Anwendung und Optimierung verschiedener Verfahren zur Herstellung von 3D-Resonatoren aus III-V- und II-VI-Halbleitern

Zur Erlangung des akademischen Grades eines DOKTORS DER NATURWISSENSCHAFTEN der Fakultät für Physik der Universität Karlsruhe (TH)

genehmigte

Dissertation

von

Dipl.-Min. Jaime Lupaca-Schomber aus Arequipa (Peru)

Tag der mündlichen Prüfung:20.07.2007Referent:Prof. Dr. CKorreferent:Prof. Dr. HBetreuer:Dr. M. Het

20.07.2007
Prof. Dr. C. F. Klingshirn
Prof. Dr. H. Kalt
Dr. M. Hetterich

Hiermit versichere ich, daß ich die vorliegende Arbeit selbständig verfaßt, noch nicht anderweitig zu Prüfungszwecken vorgelegt, keine anderen als die angegebenen Quellen oder erlaubten Hilfsmittel benutzt, sowie wörtliche oder sinngemäße Zitate als solche gekennzeichnet habe.

Jaime Lupaca-Schomber Karlsruhe, den 01.Dezember 2006

Inhaltsverzeichnis

1	\mathbf{Ein}	Einführung					
	1.1	Gliede	erung der Arbeit	5			
2	Theorie						
	2.1	Der id	eale Resonator klassisch betrachtet	7			
	2.2	QED e	eines Resonators	13			
		2.2.1	Der ideale Resonator	13			
		2.2.2	Das gekoppelte Atom-Feld-System	15			
3	Erz	eugung	g von Nanostrukturn	19			
	3.1	Elektr	onenstrahl-Lithographie	19			
	3.2	Focuse	ed-Ion-Beam-Lithographie (FIB)	22			
	3.3	Molek	ularstrahlepitaxie (MBE)	24			
4	Her	stellur	ngsmethoden und Optimierung	27			
	4.1	Maske	nherstellung	27			
	4.2	Selekt	ives Wachstum	30			
		4.2.1	Selective Area Epitaxy (SAE) und Periodic Supply Mo-				
			lecular Beam Epitaxy (PSE/MBE)	31			
		4.2.2	Ergebnisse	32			
	4.3	Pyram	idenstrukturen mittels FIB-Lithographie	36			
	4.4	Nanos	trukturbildung mittels nasschemischer Ätzverfahren	40			
		4.4.1	Das Prinzip des selektiven Ätzens	42			
		4.4.2	Die Herstellung und Optimierung von pyramidenförmi-				
			gen Cavities	44			
		4.4.3	Ergebnisse	49			
		4.4.4	Skalierbarkeit der Pyramidenform	49			
		4.4.5	Pyramiden resonatoren als photonische Moleküle $\ .\ .$.	52			
		4.4.6	Simulation der Resonator-Moden und erste $\mu\text{-}\text{PL-Messun}$	gen 65			

INHALTSVERZEICHNIS

5	Zusammenfassung 5.1 Fazit Fazit Fazit 5.2 Ausblick Fazit Fazit	71 71 72								
6	Publikationen	73								
7	Literaturnachweis									
A	Probenbeschreibung									
в	MBE-Wachstumsparameter	83								

2

Kapitel 1 Einführung

Seit den 70er Jahren des letzten Jahrhunderts, als erstmals durch die Entwicklung der integrierten Schaltkreise die Verkleinerung der Computer so möglich wurde, dass sie nicht mehr die Größe eines Schrankes oder gar eines ganzen Zimmers haben mussten, ist der Fortschritt in der Informationverarbeitung immer einhergegangen mit der Verkleinerung und Leistungssteigerung seiner Bausteine. Um diesen Weg in Zukunft weiter gehen zu können, muss man den gewohnten Weg (Siliziumtechnologie) verlassen. Das Stichwort für die zweite Hälfte des Informationszeitalters heißt Quanteninformationsverarbeitung. Während die theoretischen Konzepte eines Quantencomputers schon weit gediehen sind, steckt die Entwicklung der dafür nötigen Technologien noch im Anfangsstadium. Hier geht es derzeit vor allem darum, Quantenbits (Qubits) in quantenmechanischen Zweiniveausystemen möglichst lange zu speichern, mit anderen Qubits wechselwirken zu lassen und das Ergebnis auszulesen. Das Hauptproblem besteht darin, die Qubits weitgehend von ihrer Umwelt zu isolieren und dennoch leichten Zugriff auf sie zu haben, um sie manipulieren und messen zu können. Bauelemente aus Festkörperstrukturen bieten für die Quanteninformationsverarbeitung mehrere Vorteile: Sie lassen sich schnell schalten, sind im Prinzip zu großen Systemen skalierbar, und sie können in elektronische Kontroll- und Messkreise integriert werden. So sind z.B. Elektronenspins perfekte quantenmechanische Zwei-Zustands-Systeme und können, in Quantenpunktsysteme eingebracht, einzeln adressiert werden. Die nötigen Manipulationen lassen sich z.B. durch Variation des elektrischen Potentials, das die Struktur definiert, kontrollieren. Diese Information wird mittel Licht weitergeführt (photonischer Kristall) bzw. verstärkt (Mikroresonatoren)[1][2]. Resonatoren sind Strukturen, in denen Licht dreidimensional eingeschlossen werden können. Dabei bilden sich eine oder mehrere sogenannte Eigenschwingungen (Moden) im Resonatorraum aus. In meiner Arbeit wurden zwei verschiedene Typen von Resonatoren hergestellt. Zylindrische

Säulen (pillars) basieren auf so genannten planaren Mikrokavitäten. Das sind Strukturen, bei denen eine Materialschicht (Galliumarsenid) zwischen zwei hochreflektierenden dielektrischen Spiegeln (jeweils bestehend aus alternierenden Lagen von Gallium- und Aluminiumarsenid) eingebettet wird. Das Reflexionsvermögen dieser Spiegel liegt bei über 99 %. Damit ist ein effizienter Einschluss von Licht mit einer Wellenlänge, die dem Abstand der beiden Spiegel entspricht, entlang einer Raumrichtung realisiert. In dazu senkrechter Richtung wird der Einschluss durch lithographische Strukturierung erreicht, da durch die an den lateralen Grenzflächen erzeugten Brechungsindexsprünge zwischen Halbleiter und Luft das Feld im Resonator lokalisiert bleibt. Der zweite untersuchte Typ besteht lediglich aus einem hochreflektierenden dielektrischen Spiegel und einer pyramidenförmigen Struktur darauf. Werden nun zwei solcher Resonatoren über einen schmalen Kanal miteinander gekoppelt, so weist das Spektrum der optischen Moden deutliche Analogien zu dem elektronischer Zustände in zweiatomigen Molekülen wie etwa dem Wasserstoffmolekül auf [3]. Durch die Kopplung zweier Systeme mit diskreten Niveaus erwartet man eine Aufspaltung jedes dieser Niveaus in zwei Zustände. Die Stärke der Kopplung, die sich beispielsweise über die Dimensionen des verbindenden Kanals kontrollieren lässt, bestimmt dabei die Größe der Aufspaltung. Hiermit zeigt sich der Unterschied zur klassisch gespeicherten binären Information, weil letztere in einem Zweiniveausystemen auch im Sinne einer quantenmechanischen Uberlagerung vorliegen kann. Anstelle von "Schalterstellungen" $|0\rangle$ und $|1\rangle$ sind ebenso beliebige Linearkombinationen $\alpha |0\rangle + \beta |1\rangle$ mit komplexen Koeffizienten α , β erlaubt (mit $|\alpha|^2 + |\beta|^2 = 1$). Der so erweitete Informationsbegriff erlaubt es, neue, sogenannte Quantenalgorithmen zu entwickeln. Die Möglichkeit, durch quantenmechanische Überlagerung verschiedene Registerzustände quasi gleichzeitig zu verarbeiten, wurde von manchen Autoren als "Quantenparallelismus" bezeichnet und verspricht, gewisse mathematische Probleme auf einem Quantencomputer effizienter zu lösen als dies mit einem klassischen Computer möglich ist. Durch die erfolgreiche Anwendung von Techniken wie z.B. Elektronenstrahllithographie, Focused-Ion-Beam-Lithographie (FIB) ist man in der Lage, bis weit in den untersten μm bzw. oberen nm-Bereich vorzustoßen und damit die gewünschten Strukturen herzustellen. Der Schwerpunkt dieser Dissertation liegt deshalb auf dem Finden und Entwickeln von Methoden, um Resonatoren mit echten 3D-Einschluss zu erhalten.

