinearen Schaltverhältnisse $S_{TR\ rot}^{nl} = 0.8$ und $S_{TR\ blau}^{nl} = 61.5$. Ein Schaltprozess ist somit für *TR rot* nicht zu erwarten. Der Grund dafür wird durch Betrachtung der in Abbildung 52 c) gezeigten nichtlinearen Fluenz ersichtlich. Mehrere Gitterpunkte um Emitter *rot* weisen eine sehr hohe nichtlineare Fluenz auf, während es nur einer bei Emitter *blau* ist. An diesem ist die lokale nichtlineare Fluenz jedoch so hoch, dass gemittelt über das Umfeld eines jeden Emitters, nahezu gleiche nichtlineare Fluenzverhältnisse erreicht werden. In diesem Fall findet die Kopplung von Emitter *blau* an das Fernfeld hauptsächlich über eine einzelne Gap-Mode statt.

Der adaptiv optimierte Lichtpuls *GA rot* erzeugt nicht nur einen bandbreitebegrenzten kurzen Puls am Emitter *rot*, sondern verbreitert auch das zeitliche Intensitätssignal am inaktiven Emitter *blau*. Durch den GA wird somit nicht nur ein kurzer Puls am Ursprungsemitter gebildet, sondern auch eine Verringerung der zeitlichen Spitzenintensität am inaktiven Emitter erreicht. Damit wird das nichtlineare Schaltverhältnis massiv erhöht: Es beträgt $S_{AO\ rot}^{nl} = 14.4$. Das gleiche Verhalten ist für *GA blau* zu beobachten. Am Emitter *blau* wird fast exakt die Bandbreitelimitierung erreicht, während die Feldamplitude bei Emitter *rot* über den Zeitbereich gleichmäßig verteilt wird. Das Schaltverhältnis ist mit $S_{AO\ blau}^{nl} = 884$ entsprechend hoch.

Sowohl der TR-Algorithmus als auch der GA können am Ursprungsemitter das Nahfeld zeitlich refokussieren und erreichen fast die zeitliche Bandbreitelimitierung. Die Schaltverhältnisse, die durch den GA erreicht werden, sind jedoch deutlich größer, was daran liegt, dass der Algorithmus die nichtlineare Fluenz am inaktiven Emitter zusätzlich verringert. Die spektralen Phasen von *TR rot* und *TR blau* weisen dabei keine Ähnlichkeit zu denen von *AO rot* und *AO blau* auf.

6.7 Fluenzlokalisierung durch multiple Aufpunkte

In den vorherigen Kapiteln 6.5 und 6.6 wurde die räumliche und raumzeitliche Lichtfokussierung durch den TR-Algorithmus mit dem GA verglichen. Das Streulicht wurde dabei nur an einem Aufpunkt betrachtet und für die Refokussierung verwendet. Durch den TR-Algorithmus und den GA konnte dabei sowohl eine räumliche als auch eine zeitliche Lokalisierung erreicht werden. Abhängig von der Beleuchtungsrichtung zeigen die in Abbildung 45 a) dargestellten SCS unterschiedliche Resonanzen. Demnach ist die Kopplung zwischen Nah- und Fernfeld richtungsabhängig. Durch Lichteinfall aus einer Raumrichtung können also nur bestimmte Moden innerhalb der Streustruktur angeregt werden. Daran schließt sich die Frage an, ob die Wahl oder die Anzahl an

Aufpunkten die Refokussierung beeinflusst. Eine größere Anzahl an Aufpunkten bedeutet, dass mehr Informationen ins Fernfeld übertragen werden. Nach Anwendung der Zeitumkehr könnten diese zusätzlich an Nahfelder koppeln und die Nanolokalisierung verbessern.

Basierend auf dieser Argumentation wird im Folgenden die Fluenzlokalisierung durch den TR-Algorithmus für verschiedene Aufpunkte berechnet. Die insgesamt 10 Aufpunkte \mathbf{k}_l ($l = 0, 1, \dots, 9$) liegen in der x - y -Ebene, siehe Abbildung 53 a). An allen Aufpunkten wird nun das Streulicht für die Pulse von Emitter *rot* und *blau*, wie in Kapitel 6.4.1 beschrieben, berechnet. Zunächst wird jeder Aufpunkt einzeln betrachtet, d. h. das Fluenzverhältnis $F_{TR\text{rot/blau}}^{\text{rot/blau}}$ und das Schaltverhältnis $S_{TR\text{rot/blau}}(\mathbf{k}_l)$ werden durch den TR-Algorithmus für jeden Aufpunkt einzeln bestimmt. Die sich ergebenden Fluenzverhältnisse sind in Abbildung 53 b), die Schaltverhältnisse in c) in Polarkoordinaten veranschaulicht. Die Aufpunkte sind dabei in azimuthaler Richtung aufgetragen, die Fluenzverhältnisse bzw. Schaltverhältnisse in radialer Richtung.

Für den Lichtpuls *TR rot* ergeben sich die im oberen Diagramm von Abbildung 53 b) gezeigten Fluenzverhältnisse $F_{TR\text{rot}}^{\text{rot}}$ bei Emitter *rot* (rote Kurve). In Richtung der Aufpunkte 0 und 5, also parallel zur x -Achse, kommt es zu einer starken Fluenzlokalisierung bei Emitter *rot*. Für die Aufpunkte 2 und 7, parallel zur y -Achse, verringert sich das Fluenzverhältnis und zeigt eine dipolartige Ausprägung. Das Verhalten kehrt sich bei Betrachtung der Fluenzverhältnisse $F_{TR\text{rot}}^{\text{blau}}$ von Emitter *blau* um. Die Dipolachse liegt nun um etwa 90° gedreht parallel zur y -Achse. Es besteht daher die Vermutung, dass die effiziente Nanolokalisierung hier über Dipolresonanzen vermittelt wird. Die Ausrichtungen der Dipolachsen lassen sich dabei jedoch nicht in einer trivialen Weise mit in der Streustruktur vorhandenen dipolartigen Anordnungen zur Deckung bringen. Die Beleuchtung mit *TR blau* ist im unteren Diagramm von Abbildung 53 b) gezeigt. Die Fluenzverhältnisse $F_{TR\text{blau}}^{\text{rot}}$ (rote Kurve) und $F_{TR\text{blau}}^{\text{blau}}$ (blaue Kurve) zeigen hier nur eine geringe Richtungsabhängigkeit. Die Fluenzlokalisierung ist in diesem Fall bei Emitter *blau* deutlich größer als bei Emitter *rot*.

Insgesamt sind nur zwei der 40 berechneten Fluenzverhältnisse geringer als die durchschnittliche Fluenz. Dies könnte auf die räumlich zentrale Position der Emitter zurückgeführt werden. Sie haben die meisten Nachbarpartikel, was zur Ausbildung einer überdurchschnittlich großen Anzahl von Gap-Moden führt. In diesen treten hohe Nahfelder auf, wodurch die Fluenz um ein Emitterpartikel größer ist als um ein Partikel, das am Rand der Streustruktur platziert ist.

In Abbildung 53 c) sind die Schaltverhältnisse $S_{TR\text{rot}}$ (rote Kurve) und $S_{TR\text{blau}}$ (blaue Kurve) aufgetragen. Für den Aufpunkt 4 kann für beide TR-Pulse ein hoher Wert für das Schaltverhältnis erreicht werden. Für den Aufpunkt 5 hingegen ist das Schaltverhältnis $S_{TR\text{blau}}$ für den Lichtpuls *TR blau* kleiner als eins (grüner Kreis). Gleiches gilt für die Schaltverhältnisse $S_{TR\text{rot}}$ durch Beleuchtung mit *TR rot* aus Richtung der Aufpunkte 2, 3, 6, 7 und 8. Aus diesen Raumrichtungen kann somit kein Schalten der Fluenz erreicht

werden. Ein Umschalten der Fluenz, für welches $S_{TR\ blau} > 1$ und $S_{TR\ rot} > 1$ gelten muss, ist nur für die Beleuchtung aus Richtung der Aufpunkte 0, 1, 4 und 9 möglich. Für lediglich 4 der 10 Beleuchtungsrichtungen sind eine gezielte Adressierung der Emittter und damit eine kontrollierte Nanolokalisierung möglich.

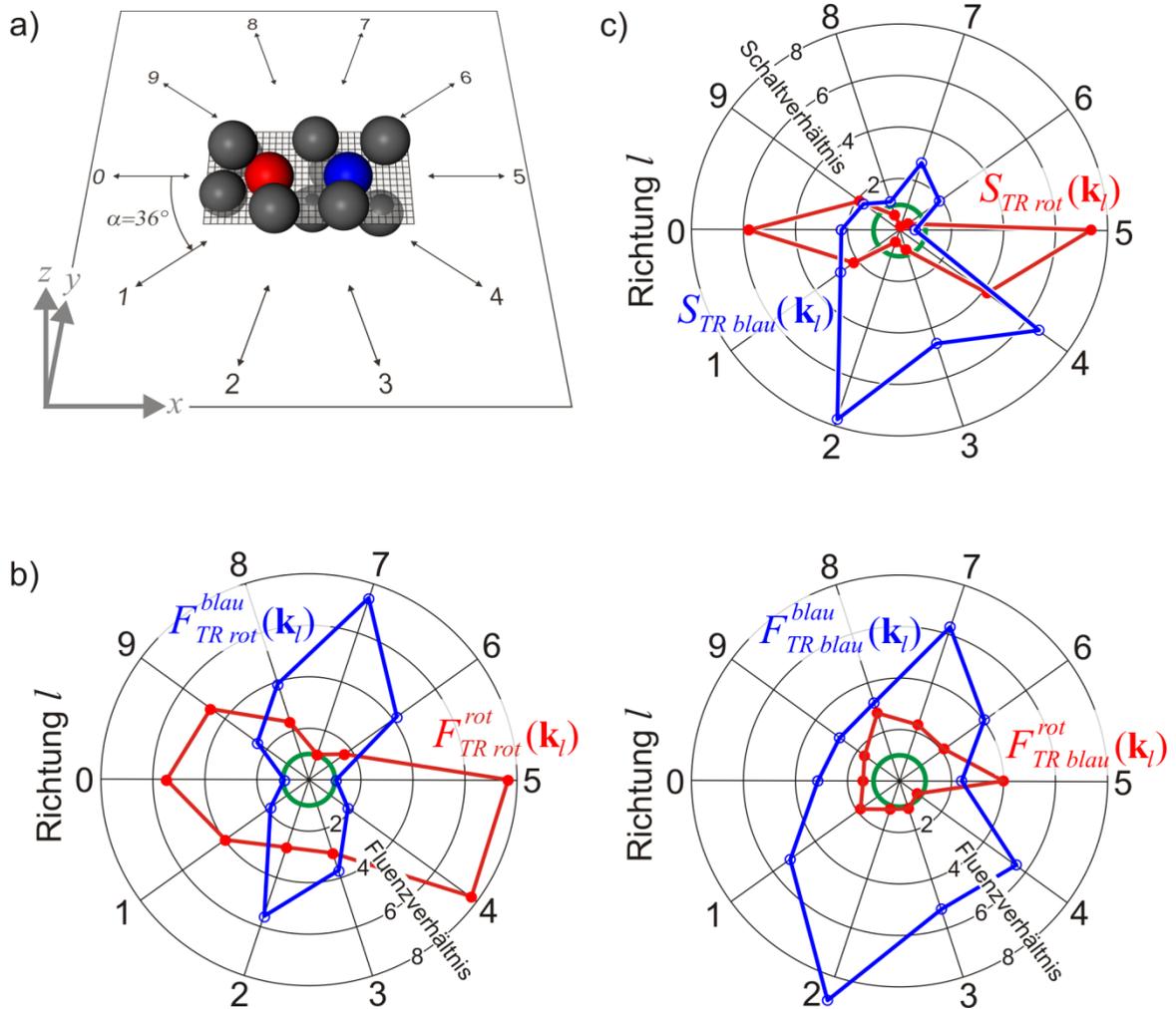


Abb. 53: a) 3D-Darstellung der Streustruktur mit der Position der Aufpunkte 0 bis 9, die innerhalb der x - y -Ebene liegen. Sie sind $20\ \mu\text{m}$ vom Zentrum der Streustruktur entfernt. b) Für die Beleuchtung mit $TR\ rot$ (linkes Diagramm) und $TR\ blau$ (rechtes Diagramm) aus Richtung eines jeden Aufpunktes $l = 0, 1, \dots, 9$ wurde das Fluenzverhältnis $F_{TR\ rot/blau}^{rot/blau}(\mathbf{k}_l)$ bestimmt und als Polardiagramm dargestellt. Die durchschnittliche Fluenz aller Gitterpunkte ist als grüner Kreis eingezeichnet. c) Aufgetragen sind die durch den TR-Algorithmus erreichten Schaltverhältnisse $S_{TR\ rot/blau}(\mathbf{k}_l)$ für jeden Aufpunkt. Das Schaltverhältnis $S = 1$ ist als grüner Kreis eingezeichnet.

Bisher wurden die zeitinvertierten Felder für jede Beleuchtungsrichtung separat betrachtet. Durch deren kohärente Superposition wird eine Verbesserung der Lichtlokalisierung mittels des TR-Algorithmus und des GA erwartet, da nun eine größere Anzahl an Freiheitsgraden zur Verfügung steht. Um eine optimale Nanolokalisierung von Licht durch den TR-Algorithmus zu erreichen, müssten theoretisch die Streufelder aller

Raumrichtungen berücksichtigt werden. Zur bestmöglichen Approximation der Streufelder im Fernfeld wäre die Entwicklung in Multipole geeignet, da es sich um eine nahezu punktförmige Quelle handelt. Für Experimente ist dies jedoch nicht realisierbar, da keine Methode zur spektral breitbandigen dreidimensionalen Formung von Multipolfeldern existiert. Durch einen VFS, wie er in Kapitel 4 vorgestellt wurde, ist es jedoch möglich, polarisationsgeformte Pulse in Form ebener Wellen zu erzeugen. Die Beleuchtung durch polarisationsgeformte Laserpulse aus mehreren Raumrichtungen wäre somit denkbar, wurde bisher aber experimentell noch nicht gezeigt. Zur Berücksichtigung der experimentellen Einschränkungen wird eine Beleuchtung mit zehn kohärent superpositionierten ebenen Wellen aus verschiedenen Raumrichtungen angenommen. Um diese zylinderförmige Beleuchtung zu realisieren, werden die in Abbildung 53 a) gezeigten Aufpunkte verwendet. Durch deren erneute Verwendung werden die Simulationsergebnisse vergleichbar zu den oben gezeigten Resultaten, die durch Beleuchtung aus nur einer Raumrichtung gewonnen wurden.

Es werden aus allen Raumrichtungen die zeitinvertierten Lichtpulse als Superposition ebener Wellen auf die Streustruktur zurückgeschickt. Das lokale Feld ergibt sich an den Gitterpunkten dann durch die Summation über die lokalen Felder aller Beleuchtungsrichtungen, die durch Gleichung 6.8 bestimmt werden:

$$\tilde{\mathbf{E}}_{rot/blau}^{Lokal}(\mathbf{r}_i, \omega) = \sum_{l=0}^9 \mathbf{E}_{rot/blau}^{Lokal}(\mathbf{r}_i, \omega, \mathbf{k}_l) \quad (6.13)$$

Mit diesem Zusammenhang werden nach Gleichung 6.9 die lokalen Fluenzen $f_j(\mathbf{r}_i)$ berechnet, woraus sich wiederum die Fluenzverhältnisse $F_j^{rot/blau}$ und Schaltverhältnisse S_j ergeben. Um die Effizienz des TR-Algorithmus bewerten zu können, wird erneut der GA als Referenz verwendet. Es wird angenommen, dass jede Raumrichtung Informationen im Streulicht enthält, die zur Nanolokalisierung beitragen. Dementsprechend wird die spektrale Phase des Streulichtes an jedem Aufpunkt separat variiert, was zu einer Vergrößerung des Phasenraums um den Faktor zehn führt. Die spektralen Amplituden werden für jeden Aufpunkt gleich den Streulichtspektren gesetzt, die durch den entsprechenden auslaufenden Puls dort hervorgerufen wurden.

Die Fluenz- und Schaltverhältnisse für die zylindrische Beleuchtung sind in Abbildung 54 gezeigt. Sowohl für die Beleuchtung mit *TR rot* als auch für *TR blau* wird ein erhöhtes Fluenzverhältnis am Ursprungsemitter beobachtet. Der Kontrast zwischen aktivem und passivem Emitter fällt jedoch sehr gering aus. Dadurch ergeben sich Schaltverhältnisse von $S_{rot} = 1.3$ und $S_{blau} = 1.6$, die nur geringfügig größer als eins sind. Ein signifikantes Schalten der Fluenzverhältnisse ist somit kaum möglich.

Im Gegensatz dazu erreicht der GA um mehrere Größenordnungen höhere Schaltverhältnisse. Im Vergleich zur Beleuchtung aus einer Raumrichtung kommt es zur

erheblichen Verbesserung der Nanolokalisierung durch die zusätzlichen Freiheitsgrade. Während am inaktiven Emitter nahezu kein Licht mehr vorhanden ist, wird am aktiven Emitter das Licht räumlich stark fokussiert.

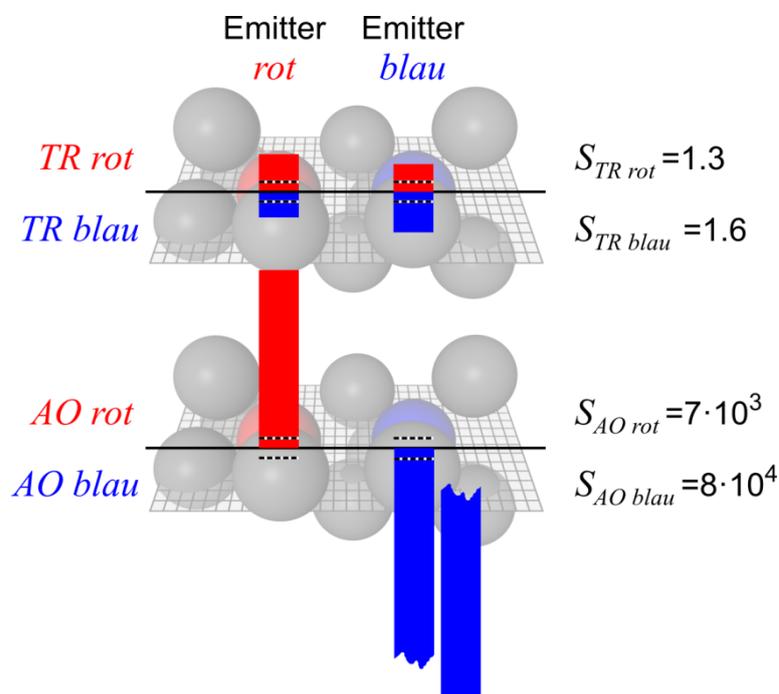


Abb. 54: Fluenzverhältnisse $F_j^{rot/blau}$ und Schaltverhältnisse S_j bei zylindrischer Beleuchtung durch Anwendung des TR-Algorithmus (oben) und des GA (unten). Zur Realisierung der zylindrischen Wellenfront wurden 10 planare Wellenfronten, wie in Abbildung 53 a) gezeigt, superpositioniert. Die schwarz-weiß gestrichelten Linien stellen die durchschnittliche Fluenz dar. Der Balken des Fluenzverhältnisses $F_{AO\ blau}^{blau}$ ist aus Gründen der Darstellung mit Unterbrechung eingezeichnet.

6.8 Zeitliche Fokussierung durch multiple Aufpunkte

Nachdem im vorherigen Kapitel 6.7 die räumliche Fluenzlokalisierung durch eine zylindrische Beleuchtung betrachtet wurde, schließt sich jetzt die Bestimmung des raumzeitlichen Lokalisierungsverhaltens an. Dies geschieht analog zum Vorgehen in Kapitel 6.6. Es wird zuerst die Beleuchtung aus Richtung der Aufpunkte separat betrachtet. Die nichtlinearen Fluenzverhältnisse $F_{TR\ rot/blau}^{nl\ rot/blau}$ sind in Abbildung 55 a) dargestellt. Durch Beleuchtung mit $TR\ rot$ kommt es hauptsächlich zu einer raumzeitlichen Lokalisierung am Emitter *rot*, nur für die Aufpunkte 0 und 9 wird das Licht stärker an Emitter *blau* raumzeitlich fokussiert. Der Grad der raumzeitlichen Lokalisierung ist für die Beleuchtung mit $TR\ blau$ noch größer. Aus jeder Beleuchtungsrichtung wird das Licht bei Emitter *blau* fokussiert. Die nichtlinearen Schaltverhältnisse $S_{TR\ rot/blau}^{nl}$ sind in Abbildung 55 b) gezeigt. Für die Lichteinstrahlung

aus allen Raumrichtungen ist $S_{TR\text{ blau}}^{nl} > 1$. Nur für die Aufpunkte 0 und 9 wird $S_{TR\text{ rot}}^{nl} < 1$. Ansonsten wird durch die Beleuchtung mit $TR\text{ rot}$ ein Schaltprozess induziert. Im Gegensatz dazu konnte für die räumliche Lokalisierung, also $S_{TR\text{ rot}}$ (siehe Kapitel 6.7) nur für etwa die Hälfte der Punkte eine Fluenzlokalisierung um den Emitter beobachtet werden. Das nichtlineare Schaltverhältnis, welches durch eine raumzeitliche Fokussierung erreicht wird, unterscheidet sich somit von dem durch eine reine räumliche Fokussierung erreichten. Der Erfolg einer räumlichen Fokussierung durch den TR ist stark vom Aufpunkt abhängig. Eine Richtungsabhängigkeit ist in der raumzeitlichen Fokussierung auch vorhanden. Das Schalten der nichtlinearen Fluenz ist jedoch für die Beleuchtung aus fast allen Raumrichtungen möglich.