1.1 Gliederung der Arbeit

Der erste Teil der Dissertation befasst sich mit der theoretischen Beschreibung der Eigenschaften eines Resonators. Die hergestellten Resonatoren können im Prinzip auch in Bereichen eingesetzt werden in denen quantenmechansche Effekte eine wichtge Rollen spielen (z.B. bei Quantencomputern), deshalb sollen nicht nur die klassische Betrachtung der Resonatoren, sondern auch in Grundzügen quantenmechanische Aspekte diskutiert werden.

Der Zweite Teil meiner Arbeit befasst sich mit verschiedenen Techniken zur Herstellung von 3D-Kavitäten. Da nicht jedes Verfahren das gewünschte Ergebnis brachte, sind deren Beschreibungen naturgemäß kürzer gehalten. Die Herstellungsparameter für die abgebildeten Proben werden im Anhang beschrieben.

Der Haupteil wird sich mit der selektiven Ätzmethode beschäftigen. Hier beweisen erste Messergebnisse eindeutig, dass Moden in den Resonatoren vorliegen.

Die Dissertation endet mit einer Zusammenfassung und einem Ausblick.

Kapitel 2 Theorie

Die Haupteigenschaft von Resonatoren liegt darin, die Translationssymmetrie des Vakuums zu brechen, d.h. nur ganz bestimmte Wellenlängen können im abgeschlossenen Raum des Resonators gebildet werden. Diese Eigenschaften können mit der klassischen Physik gut beschrieben werden. Aber um das Verhalten von Licht bzw. die Wechselwirkung von Licht und Materie in Resonatoren zu beschreiben, deren Abmessungen im Bereich der optischen Wellenlänge liegen, genügt es nicht mehr, die klassische Elektrodynamik anzuwenden, sondern man muss zu den physikalischen und mathematischen Beschreibungen der Quantenelektrodynamik (QED) übergehen. Gerade die QED zeigt, welche erstaunlichen Eigenschaften dann ein Resonator haben kann (z.B. Einzelphotonenquelle)[20].

2.1 Der ideale Resonator klassisch betrachtet

Resonatoren können grundsätzlich in beliebiger Form vorliegen und besitzen dementsprechend auch beliebig komplizierte Frequenzspektren. Um aber die prinzipiellen Eigenschaften eines Resonators mathematisch beschreiben zu können, genügen schon einfache Resonatorformen wie z.B. Zylinder oder Quader. Damit die mathematische Darstellung so übersichtlich wie möglich bleibt, soll im folgenden ein ideal leitender metallischer Resonator (Quader) zugrunde gelegt werden. An der Oberfläche eines perfekten Leiters gilt [3]

$$\mathbf{E} \times \mathbf{n} = \mathbf{B} \cdot \mathbf{n} = 0 \tag{2.1}$$

Der Einheitsvektor der Oberflächennormalen wird durch **n** dargestellt. Aus diesen Bedingungen folgt, dass unmittelbar außerhalb der Oberfläche eines idealen Leiters nur ein normal gerichtetes **E**-Feld und ein tangential gerichtetes **B**-Feld existieren kann, während die Felder innerhalb des idealen Leiters



Abbildung 2.1: Darstellung eines idealen Quaders. [3]

abrupt auf Null absinken. Die zeitperiodischen Maxwellgleichungen in einem Gebiet ohne freie Ladungen und in einem homogenen Dielektrikum sehen in linearer Näherung für eine harmonische Zeitabhängigkeit wenn $e^{i(\mathbf{kr}-\omega t)}$ wie folgt aus

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\imath \omega \mathbf{B}, \ \nabla \cdot \mathbf{B} = 0, \ \nabla \times \mathbf{B} = \imath \omega \frac{\epsilon_r \mu_r}{c^2} \mathbf{E}, \ \nabla \cdot \mathbf{E} = 0$$

In einem quaderförmigen Resonator mit den Kantenlängen a, b, c (Abb. 2.1) gelten für $\mathbf{E} = \{E_x, E_y, E_z\}$ die Randbedingungen, dass an den Wänden die Tangentialkomponenten des Feldes verschwinden:

 $E_x = 0$ für z = 0, c und y = 0, b $E_y = 0$ für x = 0, a und z = 0, c $E_z = 0$ für x = 0, a und y = 0, b

Eine elektromagnetische Welle mit $\mathbf{k} = \{k_x, k_y, k_z\}$ wird an den Wänden reflektiert, und die Überlagerung der verschiedenen Komponenten mit Wellenvektoren $\{\pm k_x, \pm k_y, \pm k_z\}$ führt zu einer stationären stehenden Welle, wenn die Randbedingungen erfüllt sind, wobei n, m, q ganze Zahlen sind.

$$k_x = \frac{n\pi}{a}, \ k_y = \frac{m\pi}{b}, \ k_z = \frac{q\pi}{c}$$

Die Wellengleichung wird dann so umgeschrieben, dass die Lösungen (Eigenfunktionen), die folgende Form annehmen

$$(\nabla^2 + k_{nmg}^2)E_{nmg}(x, y, z) = 0$$
(2.2)

Zur Lösung der Wellengleichung wählt man einen Separations-Ansatz für $E_x(x, y, z, t) = X(x)Y(y)Z(z)e^{i\omega t}$, wobei X, Y, Z allgemeine Funktionen je-

doch nur einer Variablen sind. Damit wird aus

$$\frac{\partial^2 E_x}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 E_x}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 E_x}{\partial z^2} = \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E_x}{\partial t^2}$$
(2.3)

daraus folgt

$$\left(\frac{\partial^2 X}{\partial x^2}YZ + \frac{\partial^2 Y}{\partial y^2}XZ + \frac{\partial^2 Z}{\partial z^2}XY\right)e^{i\omega t} = -\frac{\omega^2}{c^2}XYZ$$
(2.4)

mit $\frac{\omega^2}{c^2}=k^2=k_x^2+k_y^2+k_z^2$ folgt

$$\frac{1}{X}\frac{\partial^2 X}{\partial x^2} + \frac{1}{Y}\frac{\partial^2 Y}{\partial y^2} + \frac{1}{Z}\frac{\partial^2 Z}{\partial z^2} = k^2$$
(2.5)

Drei Funktionen jeweils verschiedener Variable können sich nur dann zu einer Konstanten aufsummieren, wenn sie jeweils selbst konstant sind. Daher kann man ansetzen:

$$\frac{\partial^2 X}{\partial x^2} + k_x^2 X = 0, \quad \frac{\partial^2 Y}{\partial y^2} + k_y^2 Y = 0, \quad \frac{\partial^2 Z}{\partial z^2} + k_z^2 Z = 0$$