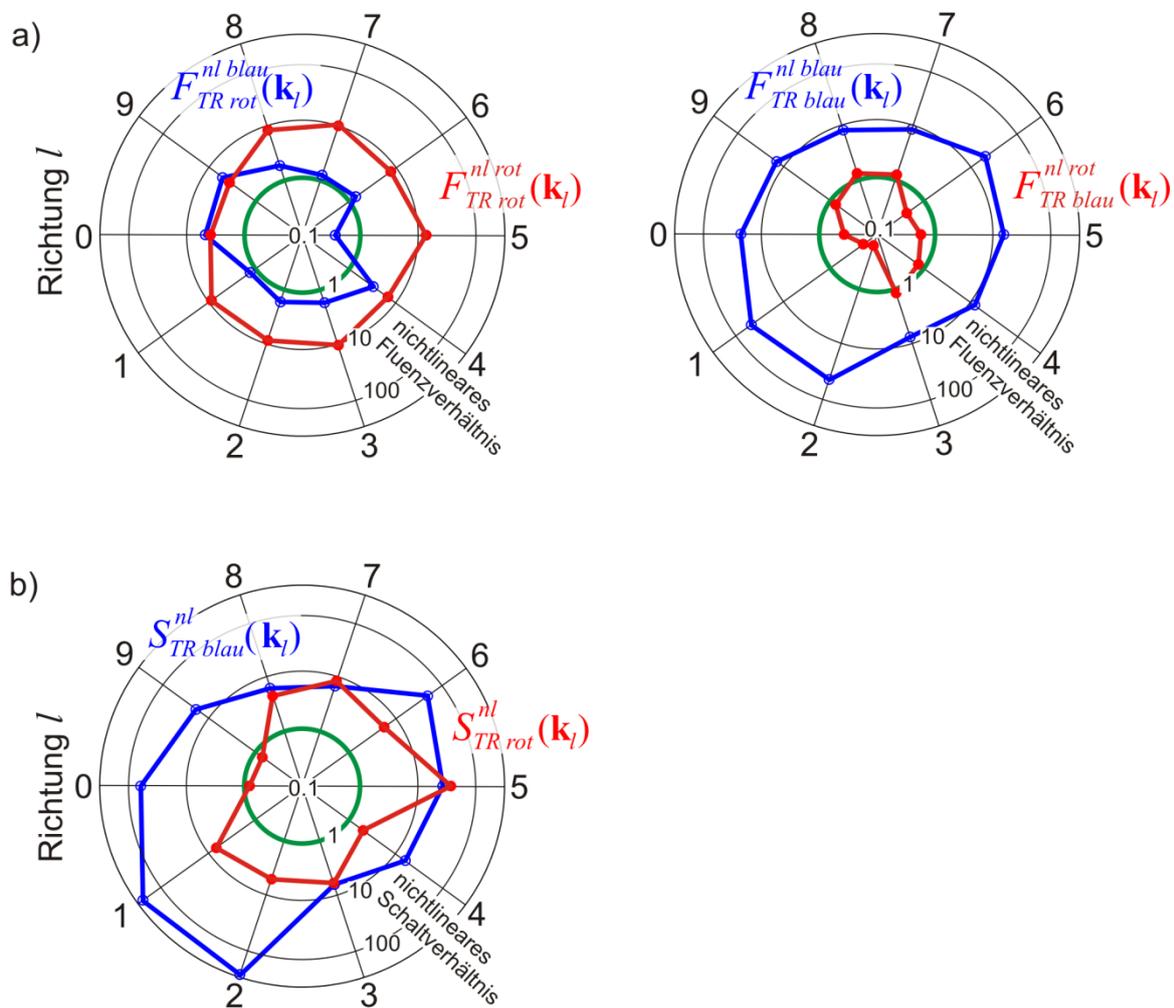


Abb. 55: a) Nichtlineare Fluenzverhältnisse $F_{TR\text{ rot/blau}}^{nl}(\mathbf{k}_l)$ für die Beleuchtung mit $TR\text{ rot}$ (linkes Diagramm) und $TR\text{ blau}$ (rechtes Diagramm) aus Richtung eines jeden Aufpunktes $l=0,1,\dots,9$ (siehe Abbildung 53 a)) in Polardarstellung. Die radiale Skala ist logarithmisch dargestellt. Die durchschnittliche nichtlineare Fluenz aller Gitterpunkte ist als grüner Kreis eingezeichnet. b) Aufgetragen sind die durch den TR-Algorithmus erreichten nichtlinearen Schaltverhältnisse $S_{TR\text{ rot/blau}}^{nl}(\mathbf{k}_l)$ für jeden Aufpunkt. Die radiale Skala ist logarithmisch dargestellt. Das nichtlineare Schaltverhältnis $S = 1$ ist als grüner Kreis eingezeichnet.

Die raumzeitliche Lichtlokalisierung wird nun durch eine zylindrische Beleuchtung (vgl.: Kapitel 6.7) untersucht. Wiederum liegt dem die Vermutung zu Grunde, dass die kohärente Superposition der zeitinvertierten Lichtpulse eine genauere Annäherung an das ursprüngliche Streulichtfeld ist. Es werden wiederum die nichtlinearen Fluenzverhältnisse bestimmt und die in Abbildung 53 a) gezeigte zylindrische Beleuchtung verwendet. Die lokalen nichtlinearen Fluenzen sind in Abbildung 56 c) - f) dargestellt. Durch Anwendung des TR-Algorithmus kommt es zu einer Fluenzlokalisierung um die Emitter. Der Unterschied zwischen aktivem und passivem Emitter ist aber nur geringfügig. Bemerkenswert ist, dass die Verteilung der nichtlinearen Fluenz unter zylindrischer Beleuchtung große Ähnlichkeit zu der Verteilung der nichtlinearen Fluenz bei planarer Beleuchtung aus der Raumrichtung 0 aufweist (siehe Abbildung 52 c) und e)). Die Richtungsabhängigkeit der nichtlinearen Fluenzverhältnisse und der nichtlinearen Schaltverhältnisse war nicht sehr stark ausgeprägt (vgl.: Abbildung 55). Das ist ein Hinweis darauf, dass die lokalen nichtlinearen Fluenzen innerhalb der Struktur unter Beleuchtung mit den TR-Pulsen nicht signifikant variieren. Für die zylindrische Beleuchtung mit dem TR-Algorithmus ergeben sich die nichtlinearen Schaltverhältnisse zu $S_{TR\ rot}^{nl} = 17$ und $S_{TR\ blau}^{nl} = 19$. Das ist eine Verbesserung der raumzeitlichen Fokussierung, verglichen mit der Beleuchtung aus einer Raumrichtung.

Durch den GA wird das Licht ausschließlich am jeweils aktiven Emitter raumzeitlich fokussiert. Man erkennt einen deutlichen Unterschied der nichtlinearen Fluenzen in der Umgebung beider Emitter. Die nichtlineare Fluenz unterscheidet sich dabei um etwa einen Faktor 10^3 zwischen aktivem und passivem Emitter. Dementsprechend hoch sind auch die nichtlinearen Schaltverhältnisse. Sie betragen $S_{AO\ rot}^{nl} = 5 \cdot 10^3$ bzw. $S_{AO\ blau}^{nl} = 8.2 \cdot 10^6$ und sind damit einige Größenordnungen größer als die durch den TR-Algorithmus erreichten Werte.

Es wurden die zeitlichen Intensitätsverläufe an zwei Gitterpunkten in unmittelbarer Nähe zu den Emittlern bestimmt. Die Positionen stimmen mit den in Abbildung 52 gezeigten Stellen überein. Dadurch sind die Simulationsergebnisse für die Beleuchtung aus einer Raumrichtung und die zylindrische Beleuchtung direkt vergleichbar. Der Lichtpuls *TR rot* erzeugt einen fast 25 fs kurzen (FWHM) und nahezu bandbreitebegrenzten Puls bei Emitter *rot* (siehe Abbildung 56 a)). Bei Emitter *blau* wird durch diesen Lichtpuls weniger Energie deponiert, jedoch auch ein fast bandbreitebegrenzter Puls induziert. Für *TR blau* werden sowohl bei Emitter *rot* als auch bei Emitter *blau* zeitlich sehr breite Pulse mit vergleichbaren Spitzenintensitäten generiert (siehe Abbildung 56 g)). Zusammengenommen mit dem geringen Kontrast in der Verteilung der nichtlinearen Fluenz ist ein Schaltprozess für den Lichtpuls *TR blau* nicht ohne weiteres zu erkennen. Im Gegensatz dazu wird durch den GA ein großer Kontrast in der raumzeitlichen Nanolokalisierung erreicht. In der Zeitdomäne werden nahezu bandbreitebegrenzte Pulse realisiert, siehe Abbildung 56 b) und h)). Dabei fällt jedoch auf, dass der durch den *AO blau* kürzeste erreichbare Puls am Emitter *blau* noch 25 fs lang ist. Der Gitterpunkt neben Emitter *blau* liegt innerhalb einer kleinen Lücke zu einem benachbarten

Nanopartikel. Dort kann sich eine Gap-Mode ausbilden, die einerseits spektral schmalbandig ist und andererseits stark an das Fernfeld koppelt. Der GA nutzt die guten Kopplungseigenschaften aus, um an diesem Gitterpunkt die Fluenz zu erhöhen. Da in den Fitnessparametern die nichtlineare Fluenz eingeht, wird diese durch die große Pulslänge wieder verringert. Die durch die Kopplungsstärke erhöhte Fluenz wiegt jedoch die zeitliche Verbreiterung auf, wodurch dieser Gitterpunkt für *AO blau* den größten Beitrag der nichtlinearen Fluenz in der Emitter-Umgebung stellt.

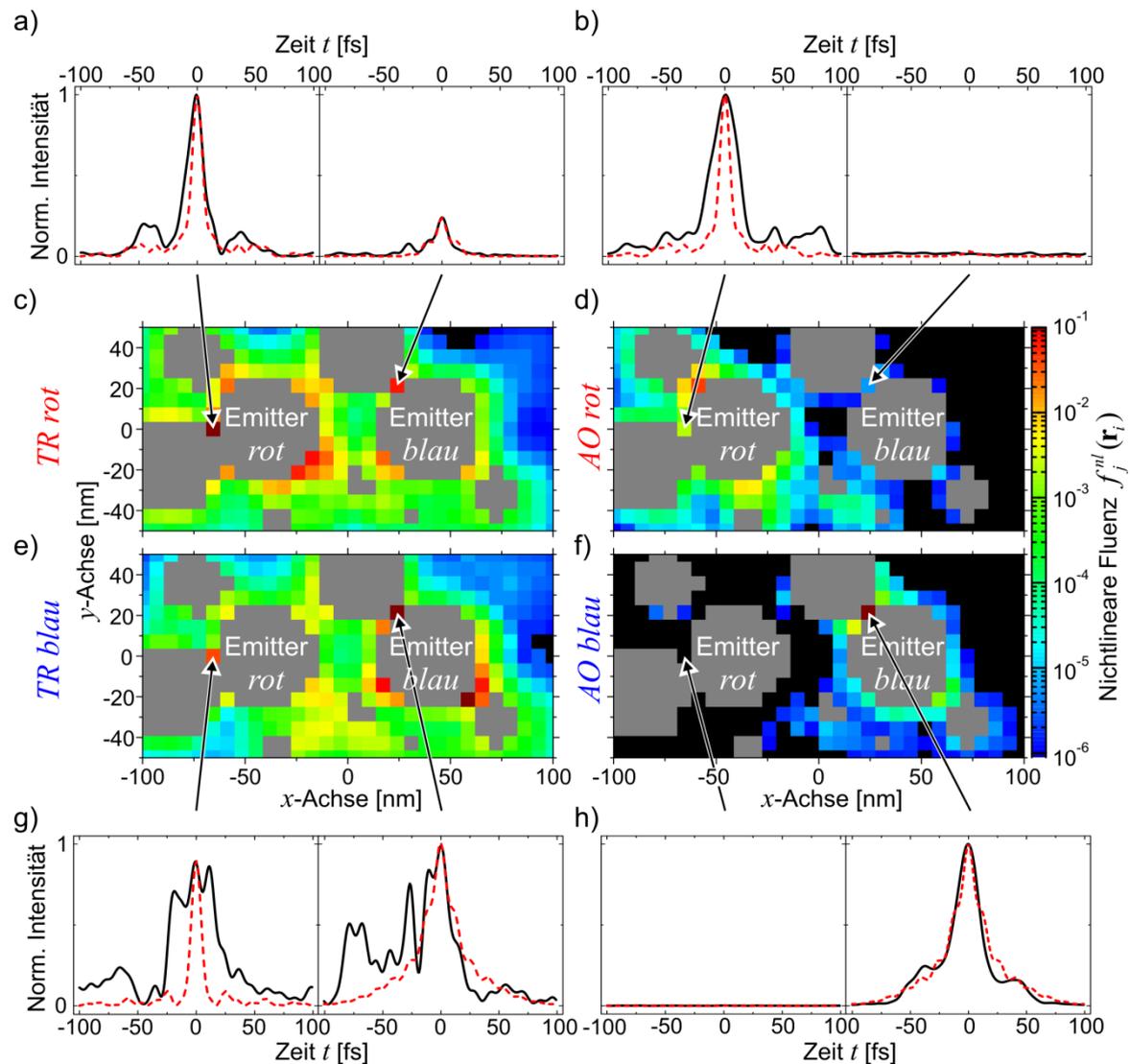


Abb. 56: Lokale zeitaufgelöste Intensitäten (a, b, g, h) (schwarze Linien) an zwei Gitterpunkten, die an dem Emitter *rot* bzw. *blau* angrenzen, markiert durch Pfeile. Sie sind auf die Maximalintensität innerhalb einer Abbildung normiert. Die Beleuchtung erfolgt zylinderförmig durch die Superposition der Nahfelder, die sich durch die Beleuchtung aus Richtung der zehn Aufpunkte ergeben. Nichtlineare Fluenzen $f_j^{nl}(\mathbf{r}_i)$ sind durch Anwendung des TR-Algorithmus in c) und e) gezeigt, die durch den GA induzierten in d) und f). Zum Vergleich sind die bandbreitebegrenzten zeitlichen Intensitätsverläufe (rot gestrichelte Kurven) eingezeichnet. Sie wurden auf die Maximalintensität des korrespondierenden Zeitsignals normiert, um die zeitliche Breite vergleichbar zu machen.

6.9 Refokussierung mit sphärischer Wiederhallkammer

In Kapitel 6.7 konnte gezeigt werden, dass der TR-Algorithmus für die Beleuchtung mit ebenen Wellen eine Richtungsabhängigkeit aufweist. Durch die Beleuchtung mit einer zylinderförmigen Welle konnte das nichtlineare Schaltverhältnis jedoch erhöht und die raumzeitliche Fokussierung somit verbessert werden (siehe Kapitel 6.8). Die in [109] und [128] präsentierte raumzeitliche Fokussierung durch Zeitumkehr im Radiofrequenzbereich nutzt eine Wiederhallkammer. Die Streustruktur ist in dieser eingebettet und die gestreuten Wellen werden an den Wänden teilweise mehrfach reflektiert, bevor sie den TRM erreichen. Die auf diese Weise gestreuten Wellen erreichen den TRM sowohl zeitversetzt als auch aus unterschiedlichen Richtungen. Da der TRM aus mehreren Sender/Empfänger-Einheiten besteht, können auch die Richtungsabhängigkeiten korrekt wiedergegeben werden. Eine Vermutung wäre, dass durch eine Wiederhallkammer mehr Raumrichtungen berücksichtigt werden können, um eine exakte Zeitumkehr genauer zu approximieren. Das Konzept einer Wiederhallkammer kann nicht direkt für den optischen Spektralbereich übernommen werden. Es wird im Folgenden ein entsprechendes Analogon vorgestellt, mit dessen Hilfe die Nanolokalisierung durch Zeitumkehr erreicht werden soll.

Ein mögliches Design einer Wiederhallkammer für sichtbares Licht ist in Abbildung 57 a) gezeigt. Die Streustruktur wird in eine Hohlkugel mit einem Innendurchmesser von $3\ \mu\text{m}$ eingebettet. Sie besteht aus Gold und besitzt eine Öffnung in der $200\ \text{nm}$ dicken Wand, durch die Streulicht nach außen dringen bzw. zeitlich in seiner Propagation invertiert zurück geschickt werden kann. Die Streustruktur ist leicht versetzt vom Mittelpunkt der Wiederhallkammer positioniert, damit Licht, das an den Wänden reflektiert wurde, nicht direkt wieder auf die Streustruktur zurück fokussiert wird. Innerhalb der Streustruktur ist die Ortsauflösung des Gitters besonders hoch gewählt um die Rundungen der Nanopartikel ausreichend gut zu approximieren. Größe und Ausrichtung des Gitters sind analog zu dem Gitter gewählt, das in den Simulationen mit MESME verwendet wurde. Die Abstrahlung von den Emittoren ist weiterhin dipolartig, mit der Dipolachse parallel zur z -Achse. Der Aufpunkt liegt im Fernfeld vor der Öffnung bei $\mathbf{r} = (0, -2.9, 0)\ \mu\text{m}$. Der Durchmesser der Öffnung beträgt $1\ \mu\text{m}$ und ist somit größer als das Beugungslimit. Die Öffnung ist so groß gewählt, damit Licht effizient ins Fernfeld gekoppelt werden kann und die Transmission keine starke Wellenlängenabhängigkeit aufweist. Simulationen ergaben über einen Frequenzbereich von $1.9 - 2.7\ \text{rad fs}^{-1}$ eine vernachlässigbar kleine Variation von weniger als 10% in der Transmission.

Da Streusimulationen an nichtsphärischen Streuobjekten nicht mit MESME durchgeführt werden können, wird im Folgenden ein FDTD-Verfahren eingesetzt. Dabei werden Zeit und Raum diskretisiert. In der einfachsten Ausführung wird der Raum dabei in quadratische Zellen aufgeteilt. Der Vorteil besteht darin, dass die Maxwell-Gleichungen für beliebige Geometrien gelöst werden können. Bei runden Oberflächen kommt es

jedoch aufgrund der schlechten Annäherung durch die quadratischen Zellen zu Artefakten („staircasing“). Um dieses Problem zu minimieren, wurde um die Streustruktur herum eine besonders hohe räumliche Auflösung von 1 nm gewählt. Der zeitliche Bereich der Simulation beträgt 300 fs. Die zu Beginn der Simulation außerhalb der Wiederhallkammer herrschende maximale Intensität des elektrischen Feldes hat in dieser Zeit um etwa zwei Größenordnungen abgenommen. Das bedeutet, dass der größte Anteil des Streulichtes nach dieser Zeit die Wiederhallkammer verlassen hat.

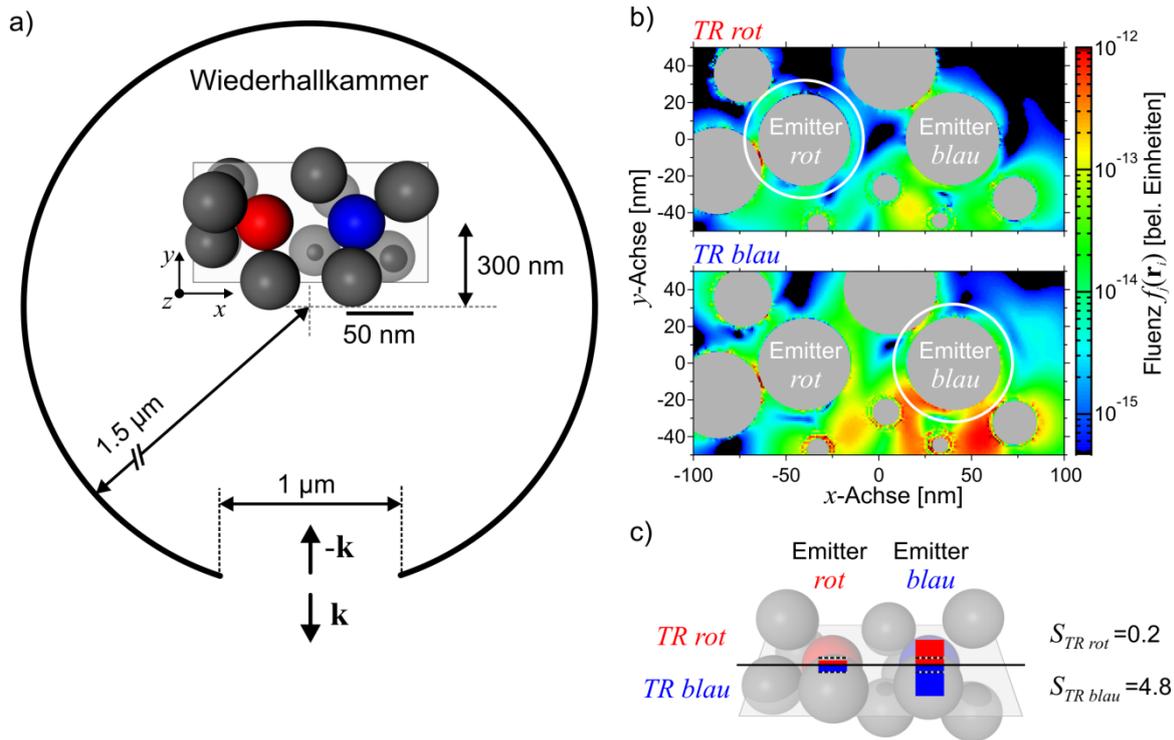


Abb. 57: a) Schematisches Bild der Nanolokalisierung durch Zeitumkehr mithilfe einer Wiederhallkammer, in der eine Streustruktur eingebettet ist. Die Mitte der Wiederhallkammer ist durch grau gestrichelte Linien markiert, die Streustruktur ist dazu versetzt positioniert. Die Größenskalen für die Wiederhallkammer und Streustruktur sind unterschiedlich. b) Lokale Fluenz $f_j(\mathbf{r}_i)$ auf den in der x - y -Ebene liegenden Gitterpunkten nach Beleuchtung mit $TR\ rot$ (oben) und $TR\ blau$ (unten). Die weißen Kreise markieren einen 32 nm Radius um das Zentrum eines Emitters. Gitterpunkte, die innerhalb von Nanopartikeln liegen, sind ausgegraut. c) Fluenzverhältnisse $F_{TR\ rot/blau}^{rot/blau}$ und Schaltverhältnisse $S_{TR\ rot/blau}$ ergeben sich durch Beleuchtung mit ebenen Wellen durch die Öffnung. Zur Berechnung der Verhältnisse wurden dieselben Gitterpunkte wie in den mit MESME durchgeführten Rechnungen ohne Wiederhallkammer verwendet (vgl.: Kapitel 6.5).

Im Gegensatz zu MESME können mit Lumerical Core-Shell-Partikel nur schwer berechnet werden. Zur Modellierung der sehr dünnen Metallschicht der Hülle müsste die räumliche Auflösung entsprechend hoch sein. Um dies zu umgehen, wurde ein alternativer Ansatz gewählt: Für ein Core-Shell-Partikel lässt sich eine effektive Suszeptibilität angeben, die sich aus den Radien und Suszeptibilitäten des Kerns und der

Hülle zusammensetzt [129]. Berechnungen der SCS eines Core-Shell-Partikels durch MESME und Lumerical lieferten identische Resultate und verifizierten diesen Ansatz.

Das beim Aufpunkt \mathbf{r} berechnete Streulicht wird gemäß dem TR-Algorithmus als ebene Welle zurück auf die Wiederhallkammer propagiert. Die dadurch resultierenden lokalen Fluenzen $f_{TR\ rot/blau}(\mathbf{r}_i)$ sind in Abbildung 57 b) dargestellt. Nur in der unmittelbaren Umgebung der Nanopartikel treten staircaising-Effekte auf. Der größte Teil der Fluenzverteilung wird davon jedoch nicht beeinflusst. Der Lichtpuls *TR blau* induziert hauptsächlich im Bereich vor Emitter *blau* (negative y -Achse) hohe Fluenzamplituden. Im Vergleich dazu ist die Fluenz um den Emitter *rot* geringer. Die durch den *TR rot* induzierte lokale Fluenz unterscheidet sich davon nur geringfügig. Sie steigt in negativer y -Richtung an, eine Lokalisierung um einen der Emitter ist jedoch nicht zu beobachten. Dies spiegelt sich auch in den berechneten Fluenz- und Schaltverhältnissen wider, siehe Abbildung 57 c). Für beide Lichtpulse wird eine Fluenzlokalisierung um Emitter *blau* erreicht, während die Fluenz um Emitter *rot* sich nicht von der durchschnittlich erreichten Fluenz unterscheidet. Das Schaltverhältnis für *TR rot* ist kleiner als eins und ein Schaltprozess ist dementsprechend nicht möglich.