Dies sind Differentialgleichungen harmonischer Oszillatoren mit bekannten Lösungen. Für den Beitrag des Wellenvektors folgt mit den Randbedingungen und für die möglichen Frequenzen einer beliebigen stehenden Welle im Quader:

$$|\mathbf{k}| = \sqrt{k_x^2 + k_y^2 + k_z^2} = \pi \sqrt{\frac{n^2}{a^2} + \frac{m^2}{b^2} + \frac{q^2}{c^2}}, \text{ mit } \omega = ck = c\pi \sqrt{\frac{n^2}{a^2} + \frac{m^2}{b^2} + \frac{q^2}{c^2}}$$

Im Quader sind nur stehende Wellen der folgenden Form möglich:

$$\mathbf{E}_{n,m,q} = \mathbf{E}_0(n,m,q)\cos(\omega t)$$

Das ergibt für die Amplitude $\mathbf{E}_0 = \{E_{0x}, E_{0y}, E_{0z}\}$ folgende Komponenten

 $E_{0x} = A\cos(\frac{\pi n}{a}x)\sin(\frac{\pi m}{b}y)\sin(\frac{\pi q}{c}z)$ $E_{0y} = B\sin(\frac{\pi n}{a}x)\cos(\frac{\pi m}{b}y)\sin(\frac{\pi q}{c}z)$ $E_{0x} = C\sin(\frac{\pi n}{a}x)\sin(\frac{\pi m}{b}y)\cos(\frac{\pi q}{c}z)$

Um die Anzahl der Moden in einem Resonator bestimmen zu können, wird zuerst die Frequenz bestimmt. Es gilt:

$$\omega_{n,m,q} = \frac{\pi}{\sqrt{\mu\varepsilon}} \left(\frac{n^2}{a^2} + \frac{m^2}{b^2} + \frac{q^2}{c^2}\right)^{1/2}$$
(2.6)



Abbildung 2.2: Darstellung der Resonatormoden im k-Raum [3]

Für einen Quader mit a = b = c (Würfel) wird die Frequenzbedingung zu

 $\omega = \frac{\pi c}{a} (n^2 + m^2 + q^2)^{1/2}$

In einem Koordinatensystem k_x , k_y , k_z bilden dann die Punkte (n, m, q)ein Gitter mit der Gitterkonstanten $\frac{\pi}{a}$. Es gibt also genau so viele Moden im Resonatorvolumen wie Gitterpunkte im k-Raum. In diesem Raum stellt $|\mathbf{k}| = \pi \sqrt{\frac{n^2}{a^2} + \frac{m^2}{a^2} + \frac{q^2}{a^2}}$ die Gleichung einer Kugel mit dem Radius $k = \frac{\pi}{a} \sqrt{n^2 + m^2 + q^2} = \frac{\omega}{c}$ dar (Abb. 2.2). Für $n^2 + m^2 + q^2 \gg 1$ ist der Kugelradius k groß gegen die Gitterkonstante $\frac{\pi}{a}$, d.h. $\lambda \ll 2a$. Dann wird die Zahl der Gitterpunkte N_G mit n, m, q > 1 gut durch die Zahl der Einheitszellen mit einem Volumen von $(\pi/a)^3$

$$V_k = \frac{1}{8} \frac{4\pi}{3} k^3 = \frac{\pi}{6} (\frac{\omega}{c})^3$$

angenähert durch

 $N_G = \frac{V_k}{V_E} = \frac{\pi}{6} \left(\frac{a\omega}{\pi c}\right)^3.$

Berücksichtigt man, dass jede stehende Welle eine beliebige Polarisationsrichtung haben kann, die immer als Linearkombination von 2 zueinander senkrecht polarisierten Wellen dargestellt werden kann, so ist die Zahl der möglichen Moden unterhalb einer Grenzfrequenz

$$N(\omega < \omega_G) = \frac{\pi}{3} \left(\frac{a\omega_G}{\pi c}\right)^3 = \frac{8\pi\nu_G^3 a^3}{3c^3}$$

Dividiert man durch das Resonatorvolumen im Ortsraum $V = a^3$, so erhält man die Zahl der Moden pro Volumeneinheit

$$N/V = n = \frac{8\pi\nu_G^3}{3c^3}$$

Die spektrale Modendichte, d.h. die Zahl der Moden pro Volumen des Resonators innerhalb des Frequenzbereiches ν bis $\nu + \Delta \nu$ beträgt zum Beispiel mit $\Delta \nu = 1$ Hz gleich $dn/d\nu = 8\pi\nu^2/3c^3$.

Leistungsverluste und Gütefaktor eines Resonators

Beim idealen Resonator zeigen die Resonanzfrequenzen eine δ -funktionsartige Singularität (scharfe Peaks). In der Praxis zeigt das Anregunsspektrum über keine scharfen Peaks, sondern es existiert ein schmales Frequenzband um die Resonanzfrequenz, innerhalb dessen eine starke Anregung möglich ist. Die Hauptursache für diese Verschmierung um die scharfe Schwingungsfrequenz ist der Energieverlust z.B. in den Resonatorwänden, der von einem dielektrischen Verlusten im Resonatorvolumen begleitet sein kann. Ein Maß für das Ansprechvermögen des Resonators ist der sogenannte Güte- oder Qualitätsfaktor Q. Er ist definiert als das 2π -fache des Verhältnisses der im Resonator gespeicherten Energie zum Energieverlust pro Schwingungsperiode.[4]

$$Q = 2\pi \frac{gespeicherteEnergie}{EnergieverlustproSchwingungsperiode}$$

bzw.

$$Q = \omega_0 \frac{gespeicherteEnergie}{Verlustleistung},$$

wenn ω_0 die Resonanzfrequenz bei nichtvorhandenem Energieverlust bedeutet. Die Zeitabhängigkeit der gespeicherten Energie U wird beschrieben durch die Gleichung

$$\frac{dU}{dt} = -\frac{\omega_0}{Q}U\tag{2.7}$$

mit der Lösung

$$U(t) = U_0 e^{-\omega_0 t/Q}.$$

Ist also im Resonator am Anfang die Energie U_0 gespeichert, so klingt diese mit einer zu Q umgekehrt propotionalen Abklingzeit exponentiell ab. Die



Abbildung 2.3: Resonanzkurve. Die volle Breite Γ in der Höhe der halben Maximalleistung ist gleich der ungestörten Frequenz ω_0 , dividiert durch den Gütefaktor Q des Resonators.[4]

Zeitabhängigkeit bedeutet, dass die Schwingung der Felder im Resonator gemäß

$$E(t) = E_0 e^{-\omega_0 t/2Q} e^{-i(\omega_0 + \Delta\omega)t}$$
(2.8)

gedämpft werden. In Gleichung 2.8 wird durch die 2. Exponentialfunktion auch eine mögliche Verschiebung der Resonanzfrequenz berücksichtigt, die durch $\Delta \omega$ beschrieben wird. Eine solche gedämpfte Schwingung enthält nicht nur eine einzige Frequenz, sondern eine Überlagerung vieler Frequenzen um $\omega = \omega_0 + \Delta \omega$. Es ist daher

$$E(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} E(\omega) e^{-i2\pi\omega t} d\omega$$
(2.9)

 mit

$$E(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^\infty E_0 e^{-\omega_0 t/2Q} e^{-i(\omega + \omega_0 t)} dt$$
 (2.10)