Im Fall ohne Wiederhallkammer konnte durch die Beleuchtung mit *TR rot* aus negativer y -Richtung ebenfalls kein Schaltprozess beobachtet werden (siehe Abbildung 53 c) $l=2,3$). Durch die Verwendung einer Wiederhallkammer wurde somit keine Verbesserung der Nanolokalisierung erreicht.

6.10 Vergleich zwischen Zeitumkehr und adaptiver Optimierung

Die räumliche Nanolokalisierung von Lichtpulsen durch den TR-Algorithmus weist starke Abhängigkeiten von der Wahl des Aufpunktes auf, aus dessen Richtung mit ebenen Wellen beleuchtet wird (siehe Kapitel 6.7). Ein Umschalten der räumlichen Fluenzlokalisierung ist für *TR rot* nur für die Hälfte der Aufpunkte zu beobachten. Für die Beleuchtung aus diesen Raumrichtungen gibt es eine gute Kopplung von Fernfeld- und Nahfeldmoden und infolgedessen kann eine Nanolokalisierung erreicht werden. Die Betrachtung des linearen Schaltverhältnisses beinhaltet jedoch nicht die zeitliche Fokussierung des Lichtpulses. Wird hingegen das nichtlineare Schaltverhältnis beobachtet, so ist die Abhängigkeit von der Beleuchtungsrichtung nicht mehr ausschlaggebend (siehe Kapitel 6.8). Es sind dann nur noch zwei Beleuchtungsrichtungen für den Lichtpuls *TR rot*, bei denen kein Schalten der nichtlinearen Fluenz zu beobachten ist. Daher wird geschlussfolgert, dass nur eine vollständige Betrachtung von räumlicher als auch zeitlicher Lichtlokalisierung den Prinzipien des TR-Algorithmus gerecht wird.

Eine ausgeprägte Richtungsabhängigkeit besteht jedoch weiterhin sowohl für die linearen als auch die nichtlinearen Fluenzverhältnisse. Das zeigt, dass eine effiziente Kopplung von Fernfeldmoden an Nahfeldmoden nur für bestimmte Raumpunkte möglich ist. Dies erklärt, dass in [28] eine raumzeitliche Nanofokussierung durch Zeitumkehr innerhalb einer plasmonischen 2D-Nanostruktur erreicht werden konnte. Dort wird bereits im Vorfeld ein Emitter derart in die Nanostruktur eingebettet, dass eine besonders gute Kopplung zwischen Nah- und Fernfeld zustande kommt. Die Emitterposition ist bei dieser Vorgehensweise aber nicht zufällig gewählt, was nur schwer experimentell zu realisieren ist. Durch eine zylindrische Beleuchtung konnte das nichtlineare Schaltverhältnis deutlich erhöht werden. Für beide Pulse *TR rot* und *TR blau* konnte in dieser Beleuchtungskonfiguration eine raumzeitliche Lichtlokalisierung nachgewiesen werden. Durch die Verwendung einer Wiederhallkammer (Kapitel 6.9) wurde hingegen keine räumliche Lichtlokalisierung durch den TR-Algorithmus beobachtet.

Ein möglicher Ansatz zur Verbesserung der Subwellenlängenfokussierung durch den TR-Algorithmus wird in [125] aufgezeigt. Dort wurde die Fokussierung von Schallwellen in einer mit Luftbläschen versetzten Flüssigkeit betrachtet. In dem Fall wird eine Nanofokussierung nur dann erreicht, wenn im verwendeten Spektralbereich keine Resonanzen der streuenden Luftbläschen auftreten. Die dort auftretenden Resonanzen weisen eine zu geringe Güte auf. Zudem verringert Absorption die Effektivität des TR-Algorithmus. Dadurch könnte es sich als nachteilig erweisen, dass in den hier vorgestellten Simulationen im sichtbaren Spektralbereich resonante Core-Shell-Partikel verwendet wurden, obwohl deren Absorption nur sehr gering sein sollte.

Durch die Verwendung eines GA wurde versucht, die maximal möglichen linearen und nichtlinearen Schaltverhältnisse zu bestimmen. Die so erreichten Werte waren um Größenordnungen höher als die durch den TR-Algorithmus erzielten. Das war unabhängig davon ob mit einer ebenen oder zylindrischen Welle beleuchtet wurde. AO-Verfahren, wie der hier verwendete GA, profitieren von einem großen Phasenraum und können für Beleuchtung aus einer oder mehreren Raumrichtungen eine raumzeitliche Nanofokussierung erreichen. Die Größe des Phasenraumes wird dabei durch die Anzahl an Beleuchtungsrichtungen und die Komplexität der Streustruktur bestimmt. Es wurde eine komplizierte Streustruktur benutzt und zehn verschiedene Beleuchtungsrichtungen gewählt. Dadurch konnte ein höherer Grad der Nahfeldkontrolle erreicht werden als in geordneten Nanostrukturen [106, 130, 131]. Gründe für die gute Nahfeldkontrolle in der randomisierten Nanostruktur müssten durch statistisch belastbare Untersuchungen identifiziert werden, welche jedoch nicht Teil dieser Arbeit sind. Es liegt die Vermutung nahe, dass die große Anzahl plasmonischer Moden innerhalb einer randomisierten Nanostruktur über den Grad der Nahfeldkontrolle entscheiden. Eine stärkere Lichtlokalisierung in randomisierten Nanostrukturen gegenüber geordneten Nanostrukturen konnte ebenfalls in [132] beobachtet werden. Die Erkenntnisse aus diesen numerischen Simulationen werden in Kapitel 7 verwendet, um experimentell die Nahfeldkontrolle durch AO-Methoden in randomisierten Medien zu demonstrieren.

7 Adaptive Nahfeldkontrolle in randomisierten 3D Streustrukturen

In Experimenten konnte die adaptive Kontrolle von optischen Nahfeldern durch die Verwendung regulärer Nanostrukturen experimentell demonstriert werden [25]. Dazu wurden durch einen Pulsformer geformte Lichtpulse auf eine reguläre Silber-Nanostruktur geschickt, wo sie zu räumlich fokussierten Nahfeldverteilungen führten. Durch einen genetischen Algorithmus (GA) wurden die Lichtpulse dann derart geformt, dass ein Umschalten der Nahfeldverteilungen zwischen verschiedenen Raumbereichen innerhalb der Silber-Nanostruktur erreicht wurde. Dieses Experiment wurde zusätzlich noch mit Zeitauflösung durch eine Pump-Probe-Anordnung durchgeführt [21]. Dadurch konnte sowohl eine räumliche Lichtlokalisierung als auch ein Umschalten der selbigen innerhalb eines ultrakurzen Lichtpulses demonstriert werden. Ermöglicht wird dies durch die Abhängigkeit der räumlichen Nahfeldverteilung von der Phase eines beleuchtenden Lichtpulses [106, 107].

Die in einem ultrakurzen Lichtpuls enthaltene Information wird auf diese Weise in räumlich getrennte Kanäle aufgespalten. Das ist auch als „optisches Multiplexing“ bekannt. Eine häufig angewandte Variante ist das Wellenlängen-Multiplexing-Verfahren [133]. Dabei werden Signale durch das Licht übertragen. Verschiedene Wellenlängen werden dabei als voneinander unabhängige Signalkanäle verwendet. Sie werden zusammen innerhalb einer Glasfaser geführt. Die anschließende Signaltrennung erfolgt durch einen sogenannten Demultiplexer, der das zusammengefasste Signal wieder in die einzelnen unabhängigen Signalkanäle aufspaltet [134]. Auf diese Weise lassen sich hohe Datendurchsätze erreichen. Die zur Auftrennung notwendigen optischen Strukturen sind jedoch bis zu 5 cm groß. Dadurch können sie nicht auf einem Chip untergebracht werden.

Ein Ansatz für einen plasmonischen „On-Chip“-Demultiplexer wird in [135] vorgestellt. Die Aufspaltung des optischen Signals wird durch eine speziell designte Fano-Nanoantenne erreicht. Trifft das wellenlängenkodierte Lichtsignal auf die Fano-Nanoantenne, werden die einzelnen Signalkanäle in unterschiedliche Richtungen abgestrahlt und somit räumlich getrennt. In dem Experiment wurden zwei Signalkanäle verwendet. Um deren Anzahl weiter zu erhöhen, wird dort vorgeschlagen, komplexere Nanostrukturen zu verwenden.

In Kapitel 6 konnte gezeigt werden, dass in randomisierten Nanostrukturen eine Vielzahl plasmonischer Resonanzen auftritt, die an Fernfeldmoden koppeln. Signalinformationen wären durch verschiedene Pulsformen im Fernfeld kodiert. Da die unterschiedlichen Pulsformen zu räumlich getrennten Nahfeldlokalisierungen innerhalb einer Streustruktur führen, ließen sich die Signalkanäle aufspalten. Aufbauend auf den in Kapitel 6 gezeigten numerischen Simulationen wird hier ein optischer Nano-Demultiplexer in Form einer

randomisierten Streustruktur vorgestellt. Zur Kontrolle der optischen Nahfelder kommt dabei ein adaptives Optimierungsverfahren (AO) zum Einsatz.

Zur Umsetzung des Experiments werden die in Kapitel 6 gewonnenen Erkenntnisse berücksichtigt. Dementsprechend kommt ein AO-Verfahren zum Einsatz und es wird eine äquivalente Streustruktur verwendet. Die Herstellung einer geeigneten Streustruktur wird im folgenden Kapitel 7.1 beschrieben. Zur Bestimmung der optischen Nahfelder wird hier ein rein optisches, auf Fluoreszenzmission basierendes Verfahren eingesetzt. Der zur Messung verwendete Versuchsaufbau, welcher ein Fluoreszenzmikroskop und den Vektorfeldsynthesizer (VFS) (siehe Kapitel 4) beinhaltet, wird in Kapitel 7.2 vorgestellt. Die verwendete Probe wurde durch Lichtmikroskopie, Fluoreszenzmikroskopie und TEM-Messungen (Transmissions-Elektronen-Mikroskop) charakterisiert, die Resultate sind in Kapitel 7.3 aufgeführt. Die Manipulation optischer Nahfeldverteilungen innerhalb der Streustruktur mithilfe eines GA wird in Kapitel 7.4 vorgestellt und ausgewertet. Die Resultate werden in Kapitel 7.6 zusammengefasst und beschrieben. Bei diesem Experiment handelt es sich um einen ersten „Proof of Concept“, welcher aufgrund zeitlicher Limitierungen noch nicht wiederholt werden konnte. Im Anschluss wird deshalb diskutiert, was in zukünftigen Experimenten noch verbessert werden kann.

7.1 Herstellung randomisierter Streustrukturen

Zur Herstellung einer geeigneten Streustruktur werden Nanopartikel (NP) verwendet. Sie sind aus verschiedenen Materialien und in variablen Größen kommerziell erhältlich. Es wurden hier Gold-Nanopartikel (Au-NP) mit einem Durchmesser von 250 nm (Sigma Aldrich) benutzt. Zur Stabilisierung wurden sie mit einer Citrathülle versehen. Die Ausbildung von randomisierten Nanopartikel-Aggregaten kann erreicht werden, indem ein Tropfen einer Au-NP-haltigen Lösung verdampft wird. Die Größe der Aggregate kann dabei über die Konzentration und Verdampfungsgeschwindigkeit eingestellt werden. Durch die geringe Verdampfungsgeschwindigkeit von Wasser können sich Aggregate geeigneter Größe ausbilden. Verwendet man hingegen schnell verdampfende Lösungsmittel, wie z. B. Methanol, bleiben hauptsächlich Monomere und Dimere auf der Oberfläche zurück. Als Substrat wurden TEM-Netzchen verwendet (Plano S 160-4). Zur Entfernung organischer Rückstände wurde die Probe mit Aceton gewaschen. Die Gold-Aggregate bleiben dabei weitgehend unverändert auf dem Substrat zurück.

Die Implementierung von Emitterpartikeln in die Streustruktur gestaltet sich komplizierter. In der Streustruktur aus Kapitel 6 wurden zwei idealisierte Emitterpartikel verwendet. Sie können einerseits einen kurzen Lichtpuls emittieren und andererseits

messen, wie hoch die Lichtkonzentration am Emitterpartikel ist. Die Emission eines Lichtpulses war dort notwendig, um den TR-Algorithmus umzusetzen. Da hier der wesentlich effizientere GA angewandt wird, ist die Emission von Lichtpulsen nicht notwendig. Zur Messung der Lichtkonzentration an einem Raumpunkt, können Quantenpunkte (QD, engl. **Quantum Dots**) [136] verwendet werden. Durch Lichtanregung strahlen diese charakteristische Fluoreszenzstrahlung ab, deren Wellenlänge von der Partikelgröße abhängig ist. Um eine raumzeitliche Lichtkonzentration zu detektieren, wird analog zur nichtlinearen Fluenz $f^{nl}(\mathbf{r})$ (Gl. 6.12) in Kapitel 6.6, ein nichtlineares Messsignal benötigt. Dazu wird ausgenutzt, dass die hier benutzten QD besonders effizient im UV-Bereich zur Fluoreszenz angeregt werden können, nicht jedoch im IR-Bereich. Durch die Verwendung ultrakurzer Lichtpulse bei 790 nm kann keine Fluoreszenzabstrahlung erreicht werden. Stattdessen werden die QD durch einen nichtlinearen Zwei-Photonen-Absorptionsprozess zur Fluoreszenz angeregt. Die Fluoreszenz steigt dann quadratisch mit der Intensität. Durch die Verwendung von zwei Emitterpartikeln konnte in den Simulationen die Lichtkonzentration an zwei verschiedenen Positionen innerhalb der Streustruktur berechnet werden. Im Experiment ist eine gezielte Deposition von einzelnen QD hingegen nur mit großem Aufwand zu realisieren. Es wird daher ein leicht abgeänderter Ansatz verfolgt, der im Folgenden beschrieben wird.

Im Weiteren werden zwei verschiedene Arten von kommerziell erhältlichen QDs (Can GmbH) verwendet. Die im Folgenden als „ QD^{blau} “ (CdSe Core, CanDots Series A) bezeichneten QDs emittieren Licht bei einer Zentralwellenlänge von 525 nm. Sie sind kugelförmig und haben einen Durchmesser von etwa 2.8 nm. Die als „ QD^{rot} “ (CdSe/CdS Core/Shell, CanDots Series A plus) bezeichneten QDs emittieren bei 590 nm und sind elliptisch geformt mit einer Breite von etwa 6 nm und einer Länge von etwa 25 nm. Beide QD-Sorten liegen in Hexan gelöst vor und können durch Verdunstung des Lösungsmittels auf einer Oberfläche aufgebracht werden. Lässt man ein Gemisch beider QD-Sorten auf einem Au-NP-Aggregat eintrocknen, so lagern sich die QDs in der Umgebung der Au-NP an. Das ist in einer schematischen Darstellung der Streustruktur in Abbildung 58 gezeigt. Die QD^{blau} und QD^{rot} lagern sich inhomogen zwischen den Au-NP (gelb) an. Die Inhomogenität kommt dabei durch statistische Fluktuationen bei der QD-Abscheidung zustande. Je geringer die Konzentration der QD-Lösung gewählt wird, desto größer sollten auch die Inhomogenitäten werden. Dabei sinkt jedoch auch die Anzahl an QDs auf der Probenoberfläche, was eine Abnahme des Fluoreszenzsignals zur Folge hat. In der Herstellung wurde eine Konzentration von 5 $\mu\text{mol/L}$ verwendet. Wenn sich unter Beleuchtung mit kurzen intensiven Lichtpulsen Nahfelder innerhalb des Au-NP-Aggregats ausbilden, kommt es zur Zwei-Photonen-Anregung und Fluoreszenzemission von den QDs. Dabei erhöht sich die Abstrahlung für die QDs, die sich innerhalb einer Nahfeldmode befinden. Ist die lokale Konzentration von QD^{blau} größer, so wird in einem größeren Maß blaues Fluoreszenzlicht detektiert. Ist die von QD^{rot} größer, wird entsprechend ein erhöhtes rotes Fluoreszenzsignal gemessen. Das Fluoreszenzsignal ist

damit abhängig von der lokalen Nahfeldausbildung. Durch den *Puls A* bildet sich eine starke Nahfeldmode im linken Bereich der Streustruktur aus. Dementsprechend werden hauptsächlich die QD^{rot} zur Fluoreszenz angeregt und deren Emission detektiert. Trifft der *Puls B* auf die Streustruktur, bildet sich im rechten Bereich eine stärkere Nahfeldmode aus und es wird mehr Fluoreszenzlicht von QD^{blau} emittiert.

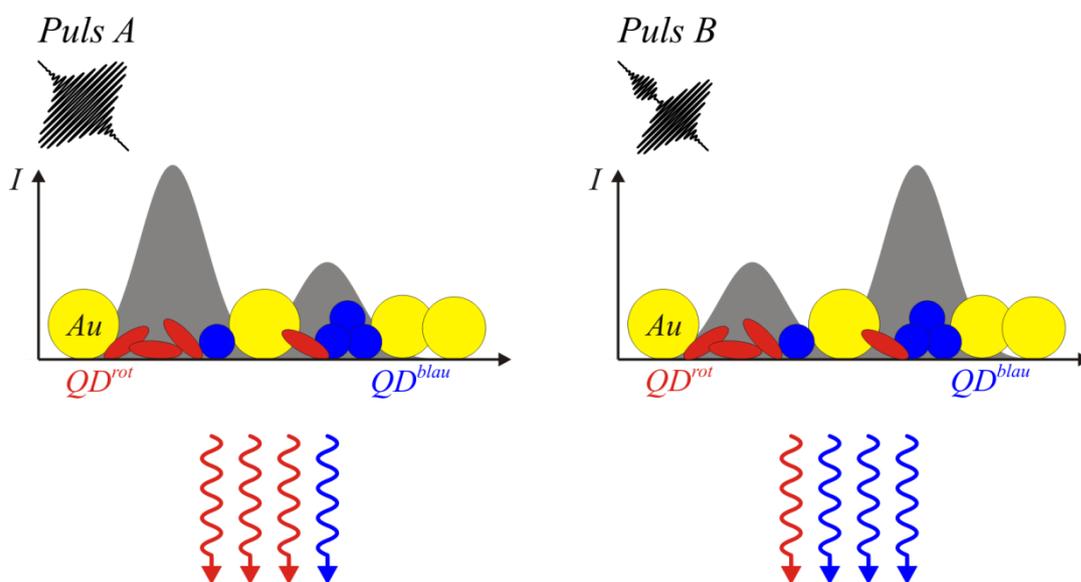


Abb. 58: Schematische Darstellung der Fluoreszenzausbeute durch Anregung mit den Pulsen A und B. Sie erzeugen unterschiedliche Nahfeldverteilungen (grau schattierte Flächen) innerhalb des Au-NP-Aggregates (gelbe Kreise). Die QD^{rot} (rote Kreise) und QD^{blau} (blaue Kreise) strahlen je nach Anregungsintensität Fluoreszenzlicht ab (rote bzw. blaue Linien). Die QDs sind vergrößert dargestellt.

7.2 Zwei-Photonen-Fluoreszenzmikroskop

Der Aufbau des verwendeten Zwei-Photonen-Fluoreszenzmikroskops ist in Abbildung 59 dargestellt. Zur nichtlinearen Anregung der QDs werden ultrakurze Lichtpulse aus dem VFS (siehe Kapitel 4) über ein Cassegrain-Objektiv (Ealing, x25, NA=0.4) auf die Probe fokussiert. Da es eine rein reflektiv fokussierende Optik ist, erfährt der Laserpuls hier keine Dispersion. Das von der Oberfläche zurückreflektierte Licht wird mit einer Linse auf eine Photodiode (PD) fokussiert. Durch einen Operationsverstärker kann der induzierte Strom von einer Messkarte erfasst werden. Das Spannungssignal ist proportional zu der Leistung des von der Oberfläche reflektierten Lichtes und wird mit P_{refl} bezeichnet.

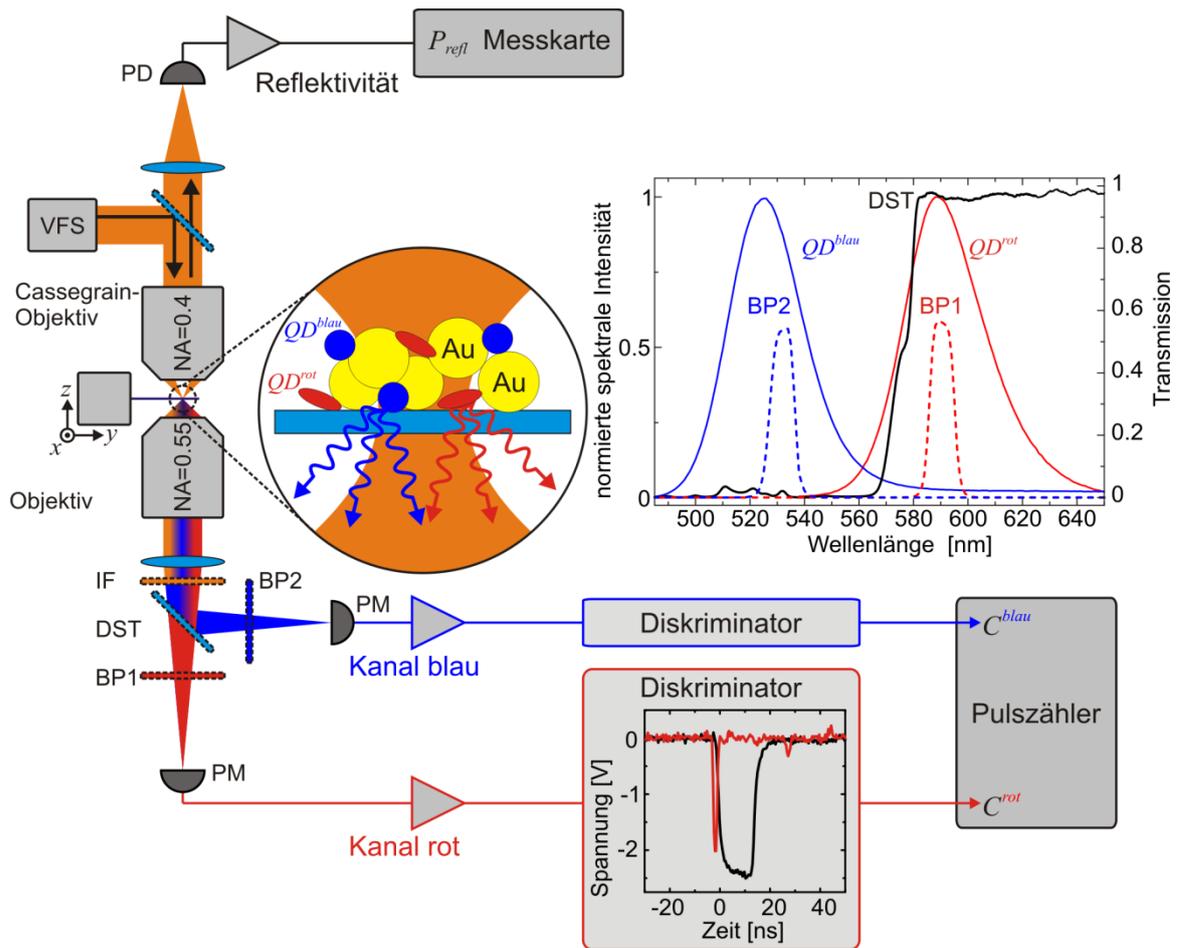


Abb. 59: Nichtlineare Zwei-Kanal-Fluoreszenzdetektion. Geformte Lichtpulse aus dem VFS (orangener Strahlengang) werden durch ein Cassegrain-Objektiv auf die Probe fokussiert. Das von der Probenoberfläche zurück reflektierte Licht wird durch eine Linse auf die Photodiode PD fokussiert. Eine schematische vergrößerte Darstellung der Probe visualisiert die nichtlineare Fluoreszenzabstrahlung. Au-NP sind gelb dargestellt, QD^{rot} in rot und QD^{blau} in blau. Die QDs sind vergrößert dargestellt. Das Fluoreszenzlicht wird über ein weiteres Objektiv aufgesammelt und durch den dichroitischen Strahlteiler DST farblich getrennt auf Photomultiplier PM abgebildet. Das Anregungslicht wird über den Infrarotfilter IF unterdrückt. Operationsverstärker sind als Dreiecke eingezeichnet. Das Eingangssignal am Diskriminator (rote Kurve) und das resultierende Ausgangssignal (schwarze Kurve) sind exemplarisch für den Kanal rot dargestellt. Der Pulszähler summiert die eintreffenden Spannungspulse innerhalb eines festen Zeitintervalls, wodurch sich die Zählraten C^{rot} und C^{blau} ergeben. Die Fluoreszenzspektren von QD^{rot} und QD^{blau} sind als Graph eingefügt (linke Achse). Des Weiteren sind die Transmissionen des DST und der Filter BP1 und BP2 aufgetragen (rechte Achse).

Der auf die Probe fokussierte Ultrakurzpulslaser regt Nahfeldmoden in der Streustruktur an, was zur Emission von Fluoreszenzstrahlung durch die DQs führt. Das ist schematisch im vergrößerten Ausschnitt der Probe gezeigt. Die normierte spektrale Intensität der Fluoreszenzstrahlung ist für beide QD-Sorten im Diagramm gezeigt. Sie haben nur einen sehr geringen Überlapp bei 560 nm. Die Probe ist auf einem x - y - z -Piezoverschiebetisch angebracht, wodurch der Fokus über die Probenoberfläche hinweg verfahren werden kann. Ein weiteres Objektiv (Zeiss Epiplan-Neofluar 50x/0.55 DIC, NA=0.55) ist auf der

anderen Seite der Probe montiert. Dessen Fokuspunkt befindet sich exakt auf dem Fokuspunkt des Cassegrain-Objektives. So wird ein Großteil des Fluoreszenzlichtes von der Probe aufgesammelt und anschließend durch eine Linse auf die Detektoren fokussiert. Das Anregungslicht wird durch einen Infrarotfilter (IF) unterdrückt. Dabei ist es wichtig, dass der IF hinter der Linse und nicht zwischen Linse und Detektions-Objektiv platziert wird, da sonst ein weiterer Fokuspunkt des Fundamentallichtes auf der Probe erzeugt wird. Über einen dichroitischen Strahlteiler (DST: Semrock HC BS 573) wird der rote und blaue Spektralbereich des Fluoreszenzlichtes separiert. Die Transmissionskurve des DST ist ebenfalls im Diagramm eingezeichnet. Der Wechsel von geringer Transmission zu hoher Transmission liegt fast exakt zwischen den Fluoreszenzspektren beider QD-Sorten. Ein kleiner Anteil der Fluoreszenz von QD^{blau} wird jedoch transmittiert und ein Teil der Fluoreszenz von QD^{rot} entsprechend reflektiert. Um dies zu verhindern, wurden zusätzlich noch Bandpassfilter (BP1: Thorlabs FB530-10, BP2: Thorlabs FB590-10) verwendet. Das Fluoreszenzlicht gelangt dann auf die Photomultiplier (Kanal rot: Hamamatsu H10721-110, Kanal blau: Hamamatsu H10721-210). Sie sind so empfindlich, dass auch noch einzelne Photonen detektiert werden können. Die durch Lichteinfall auf den PM erzeugten Strompulse werden durch spektral sehr breitbandige Operationsverstärker (Phillips Scientific Model 6954 und Mini-Circuits ZX60-4016E-S+) in Spannungspulse gewandelt. Diese variieren in ihrer Amplitude und zeitlichen Länge. Deshalb wird jeder Einzelplus durch den Diskriminator (Tennelec TC454) in einen Spannungspuls mit normierter Spannungsamplitude und zeitlicher Länge umgewandelt. Das ist exemplarisch für einen in Kanal rot gemessenen Spannungspuls im Diskriminator in Abbildung 59 gezeigt. Die normierten Spannungspulse können anschließend von einem Pulszähler erfasst werden. Die Anzahl an Spannungspulsen, die in einem festen Zeitintervall gezählt werden, wird im Folgenden als Zählrate $C^{rot/blau}$ bezeichnet.

In späteren Messungen wird der Fokus Punkt für Punkt über die Probenoberfläche gefahren. An jedem Punkt werden die Reflektivität P_{refl} und die in Kanal rot bzw. Kanal blau detektierten Zählraten $C^{rot/blau}$ aufgezeichnet. Auf diese Weise erhält man ortsaufgelöste Darstellungen der Oberflächenreflektivität und der Fluoreszenzemissionen beider QD-Sorten.

7.3 Probencharakterisierung

Die Proben wurden nach dem in Kapitel 7.1 beschriebenen Verfahren präpariert. Als Substrat wurden TEM-Netzchen mit einem 10-15 nm dünnen Trägerfilm aus amorphen Kohlenstoff (Plano S160-4) verwendet. Der Vorteil dieser im Vergleich zu herkömmlichen Glassubstraten besteht darin, dass keine störende Eigenfluoreszenz des Glases beobachtet wird. Die erzeugte Fluoreszenzstrahlung durchdringt die dünne

Kohlenstoffmembran ohne signifikante Verluste und kann anschließend detektiert werden. Um die Anordnung der Au-NP und QDs auf der Oberfläche zu untersuchen, wurden TEM-Aufnahmen von der Probenoberfläche angefertigt. Sie sind in Abbildung 60 gezeigt. Untersucht wurde dabei eine Probe auf der ausschließlich Au-NP und QD^{blau} deponiert wurden.

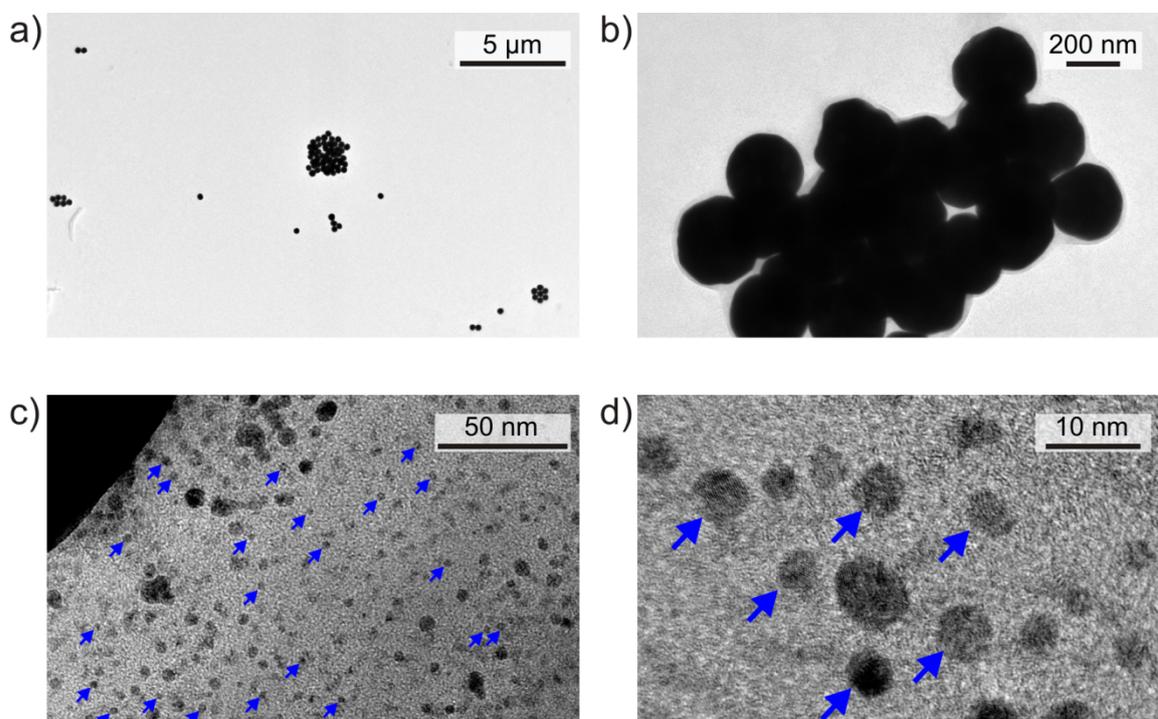


Abb. 60: TEM-Aufnahmen der Probenoberfläche. a) Übersicht über verschiedene Au-NP-Aggregate. b) Detailaufnahme eines Au-NP-Aggregats. c) Anordnung von QD^{blau} (markiert durch blaue Pfeile), der Rand eines Au-NP ist oben links zu sehen. d) Detailaufnahme von QD^{blau} (markiert durch blaue Pfeile).

In der Übersicht a) sind typisch auftretende Au-NP-Aggregate gezeigt. Es sind Monomere, Dimere und kleinere symmetrisch angeordnete Strukturen erkennbar. In der Bildmitte ist ein größeres Agglomerat zufällig angeordneter Au-NP zu sehen. Eine in b) gezeigte Detailaufnahme eines Au-NP-Aggregates veranschaulicht deren zufällige Anordnung. Aus der Verteilung der Au-NP lässt sich schlussfolgern, dass sie in mehreren Schichten übereinander gestapelt vorliegen und somit 3D-Strukturen ausbilden. Eine weitere Vergrößerung in c) zeigt die Umgebung eines Au-NP mit deponierten QD^{blau} . Zu erkennen ist eine Vielzahl kleinerer Nanopartikel, deren Durchmesser zwischen 2 nm und 10 nm variiert. Der Durchmesser der QD^{blau} beträgt 2.8 nm, was durch TEM-Aufnahmen des Herstellers der verwendeten Charge belegt werden konnte. Eine solch große Abweichung des Durchmessers würde die Fluoreszenzwellenlänge verschieben. Bei Messungen des Spektrums konnte jedoch keine Abweichung von den Herstellerangaben festgestellt werden. Die kleinen NP stammen wahrscheinlich aus der Au-NP-Lösung. NP mit einem Durchmesser von etwa 2.8 nm wurden mit blauen Pfeilen markiert. Es handelt

sich bei diesen um die deponierten QD^{blau} . Sie finden sich auf der gesamten Oberfläche wieder und lagern sich auch dicht an den Au-NP an, wodurch sie effektiv von optischen Nahfeldern angeregt werden können [137, 138]. In einer weiteren TEM-Aufnahme mit höherer Vergrößerung in d) konnten weitere NP identifiziert werden, deren Durchmesser mit denen der QD^{blau} übereinstimmen.

Um die Fluoreszenz von QDs, die in einem Au-NP-Agglomerat eingelagert sind mithilfe des VFS zu manipulieren, muss ein geeignetes Agglomerat gefunden werden. Dazu wurde die Probenoberfläche durch Lichtmikroskopie, Fluoreszenzmikroskopie und TEM-Messungen untersucht. Die Resultate sind in Abbildung 61 zusammengefasst.

Ein Lichtmikroskopiebild in Dunkelfeldkonfiguration ermöglicht die Orientierung auf dem TEM-Netzchen (erste Zeile). Die regelmäßig angeordneten Kupferstege (braune Färbung) sind gut zu erkennen. In einzelnen Feldern ist die Kohlenstoffmembran beschädigt, was vermutlich während der Präparation passiert ist. Ein mit höherer Vergrößerung aufgenommenes Mikroskopiebild und nebenstehende Fluoreszenzmikroskopiebilder (zweite Zeile) zeigen einen Bereich, in dem große Fluoreszenzsignale von QD^{rot} und QD^{blau} detektiert werden können (grün umrandete Region). Es ist zu erkennen, dass die Fluoreszenz an den Rändern der Kupferstege erhöht ist. Diese Verteilung wird vermutlich durch die Verdunstung des Lösungsmittels, in dem die QD vorliegen, verursacht. Das Lösungsmittel sammelt sich durch Kapillarkräfte an den Rändern der Kupferstege, wodurch sich beim Verdunsten dort der größte Verdunstungsrückstand bildet. Im Mikroskopiebild ist der obere Bereich infolge einer leichten Krümmung des Substrates unscharf. Für die weiteren Messungen wird ein Bereich etwa 20 μm unterhalb des Kreuzungspunktes von zwei Kupferstreben in der Bildmitte gewählt. In einer weiteren Vergrößerungsstufe (dritte Zeile) ist dieser Bereich dargestellt. Dort treten hohe Fluoreszenzsignale für beide QD-Sorten auf. Zur Identifizierung von Au-NP-Aggregaten wurde nach Abschluss der Nahfeldoptimierung eine TEM-Aufnahme des Bereiches angefertigt, da die Au-NP weder in den Mikroskopiebildern noch in dem Fluoreszenzsignal eindeutig erkannt werden können. In der TEM-Aufnahme ist zu sehen, dass hier die Kohlenstoffmembran beschädigt ist. Sie wölbt sich außerdem derart, dass sie bei der TEM-Messung in den Elektronenstrahl hineingelangt, wodurch keine höhere Auflösung erreicht werden kann. Einzelne QDs können dadurch nicht aufgelöst werden. Die größeren Au-NP sind jedoch gut als schwarze Kreise erkennbar. Der Bereich mit hohem Fluoreszenzsignal von QD^{rot} wurde durch eine gestrichelte Linie umrandet und in der TEM-Messung entsprechend markiert. Der untere Anteil der Fluoreszenzverteilung scheint vorerst nicht mit der in der TEM-Messung abgebildeten Probenoberfläche übereinzustimmen, die Kohlenstoffmembran ist dort nicht direkt erkennbar. Dies ist jedoch ein Problem des Kontrasts der Abbildung. Es lassen sich auch Oberflächenstrukturen entlang des Bereichs maximaler Fluoreszenz

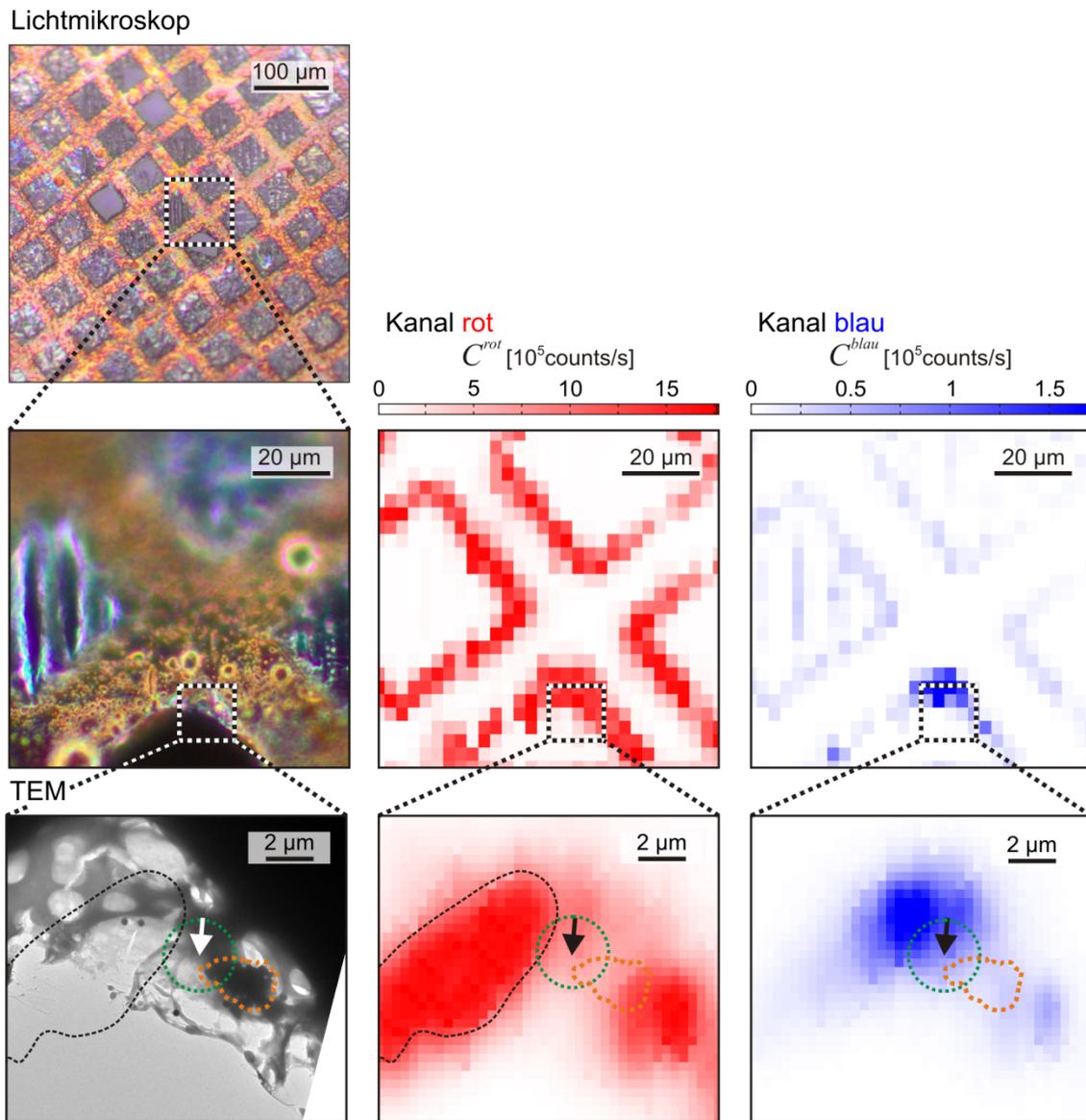


Abb. 61: Charakterisierung der Probenoberfläche. Ein Lichtmikroskopiebild (Dunkelfeld) gibt eine Übersicht über die Probenoberfläche (erste Zeile). Der schwarz-weiß-gestrichelt umrandeten Bereich wurde mit höherer Vergrößerung dargestellt und ortsaufgelöst die Fluoreszenz gemessen (zweite Zeile). Von dem markierten Ausschnitt wurde eine TEM-Aufnahme angefertigt und ortsaufgelöste Fluoreszenzmessungen aufgenommen (dritte Zeile). Die Position des roten Fluoreszenzsignals wurde in der TEM-Messung identifiziert (schwarze gestrichelte Linie) Der Pfeil markiert die Position an der eine Optimierung (siehe Kapitel 7.4) vorgenommen wurde. Der Fokusbereich des Anregungslasers ist durch eine grün gestrichelte Linie in der TEM-Messung eingezeichnet. Ein mit dem Fokusbereich überlappendes Au-NP-Agglomerat wurde mit einer orange gestrichelten Linie umrandet.

finden. Das gemessene Fluoreszenzsignal resultiert dabei als eine Faltung zwischen dem gaußförmigen Fokus des Anregungslasers und der räumlichen Verteilung der sehr viel kleineren QDs.

Es wurde anschließend eine Fokusposition gewählt, die das Au-NP-Aggregat enthält und gleichzeitig ein großes Fluoreszenzsignal von QD^{rot} und QD^{blau} liefert. Die Stelle ist in Abbildung 61 mit einem Pfeil gekennzeichnet. An dieser werden in Kapitel 7.4 Experimente zur Kontrolle der Fluoreszenzsignale durch AO-Verfahren durchgeführt. Der Fokusbereich (FWHM-Breite, engl. Full Width at Half Maximum) wurde aus den kleinsten noch auflösbaren Strukturgrößen aus dem rückreflektierten Signal P_{ref} zu $d_{Fokus}=3\ \mu\text{m}$ abgeschätzt. Er ist in der TEM-Aufnahme und den Fluoreszenzmessungen eingezeichnet (grün gestrichelter Kreis). An der oberen linken Seite des Fokus beginnen Bereiche mit hoher Fluoreszenz von beiden QD-Sorten. Durch die räumliche Ausdehnung des Fokus wird ein kleiner Teil des Fluoreszenzsignals aus diesem Raumbereich stammen, obwohl der Mittelpunkt vom Fokus etwa $1.5\ \mu\text{m}$ entfernt ist. Dieses Fluoreszenzlicht ist jedoch nicht von Interesse. Es wird nicht durch QDs erzeugt, die in der direkten Umgebung eines Au-NP-Aggregats positioniert sind. Es wird im Weiteren als „Hintergrundfluoreszenz“ bezeichnet. Unten rechts im Fokusbereich überlappt der Fokus mit einem Au-NP-Aggregat. Die Fluoreszenz aus dem Überlappbereich wird durch QDs hervorgerufen, die sich im Nahfeldbereich der Au-NP befinden. Dieser Fluoreszenzbeitrag wird als „Nahfeldfluoreszenz“ bezeichnet. Das Fluoreszenzsignal an der gezeigten Fokusposition setzt sich somit aus der Hintergrundfluoreszenz und der Nahfeldfluoreszenz zusammen.

7.4 Fluoreszenzoptimierung mittels eines genetischen Algorithmus

An der in Abbildung 61 markierten Position wird nun mithilfe des VFS die lokale Fluoreszenz der QD^{rot} und QD^{blau} manipuliert. Das Prinzip zum Schalten der Fluoreszenz wurde in Kapitel 7.1, Abbildung 58 vorgestellt. Es beruht darauf, dass sich Nahfelder innerhalb eines Au-NP-Aggregats ausbilden, die durch geformte ultrakurze Laserpulse gesteuert werden können. Aufgrund der inhomogenen Verteilung der verschiedenen QD-Sorten sind die Fluoreszenzemissionen von QD^{rot} und QD^{blau} an die Nahfeldverteilungen gekoppelt.