Das letzte Integral ist elementar auswertbar und ergibt für die Energieverteilung im Resonator folgende Frequenzverteilung:

$$|E(\omega)|^2 \sim \frac{1}{(\omega + \omega_0)^2 + (\omega_0/2Q)^2}$$
(2.11)

Die Verteilung hat die Gestalt einer Resonanzkurve (Abb. 2.3) und besitzt auf halber Höhe des Maximums die Halbwerts-Breite $\Gamma = \omega_0/Q$. Bei konstanter Anregungsfrequenz folgt die Schwingungsenergie im Resonator in Umgebung einer bestimmten Resonanzfrequenz der durch die Gl.2.11 beschriebene Resonanzkurve. Das Frequenzinterfall $\delta \omega$ zwischen den Punkten zu halber Anfangsleistung ist offenbar identisch mit der Breite Γ , und der Gütefaktor ist

$$Q = \frac{\omega_0}{\delta\omega} = \frac{\omega_0}{\Gamma}.$$
 (2.12)

2.2 QED eines Resonators

In folgenden wird zunächst kurz der ideale Resonator ohne Dämpfung beschrieben, dann mit Dämpfung (Ankopplung an das Vakuum) und zuletzt die Koppelung des Modenfeldes im Resonator mit Materie (2-Atom-Niveau).Um dieses Thema kompakt formulieren zu können setze ich nach der Quantisierung des elektromaknetischen Feldes an und nutze die Beschreibung mittels Spinoperatoren, damit man relativ leicht auf das intuitiv gut zugängliche Bild des Pseudospins gelangen kann. Mit diesem Modell werden die Vorgänge im Resonator leichter verständlich.

2.2.1 Der ideale Resonator

Der Feldoperator wird dahin entwickelt, dass das Feld in Moden zerlegt wird, die einzeln dann als harmonische Oszillatoren beschrieben werden können. Da im Vakuum beliebig viele Moden darstellbar sind, wird die Beschreibung so vereinfacht, dass man sämtliche Moden bis auf eine vernachlässigt. Sie müssen dann nur noch die Randbedingungen erfüllen, d.h. dass in einer Kavität das elektrische Feld an der Oberfläche des idealen Resonators parallel zu dieser Fläche verschwindet. Der Hamiltonoperator des elektromagnetischen Feldes sieht folgendermaßen aus [5]

$$\hat{\mathcal{H}}_{Feld} = \hbar\omega \left(\hat{a}^{\dagger} \hat{a} + \frac{1}{2} \right) \tag{2.13}$$

mit $\hat{a}^{\dagger}|n\rangle = \sqrt{n+1}|n+1\rangle$ als Erzeugungsoperator und mit $\hat{a}|n\rangle = \sqrt{n}|n-1\rangle$ als Vernichtungsoperator.

Die Anzahl der Photonen in einer Mode ist durch den Anzahloperator gegeben

$$\hat{n}|n\rangle = \hat{a}^{\dagger}\hat{a}|n\rangle = n|n\rangle \tag{2.14}$$

Um den Zusammenhang zur klassischen Physik des Maxwell-Feldes herzustellen, führt man die sogenannten kohärenten Zustände ein. Da sie die kleinstmöglichste Unschärfe zwischen Amplitude und Phase des Feldes haben, sind sie die bestmöglichste Darstellung eines klassischen Feldzustandes durch Quantenzustände. Sie sind durch Eigenzustände der Vernichtungsoperatoren alpha definiert und werden mit $|\alpha\rangle$ bezeichnet, wobei α eine komplexe Zahl darstellt.

$$\hat{a}|\alpha\rangle = \alpha|\alpha\rangle \tag{2.15}$$

Kohärente Zustände sind keine Fockzustände mit einer bestimmten Photonenzahl. Vielmehr ist die Wahrscheinlichkeit, eine vorgegebene Anzahl von Photonen in einen kohärenten Zustand zu finden, durch eine Poisson-Verteilung gegeben (Abb. 2.4).

$$|\alpha\rangle = e^{-|\alpha|^2} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\alpha^n}{\sqrt{n!}} |n\rangle$$
(2.16)

Damit erhält man auch den Erwartungswert des elektrischen Feldes in einem



Abbildung 2.4: Beispiel einer Poissonverteilung eines kohärenten Zustandes mit $\alpha \gg 1$ [3]

kohärenten Zustand $|\alpha\rangle$:

$$\langle \alpha | \hat{\varepsilon}_{\perp} (\vec{r,t}) | \alpha \rangle = \mathbf{E}_{kl} (\vec{r},t) | 0 \rangle = \sum \sqrt{\frac{2\hbar\omega}{\varepsilon_0}} |\alpha| \sin(\omega t + \phi) \mathbf{E} (\vec{r})$$
 (2.17)

wobei

$$\hat{\varepsilon}_{\perp}(\vec{r},t) = i \sum \sqrt{\frac{\hbar\omega}{2\epsilon_0}} (\hat{a}^{\dagger}(t) - \hat{a}(t)) \mathbf{E}(\vec{r},t)$$
(2.18)

der Feldoperator aus der Quantenfeldtheorie, und ist. Der klassische Anteil des elektromagnetischen Feldes \mathbf{E}_{kl} (\vec{r}, t) in (2.17) stellt die homogene Lösung der Maxwell-Gleichungen dar, die nur durch die Randbedingungen des elektromagnetischen Feldes und die Anfangsbedingungen des Experimentes fixiert sind. So ist nur der operatorwertige Teil $\hat{\varepsilon}_{\perp}(\vec{r}, t)$ in (2.5) für die Dynamik zuständig (Dämpfung, Wechselwirkung mit Materie).

2.2.2 Das gekoppelte Atom-Feld-System

Da gekoppelte Systeme beliebig komplexe Dynamik aufweisen können, muss man auch hier vernünftige Vereinfachungen bzw. kompakte Beschreibungsansätze wählen. Da selbst das einfachste Atom (Wasserstoff) im Prinzip beliebig viele Zustände besitzt, zwischen denen eine unendliche Anzahl von erlaubten Übergänge existiert, muss das Modell auf relevante Zustände reduziert werden. Um das zu erreichen werden, nur noch Zustände berücksichtigt, deren Energidifferenzen in der Nähe der Photonenenergie (Resonanzfrequenz) liegen. Das bedeutet man geht von einem Sytem mit mehrfachen Zuständen auf ein System mit nur 2 Zuständen (2-Niveau-System) über. Dabei wird hier der energetisch tieferliegende Zustand mit $|g\rangle$ bezeichnet und der energetisch höher liegenden Zustand mit $|e\rangle$. Für dieses System sieht der Hamiltonoperator des Atoms folgendermaßen aus:

$$\hat{\mathcal{H}}_{Atom} = -\frac{1}{2}\hbar\omega_0\sigma_z \tag{2.19}$$

Hier bezeichnet \hbar die Energiedifferenz zwischen den beiden Zuständen und σ_z die z-Komponente der Pauli-Operatoren. Der positive Eigenwert gehört somit zu $|g\rangle$. Der Ursprung für die Energieachse wurde für das 2-Niveausystem so gewählt, dass er in der Mitte zwischen den beiden Zustände liegt. Der Feldoperator kann unverändert von (2.19) übernommen werden (Abb. 2.5).