Durch den VFS ist es möglich, den Fokusbereich mit beliebigen Pulsformen zu beleuchten. Da die Fluoreszenz jedoch mit der Anregungsleistung steigt, wird die spektrale Intensität konstant gehalten. Der VFS wird also nur zur Formung der spektralen Phase verwendet. Anschließend können die Zählraten C^{rot} und C^{blau} gemessen werden, um zu bewerten, wie die verwendete Pulsform das Fluoreszenzverhältnis verändert hat. Dabei wird die spektrale Phase der s- und p-Polarisationskomponente durch einen GA variiert. Der GA ist identisch zu dem in Kapitel 6.4.2 eingesetzten. Bei jeder zu testenden spektralen Phasenfunktion, muss das Resultat anschließend gemessen werden, was etwa 200 ms benötigt. Damit die Optimierung in einer angemessenen Zeitspanne konvergiert,

ist eine Reduktion des Phasenraums, der dem GA zur Verfügung steht, notwendig. Dazu wird die spektrale Phase nicht wie in Kapitel 6.4.2 an jedem Frequenzstützpunkt (vorgegeben durch das Auflösungsvermögen des VFS) variiert, sondern die in Kapitel 2.2, Gl 2.14 vorgestellte Taylorentwicklung der Phasenfunktion als Basis verwendet. Es wurde die Entwicklung bis zur 4ten Ordnung um die Zentralfrequenz ω_0 vorgenommen, so dass 5 Parameter pro Polarisationskomponente, also insgesamt 10 Parameter, für den GA zur Verfügung stehen. Diese Phasenkoeffizienten sind die Gene eines einzelnen Individuums.

Versucht man durch Formung der Anregungspulse die Fluoreszenzausbeute von QD^{rot} gegenüber der von QD^{blau} zu erhöhen oder zu erniedrigen, so muss ein geeignetes Maß verwendet werden, um die einhergehende Änderung zu quantifizieren. Dafür wird der Fitnessparameter V wie folgt definiert:

$$V = \frac{C^{rot}}{C^{blau}} \quad (7.1)$$

Es wären auch andere Definitionen des Fitnessparameters denkbar, wie z. B. die Differenz beider Zählraten. Dabei würde der GA jedoch versuchen, die Nichtlinearität der Fluoreszenzemission auszunutzen. Wenn QD^{rot} ein höheres Fluoreszenzsignal liefert als QD^{blau} und C^{rot} gegenüber C^{blau} weiter erhöht werden soll, so würde der Algorithmus die Spitzenintensität erhöhen. Infolgedessen würde C^{rot} stärker steigen als C^{blau} , was jedoch nur ein direkter Effekt der nichtlinearen Fluoreszenz ist und nicht zwangsläufig eine Manipulation der räumlichen Nahfeldverteilung wäre.

Durch die Quotientenbildung nach Gleichung 7.1 wird die Abhängigkeit von der Anregungsintensität eliminiert, da beide Zählraten C^{rot} und C^{blau} gleichermaßen quadratisch von dieser abhängen. Dadurch spiegelt der Fitnesswert die Variation der Nahfeld-induzierten Fluoreszenzemission wider. Der GA kann durch eine Messung der Zählraten jedem Individuum einen Fitnesswert V zuordnen. Soll die Fluoreszenz von QD^{rot} gegenüber der von QD^{blau} erhöht werden, versucht der GA den Fitnesswert V zu maximieren, bis V^{max} erreicht wird. Soll hingegen die Fluoreszenz von QD^{blau} gegenüber der von QD^{rot} erhöht werden, so wird der Fitnesswert V minimiert, bis der GA die Konvergenz gegen einen Minimalwert V^{min} erreicht hat.

Der Verlauf des Optimierungsprozesses ist in Abbildung 62 dargestellt. In Abbildung 62 a) ist der Optimierungsprozess zur Maximierung von V gezeigt. Der optimierte Lichtpuls, der V^{max} erreicht, wird im Folgenden mit „GA rot“ bezeichnet. Die Minimierung der Fitnessfunktion, welche zu dem Lichtpuls „GA blau“ mit der Fitness

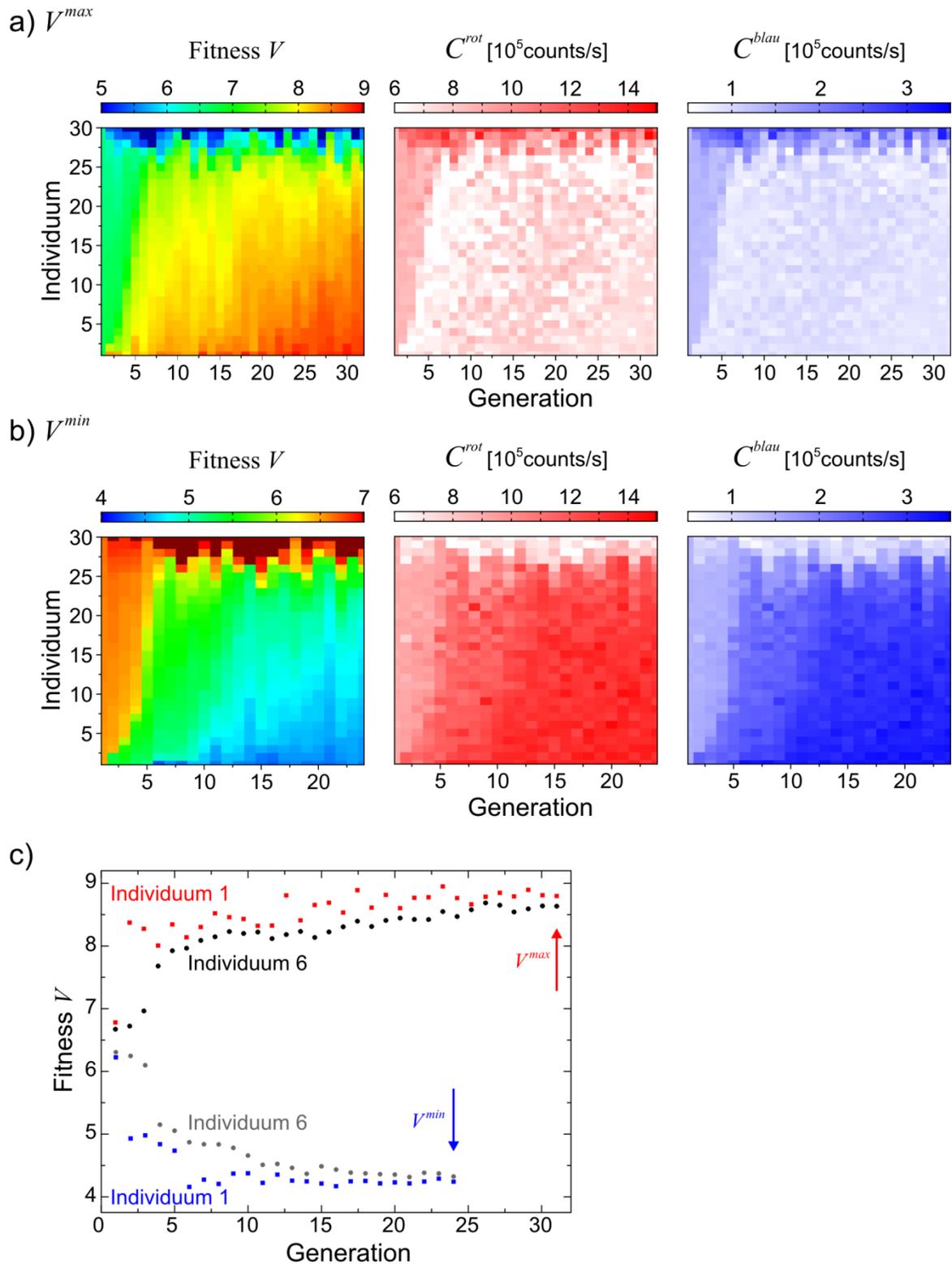


Abb. 62: Verlauf des Optimierungsprozesses der spektralen Phase durch den GA für die Maximierung von V a) und die Minimierung von V b). Für jede Generation sind die Individuen nach ihrem Fitnesswert V in absteigender Reihenfolge aufgetragen. Für alle Individuen sind die Zählraten C^{rot} und C^{blau} dargestellt, aus denen der Fitnessparameter V bestimmt wurde. c) Fitness von Individuum 1 und 6 unter Maximierung von V (rote und schwarze Datenpunkte) bzw. Minimierung von V (blaue und graue Datenpunkte).

V^{min} führt, ist in b) gezeigt. Für jedes Individuum wurden die von der Probe emittierten Zählraten C^{rot} und C^{blau} und der sich daraus ergebende Fitnesswert V aufgetragen. Die erste Generation startet mit 30 Individuen, welche alle eine Nullphase aufweisen. Die Individuen sind innerhalb einer jeden Generation nach ihrem Fitnesswert V sortiert. Das Individuum $i=1$ weist den größten Wert bei einer Maximierung von V bzw. den kleinsten Wert bei einer Minimierung von V auf. Die schwächsten fünf Individuen einer Generation werden in der nächsten Generation durch neue Individuen mit zufälligen Parameterwerten ersetzt. Dadurch wird die Wahrscheinlichkeit verringert, dass der Algorithmus in lokale Extremstellen der Fitnessfunktion konvergiert. Der Optimierungsprozess beginnt mit der ersten Generation und wird abgebrochen, wenn keine weitere Erhöhung bzw. Verringerung des Fitnesswertes erreicht wird. Das tritt dann ein, wenn die erzielten Verbesserungen kleiner sind als die Messauflösung.

Die Maximierung des Fitnesswertes (siehe Abbildung 62 a)) steigt ab der zweiten Generation deutlich an. Ab der fünften Generation weisen die meisten Individuen der Generation einen ebenfalls hohen Fitnesswert auf. Bis zum Abbruch des Optimierungsprozesses nimmt der Fitnesswert in immer geringerem Maße zu und fast alle Individuen der Population weisen einen hohen Fitnesswert auf. Die Zählraten verringern sich dabei in beiden Kanälen. In dem in b) gezeigten Optimierungsprozess wurde der Fitnesswert minimiert, das heißt die Fluoreszenz von QD^{blau} gegenüber QD^{rot} wurde erhöht. Der Fitnesswert wird hier zu Beginn der Optimierung stark, im weiteren Verlauf der Optimierung im geringeren Maße verringert. Die Zählraten C^{rot} und C^{blau} nehmen hier in beiden Kanälen zu.

Die Konvergenz des Optimierungsprozesses wird in Abbildung 62 c) deutlich. Es ist der Fitnesswert V von Individuum 1 mit dem besten Fitnesswert V^{max} bzw. V^{min} und dem Individuum 6 aus der entsprechenden Optimierung aufgetragen. Das sechste Individuum ist von den besten 20% der Individuen einer Generation das schwächste. Betrachtet man den Abstand zwischen dem ersten und sechsten Individuum innerhalb einer Optimierung, so sieht man, wie sich dieser mit fortschreitender Generationszahl immer weiter verringert. Der kleinste erreichbare Abstand ist dabei durch das Rauschen der Fitnesswerte gegeben. Beide Optimierungen wurden erst beendet, nachdem zwei Kriterien erfüllt wurden. Erstens musste die Fitness des besten Individuums konstant bleiben. Zweitens mussten sich die Fitnesswerte der besten 20% der Individuen dem des besten Individuums annähern.

Es werden nun die spektralen Phasenfunktionen $\phi(\omega)$ der besten 20% der Individuen aus der letzten Generation betrachtet. Sie sind in Abbildung 63 für die Optimierungen V^{max} und V^{min} aufgetragen. Sie wurden aus den Phasenkoeffizienten der entsprechenden Individuen berechnet. Für die Optimierung V^{max} gibt es keinen bedeutsamen Unterschied zwischen den Phasenfunktionen der Individuen. Die spektrale Phase der s-Polarisation zeichnet sich hauptsächlich durch negative GVD, die der p-Polarisation durch positive GVD aus. Dahingegen variieren die Phasenverläufe der Optimierung V^{min} sehr stark in

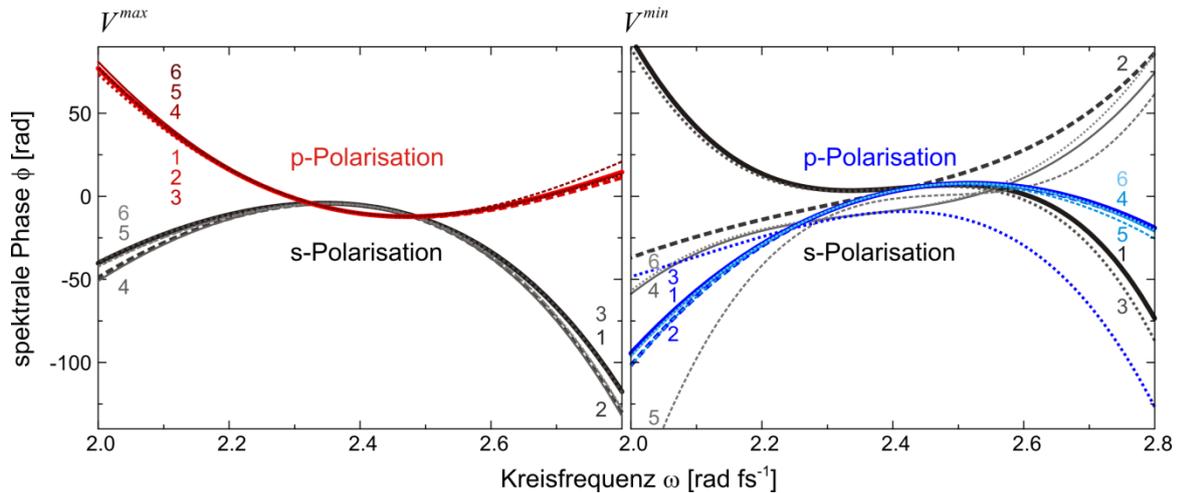


Abb. 63: Spektrale Phasen der sechs Individuen mit den höchsten Fitnesswerten in der letzten Generation der Optimierung. Dicke Linien: Individuen 1 (durchgezogene Linie), 2 (gestrichelte Linie), 3 (gepunktete Linie). Dünne Linien: Individuen 4 (durchgezogene Linie), 5 (gestrichelte Linie), 6 (gepunktete Linie). Die Nummer jedes Individuums ist (in entsprechender Linienfarbe) an die zugehörige spektrale Phase platziert.

der s-Polarisation. In Abbildung 62 c) konnte gezeigt werden, dass die Fitnesswerte V der 20% der besten Individuen im Rahmen des Messfehlers identisch sind. Es kann ein ähnlicher Fitnesswert somit durch verschiedene Pulsformen erreicht werden. Dies lässt darauf schließen, dass hier hauptsächlich die p-Polarisationskomponente zur Optimierung beiträgt.

Für den Lichtpuls *GA rot* mit der maximalen Fitness V^{max} und den Lichtpuls *GA blau* mit der minimalen Fitness V^{min} sind die Zählraten C^{rot} und C^{blau} in Abbildung 64 als Balkendiagramm dargestellt. Sie wurden auf die Zählraten normiert, die durch einen bandbreitebegrenzten Laserpuls gemessen wurden. Dessen Zählraten sind durch eine gestrichelte Linie markiert und so skaliert, dass sie in beiden Kanälen gleiche Werte annehmen. Der optimierte Lichtpuls *GA rot* reduziert die Zählraten in beiden Detektionskanälen, während der Lichtpuls *GA blau* die Zählraten in beiden erhöht. Die Individuen der ersten Generation weisen alle eine konstante Phase $\phi = 0$ auf. Aus den für diese Individuen gemessenen Zählraten wurde die Standardabweichung gebildet, um den Messfehler der Zählraten zu bestimmen. Er beträgt 2% und ist damit so klein, dass er in dieser Darstellung nicht visualisiert werden kann. Für beide optimierten Lichtpulse ist ebenfalls die reflektierte Leistung P_{refl} gemessen worden. Sie ist ebenfalls als Balkendiagramm dargestellt und in äquivalenter Weise normiert. Der Fehler beträgt hier $\Delta P_{refl} = 0.4\%$ und ist ebenfalls zu klein, um dargestellt zu werden.

Diese geringe Variation der reflektierten Leistung P_{refl} verdeutlicht, dass der VFS trotz unterschiedlicher Phasenfunktionen immer die gleiche Ausgangsleistung liefert. Dies ist von großer Wichtigkeit, da so ausgeschlossen werden kann, dass die erreichten Fitnesswerte V^{max} und V^{min} von einer Leistungsvariation herrührt. Da es sich bei der Fluoreszenz der QDs um ein nichtlineares Signal handelt, können Schwankungen der

Anregungsleistung einen großen Einfluss auf die Fluoreszenzausbeute haben. Es wurde deshalb untersucht, ob Schwankungen in der Anregungsleistung den Fitnessparameter verändern. Zu solchen Schwankungen kann es beispielsweise kommen, wenn im VFS Phasenfunktionen angelegt werden, die zu Phasensprüngen (siehe Kapitel 4.2.2) führen. Dabei kann es zu Fehlern in der Transmissionsfunktion des VFS an einzelnen SLM-Stützstellen (SLM, engl. Spatial Light Modulator) kommen. Dadurch kann dessen Gesamtausgangsleistung variieren. Zur Überprüfung wurde die Fitnessfunktion V als Funktion der reflektierten Leistung P_{refl} gemessen. Die Laserleistung wurde über ein Neutraldichte-Filtterrad stufenlos über einen Bereich von $4\text{ mW} \pm 0.4\%$ durchgeführt. Zur Festlegung des Leistungsbereiches diente dabei der oben bestimmte Fehler der reflektierten Leistung $\Delta P_{refl} = 0.4\%$. Die Messung der Leistungsabhängigkeit der Fitnessfunktion wurde für $GA\ rot$, $GA\ blau$ und einen bandbreitebegrenzten Laserpuls durchgeführt. Für jeden der drei Laserpulse konnte im Rahmen der Messungenauigkeit von $\Delta V = \pm 0.1$ keine Änderung des Fitnesswertes beobachtet werden. Ein Einfluss von Leistungsschwankungen auf das Messergebnis kann somit ausgeschlossen werden.

Die Werte der optimierten Fitnessfunktion V^{max} und V^{min} sind neben dem Balkendiagramm in Abbildung 64 gezeigt. Zum Vergleich wurde vom bandbreitebegrenzten Lichtpuls der Fitnesswert V^{bwl} angegeben. Durch die Beleuchtung mit dem Lichtpuls $GA\ rot$ konnte der Fitnesswert um etwa 38%, gegenüber dem durch einen bandbreitebegrenzten Lichtpuls erreichten Fitnesswert erhöht werden. Für den $GA\ blau$ konnte der Fitnesswert Wert um 31% verringert werden. Hierbei muss beachtet werden, dass in beiden Detektionskanälen noch Hintergrundfluoreszenz vorhanden ist, welche das maximal erreichbare Schaltvermögen zwischen beiden Kanälen reduziert. Bei dem hier gemessenen Schaltvermögen handelt es sich somit um einen signifikanten Effekt und es würde allein durch den Ausschluss der Hintergrundfluoreszenz eine deutliche Verbesserung des Schaltvermögens erwartet werden.

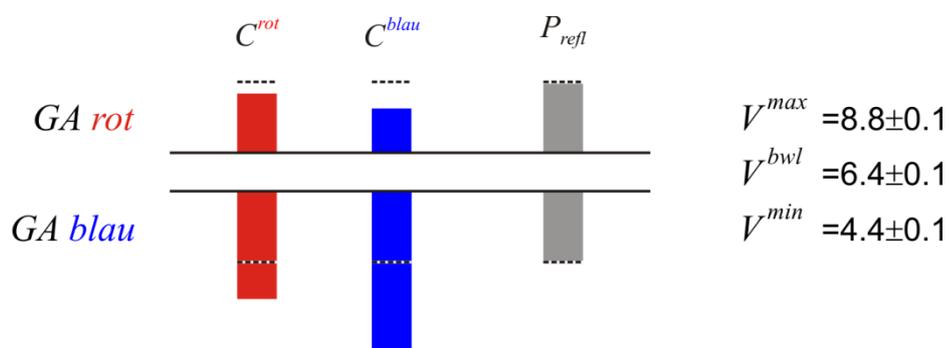


Abb. 64: Zählraten C^{rot} und C^{blau} , sowie die Leistung des reflektierten Lichtes P_{refl} , für Beleuchtung mit $GA\ rot$ (oben) und $GA\ blau$ (unten) als Balkendiagramm. Die Größe der Balken ist proportional zur jeweiligen Messgröße. Die gestrichelten Linien markieren den Wert, der durch die Beleuchtung mit einem bandbreitebegrenzten Laserpuls erreicht wird.

Bemerkenswert ist, dass ein bandbreitebegrenzter Lichtpuls von etwa 20 fs Länge nicht die höchsten Zählraten erzielt. Stattdessen werden durch den über 200 fs langen Lichtpuls *GA blau* die Zählraten C^{rot} und C^{blau} in beiden Detektionskanälen erhöht. Das wird auch als „Superenhancement“ [7] bezeichnet. Die Kohärenz muss über die gesamte Pulslänge erhalten bleiben, so dass die plasmonischen Anregungen zur Signalerhöhung beitragen können. Das kann durch die Existenz von langlebigen plasmonischen Kohärenzen innerhalb der Streustruktur erreicht werden.

Zur Bestimmung des zeitlichen Verhaltens der optimierten Pulse wurden die Phasenkoeffizienten der Individuen verwendet, um die spektralen Phasenfunktionen $\phi(\omega)$ zu berechnen. Die spektrale Amplitude $A(\omega)$ wurde am Ausgang des VFS gemessen und zur zeitlichen Rekonstruktion, nach dem in Kapitel 3.1 beschriebenen Algorithmus, verwendet. Die rekonstruierten Lichtpulse weisen ein kompliziertes zeitliches Verhalten auf. Um dieses zu visualisieren, wurden die in Kapitel 2.3 vorgestellte Poincaré-Darstellung in Mollweide-Projektion und Quasi-3D-Darstellung verwendet. Das zeitliche Verhalten der optimierten Pulse *GA rot* und *GA blau* ist in Abbildung 65 gezeigt. Auf der linken Seite befinden sich die Poincaré-Darstellungen. Der Zeitbereich mit signifikant hoher Amplitude wurde durch eine rote bzw. blaue durchgezogene Linie hervorgehoben. Um die Zeitskala sichtbar zu machen, auf der sich die Polarisationszustände ändern, wurden Zeitabstände von 5 fs durch Rechtecke symbolisiert. Die zeitliche Pulsamplitude wurde als grau schattierte Flächen eingezeichnet. Auf der rechten Seite sind die Quasi-3D-Darstellungen der Lichtpulse innerhalb eines 600 fs langen Zeitbereichs gezeigt.

Der Lichtpuls *GA rot* lässt sich in der Poincaré-Darstellung in zwei Bereiche einteilen. Für negative Zeiten $t < 0$ fs zirkuliert der Polarisationszustand mehrfach um den linearen s-Polarisationszustand. Die Umlaufrichtung ist in mathematisch positiver Richtung. Dabei ändert er bei jedem Umlauf zwischen rechts und links zirkular polarisierten elliptischen Polarisationszuständen. Für positive Zeiten $t > 0$ fs umläuft die Polarisation den linear polarisierten p-Polarisationszustand ebenfalls in mathematisch positiver Richtung. Zwischen diesen beiden Zeitbereichen ist die Intensität maximal und der Lichtpuls ist fast vollständig links zirkular polarisiert. In der quasi 3D-Darstellung erscheinen die Projektionen des s- und p-polarisierten Anteils sehr ähnlich. Die hauptsächlich durch den GVD-Anteil bestimmten spektralen Phasen führen dann zu den komplexen Änderungen des Polarisationszustandes, wie sie über die gesamte Pulslänge hinweg sichtbar sind.

Der Lichtpuls *GA blau* lässt sich ebenfalls in zwei verschiedene Zeitbereiche unterteilen. Für negative Zeiten bis etwa $t < 50$ fs tritt ebenfalls eine Zirkulation des Polarisationszustandes um den linearen p-Polarisationszustand auf. Anschließend ist der Puls für größere Zeiten $t > 50$ fs hauptsächlich linear s-polarisiert. Dies ist auch in der quasi 3D-Darstellung zu erkennen. Die Maxima der zeitlichen Amplituden der p- und

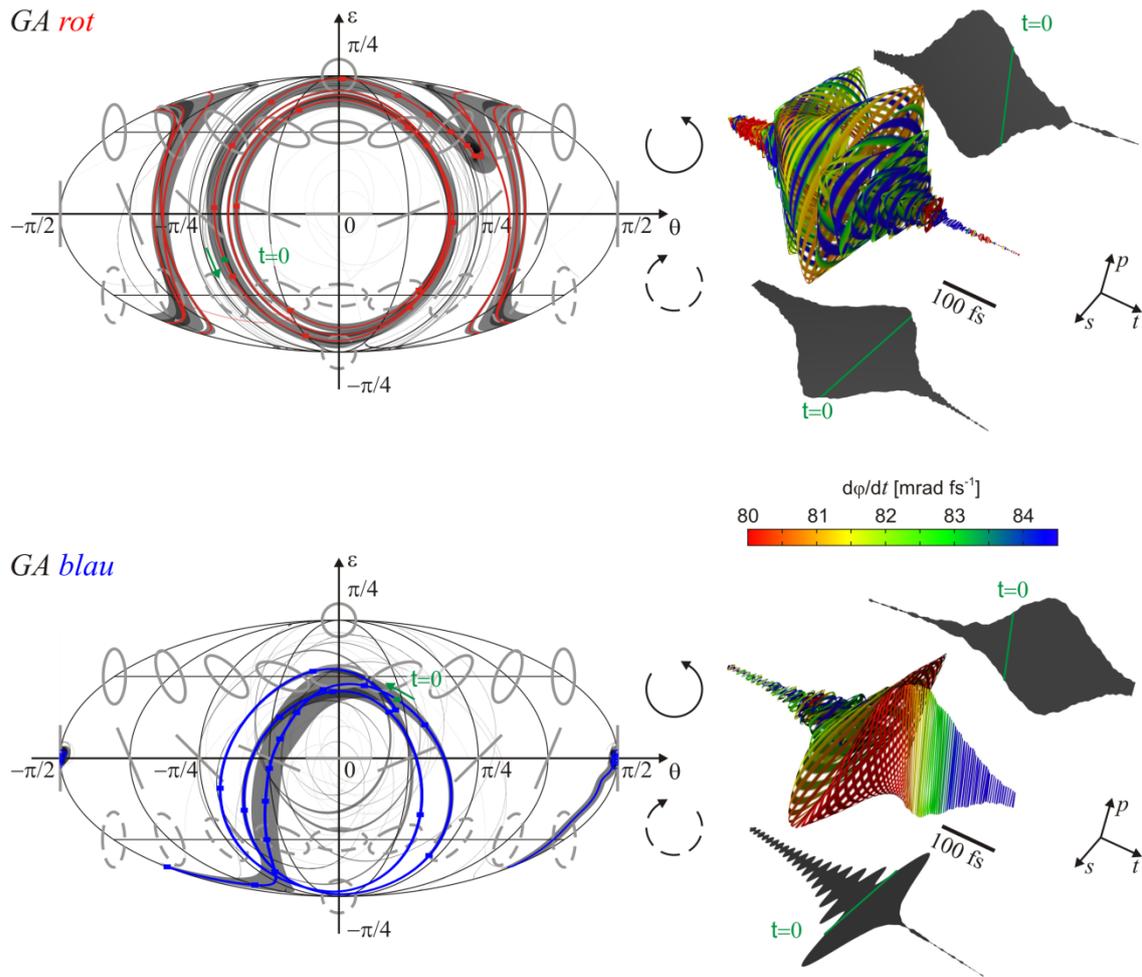


Abb. 65: Visualisierung der optimierten Pulse *GA rot* und *GA blau* in Poincaré-Darstellung (Mollweide-Projektion) (links) und quasi 3D-Darstellung (vgl.: Kapitel 2.3) (rechts). In der Poincaré-Darstellung ist der zeitliche Intensitätsverlauf durch eine grau schattierte Fläche repräsentiert. Der Zeitbereich von $t = -50$ fs bis $t = +50$ fs wird durch Symbole mit einem Abstand von 5 fs gekennzeichnet. Der Bereich höchster Intensität ist mit einer durchgezogenen Linie (rot bzw. blau) markiert. In der quasi 3D-Darstellung sind die Projektionen des zeitlichen Amplitudenverlaufes auf die s - und p -Polarisationsachse grau schattiert dargestellt. Der zeitliche Nullpunkt ist willkürlich gewählt, dessen relative Lage zwischen den Pulsen *GA rot* und *GA blau* ist jedoch fest.

s -Polarisationsanteile sind zeitlich gegeneinander um etwa 100 fs verschoben. In dem hauptsächlich p -polarisierten Bereich bei positiven Zeiten ist eine stetige Änderung der Momentanfrequenz $d\phi/dt$ zu erkennen, welche vorwiegend durch den GVD-Anteil zustande kommt. Der s -polarisierte Anteil zeigt deutliche Vorpulse infolge des hohen TOD-Wertes. Deren Einfluss auf das Optimierungsergebnis ist jedoch gering, da in Abbildung 63 bereits gesehen wurde, dass auch andere spektrale Phasenfunktionen mit geringeren TOD-Anteilen zu vergleichbaren Fitnesswerten führten.

7.5 Diskussion der raumzeitlichen Fluoreszenzkontrolle

Mithilfe eines GA konnte innerhalb der hier vorgestellten randomisierten Subwellenlängen-Streustruktur die optische Nahfeldanregung gezielt gesteuert werden. Zum Nachweis der Änderung der lokalen Nahfeldverteilung wurde die inhomogene räumliche Verteilung von zwei, bei verschiedenen Wellenlängen fluoreszierenden, QDs ausgenutzt. Das Verhältnis zwischen den Zählraten der Zwei-Photonen-Fluoreszenz der beiden QD-Sorten konnte so gezielt erhöht oder verringert werden. Auch die zeitliche Struktur des Anregungspulses verändert die Intensität des nichtlinearen Fluoreszenzsignals. Dies ist vergleichbar mit den in [21] gezeigten Experimenten zur raumzeitlichen Kontrolle optischer Nahfelder in regulären Nanostrukturen. In den dort präsentierten Experimenten wurde die räumliche Nahfeldlokalisierung innerhalb von wenigen Femtosekunden gezielt zwischen verschiedenen Raumbereichen verlagert. Durch die Detektion mit einem hochauflösenden PEEM kann die Nahfeldverteilung direkt abgebildet werden. Dadurch kann dem GA eine Vielzahl verschiedener Optimierungsziele vorgegeben werden. Im Gegensatz dazu wird hier die Nichtlinearität des Fluoreszenzprozesses genutzt. Wird beispielsweise die Fluoreszenz von *QD rot* gegenüber *QD blau* erhöht, so kann dies einerseits durch ein räumliches Schalten der anregenden Nahfeldmoden geschehen. Andererseits aber auch durch eine Maximierung der Spitzenintensität in dem Nahfeldbereich, der bevorzugt *QD rot* zur Fluoreszenz anregt. Die Nahfeldlokalisierung wird somit gleichzeitig in der räumlichen Ausprägung und in der Zeitdomäne optimiert.

Durch die Optimierung konnte der Fitnesswert um etwa 38% erhöht und um 31% verringert werden. Diese hohe Änderung des Kontrastes in dieser ersten „proof of concept“-Demonstration konnte ohne eine speziell designte reguläre Nanoantenne erreicht werden. Zudem wurden nur wenige Freiheitsgrade in der adaptiven Kontrolle verwendet.

Dieses Prinzip ist besonders für die optische Signalverarbeitung interessant. Durch das optische Wellenlängenmultiplexverfahren können mehrere Signalkanäle durch einen Multiplexer zu einem Signal zusammengefasst und simultan durch eine Glasfaserleitung übertragen werden [133]. Ein Demultiplexer kann dann das übertragene Signal wieder in die einzelnen Signalkanäle aufschlüsseln. In dem hier gezeigten Experiment würde der anregende Ultrakurzpulslaser das Signal übertragen, wobei das Au-NP-Aggregat als Demultiplexer fungiert. Das Umschalten der Fluoreszenz wäre dann der Prozess zur Aufschlüsselung in die einzelnen Signalkanäle. Da die Fluoreszenz der QDs auch direkt in Glasfasern eingekoppelt werden können [139], wäre eine Integration in die existierende Glasfasertechnologie möglich.

Die hier gezeigten Experimente konnten aus Zeitmangel nicht wiederholt werden. Es besteht daher die Möglichkeit, das Experiment für zukünftige Messungen zu verbessern. Der durch die Optimierung erreichte Kontrast zwischen den Fitnessparametern V^{min} und V^{max} konnte nur durch die Manipulation der Nahfeldfluoreszenz erreicht werden. Da die Hintergrundfluoreszenz nicht von Nahfeldern beeinflusst wird, bleibt der Fitnessparameter V konstant. Um eine weitere Erhöhung des Schaltkontrastes zu erreichen, sollte die Hintergrundfluoreszenz somit verringert werden. In den hier gezeigten Messungen hat das Au-NP-Aggregat nur etwa ein Viertel der Fokusfläche eingenommen. Dies wurde so gewählt, damit nur wenige Nahfeldmoden im Anregungsvolumen vorhanden sind. Wenn sich dort zu viele Moden befinden, würde man erwarten, dass kein Schaltprozess erreicht werden kann. Die spektralen Resonanzen der Nahfeldmoden könnten überlappen und ließen sich dadurch nicht mehr separat durch Fernfeldmoden anregen. Der Fokusbereich wurde jedoch durch die numerische Apertur des verwendeten Cassegrain-Objektives (Ealing, x25, NA=0.4) limitiert. Würde man das Objektiv durch eines mit höherer NA ersetzen, könnte ein kleinerer Fokusbereich erreicht werden. Dadurch wäre es möglich, den Fokus direkt in ein Au-NP-Aggregat zu platzieren, wodurch der Anteil der Hintergrundfluoreszenz verringert werden könnte. Infolgedessen würde man eine Erhöhung des Schaltkontrastes erwarten. Des Weiteren könnte, resultierend aus der höheren Anregungsdichte und des kleineren Anregungsvolumens die Konzentration der QDs verringert werden. Im Idealfall würde die Detektion einzelner QDs ein 100%-Schaltkontrast ermöglichen.

Auch die Streustruktur könnte weiter optimiert werden. Die hier verwendeten Au-NP sind mit einem Durchmesser von 250 nm sehr groß und nicht resonant (~ 431 nm) zur verwendeten Anregungswellenlänge (800 nm). In den numerischen Simulationen in Kapitel 6 wurden resonante Core-Shell-Streupartikel verwendet. Bei den resonanten Partikeln ist der Streuquerschnitt höher und die Absorption geringer als bei nicht resonanten Partikeln.

7.6 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde die raumzeitliche Subwellenlängenfokussierung in einer randomisierten Au-NP-Streustruktur demonstriert. Dazu wurden die in numerischen Simulationen (siehe Kapitel 6) gewonnenen Erkenntnisse in ein Experiment umgesetzt. In den numerischen Simulationen hatte sich herausgestellt, dass ein GA besser geeignet ist, um Nahfelder in randomisierten Nanopartikel-Agglomeraten zu steuern als ein TR-Algorithmus. Mithilfe eines GA und des in Kapitel 4 vorgestellten VFS wurden die spektralen Phasen von kurzen Laserpulsen optimiert, bis in einem Au-NP-Agglomerat die nichtlineare Fluoreszenz von QDs kontrolliert werden konnte. Dabei wurde das

Verhältnis der Fluoreszenz von *QD rot* gegenüber der von *QD blau* maximiert bzw. minimiert. Der Fitnessparameter V , welcher das Verhältnis dieser Fluoreszenzintensitäten beschreibt, konnte so um 38% erhöht bzw. um 31% verringert werden. Als Referenzpunkt wurde dabei der Fitnesswert V^{bwl} gesetzt, welcher sich durch Beleuchtung mit einem bandbreitebegrenzten Puls ergab. Dieser hohe Schaltkontrast konnte erreicht werden, obwohl es sich um einen ersten „Proof of Concept“ des Experiments handelt: Über ein optisches Eingangssignal konnte somit das resultierende optische Ausgangssignal eingestellt werden. Damit wird dieses Konzept besonders in optischen Wellenlängenmultiplexverfahren als Demultiplexer interessant. Im Vergleich zu regulären Strukturen bilden sich die hier verwendeten randomisierten Strukturen von selbst aus. Des Weiteren sind sie nur einige 100 nm klein und könnten dadurch auf einem Chip untergebracht werden.

Weitere Experimente müssen folgen, um strukturelle Einflüsse des Au-NP-Aggregats auf den Lokalisierungsprozess zu untersuchen. Besonders der Vergleich, wie sich resonante und nichtresonante Streupartikel auf das Lokalisierungsverhalten auswirken, könnte neue Einblicke in die Lokalisierungsphysik geben. Durch umfassendere Optimierungsversuche und systematische Abtastungen des Parameterraums, der dem GA zur Verfügung steht, könnte der Einfluss der spektralen Phasenfunktionen auf das Optimierungsergebnis genauer untersucht werden. Durch eine Verkleinerung des Anregungsfokus und eine Reduzierung der QD-Konzentration wird eine Erhöhung des Schaltkontrastes erwartet.

8 Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die raumzeitliche Lokalisierung von ultrakurzen Lichtpulsen in randomisierten Nanostrukturen untersucht. Die dabei betrachteten Aspekte dieses Themengebietes sind im Folgenden aufgeführt:

- Untersuchung der Lichtlokalisierung innerhalb von Dünnschichtsolarzellen mithilfe der orts aufgelösten Streulichtspektroskopie (Kapitel 5).
- Numerische Simulationen der raumzeitlichen Nanolokalisierung in randomisierten Streustrukturen durch einen Zeitumkehr-Algorithmus (TR) und durch adaptive Optimierungsverfahren (AO) (Kapitel 6).
- Experimente zur adaptiven Nahfeldkontrolle in randomisierten 3D-Streustrukturen (Kapitel 7).

Die Resultate dieser Experimente und Simulationen liefern neue Erkenntnisse und Methoden im Bereich der Lichtlokalisierung in randomisierten Medien, welche im Folgenden zusammengefasst werden.

In Kapitel 5 wurden orts aufgelöste spektroskopische Messungen des Streulichtes an Dünnschichtsolarzellen mit „light trapping“-Strukturen vorgenommen. Diese werden durch randomisierte nanostrukturierte Grenzflächen realisiert. Untersucht wurden die Proben „nanotexturiert“ und „exponiertes nanotexturiertes a-Si:H“. Letztere Probe wurde ohne einen transparenten elektrischen Rückkontakt (TCO) hergestellt. Als Referenz diente eine als „glatt“ bezeichnete Dünnschichtsolarzelle mit glatten Grenzflächen ohne „light trapping“-Struktur.

Zur Anregung wurden 20 fs kurze Laserpulse im nahinfraroten Spektralbereich verwendet. Im Spektrum des Streulichtes der „nanotexturierten“ und „exponierten nanotexturierten a-Si:H“ Probe konnten spektrale Moden identifiziert werden. An der „glatten“ Probe wurde hingegen nur einfach reflektiertes Licht detektiert. Für die „nanotexturierten“ Probe wurde aus der Linienbreite der spektralen Moden, unter Vernachlässigung von Phaseneffekten, eine minimal zu erwartende Lebenszeit von etwa $\tau_0 \approx 100$ fs abgeschätzt. Mithilfe der spektralen Interferometrie (SI) konnte das Streulicht zeitlich komplett rekonstruiert werden. Aus dem Abklingverhalten der zeitlichen Feldamplituden ergab sich eine mittlere Lebenszeit von etwa $\tau_0 \approx 135$ fs für die „nanotexturierte“ Probe. Das Licht ist somit über diese Zeitspanne innerhalb der Dünnschichtsolarzelle gefangen. Es wurde deshalb vermutet, dass das Licht innerhalb von Anderson-lokalisierten Moden gefangen wird. Zum Nachweis wurde der dimensionslose Leitwert g aus den Streulichtspektren berechnet. Für die „nanotexturierte“ Probe ergab sich $g_{500} = 0.82 \pm 0.08$ und für die „exponierte nanotexturierte a-Si:H“ Probe

$g_{500} = 0.76 \pm 0.07$. Für beide Proben ist somit $g < 1$, was ein Nachweis für die Anderson-Lokalisierung ist.

Zudem war es möglich, durch hochauflösende Photoemissionselektronen-Mikroskopie-Messungen (PEEM) an der „exponierten nanotexturierten a-Si:H“ Probe die Anderson-lokalisierten Moden orts aufgelöst abzubilden. Der Durchmesser der Moden wurde dabei zu etwa $d_{\text{Moden}} = 1 \mu\text{m}$ bestimmt. Des Weiteren wurde aus den PEEM-Messungen die absolute lokale Absorption berechnet. Dadurch konnten Anderson-lokalisierte Moden als dominanter Absorptionsmechanismus im nahinfraroten Spektralbereich identifiziert werden.

Hieraus ergeben sich neue Strategien zur Erhöhung der Lichtabsorption in Dünnschichtsolarzellen. Als erste Demonstration wurde mithilfe der Femtosekunden-Lasertexturierung die Oberfläche von a-Si:H-Absorberschichten modifiziert. Dabei wurde eine Lasertexturierung erzeugt, die zu einer Absorptionserhöhung infolge von Anderson-lokalisierten Moden führte. Der Nachweis erfolgte ebenfalls durch die orts aufgelöste Streulichtspektroskopie und die Bestimmung des dimensionslosen Leitwertes g . Die in Zukunft zu erwartenden Fortschritte auf diesem Gebiet der Lasertexturierung lassen hoffen, dass die Absorption in Dünnschichtsolarzellen weiter gesteigert werden kann, indem die räumliche Dichte der Anderson-lokalisierten Moden erhöht wird.

In Kapitel 6 wurde in numerischen Simulationen die Kontrollierbarkeit optischer Nahfelder in einer randomisierten Streustruktur untersucht. Die Streustruktur wurde aus den zwei Emitterpartikeln ($r=25 \text{ nm}$) Emitter *rot* und Emitter *blau* gebildet, die von Nanopartikeln unterschiedlicher Größe ($24.5 \text{ nm} < r < 25 \text{ nm}$) umgeben sind. Von einem der Emitter wurde ein 5 fs bandbreitebegrenzter Lichtpuls mit einer Zentralwellenlänge von $\lambda_0 = 800 \text{ nm}$ dipolartig abgestrahlt. Der Lichtpuls wurde von der Streustruktur gestreut und propagierte ins Fernfeld, wo dessen Amplitude und Phase berechnet wurden. Mithilfe eines TR-Algorithmus und AO-Verfahren wurde dann untersucht, ob durch Beleuchtung aus dem Fernfeld das Licht wieder räumlich und zeitlich an dem Ursprungsemitter fokussiert werden kann. Das im Fernfeld berechnete Streulicht wurde mit beiden Verfahren durch unterschiedliche Beleuchtungs-Konfigurationen zurück auf die Streustruktur geschickt:

- Beleuchtung mit einer ebenen Welle aus einer Raumrichtung.
- Zylindrische Beleuchtung durch die Superposition ebener Wellen aus zehn Beleuchtungsrichtungen.
- Beleuchtung mit einer Wiederhallkammer.

Bei der Beleuchtung mit einer ebenen Welle wurde das Streulicht an einem Aufpunkt durch den TR-Algorithmus zeitlich invertiert und auf die Streustruktur zurück propagiert. Mit Einführung des linearen Schaltverhältnisses S_j konnte qualitativ angegeben werden, ob das Licht räumlich am Ursprungsemitter fokussiert wurde. Die raumzeitliche

Fokussierung wurde äquivalent durch das nichtlineare Schaltverhältnis S_j^{nl} angegeben. Die Berechnung von $S_{TR\text{rot/blau}}$ zeigte eine deutliche Abhängigkeit von der Beleuchtungsrichtung. Durch $TR\text{ rot}$ konnte für 50% der Richtungen kein Schaltprozess erreicht werden und es ergaben sich Werte im Bereich von $0 < S_{TR\text{rot/blau}} < 8$. Für die Berechnung von $S_{TR\text{rot/blau}}^{nl}$ reduzierte sich der Anteil der Richtungen, für die kein Schaltprozess beobachtet werden konnte, auf 20%. Abhängig von der Beleuchtungsrichtung ergaben sich Werte im Intervall $0.8 < S_{TR\text{rot/blau}}^{nl} < 300$. Die alleinige Betrachtung der räumlichen Fokussierung ist bei der Anwendung des TR-Algorithmus somit nicht zulässig, da dieser die räumliche und zeitliche Fokussierung simultan umsetzt. Zum Vergleich wurde ein genetischer Algorithmus (GA) eingesetzt, um $S_{AO\text{rot/blau}}$ und $S_{AO\text{rot/blau}}^{nl}$ für die Beleuchtung aus Richtung von Aufpunkt 0 zu maximieren. Der maximale Wert war für $S_{AO\text{rot/blau}}$ etwa zwei und für $S_{AO\text{rot/blau}}^{nl}$ etwa vier Größenordnungen höher als der jeweilige Wert, der durch den TR-Algorithmus für diese Beleuchtungsrichtung erreicht werden konnte. Der GA-Algorithmus konnte nicht nur das Licht am Ursprungsemitter räumlich und zeitlich fokussieren, sondern auch am inaktiven Emitter die lineare und nichtlineare Fluenz effektiv reduzieren.

Anschließend wurde eine zylindrische Beleuchtung verwendet. Das auslaufende Streulicht wird dadurch genauer approximiert als durch eine ebene Welle und sollte die Fokussierung durch den TR-Algorithmus verbessern. Es ergaben sich nichtlineare Fluenzen von $S_{TR\text{rot}}^{nl} = 17$ und $S_{TR\text{blau}}^{nl} = 19$. Ein Schalten der raumzeitlichen Lichtfokussierung ist damit möglich, es konnte jedoch keine Verbesserung zu den Werten, die sich durch die Beleuchtung mit ebenen Wellen ergeben, erreicht werden. Durch die zusätzlichen Beleuchtungsrichtungen erhöht sich die Anzahl der Fernfeld-Nahfeld-Kopplungen. Dadurch konnte der GA wesentliche höhere Werte von $S_{AO\text{rot}}^{nl} = 5 \cdot 10^3$ und $S_{AO\text{blau}}^{nl} = 8.2 \cdot 10^6$ erreichen.