Abbildung 2.5: Modell eines 2-Niveauatoms mit $\omega_0 \approx \omega_L$ [6]

Der Jaynes-Cummings Operator

Wenn man in erster Näherung nur die energieerhaltenden Terme des Wechselwirkungsoperators berücksichtigt, bekommt man (Abb. 2.6)

$$\hat{\mathcal{H}}_{WW} \approx \omega_K (\hat{a}\sigma_+ + \hat{a}^{\dagger}\sigma_-) \tag{2.20}$$

Dies entspricht der Approximation eines rotierenden Feldes (anstelle eines



Abbildung 2.6: Der obere Operator (\hat{a}^{\dagger}) beschreibt die Absorption eines Photons aus dem Modenfeld, d.h. die Vernichtung eines Photons und die Erhöhung der Energie des atomaren Systems um ein Quant. Der konjugierte Operator beschreibt den umgekehrten Prozess. [7]

oszillierenden), das in der halbklassischen Näherung noch diskutiert wird. Der Operator beschreibt damit nur noch Prozesse, die eine Zustandsänderung des Atoms mit einer Zustandsänderung des Feldes im Resonator verknüpft. Das 2-Niveau-System kann hier einerseits wirklich ein Atom beschreiben, oder es kann einen Spin- $\frac{1}{2}$ -Zustand darstellen. Die Wechselwirkung zwischen den beiden ist die elektrische oder magnetische Dipol-Wechselwirkung. Dieses Modell (1963) war ursprünglich als ein rein theoretisches Modell entwickelt worden, um zu untersuchen, inwiefern sich die Voraussagen der Quantenmechanik von denen der klassischen Theorie (Maxwell-Gleichungen) unterscheiden würden.[7]

Zustände und Energien im Jaynes-Cummings Modell

Im weiterem werden die folgenden Bezeichnungen für die Basiszustände verwendet:

 $|n,g\rangle = n$ Photonen im Feld, Atom im Grundzustand $|n-1,e\rangle = n-1$ Photonen im Feld, Atom im angeregten Zustand In dieser Basis besitzt der gesamte Hamiltonoperator [8]

$$\hat{\mathcal{H}}_{tot} = \hat{\mathcal{H}}_{Atom} + \hat{\mathcal{H}}_{Feld} + \hat{\mathcal{H}}_{WW}$$
(2.21)

eine blockdiagonale Struktur. Jeder einzelne Block umfasst zwei Zustände und hat die Form mit $|n, q\rangle$ und $|n - 1, e\rangle$ als Basis

$$\hat{\mathcal{H}}_{WW} = \hbar \begin{pmatrix} (n+\frac{1}{2})\omega_L - \frac{\omega_0}{2} & \omega_K \sqrt{n} \\ \omega_K \sqrt{n} & (n-\frac{1}{2})\omega_L + \frac{\omega_0}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} |n,g\rangle \\ |n-1,e\rangle \end{pmatrix}$$

Vernachlässigt man zunächst die Kopplung, so beträgt die Differenz der Energien dieser Zustände

$$\frac{\Delta E}{\hbar} = \left(\frac{E_1 - E_2}{\hbar}\right) = \left(n + \frac{1}{2}\right)\omega_L - \frac{\omega_0}{2} - \left[\left((n - \frac{1}{2})\omega_L + \frac{\omega_0}{2}\right] = \omega_L - \omega_0 \quad (2.22)$$

d.h. die Energien sind identisch, wenn die Laserfrequenz der Resonanzfrequenz entspricht. Ansonsten ist die Energiedifferenz gleich der Resonanzverstimmung.

Betrachtet man die Eigenzustände und berücksichtigt den Kopplungsterm, so werden die Energien der Zustände durch die Kopplung verschoben. Die Verschiebung ist, gering wenn die Verstimmung $\omega_L - \omega_0$ groß ist. Ist aber die Laserfrequenz gleich der atomaren Übergangsfrequenz, dann erzeugt die Kopplung eine Aufspaltung von $2\sqrt{n}\omega_K$. Solch ein System besteht aus einer unendlichen Reihe von aufgespaltenen Zuständen, welche als dressed states bezeichnet werden. Das Atom ist mit einem Photon "bekleidet" (Abb. 2.7).



Abbildung 2.7: Die Abbildung stellt die Energie der dressed states Zustände als Funktion der Laser-Verstimmung dar. Auf der Resonanz verhindert der Kopplungsterm ein Kreuzen der beiden Zustände. [8]



Abbildung 2.8: Energieniveaus der isolierten Subsysteme (links, rechts) und des gekoppelten Jaynes-Cummings-Systems (Mitte). [8]

Kapitel 3

Technische Grundlagen zur Erzeugung von Nanostrukturen

Um in den Bereich der Nanowelt vorstoßen zu können, sind Techniken wie Elektronenstrahl- oder Focused-Ion-Beam-Lithograpie unabdingbar, für die Probenherstellung daneben auch Epitaxieverfahren wie zum Beispiel die hier verwendete Molekularstrahlepitaxie (MBE).

3.1 Elektronenstrahl-Lithographie

Die Elektronenstrahl-Lithographie ist seit vielen Jahren eine ausgereifte Technik, die z.B. im Bereich der Herstellung von optischen Masken in der Halbleiterindustrie Verwendung findet. Um Lithographie mit Elektronen betreiben zu können, sind zwei Voraussetzungen nötig:

- die Technik eines Elektronenmikroskops und die Möglichkeit, den Elektronenstrahl im Raum zu steuern.
- ein elektronenempfindlicher Lack, wie z.B. Polymethylmethacrylat (PM-MA).

Abbildung 3.1 zeigt den prinzipiellen Aufbau eines Elektronenstrahlschreibers mit den Bestandteilen:

- Elektronenquelle
- Elektrooptisches Abbildungssystem
- Austasteinheit
- Ablenkeinheit



Abbildung 3.1: Prinzipeller Aufbau einer SEM-Anlage mit programmgesteuerte Strahlsteuerung zur Maskenherstellung. [9]

• Präzisionstisch mit Positionskontrolle

Im Prinzip gib es zwei Möglichkeiten, den Elektronenstrahl über die Probe zu fahren, erstens den Raster-Scan, bei dem der Elektronenstrahl mäanderförmig über die gesamte Probenfläche geführt wird und der Strahl nur an den zu belichtenden Stellen eingeschaltet wird. Zweitens der Vektor-Scan, bei dem nur die zu belichtenden Stellen direkt angefahren werden (Zeitersparnis). Um den Belichtungsprozess auch "festhalten" zu können, braucht man einen elektronenstrahlempfindlichen Resist. Die Belichtung erfolgt durch energiereiche Elektronen, deren Energiebetrag größer ist als die Bindungenergie der Valenzelektronen des Resistes (Polymer). Die Bestrahlung eines Lacks verursacht somit ein Aufbrechen der Polymerketten. Die entstehenden Radikale sind nicht stabil und haben das Bestreben, wieder zu polymerisieren. Man unterscheidet dabei zwei mögliche Prozesse (Abb. 3.2):

- Der erste Prozess ist die kettenspaltende De-Polymerisation (chainscission), bei der sich die langen Ketten in mehrere kleine Molekülketten aufspalten.
- Der zweite Prozess besteht in der Wiedervernetzung (Re-Polymerisation,

cross-linking) der einzelnen Molekülketten zu längeren Ketten als das Ausgangsprodukt.