Mithilfe einer Wiederhallkammer wurden mehrere Propagationsrichtungen der auslaufenden Lichtpulse kombiniert, um die Kopplung zwischen Fernfeld und Nahfeld zu erhöhen. Analog zu den Experimenten im Mikrowellenbereich [109] wurde eine Verbesserung der Fokussierung durch den TR-Algorithmus erwartet. Es konnte jedoch durch den TR-Algorithmus das Nahfeld nicht signifikant beeinflusst werden. Das Konzept einer Wiederhallkammer eignet sich somit nicht für den optischen Spektralbereich

Für die Beleuchtung mit ebenen Wellen und einer zylindrischen Beleuchtung konnte durch den TR-Algorithmus die raumzeitliche Lichtlokalisierung in einer randomisierten Streustruktur beobachtet werden. Das erreichte lineare und nichtlineare Schaltverhältnis ist jedoch stark von der Beleuchtungsrichtung abhängig. Für einige Richtungen konnte kein Schaltprozess erreicht werden. Durch den GA wurden deutlich höhere Werte für $S_{AO\text{rot/blau}}$ und $S_{AO\text{rot/blau}}^{nl}$ erzielt. Aufgrund dessen wurde in dem in Kapitel 7 vorgestellten Experiment zur Nahfeldkontrolle in randomisierten Streustrukturen ein GA eingesetzt.

Um Experimente zur adaptiven Nahfeldkontrolle durchführen zu können, wurde ein Vektorfeldsynthesizer (VFS) verwendet. Dessen Funktionsfähigkeit wurde durch den Einsatz verschiedener Charakterisierungsmethoden in Kapitel 4 demonstriert. Durch die Formung von Laserpulsen mit verschiedenen Polarisationszuständen konnte gezeigt werden, dass fast alle Punkte innerhalb der Poincaré-Ebene erreicht werden (siehe Kapitel 4.3.2). Um zu zeigen, dass eine gleichzeitige Phasen- und Amplitudenformung möglich ist, wurde die Intensität von Teilbereichen des Spektrums kontinuierlich in ihrer Polarisationsrichtung gedreht, während andere Teile des Spektrums konstant gehalten wurden (siehe Kapitel 4.3.3). Es wurde eine aktive Phasenstabilisierung implementiert, um eine interferometrische Stabilität zwischen beiden Polarisationskomponenten des VFS zu gewährleisten. Dadurch konnten Schwankungen der spektralen Phasen auf geringe Werte von $\Delta\phi_p(t) = \pm 5 \text{ mrad}$ und $\Delta\phi_s(t) = \pm 75 \text{ mrad}$ reduziert werden. Dabei gibt der Fehler in der Phase der s-Polarisation die relative Schwankung zwischen beiden Polarisierungen an. Diese ist genau so gering, wie in vergleichbaren phasenstabilisierten VFS [50, 51]. Limitierend war für $\Delta\phi_s$ die zeitliche Leistungsstabilität des Stabilisierungslasers, was sich durch den Einsatz eines stabileren Lasers verbessern lassen könnte.

Unter Verwendung des VFS wurden in Kapitel 7 Experimente zur adaptiven Kontrolle der optischen Nahfelder innerhalb von randomisierten Gold-Nanopartikel-Agglomeraten (Au-NP) vorgestellt. Zur Optimierung der spektralen Phasen der Anregungspulse wurde ein GA eingesetzt. Es hatte sich in den vorausgegangenen numerischen Simulationen in Kapitel 6 herausgestellt, dass dieser besonders gut zur raumzeitlichen Kontrolle der optischen Nahfelder in randomisierten Streustrukturen geeignet ist. Zum Nachweis der raumzeitlichen Nahfeldfokussierung wurden zwei, bei verschiedenen Wellenlängen fluoreszierende, Quanten-Dot-Sorten (QD) verwendet. Die Fluoreszenz wird durch einen nichtlinearen Zwei-Photonen-Absorptionsprozess im nahinfraroten Spektralbereich angeregt. Bei der Aufbringung der QDs verteilen sich beide Sorten inhomogen innerhalb des Au-NP-Agglomerats. Abhängig von der Form der ultrakurzen Lichtpulse werden unterschiedliche Nahfelder innerhalb der Streustruktur induziert. Lichtpulse, welche die Energie durch Nahfeldmoden selektiv bei einer QD-Sorte räumlich und zeitlich lokalisieren können, erhöhen deren Fluoreszenzausbeute. Dadurch konnte das Verhältnis der Fluoreszenzintensitäten V durch die optischen Nahfelder kontrolliert werden. Die durch den GA optimierten Lichtpulse konnten das Verhältnis um 38% erhöhen bzw. um 31% verringern, bezogen auf das durch einen bandbreitebegrenzten Puls gemessene Verhältnis V^{bw} . Es konnte somit durch ein optisches Eingangssignal die Emission eines optischen Ausgangssignals gesteuert werden. Dieser erste „Proof-of-Concept“ eines optischen Nano-Demultiplexers wäre beispielsweise von Interesse für die optische Datenverarbeitung. Im Gegensatz zu gängigen Demultiplexern können die verwendeten Streustrukturen in großer Anzahl auf Mikrochips hergestellt werden.

Optimierungen des experimentellen Aufbaus und der Probenpräparation lassen eine weitere Erhöhung des Schaltkontrastes erwarten. Durch eine Verkleinerung des Anregungsfokus ließe sich der Anteil der nicht schaltbaren Hintergrundfluoreszenz verringern. Durch eine geringere QD-Konzentration würde deren Verteilung innerhalb der Streustruktur noch inhomogener. Wenn im Idealfall nur noch einzelne QDs die Fluoreszenz bestimmen, wäre sogar ein vollständiges Schalten der Fluoreszenz möglich. Dann könnte durch entsprechend geformte Laserpulse die Fluoreszenz einer QD-Sorte ausgeschaltet werden, während die der anderen QD-Sorte eingeschaltet wird.

Zusammenfassend konnte gezeigt werden, dass randomisierte nanophotonische Systeme neue Wege zur Lichtlokalisierung eröffnen. Solche Nanostrukturen lassen sich leichter herstellen, als reguläre Strukturen, und ermöglichen Effekte, wie die Anderson-Lokalisierung. Gittereffekte, wie sie in photonischen Kristallen vorkommen, können dahingegen vermieden werden. In Zukunft könnten Dünnschichtsolarzellen durch die gezielte Nutzung von Anderson-lokalisierten Lichtmoden deutlich höhere Absorptionen erreichen. Adaptive Optimierungsverfahren profitieren ebenfalls von randomisierten Nanostrukturen. Sie vermögen es, die vielen Freiheitsgrade, die in der Kopplung von Fernfeldern an die Nahfeldmoden bestehen, zu nutzen. Dadurch ist es möglich, auch in komplizierten Nanostrukturen eine kohärente Nahfeldkontrolle zu realisieren. Dies ermöglicht neue Ansätze beispielsweise in der optischen Signalverarbeitung oder der Kontrolle des Energietransports in plasmonischen Nanosystemen.

A. Publikationen

Die im Rahmen dieser Arbeit gezeigten Ergebnisse sind in chronologischer Reihenfolge in den folgenden Publikationen zu finden:

D. Differt, M. Hensen, and W. Pfeiffer, "Time reversal versus adaptive optimization for spatiotemporal nanolocalization in a random nanoantenna," *Applied Physics B*, (Zur Veröffentlichung akzeptiert).

M. Aeschlimann, T. Brixner, D. Differt, U. Heinzmann, M. Hensen, C. Kramer, F. Lükermann, P. Melchior, W. Pfeiffer, M. Piecuch, C. Schneider, H. Stiebig, C. Strüber, und P. Thielen, „Perfect absorption in nanotextured thin films via Anderson-localized photon modes“, *Nature Photonics*, Bd. 9, Nr. 10, S. 663–668, Aug. 2015.

D. Differt, B. Soleymanzadeh, F. Lükermann, C. Strüber, W. Pfeiffer, und H. Stiebig, „Enhanced light absorption in nanotextured amorphous thin-film silicon caused by femtosecond-laser materials processing“, *Solar Energy Materials and Solar Cells*, Bd. 135, S. 72–77, Apr. 2015.

B. Soleymanzadeh, W. Beyer, F. Lükermann, D. Differt, W. Pfeiffer, und H. Stiebig, „Modification of a-Si: H Films via Non-linear Femtosecond Laser Pulse Absorption“, *Energy Procedia*, Bd. 60, S. 90–95, 2014.

M. Birlo, D. Differt, F. Lükermann, W. Pfeiffer, und H. Stiebig, „Time Domain Characterization of Light Trapping States in Thin Film Solar Cells“, *EPJ Web of Conferences*, Bd. 41, S. 08016, 2013.

D. Differt, F. J. García de Abajo, W. Pfeiffer, C. Strüber, und D. V. Voronine, „Nanolocalization of Ultrashort Time-Reversed Pulses in Random Nanoparticle Assemblies“, in *Proceedings of the 17th International Conference, The Silvertree Hotel and Snowmass Conference Center, Snowmass, Colorado, United States, July 18-23, 2010*, Oxford, New York, 2011, S. 272–274.

Weitere Publikationen, deren Ergebnisse nicht im Rahmen dieser Arbeit diskutiert wurden:

M. Hensen, D. Differt, I. Heesemann, F. Becker, A. Godt, D. Diesing, and W. Pfeiffer, "Few-Cycle Laser Pulse induced Plasmon Assisted Thermionic Injection in Metal-Insulator-Metal Junctions," in *Springer Proceedings in Physics*, 2014, Bd. 162, S. 698–701.

D. Differt, W. Pfeiffer, and D. Diesing, "Scanning internal photoemission microscopy for the identification of hot carrier transport mechanisms," *Applied Physics Letters*, Bd. 101, Nr. 11, S. 111608, 2012.

B. Akronyme

AC	Autokorrelation	QD	Quantum Dot
AO	Adaptive Optimierung	RMS	Root-Mean-Square
Au-NP	Gold-Nanopartikel	SCS	Scattering Cross Section
BP	Bandpassfilter	SI	Spektrale Interferometrie
cw	Continuous Wave	SIM	Structured Illumination Microscopy
DST	Dichroitischer Strahlteiler	SLM	Spatial Light Modulator
FDTD	Finite-Difference Time-Domain	SNOM	Scanning Nearfield Optical Microscope
FT	Fourier-Transformation	SPIDER	Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction
FWHM	Full Width at Half Maximum	ST	Strahlteiler
GA	Genetischer Algorithmus	STORM	Stochastic optical reconstruction microscopy
GVD	Group Velocity Dispersion	TCO	Transparentes leitfähiges Oxid
IF	Infrarotfilter	TEM	Transmissions-Elektronen- Mikroskop
MESME	Multiple Elastic Scattering of Multipole Expansion	TFP	Dünnschichtpolarisator
MIT	Metal Insulator Transition	TOD	Third Order Dispersion
NA	Numerische Apertur	TR	Zeitumkehr
NP	Nanopartikel	TRM	Zeitumkehrspiegel
PD	Photodiode	UHV	Ultrahochvakuum
PECVD	Plasmaunterstützte chemische Gasphasenabscheidung	VFS	Vektorfeldsynthesizer
PEEM	Photoemissionselektronen- Mikroskop	WP	Wellenplatte
PID	Proportional–Integral–Derivative		

Literaturverzeichnis

- [1] D. Adams und M. Carwardine, *Last chance to see*. New York: Ballantine Books, 1992.
- [2] D. S. Wiersma, „Disordered photonics“, *Nature Photonics*, Bd. 7, Nr. 3, S. 188–196, Feb. 2013.
- [3] V. Giannini, A. I. Fernández-Domínguez, Y. Sonnefraud, T. Roschuk, R. Fernández-García, und S. A. Maier, „Controlling Light Localization and Light-Matter Interactions with Nanoplasmonics“, *Small*, Bd. 6, Nr. 22, S. 2498–2507, Nov. 2010.
- [4] J. Müller, B. Rech, J. Springer, und M. Vanecek, „TCO and light trapping in silicon thin film solar cells“, *Solar Energy*, Bd. 77, Nr. 6, S. 917–930, Dez. 2004.
- [5] Z. Yu, A. Raman, und S. Fan, „Fundamental limit of nanophotonic light trapping in solar cells“, *Proceedings of the National Academy of Sciences*, Bd. 107, Nr. 41, S. 17491–17496, 2010.
- [6] D. M. Callahan, J. N. Munday, und H. A. Atwater, „Solar Cell Light Trapping beyond the Ray Optic Limit“, *Nano Letters*, Bd. 12, Nr. 1, S. 214–218, Jan. 2012.
- [7] M. Aeschlimann, T. Brixner, S. Cunovic, A. Fischer, P. Melchior, W. Pfeiffer, M. Rohmer, C. Schneider, C. Strüber, P. Tuchscherer, und D. V. Voronine, „Nano-Optical Control of Hot-Spot Field Superenhancement on a Corrugated Silver Surface“, *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, Bd. 18, Nr. 1, S. 275–282, Jan. 2012.
- [8] J. Aulbach, *Spatiotemporal control of light in turbid media*. Enschede: University of Twente, 2013.
- [9] B. Redding, S. F. Liew, R. Sarma, und H. Cao, „Compact spectrometer based on a disordered photonic chip“, *Nature Photonics*, Bd. 7, Nr. 9, S. 746–751, Juli 2013.
- [10] P. Barthelemy, M. Ghulinyan, Z. Gaburro, C. Toninelli, L. Pavesi, und D. S. Wiersma, „Optical switching by capillary condensation“, *Nature Photonics*, Bd. 1, Nr. 3, S. 172–175, März 2007.
- [11] M. Aeschlimann, T. Brixner, D. Differt, U. Heinzmann, M. Hensen, C. Kramer, F. Lükermann, P. Melchior, W. Pfeiffer, M. Piecuch, C. Schneider, H. Stiebig, C. Strüber, und P. Thielen, „Perfect absorption in nanotextured thin films via Anderson-localized photon modes“, *Nature Photonics*, Bd. 9, Nr. 10, S. 663–668, Aug. 2015.
- [12] D. Differt, B. Soleymanzadeh, F. Lükermann, C. Strüber, W. Pfeiffer, und H. Stiebig, „Enhanced light absorption in nanotextured amorphous thin-film silicon caused by femtosecond-laser materials processing“, *Solar Energy Materials and Solar Cells*, Bd. 135, S. 72–77, Apr. 2015.
- [13] J. Zhao und M. A. Green, „Optimized antireflection coatings for high-efficiency silicon solar cells“, *Electron Devices, IEEE Transactions on*, Bd. 38, Nr. 8, S. 1925–1934, 1991.
- [14] I. Tobías, A. Luque, und A. Martí, „Light intensity enhancement by diffracting structures in solar cells“, *Journal of Applied Physics*, Bd. 104, Nr. 3, S. 034502, 2008.
- [15] P. Bermel, C. Luo, L. Zeng, L. C. Kimerling, und J. D. Joannopoulos, „Improving thin-film crystalline silicon solar cell efficiencies with photonic crystals“, *Optics express*, Bd. 15, Nr. 25, S. 16986–17000, 2007.

- [16] F. Riboli, P. Barthelemy, S. Vignolini, F. Intonti, A. De Rossi, S. Combrie, und D. S. Wiersma, „Anderson localization of near-visible light in two dimensions“, *Optics Letters*, Bd. 36, Nr. 2, S. 127, Jan. 2011.
- [17] K. Vynck, M. Burrelli, F. Riboli, und D. S. Wiersma, „Photon management in two-dimensional disordered media“, *Nature Materials*, Nr. 11, S. 1017–1022, Okt. 2012.
- [18] P. W. Anderson, „Absence of diffusion in certain random lattices“, *Physical review*, Bd. 109, Nr. 5, S. 1492, 1958.
- [19] S. John, „Localization of light“, *Physics Today*, Bd. 44, Nr. 5, S. 32–40, 1991.
- [20] D. J. Thouless, „Electrons in disordered systems and the theory of localization“, *Physics Reports*, Bd. 13, Nr. 3, S. 93–142, Okt. 1974.
- [21] M. Aeschlimann, M. Bauer, D. Bayer, T. Brixner, S. Cunovic, F. Dimler, A. Fischer, W. Pfeiffer, M. Rohmer, C. Schneider, F. Steeb, C. Struber, und D. V. Voronine, „Spatiotemporal control of nanooptical excitations“, *Proceedings of the National Academy of Sciences*, Bd. 107, Nr. 12, S. 5329–5333, März 2010.
- [22] M. I. Stockman, D. J. Bergman, und T. Kobayashi, „Coherent control of nanoscale localization of ultrafast optical excitation in nanosystems“, *Physical Review B*, Bd. 69, Nr. 5, S. 054202, Feb. 2004.
- [23] M. I. Stockman, S. V. Faleev, und D. J. Bergman, „Coherent Control of Femtosecond Energy Localization in Nanosystems“, *Physical Review Letters*, Bd. 88, Nr. 6, S. 067402, Jan. 2002.
- [24] P. Tuchscherer, C. Rewitz, D. V. Voronine, F. J. García de Abajo, W. Pfeiffer, und T. Brixner, „Analytic coherent control of plasmon propagation in nanostructures“, *Optics express*, Bd. 17, Nr. 16, S. 14235–14259, 2009.
- [25] M. Aeschlimann, M. Bauer, D. Bayer, T. Brixner, F. J. García de Abajo, W. Pfeiffer, M. Rohmer, C. Spindler, und F. Steeb, „Adaptive subwavelength control of nano-optical fields“, *Nature*, Bd. 446, Nr. 7133, S. 301–304, März 2007.
- [26] M. Ghulinyan und L. Pavesi, Hrsg., *Light localisation and lasing: random and quasi-random photonic structures*. Cambridge University Press, 2015.
- [27] C. López, „Materials Aspects of Photonic Crystals“, *Advanced Materials*, Bd. 15, Nr. 20, S. 1679–1704, Okt. 2003.
- [28] X. Li und M. I. Stockman, „Highly efficient spatiotemporal coherent control in nanoplasmonics on a nanometer-femtosecond scale by time reversal“, *Physical Review B*, Bd. 77, Nr. 19, S. 195109, Mai 2008.
- [29] J. C. Maxwell, „A Dynamical Theory of the Electromagnetic Field“, *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, Bd. 155, S. 459–512, 1865.
- [30] A. M. Weiner, *Ultrafast optics*. Hoboken, N.J: Wiley, 2009.
- [31] T. Brixner, „Poincaré representation of polarization-shaped femtosecond laser pulses“, *Applied Physics B*, Bd. 76, Nr. 5, S. 531–540, Mai 2003.
- [32] G. Hake, D. Grünreich, und L. Meng, *Kartographie: Visualisierung raum-zeitlicher Informationen*, 8. Aufl. Berlin: *de Gruyter*, 2002.
- [33] C. Iaconis und I. A. Walmsley, „Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses“, *Optics Letters*, Bd. 23, Nr. 10, S. 792, Mai 1998.
- [34] L. Lepetit, G. Cheriaux, und M. Joffre, „Linear techniques of phase measurement by femtosecond spectral interferometry for applications in spectroscopy“, *Journal of the Optical Society of America B*, Bd. 12, Nr. 12, S. 2467–2474, 1995.
- [35] C. Dorrer, N. Belabas, J.-P. Likforman, und M. Joffre, „Spectral resolution and sampling issues in Fourier-transform spectral interferometry“, *Journal of the Optical Society of America B*, Bd. 17, Nr. 10, S. 1795–1802, 2000.

- [36] I. H. Malitson, „Interspecimen Comparison of the Refractive Index of Fused Silica“, *Journal of the Optical Society of America*, Bd. 55, Nr. 10, S. 1205, Okt. 1965.
- [37] A. Assion, „Control of Chemical Reactions by Feedback-Optimized Phase-Shaped Femtosecond Laser Pulses“, *Science*, Bd. 282, Nr. 5390, S. 919–922, Okt. 1998.
- [38] D. Meshulach und Y. Silberberg, „Coherent quantum control of two-photon transitions by a femtosecond laser pulse“, *Nature*, Bd. 396, S. 239–242, Nov. 1998.
- [39] J. L. Herek, W. Wohlleben, R. J. Cogdell, D. Zeidler, und M. Motzkus, „Quantum control of energy flow in light harvesting“, *Nature*, Bd. 417, Nr. 6888, S. 533–535, Mai 2002.
- [40] M. Aeschlimann, T. Brixner, A. Fischer, C. Kramer, P. Melchior, W. Pfeiffer, C. Schneider, C. Struber, P. Tuchscherer, und D. V. Voronine, „Coherent Two-Dimensional Nanoscopy“, *Science*, Bd. 333, Nr. 6050, S. 1723–1726, Sep. 2011.
- [41] M. M. Wefers und K. A. Nelson, „Generation of high-fidelity programmable ultrafast optical waveforms“, *Optics letters*, Bd. 20, Nr. 9, S. 1047–1049, 1995.
- [42] T. Brixner und G. Gerber, „Femtosecond polarization pulse shaping“, *Optics letters*, Bd. 26, Nr. 8, S. 557–559, 2001.
- [43] N. Dudovich, D. Oron, und Y. Silberberg, „Quantum Control of the Angular Momentum Distribution in Multiphoton Absorption Processes“, *Physical Review Letters*, Bd. 92, Nr. 10, S. 103003, März 2004.
- [44] T. Suzuki, S. Minemoto, T. Kanai, und H. Sakai, „Optimal Control of Multiphoton Ionization Processes in Aligned I₂ Molecules with Time-Dependent Polarization Pulses“, *Physical Review Letters*, Bd. 92, Nr. 13, S. 133005, Apr. 2004.
- [45] T. Brixner, G. Krampert, T. Pfeifer, R. Selle, G. Gerber, M. Wollenhaupt, O. Graefe, C. Horn, D. Liese, und T. Baumert, „Quantum Control by Ultrafast Polarization Shaping“, *Physical Review Letters*, Bd. 92, Nr. 20, S. 208301, Mai 2004.
- [46] O. Masihzadeh, P. Schlup, und R. A. Bartels, „Complete polarization state control of ultrafast laser pulses with a single linear spatial light modulator“, *Optics express*, Bd. 15, Nr. 26, S. 18025–18032, 2007.
- [47] Y. Esumi, M. D. Kabir, und F. Kannari, „Spatiotemporal vector pulse shaping of femtosecond laser pulses with a multi-pass two-dimensional spatial light modulator“, *Optics express*, Bd. 17, Nr. 21, S. 19153–19159, 2009.
- [48] S. Nickel, „Aktive Stabilisierung eines Vector-Field Synthesizers“, Diplomarbeit, Bielefeld, 2014.
- [49] M. Ninck, A. Galler, T. Feuerer, und T. Brixner, „Programmable common-path vector field synthesizer for femtosecond pulses“, *Optics letters*, Bd. 32, Nr. 23, S. 3379–3381, 2007.
- [50] M. Sato, T. Suzuki, und K. Misawa, „Interferometric polarization pulse shaper stabilized by an external laser diode for arbitrary vector field shaping“, *Review of Scientific Instruments*, Bd. 80, Nr. 12, S. 123107, 2009.
- [51] C. Schwarz, O. Hüter, und T. Brixner, „Full vector-field control of ultrashort laser pulses utilizing a single dual-layer spatial light modulator in a common-path setup“, *Journal of the Optical Society of America B*, Bd. 32, Nr. 5, S. 933, Mai 2015.
- [52] A. V. Shah und C. Ballif, Hrsg., Thin-film silicon solar cells. Lausanne: *Ecole polytechnique fédérale de Lausanne* Press, 2010.
- [53] R. Petit, Electromagnetic Theory of Gratings. Berlin, Heidelberg: *Springer*, 1980.
- [54] O. Kluth, B. Rech, L. Houben, S. Wieder, G. Schöpe, C. Beneking, H. Wagner, A. Löfl, und H. . Schock, „Texture etched ZnO:Al coated glass substrates for silicon

- based thin film solar cells“, *Thin Solid Films*, Bd. 351, Nr. 1–2, S. 247–253, Aug. 1999.
- [55] M. Berginski, J. Hüpkes, M. Schulte, G. Schöpe, H. Stiebig, B. Rech, und M. Wuttig, „The effect of front ZnO:Al surface texture and optical transparency on efficient light trapping in silicon thin-film solar cells“, *Journal of Applied Physics*, Bd. 101, Nr. 7, S. 074903, 2007.
- [56] B. Rech und H. Wagner, „Potential of amorphous silicon for solar cells“, *Applied physics A*, Bd. 69, Nr. 2, S. 155–167, 1999.
- [57] E. Yablonovitch und G. D. Cody, „Intensity enhancement in textured optical sheets for solar cells“, *IEEE Transactions on Electron Devices*, Bd. 29, Nr. 2, S. 300–305, Feb. 1982.
- [58] E. Yablonovitch, „Statistical ray optics“, *Journal of the Optical Society of America*, Bd. 72, Nr. 7, S. 899–907, 1982.
- [59] M. A. Green, „Lambertian light trapping in textured solar cells and light-emitting diodes: analytical solutions“, *Progress in Photovoltaics: Research and Applications*, Bd. 10, Nr. 4, S. 235–241, 2002.
- [60] J. Zhao und M. Green, „Optimized antireflection coatings for high-efficiency silicon solar cells“, *IEEE Transactions on Electron Devices*, Bd. 38, Nr. 8, S. 1925–1934, 1991.
- [61] J. Yoo, G. Yu, und J. Yi, „Black surface structures for crystalline silicon solar cells“, *Materials Science and Engineering: B*, Bd. 159–160, S. 333–337, März 2009.
- [62] Y. Xia, B. Liu, J. Liu, Z. Shen, und C. Li, „A novel method to produce black silicon for solar cells“, *Solar Energy*, Bd. 85, Nr. 7, S. 1574–1578, Juli 2011.
- [63] S. Fan und J. D. Joannopoulos, „Analysis of guided resonances in photonic crystal slabs“, *Physical Review B*, Bd. 65, Nr. 23, Juni 2002.
- [64] P. Bettotti, A. Pitanti, E. Rigo, F. De Leonardis, V. M. N. Passaro, und L. Pavesi, „Modeling of Slot Waveguide Sensors Based on Polymeric Materials“, *Sensors*, Bd. 11, Nr. 12, S. 7327–7340, Juli 2011.
- [65] E. D. Palik, Hrsg., Handbook of optical constants of solids. San Diego, Calif.: Acad. Press, 1998.
- [66] A. Lagendijk, B. van Tiggelen, und D. S. Wiersma, „Fifty years of Anderson localization“, *Physics Today*, Bd. 62, Nr. 8, S. 24–29, Aug. 2009.
- [67] P. Drude, „Zur Elektronentheorie der Metalle“, *Annalen der Physik*, Bd. 306, Nr. 3, S. 566–613, 1900.
- [68] A. F. Ioffe und A. R. Regel, Non-crystalline, amorphous, and liquid electronic semiconductors. Progress in Semiconductors. Band 4, S. 237, 1960.
- [69] N. F. Mott, „Electrons in disordered structures“, *Advances in Physics*, Bd. 16, Nr. 61, S. 49–144, Jan. 1967.
- [70] N. Bloembergen, „On the interaction of nuclear spins in a crystalline lattice“, *Physica*, Bd. 15, Nr. 3–4, S. 386–426, Mai 1949.
- [71] B. Kramer und A. MacKinnon, „Localization: theory and experiment“, *Reports on Progress in Physics*, Bd. 56, Nr. 12, S. 1469–1564, 1993.
- [72] N. F. Mott und L. Friedman, „Metal-insulator transitions in VO_2 , Ti_2O_3 and $\text{Ti}_{2-x}\text{V}_x\text{O}_3$ “, *Philosophical Magazine*, Bd. 30, Nr. 2, S. 389–402, Aug. 1974.
- [73] A. Z. Genack und A. A. Chabanov, „Signatures of photon localization“, *Journal of Physics A: Mathematical and General*, Bd. 38, Nr. 49, S. 10465–10488, Dez. 2005.
- [74] T. F. Rosenbaum, R. F. Milligan, M. A. Paalanen, G. A. Thomas, R. N. Bhatt, und W. Lin, „Metal-insulator transition in a doped semiconductor“, *Physical Review B*, Bd. 27, Nr. 12, S. 7509–7523, Juni 1983.

- [75] S. Waffenschmidt, C. Pfeleiderer, und H. v Löhneysen, „Critical behavior of the conductivity of Si: P at the metal-insulator transition under uniaxial stress“, *Physical review letters*, Bd. 83, Nr. 15, S. 3005, 1999.
- [76] S. John, „Strong localization of photons in certain disordered dielectric superlattices“, *Physical review letters*, Bd. 58, Nr. 23, S. 2486, 1987.
- [77] M. Mascheck, S. Schmidt, M. Silies, T. Yatsui, K. Kitamura, M. Ohtsu, D. Leipold, E. Runge, und C. Lienau, „Observing the localization of light in space and time by ultrafast second-harmonic microscopy“, *Nature Photonics*, Bd. 6, Nr. 5, S. 293–298, Apr. 2012.
- [78] T. Schwartz, G. Bartal, S. Fishman, und M. Segev, „Transport and Anderson localization in disordered two-dimensional photonic lattices“, *Nature*, Bd. 446, Nr. 7131, S. 52–55, März 2007.
- [79] G. Mie, „Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen“, *Annalen der Physik*, Bd. 330, Nr. 3, S. 377–445, 1908.
- [80] D. S. Wiersma, P. Bartolini, A. Lagendijk, und R. Righini, „Localization of light in a disordered medium“, *Nature*, Bd. 390, Nr. 6661, S. 671–673, 1997.
- [81] T. Strudley, D. Akbulut, W. L. Vos, A. Lagendijk, A. P. Mosk, und O. L. Muskens, „Observation of intensity statistics of light transmitted through 3D random media“, *Optics Letters*, Bd. 39, Nr. 21, S. 6347, Nov. 2014.
- [82] M. Störzer, P. Gross, C. M. Aegerter, und G. Maret, „Observation of the Critical Regime Near Anderson Localization of Light“, *Physical Review Letters*, Bd. 96, Nr. 6, S. 063904, Feb. 2006.
- [83] P. Roca i Cabarocas, „Plasma enhanced chemical vapor deposition of amorphous, polymorphous and microcrystalline silicon films“, *Journal of Non-Crystalline Solids*, Bd. 266–269, S. 31–37, Mai 2000.
- [84] A. V. Shah, H. Schade, M. Vanecek, J. Meier, E. Vallat-Sauvain, N. Wyrsh, U. Kroll, C. Droz, und J. Bailat, „Thin-film silicon solar cell technology“, *Progress in Photovoltaics: Research and Applications*, Bd. 12, Nr. 23, S. 113–142, März 2004.
- [85] C. Strüber, „Ultrafast Coherent Control and Multidimensional Spectroscopy at the Nanoscale“, Dissertation, Bielefeld, 2013.
- [86] M. Schulte, „Streuverhalten von texturierten TCO-Substraten in Silizium-Dünnschichtsolarzellen“, Dissertation, Aachen, 2009.
- [87] K. Y. Bliokh, Y. P. Bliokh, V. Freilikher, S. Savel’ev, und F. Nori, „Unusual resonators: Plasmonics, metamaterials, and random media“, *Reviews of Modern Physics*, Bd. 80, Nr. 4, S. 1201–1213, Okt. 2008.
- [88] T. M. Nieuwenhuizen und M. C. W. Van Rossum, „Intensity distributions of waves transmitted through a multiple scattering medium“, *Physical review letters*, Bd. 74, Nr. 14, S. 2674, 1995.
- [89] M. C. W. van Rossum und T. M. Nieuwenhuizen, „Multiple scattering of classical waves: microscopy, mesoscopy, and diffusion“, *Reviews of Modern Physics*, Bd. 71, Nr. 1, S. 313–371, Jan. 1999.
- [90] H. Hu, A. Strybulevych, J. H. Page, S. E. Skipetrov, und B. A. van Tiggelen, „Localization of ultrasound in a three-dimensional elastic network“, *Nature Physics*, Bd. 4, Nr. 12, S. 945–948, Dez. 2008.
- [91] M. Aeschlimann, T. Brixner, A. Fischer, C. Kramer, P. Melchior, W. Pfeiffer, C. Schneider, C. Struber, P. Tuchscherer, und D. V. Voronine, „Coherent Two-Dimensional Nanoscopy“, *Science*, Bd. 333, Nr. 6050, S. 1723–1726, Sep. 2011.
- [92] M. Hensen, „Concentrating Light: Nano-devices for spectroscopy, ultra-fast current injection and energy transport“, Dissertation, Bielefeld, 2016.

- [93] B. von Roedern, L. Ley, und M. Cardona, „Photoelectron Spectra of Hydrogenated Amorphous Silicon“, *Physical Review Letters*, Bd. 39, Nr. 24, S. 1576–1580, Dez. 1977.
- [94] J. H. Eberly und J. Javanainen, „Above-threshold ionisation“, *European Journal of Physics*, Bd. 9, Nr. 4, S. 265–275, Okt. 1988.
- [95] B. Piglosiewicz, S. Schmidt, D. J. Park, J. Vogelsang, P. Groß, C. Manzoni, P. Farinello, G. Cerullo, und C. Lienau, „Carrier-envelope phase effects on the strong-field photoemission of electrons from metallic nanostructures“, *Nature Photonics*, Bd. 8, Nr. 1, S. 37–42, Nov. 2013.
- [96] S. I. Anisimov, B. L. Kapeliovich, und T. L. Perelman, „Electron emission from metal surfaces exposed to ultrashort laser pulses“, *Zh. Eksp. Teor. Fiz*, Bd. 66, Nr. 2, S. 375–377, 1974.
- [97] P. Biswas, R. Atta-Fynn, und D. A. Drabold, „Experimentally constrained molecular relaxation: The case of hydrogenated amorphous silicon“, *Physical Review B*, Bd. 76, Nr. 12, S. 125210, Sep. 2007.
- [98] J. Dong und D. A. Drabold, „Atomistic structure of band-tail states in amorphous silicon“, *Physical review letters*, Bd. 80, Nr. 9, S. 1928, 1998.
- [99] E. Fermi, „Quantum Theory of Radiation“, *Reviews of Modern Physics*, Bd. 4, Nr. 1, S. 87–132, Jan. 1932.
- [100] E. Abrahams, P. W. Anderson, D. C. Licciardello, und T. V. Ramakrishnan, „Scaling Theory of Localization: Absence of Quantum Diffusion in Two Dimensions“, *Physical Review Letters*, Bd. 42, Nr. 10, S. 673–676, März 1979.
- [101] B. Soleymanzadeh, „Femtosekundenlaser induzierte Modifikation in hydrogenisierten amorphen Silizium-Dünnschichten“, Dissertation, Bielefeld, 2016.
- [102] B. Soleymanzadeh, W. Beyer, F. Luekermann, D. Differt, W. Pfeiffer, und H. Stiebig, „Modification of a-Si: H Films via Non-linear Femtosecond Laser Pulse Absorption“, *Energy Procedia*, Bd. 60, S. 90–95, 2014.
- [103] D. Differt, B. Soleymanzadeh, F. Lükermann, C. Strüber, W. Pfeiffer, und H. Stiebig, „Enhanced light absorption in nanotextured amorphous thin-film silicon caused by femtosecond-laser materials processing“, *Solar Energy Materials and Solar Cells*, Bd. 135, S. 72–77, Apr. 2015.
- [104] J.-S. Huang, T. Feichtner, P. Biagioni, und B. Hecht, „Impedance Matching and Emission Properties of Nanoantennas in an Optical Nanocircuit“, *Nano Letters*, Bd. 9, Nr. 5, S. 1897–1902, Mai 2009.
- [105] T. Brixner, F. J. García de Abajo, J. Schneider, und W. Pfeiffer, „Nanoscopic Ultrafast Space-Time-Resolved Spectroscopy“, *Physical Review Letters*, Bd. 95, Nr. 9, S. 093901, Aug. 2005.
- [106] T. Brixner, F. J. García de Abajo, J. Schneider, C. Spindler, und W. Pfeiffer, „Ultrafast adaptive optical near-field control“, *Physical Review B*, Bd. 73, Nr. 12, S. 125437, März 2006.
- [107] M. I. Stockman, S. V. Faleev, und D. J. Bergman, „Coherent Control of Femtosecond Energy Localization in Nanosystems“, *Physical Review Letters*, Bd. 88, Nr. 6, S. 067402, Jan. 2002.
- [108] G. F. Edelmann, T. Akal, W. S. Hodgkiss, S. Kim, W. Kuperman, H. C. Song, und others, „An initial demonstration of underwater acoustic communication using time reversal“, *Oceanic Engineering, IEEE Journal of*, Bd. 27, Nr. 3, S. 602–609, 2002.
- [109] G. Lerosey, J. de Rosny, A. Tourin, und M. Fink, „Focusing Beyond the Diffraction Limit with Far-Field Time Reversal“, *Science*, Bd. 315, Nr. 5815, S. 1120–1122, Feb. 2007.

- [110] *Ultrafast phenomena XIX*. New York, NY: Springer Berlin Heidelberg, 2015.
- [111] E. A. Ash und G. Nicholls, „Super-resolution Aperture Scanning Microscope“, *Nature*, Bd. 237, Nr. 5357, S. 510–512, Juni 1972.
- [112] W. Lukosz und M. Marchand, „Optischen Abbildung Unter Überschreitung der Beugungsbedingten Auflösungsgrenze“, *Optica Acta: International Journal of Optics*, Bd. 10, Nr. 3, S. 241–255, Juli 1963.
- [113] M. J. Rust, M. Bates, und X. Zhuang, „Sub-diffraction-limit imaging by stochastic optical reconstruction microscopy (STORM)“, *Nature Methods*, Bd. 3, Nr. 10, S. 793–796, Okt. 2006.
- [114] F. Arntzenius und H. Greaves, „Time Reversal in Classical Electromagnetism“, *The British Journal for the Philosophy of Science*, Bd. 60, Nr. 3, S. 557–584, Sep. 2009.
- [115] D. Differt, M. Hensen, und W. Pfeiffer, „Time reversal versus adaptive optimization for spatiotemporal nanolocalization in a random nanoantenna“, *Applied Physics B*, (Zur Veröffentlichung akzeptiert).
- [116] D. Differt, F. J. García de Abajo, W. Pfeiffer, C. Strüber, und D. V. Voronine, „Nanolocalization of Ultrashort Time-Reversed Pulses in Random Nanoparticle Assemblies“, in *Proceedings of the 17th International Conference, The Silvertree Hotel and Snowmass Conference Center, Snowmass, Colorado, United States, July 18-23, 2010*, Oxford, New York, 2011, S. 272–274.
- [117] M. Birlo, D. Differt, F. Lükermann, W. Pfeiffer, und H. Stiebig, „Time Domain Characterization of Light Trapping States in Thin Film Solar Cells“, *European Physical Journal Web of Conferences*, Bd. 41, S. 08016, 2013.
- [118] F. G. De Abajo, „Multiple scattering of radiation in clusters of dielectrics“, *Physical Review B*, Bd. 60, Nr. 8, S. 6086, 1999.
- [119] F. J. G. de Abajo, „Interaction of Radiation and Fast Electrons with Clusters of Dielectrics_A Multiple Scattering Approach“, Bd. 82, Nr. 13, S. 2776, März 1999.
- [120] E. Ozbay, „Plasmonics: merging photonics and electronics at nanoscale dimensions“, *science*, Bd. 311, Nr. 5758, S. 189–193, 2006.
- [121] L. Novotny und B. Hecht, *Principles of nano-optics*. Cambridge ; New York: Cambridge University Press, 2006.
- [122] Y. Huang, Q. Zhou, M. Hou, L. Ma, und Z. Zhang, „Nanogap effects on near- and far-field plasmonic behaviors of metallic nanoparticle dimers“, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, Bd. 17, Nr. 43, S. 29293–29298, 2015.
- [123] H. C. van de Hulst, *Light scattering by small particles*. New York: Dover Publications, S. 13, 1981.
- [124] P. B. Johnson und R.-W. Christy, „Optical constants of the noble metals“, *Physical Review B*, Bd. 6, Nr. 12, S. 4370, 1972.
- [125] M. Lanoy, R. Pierrat, F. Lemoult, M. Fink, V. Leroy, und A. Tourin, „Subwavelength focusing in bubbly media using broadband time reversal“, *Physical Review B*, Bd. 91, Nr. 22, S. 224202, Juni 2015.
- [126] W. Pfeiffer, M. Aeschlimann, und T. Brixner, „Coherent control of nano-optical excitations“, in *Optical Antennas*, Cambridge, UK: Cambridge University Press, 2013, S. 145–167.
- [127] M. Aeschlimann, M. Bauer, D. Bayer, T. Brixner, F. J. García de Abajo, W. Pfeiffer, M. Rohmer, C. Spindler, und F. Steeb, „Adaptive subwavelength control of nano-optical fields“, *Nature*, Bd. 446, Nr. 7133, S. 301–304, März 2007.
- [128] G. Lerosey, J. de Rosny, A. Torin, und M. Fink, „Focusing Beyond the Diffraction Limit with Far-Field Time Reversal“, *Science*, Bd. 315, Nr. 5815, S. 1120–1122, 2007.

- [129] U. K. Chettiar und N. Engheta, „Internal homogenization: Effective permittivity of a coated sphere“, *Optics Express*, Bd. 20, Nr. 21, S. 22976, Okt. 2012.
- [130] M. Sukharev und T. Seideman, „Coherent control of light propagation via nanoparticle arrays“, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, Bd. 40, Nr. 11, S. S283–S298, Juni 2007.
- [131] P. Tuchscherer, D. V. Voronine, C. Rewitz, F. J. García de Abajo, W. Pfeiffer, und T. Brixner, „Analytic control of plasmon propagation in nanostructures“, *Optics Express*, Bd. 17, Nr. 16, S. 14235–14259, 2009.
- [132] T. Feichtner, O. Selig, M. Kiunke, und B. Hecht, „Evolutionary Optimization of Optical Antennas“, *Physical Review Letters*, Bd. 109, Nr. 12, S. 127701, Sep. 2012.
- [133] H.-J. Thiele und M. Nebeling, Coarse wavelength division multiplexing technologies and applications. Boca Raton: *Chemical Rubber Company Press*, 2007.
- [134] M. Galili, J. Xu, H. C. Mulvad, L. K. Oxenl, A. T. Clausen, P. Jeppesen, B. Luther-Davies, S. Madden, A. Rode, D.-Y. Choi, und others, „Breakthrough switching speed with an all-optical chalcogenide glass chip: 640 Gbit/s demultiplexing“, *Optics Express*, Bd. 17, Nr. 4, S. 2182–2187, 2009.
- [135] R. Guo, M. Decker, F. Setzpfandt, I. Staude, D. N. Neshev, und Y. S. Kivshar, „Plasmonic Fano Nanoantennas for On-Chip Separation of Wavelength-Encoded Optical Signals“, *Nano Letters*, Bd. 15, Nr. 5, S. 3324–3328, Mai 2015.
- [136] W. W. Chow, „Optical Properties of Semiconductor Quantum Dots“, *Photonics Global Conference Singapore*, S. 1–4, Dez. 2008.
- [137] O. Kulakovich, N. Strelak, A. Yaroshevich, S. Maskevich, S. Gaponenko, I. Nabiev, U. Woggon, und M. Artemyev, „Enhanced Luminescence of CdSe Quantum Dots on Gold Colloids“, *Nano Letters*, Bd. 2, Nr. 12, S. 1449–1452, Dez. 2002.
- [138] J.-H. Song, T. Atay, S. Shi, H. Urabe, und A. V. Nurmikko, „Large Enhancement of Fluorescence Efficiency from CdSe/ZnS Quantum Dots Induced by Resonant Coupling to Spatially Controlled Surface Plasmons“, *Nano Letters*, Bd. 5, Nr. 8, S. 1557–1561, Aug. 2005.
- [139] R. Yalla, F. Le Kien, M. Morinaga, und K. Hakuta, „Efficient Channeling of Fluorescence Photons from Single Quantum Dots into Guided Modes of Optical Nanofiber“, *Physical Review Letters*, Bd. 109, Nr. 6, S. 063602, Aug. 2012.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei all denjenigen bedanken, die zum Gelingen meiner Arbeit beigetragen haben. Mein besonderer Dank gilt:

Herrn Prof. Dr. W. Pfeiffer für die Vergabe dieser interessanten und vielseitigen Arbeit, sowie die Hilfe bei sämtlichen Fragen und Problemen.

Herrn Prof. Dr. T. Huser für das Interesse an meiner Arbeit und seine Bereitschaft, diese Dissertation zu begutachten.

Herrn Prof. Dr. H. Stiebig für die anregenden Diskussionen über Dünnschichtsolarzellen und sein Beitragen zu einer tollen Arbeitsatmosphäre.

Dr. Christian Strüber für den Spaß, den wir unter anderem mit spannenden Tischtennis-Matches im Büro hatten, und seine Hilfe in allen physikalischen und programmiertechnischen Fragen. Und: „Wenn es falsch ist, transponier es!“ hat bisher fast alle Probleme gelöst.

Matthias Hensen für die Erweiterung meines musikalischen und physikalischen Horizontes. Die gemeinsamen Experimente an den MIM-Kontakten hatten großen Spaß gemacht, besonders wenn die Laserleistung mal wieder etwas zu hoch war.

Dr. Detlef Diesing für die schwierige Präparation von qualitativ enorm hochwertigen MIM-Kontakten. Durch die Experimente an diesen haben wir nicht nur einiges über deren Zerstörschwelle gelernt. Die Besuche zur Diskussion der Ergebnisse haben uns immer vorangebracht.

Meinen Kollegen und Freunden Babak Soleymanzadeh, Christian Sander und Felix Becker für die umfangreichen Diskussionen der Arbeit und die gute Atmosphäre.

Ich möchte mich bei allen Mitgliedern der Gruppe Molekül- und Oberflächenphysik bedanken, besonders Dr. Wiebke Hachmann für die Messungen am SEM und TEM. Auch die Bereitstellung vom Wasserkocher hat mich einige Schritte vorwärts gebracht. Volker Schimmang für die Hilfe bei so manchem handwerklichem Problem. Christian Meier für

die Lösung meiner Computerprobleme und Kay Lofthouse für schnelle Notfallhilfen bei Bestellungen und Verwaltungsangelegenheiten.

Meiner Familie und Elina für die ständige Motivation und Hilfe bei der Arbeit.