Abbildung 3.2: Prinzip der De-Polymerisation (a) und Re-Polymersation (b) nach dem Belichtungsvorgang. [10]

Ein Resist, bei dem die Strahlungempfindlichkeit für De-Polymerisation überwiegt, stellt einen positiven Fotolack dar. Entsprechend spricht man im Fall von überwiegender Wiedervernetzung von einem negativen Fotolack. Positiv (Negativ) bedeutet dabei, dass im nachfolgenden Entwicklungsprozess nur das belichtete (unbelichtete) Resistmaterial herausgelöst und somit eine positive (negative) Abbildung realisiert wird. Um die gewünschte Abbildung zu bekommen, muss natürlich der Fotolack an den gewünschten Stellen vollständig belichtet sein bzw. eine Überbelichtung vermieden werden. Um die ausreichende Strahlungsdosis zu ermitteln, müssen die wichtigsten Streueffekte der Belichtungselektronen im Lack und Substrat berücksichtigt werden. Bei Eintritt des Elektronenstrahls in den Resist erfolgt eine erste Strahlaufweitung aufgrund der Vorwärtsstreuung. Dringt der Primärstrahl dann in das Substrat ein, werden die Elektronen an den Gitteratomen ein weiteres Mal gestreut. Diejenigen Elektronen, die bei diesem Prozess eine Impulsänderung in der Art erfahren, dass eine Rückstreuung in den Fotolack möglich wird, besitzen dann einen grösseren Streuwinkel bzw. größere Streufläche als der Primärstrahl (Proximity-Effekt) und belichten den Lack rückwärtig (siehe Abb.3.3). Die Belichtungsdosis wurde vom Autor für den PMMA-Lack durch schrittweite Erhöung der Belichtungszeit bzw. Erhöhung des Abstandes der einzelnen Belichtungspunkte des Elektronenstrahles (Abb. 3.4) ermittelt.



Abbildung 3.3: Streuprozesse bei der Elektronenstrahlbelichtung; PE: Primärelektronen, SE: Sekundärelektronen, BSE: Rückstreuelektronen (back-scattered electrons), AE: Auger-Elektronen, X: Röntgenstrahlung (X-rays). [10]



Abbildung 3.4: Diese SEM-Aufnahme zeigt einen Dosistest für den Resist AR-N 7700 (Negativ-Lack), wobei der von links nach rechts die Belichtungsdosis linear abnimmt.

3.2 Focused-Ion-Beam-Lithographie (FIB)

Der fokussierte Ionenstrahl (FIB) ist ein vielseitiges Werkzeug im Bereich der μ m- und nm-Technologie. Beginnend bei der Direktlithographie (Sputtern) über die Belichtung von Resists bis hin zur punktuellen Deposition von gewünschten Materialien (z.B. Ga,W) auf beliebigen Festkörperoberflächen. Dieser breitgefächerte Einsatzbereich wird erreicht, dass die FIB-Anlage im Prinzip ein Miniaturionenbeschleuniger ist, der im Energiebereich von keV arbeitet und eine Punktquelle in einen Spot im nm-Bereich auf der Probe abbildet (Abb. 3.5). Bei meiner Arbeit lag das Interesse auf der lokalen Abtragung von Material, um μ m große Pyramiden und Säulen herzustellen. Als Ionenquellen dient häufig flüssiges Ga (Schmelzpunkt 34°C), das über eine Wolfram- oder Molybdännadel fließt, die unter einer Extraktionsspan-



Abbildung 3.5: FIB: Der Winkel zwischen gekippter Probenoberfläche und einfallendem Ionstrahl liegt bei 52° . [9]

nung von einigen kV steht. Die Abtragung wird möglich durch Implantation hoher Ionendosen bei Ionenenergien von typischerweise 10 - 100 keV. Die Ionen dringen in das Substrat ein und erzeugen oberflächennah eine Recoilkaskade, die eventuell auf ein oder mehrere Atome genügend Energie zur Überwindung der Oberflächenbindungsenergie überträgt, so dass sich Substratatome von der Oberfläche entfernen können. Allerdings ist das Sputtern stark abhängig vom Probenmaterial und kann in seiner Effizienz durch einen Gasfluss (z.B. Fluor) gesteigert werden. Zu berücksichtigen ist aber immer, dass durch Ionenrückstände im Probenmaterial bzw. durch die Ionen erzeugte Defekte, die bearbeitete Oberfläche amorphisiert wird bzw. Material des Ionenträgermaterials an der bearbeiteten Flächen "kondensiert" (verklumpt). Ein Vorteil der Ionenlithographie ist die in-situ-Kontrolle der Arbeitsschritte durch das Bild der Sekundärelektronen. Diese Elektronen entstehen beim Abscannen der Probe. Dafür sind mehrere Mechanismen verantwortlich. Ein Substratelektron kann durch einen Augerprozess das Ion neutralisieren (Potentialemission). Viel häufiger tritt allerdings auf, dass das eintreffende Ion durch einen elektronischen Stoßprozess die Hülle eines Targetatoms ionisiert. Das frei werdene Elektron kann dabei als Sekundärelektron entkommen und durch einen Detektor eingesammelt werden.

3.3 Molekularstrahlepitaxie (MBE)



Abbildung 3.6: Schema einer typischen MBE-Anlage

Die Epitaxie von Halbleitern ist eine unabdingbare Voraussetzung, um aus den so gewachsenen Proben durch anschließende Strukturierungsverfahren die gewünschten Bauelemente zu erhalten. Das Prinzip der MBE besteht aus dem Verdampfen von festem oder flüssigen Metallen bzw. Halbmetallen meist aus den Gruppen II-V oder III-V auf ein geheiztes Substrat (GaAs, Saphir o.ä.). Der Hauptteil einer MBE-Anlage ist die Ultrahochvakuum-Kammer (Abb. 3.6). Das Ultrahochvakuum wird mittels einer Ionengetterpumpe/ Turbomolekularpumpe hergestellt. Der Druck liegt im Bereich von 10^{-8} Pa. Das Ultrahochvakuum ist notwendig, um die erforderliche Reinheit im Molekularstrahl und auf der Substratoberfläche zu erzielen. Die UHV-Kammer ist im Innern mit einem Stickstoff-gekühlten Kryoschild ausgekleidet, um Fremdatome und Moleküle "auszufrieren" und den Restgasdruck zu erniedrigen. Der Substrat befindet sich auf einem rotierenden Substrathalter und wird während des Wachstums auf eine Temperatur von $280^{\circ}-680^{\circ}$ C geheizt (hängt vom gewünschten Halbleiter ab), um eine hohe Oberflächenbeweglichkeit der Atome zu erzielen. Die Ausgangsmaterialen befinden sich in Effusionszellen und werden durch Heizen aus Bornitrid-Tiegeln verdampft. Der Molekularstrahlfluss wird durch steuerbare Klappen, so genannte Shutter, kontrolliert. Um bestimmte Dotierungs- bzw. Kompositionsprofile zu erzielen, werden Tiegeltemperatur und die Shutteröffnungs- und Schließzeiten mittels eines Computers gesteuert. Die Vorteile dieses Epitaxieverfahrens bestehen in schneller Umschaltzeit zwischen verschiedenen Quellen, so dass scharfe Dotierungs- und Kompositionsprofile erzielt werden. Die typischen Wachstumsraten liegen um eine Monolage pro Sekunde und werden mittels Zellentemperatur der Ausgangsmaterialien geregelt. Um erfolgreich reproduzierbar Proben herzustellen benötigt man ein in-situ-Charakterisierungdverfahren. Für die MBE mit ihrem ultrahochvakuum bietet sich das RHEED-Verfahren (Reflection High-Energy Electron Diffraction) an. Mittels einer Elektronen-



Abbildung 3.7: Schematische Darstellung der verwendeten Elektronenbeugungsmethoden RHEED

kanone werden Elektronen unter streifenden Einfall $(2^{\circ} - 3^{\circ})$ auf die Probe gebracht reflektiert und schließlich von einem Phosphorschrim wieder aufgefangen. Dabei nutzt man die Quantennatur des Elektrons aus. Aufgrund der relativ hohen Beschleunigungsspannung (15 kV) erhält man Wellenlängen des Elektrons, die deutlich unter den zwischenatomaren Abständen von Kristallen liegen. Aufgrund der negativen Ladung des Teilchens kann es aber nicht tief in das Material eindringen und deshalb praktisch nur Information von der Oberfläche liefern (z.B. Rekonstruktionen von GaAs-Oberflächen). Desweiteren kann man über die Intensitätschwankung des Elektronenstrahles die Wachstumsgeschwindigkeit der wachsenden Schichten mittels der sog. RHEED-Oszillationen messen. Jede neue Monolage besitzt eine Rauhigkeit, solange sie keine geschlossene neue Oberläche ausgebildet hat, d.h. Elektronen werden gestreut und gelangen nicht mehr zum Schirm. Mittels eines Kamerasystemes können so die Intensitätsschwankungen (Oszillationen) registriert. Mit den bekannten Gitterabständen kann somit die Wachstumsgeschwindigkeit leicht ermittelt werden.



Abbildung 3.8: Entstehung von RHEED Oszillationen während schichtweisem Wachstum in einem Epitaxieprozess. Maximale Rauhigkeit bei einer Bedeckung von 0.5 Monolagen führt zu minimaler Intensität im Beugungsmaximum und maximaler Intensität des diffusen Hintergrunds.[19]



Abbildung 3.9: Eine II-VI MBE Anlage im Institut für Angewandte Physik, Uni Karlsruhe

Kapitel 4

Herstellungsmethoden und Optimierung

Der Schwerpunkt in diesem Kapitel liegt auf der Darstellung verschiedener Methoden und deren Optimierung, um Cavities (Resonatoren) aus III-V/II-VI Halbleitern zu erhalten. Das Ermitteln der brauchbartsten Methode setzte ein systematisches Suchen und Ausprobiern von bekannten und neuen Ideen und deren Prüfung voraus. Die wichtigsten Optimierungskriterien waren:

- Ausreichend hoher Q-Faktor
- Reproduzierbarkeit der Strukturen

4.1 Maskenherstellung

Um Nanostrukturen gezielt herzustellen, ist die Beherrschung der Maskenproduktion, wie sie auch in der Industrie Anwendung findet, unabdinglich. Die prinzipiellen Herstellungsschritte dafür sind

- 1. Auftragen des Resists (E-Beam-Lack) auf die Probenoberfläche mittels Spin-Coater
- 2. Trocknung des Lackes (durch Ofen oder Hot-Plate)
- 3. Belichtung (optisch oder mit einen Materiestrahl)
- 4. eventuell weitere Lackbehandlung (z.B. 2. Trocknung), um Eigenschaften des Lackes zu verändern
- 5. Entwicklung des belichteten Lacks (Fixierung der gewünschten Struktur im Lack)

28 KAPITEL 4. HERSTELLUNGSMETHODEN UND OPTIMIERUNG

In der Praxis sehen diese Schritte folgendermaßen aus:

zu 1: Dies geschieht zum einen unter Reinraumbedingungen, damit das Sub-



Abbildung 4.1: Links: Geöffneter Spin-Coater, rechts: Hot-Plate

strat frei von Verunreinigungen bleibt, zum anderen findet das Belacken unter Gelblicht statt, da der Resist für kurze Wellenlängen noch lichtempfindlich ist und sich deshalb bei normalem Raumlicht bereits chemisch verändern würde. Bevor der Lack auf das Substrat aufgebracht wird, muss dieses sorgfältig gereinigt werden. Hierzu werden zunächst haftende Partikel mit Lösungsmittel (2-Propanol) entfernt und anschließend das Substrat mit Stickstoff (Reinheitsklasse 4) trocken geblasen. Bei hydrophobem Lack müssen vorher durch Erwärmen des Substrates beispielsweise auf einer Hot-Plate (10 min bei 120°C) die auf der Oberfläche adsorbierten Wassermoleküle verdampft werden, da sonst diese Wasserrückstände die Haftung am Substrat verschlechtern würden. Der Resist wird dann in eine Spritze abgefüllt. Die Spritze bekommt einen μ m-Filter-Aufsatz, um eventuelle Grobanteile herauszufiltern, denn jedes Fremdteil würde die Ausbildung einer homogenen Schichtdicke des Resists verhindern und damit eine korrekte Belichtung des Lackes unmöglich machen. Der Spin-coater (Belacker) ist im Prinzip ein steuerbarer Elektromotor mit einer drehbaren Trägerscheibe (Chuck) mit einem Loch in der Mitte, das mit einer Vakuumpumpe verbunden ist. Der damit erzeugte Unterdruck hält die Probe in der Tellermitte fest, wenn dieser durch eine "Zwei-Schritt-Beschleunigung" in Rotation gebracht wird. Der erste Schritt dient dazu, den Lack grob auf die Probenfläche zu verteilen und der zweite Schritt, mit deutlich höheren Umdrehungszahlen, ermöglicht die homogene Ausbildung der gewünschten Schichtdicke (hängt von der Viskosität des Lacks ab). Die benötigten Fahrzeiten (in der Rotationsphase), müssen experimentell ermit-

4.2. SELEKTIVES WACHSTUM

telt werden, da die Schichtdickenergebnisse bei einem Resisttyp von Gerät zu Gerät variieren. Da der Resist in flüssiger Form vorliegt, verursacht seine Oberflächenspannung eine Verdickung des Lackes am Rand der Probe, der für die Weiterverarbeitung damit unbrauchbar geworden ist.

zu 2 : Diese Trocknung dient dazu das Trägermaterial, das den Resist flüssig hält, zu verdampfen. Damit erstarrt der Resist in der gewünschten Dicke bzw. er ist mechanisch stabiler geworden. Die Trocknungszeiten sind abhängig vom verwendeten Lack und der Art der Trocknung(Hot-Plate oder Umluftofen).

zu 3 : Die Belichtungszeiten hängen ab von der Empfindlichkeit des Lackes (der benötigten Energie, um eine chemische Reaktion auszulösen) sowie der Lackdicke (Belichtung von der obersten Schicht bis zu der untersten). Deutlich andere Belichtungszeiten benötigt man, wenn man ganz spezielle Belichtungsprofile im Lack erreichen möchte (z.B. beim Lift-Off).

zu 4 : Dieser Schritt war in dieser Arbeit nur notwendig, wenn ein Negativ-Resist benutzt wurde. Nach dessen Belichtung liegen die gecrackten Polymerkettenenden reaktionbereit vor. Durch nochmalige Energiezufuhr (2. Backzeit) werden chemische Reaktionen ausgelöst, so dass die losen Kettenenden miteinander erneut chemisch reagieren und verkneulen. Damit wird ihre Löslichkeit im Entwickler deutich herabgesetzt im Vergleich zu den unbelichteten Teilen der Probe. Somit werden erst durch die zweite Trocknung die gewünschten Eigenschaften des Negativ-Lacks erreicht.

zu 5 : Der Entwickler ist eigentilch nur ein Lösungsmittel, der unterschiedlich stark die belichteten bzw. unbelichteten Stellen des Resiss herauslöst. Beim Positiv-Lack wird der belichtete Teil schneller aufgelöst als der unbelichtete Teil. Beim Negativ-Lack ist die Situation umgekehrt, d.h. der belichtete Teil bleibt. Zu beachten ist, ob belichtet oder unbelichtet, dass der Lack immer aufgelöst wird. Somit darf die Entwicklungszeit nicht zu lang sein, damit die gewünschten Strukturen im Lack erhalten bleiben. Die genauen Zeiten müssen experimentell ermittelt werden. Nach der Entwicklung stellt der übriggebliebene Resist eine Maske für den nachfolgenden Ätzprozess dar.

Folgende "Rezepte" für die verschiedenen E-Beam-Lacke wurden verwendet:

Тур	Name	1.Rotation	2.Rotation	1.Backen	2.Backen	Entwickler	Zeit
pos.	AR-610	550rpm,3Sek.	2200rpm, 70 Sek	$210^{\circ}C,5min$	entfällt	AR-600.55	35Sek
neg.	An-7700	400rpm,2Sek	3000rpm,70Sek	85°C,1min	$110^{\circ}C,2min$	AR-300.47	35Sek



Abbildung 4.2: Darstellung der Prozesse beim MBE-Wachstum, welche ein Teilchen einer Teilchensorte im Rahmen des Precursersmodells durchlaufen kann. Diese sind Diffusion über freie und besetzte Plätze, Desorption über freie und besetzte Plätze, sowie Adsorption in und Desorption aus dem chemisorbierten Zustand.

4.2 Selektives Wachstum

Die erste untersuchte Methode zur Herstellung von optischen Resonatoren, die auf der Hand liegt, ist die gezielte Beeinflussung des epitaktischen Wachstums von Halbleitern, d.h. ein selektives Wachstum auf der Substratoberfläche zu erzwingen. Wie kann man das erreichen ?

Wenn man ausgeht vom Precursormodell (Abb. 4.2) der Molekularstrahlepitaxie, so sieht man, wo man eingereifen kann, um selektives Wachstum zu erreichen. Eine einkristalline Schicht wächst (vom thermischen Gleichgewicht entfernt) bei ausreichenden und in Verhältnissen richtigen Zuflüssen der Halbleitermaterialien sowie der richtigen Wachstumstemperatur des Substrates. Durch Aufbringen von Fremdmaterialien (z.B. C, SiO₂, Si₃N₄) auf das Substrat kann der Haftkoeffizient reduziert werden. Das hat zu Folge, dass die Diffusionslänge bzw. "Lebenszeit"der Adatome sich vergrößert, bevor sie entweder wieder abdampfen oder in die wachsene Schicht eingebaut werden. Bei den "Fenstern", d.h. den Flächen, die frei von Fremdmaterial sind , "spüren"die Adatome den größeren Haftkoeffizienten (z.B. von GaAs oder ZnSe) wieder, und somit steigt auch die Einbauwahrscheinlichkeit bei den Fenstern im Vergleich zu der restlichen Fläche des Substrates. Somit wachsen an den präparierten Stellen des Substrats kristalline Strukturen, es läuft ein selbstorganisierter Wachstumsprozess ab. Kristallflächen mit der

4.2. SELEKTIVES WACHSTUM

niedrigsten Bildungsenergie bildet sich aus. Bei einer Zinkblendestrukur (z.B. GaAs, ZnSe) bildet sich dann eine Pyramidenstruktur mit {101}-Flächen aus (Abb. 4.3). Nicht nur, dass das Wachstum auf den Fremdmaterialien gehemmt (kleinerer Haftkoeffizient) ist, sondern das Halbleitermaterial wächst dort polykristallin auf, da das Fremdmaterial amorph aufgebracht wird.



Abbildung 4.3: Schematische Abbildung einer unter selbstorganisierten Bedingungen gewachsenen Pyramide. Die Pfeile deuten den Stofftransport zur Spitze an. [11]

4.2.1 Selective Area Epitaxy (SAE) und Periodic Supply Molecular Beam Epitaxy (PSE/MBE)

Der erste Versuch zu selektivem Wachstum (selected area epitaxy,SAE) von ZnSe auf GaAs (001) mittels MBE wurde mit SiO₂-Maske und etwas später mit Si₃N₄ durchgeführt. Die aufgetragenen Schichten hatten eine Dicke von 20 nm bis zu 45 nm. Siliziumnitrit sollte laut [15][16] eine bessere Selektivität haben als SiO₂, d.h. der Unterschied der Wachstumsgeschwindigkeit der Schichten auf dem Fremdmaterial und den freien Flächen des Substrats sollte größer sein. Zur Herstellung der Proben waren folgende Arbeitsschritte nötig (Abb. 4.4):

- SiO₂ oder Si₃N₄-Schichten (20-45 nm) wurden auf dem GaAs-(001) Substrat mittels Elektronenstrahlverdampfung oder plasmagestützter chemischer Gasphasenabscheidung (PECVD) deponiert.
- Ein Polymethylmethacrylat/Methacrylacid-Resist (ein chemisch verstärkter PMMA-Lack) wurde für die Maskenherstellung (Elektronenstrahllithographie) verwendet. Der PMMA/MA-Resist wurde hier verwendet, weil er eine höhere Empfindlichkeit besitzt als der unbehandelte PMMA-Lack, bei gleicher Auflösung.

32 KAPITEL 4. HERSTELLUNGSMETHODEN UND OPTIMIERUNG

- Es wurden "Fenster"mit einer Grundfläche von $0.5 \times 0.5 \ \mu m^2$ bis zu $1.5 \times 1.5 \ \mu m^2$ in das SiO₂ bzw. Si₃N₄ geätzt mit Hilfe der Ätzmaske (aus PMMA/MA) und einer gepufferten HF- Ätzlösung (4 HF : 47 NH₄F : 1 H₂O). Die Ätzraten für SiO₂ betrug 5 nm/s und für Si₃N₄ 5 nm/min.
- Eine ZnSe-Schicht wurde dann auf das so vorpräparierte Substrat mittels MBE (mit Elementarquellen) gewachsen. Die Wachstumstemperatur wurde variiert von 280°C bis zu 340°C, um den Einfluss der Wachstumstemperatur auf die Selektivität zu bestimmen.



Abbildung 4.4: Die Abbildungen zeigen von links nach rechts die einzelnen Arbeitsschritte für das selektive Wachstum

4.2.2 Ergebnisse

Es wurden bei den Wachstumsparametern die Substrattemperatur variiert, sowie die Verhältnisse der Zn/Se-Flüsse, um zu sehen, ob das die Selektivität verbessert. Abbildung 4.5 zeigt Felder mit einer Grundfläche von 50 μm^2 mit einem Rahmen der Breite 8.25 μm . Die Fenster (Quadrate) der obersten Reihe (ohne ZnSe-Schicht) haben eine Grundfläche von $0.5 \ \mu m^2$. Die Abstände zum nächsten Fenster betraen 0.25 μm und nehmen von links nach rechts zu (Mitte: 0.5 μm , rechts: 1 μm). Die Grundfläche der Fenster nimmt von oben nach unten zu (Mitte: 1 μm^2 , unten: 1.5 μm^2). Die Bilder der bewachsenen Fenster befinden sich unmittelbar unter den der unbewachsenen. Man erkennt bei den Feldern mit ZnSe schon im optischem Bild Strukturen, die auf ein selektives Wachstum schließen lassen. Die Selektivität wurde bestimmt mit Hilfe eines Profilscanners, indem von einer "freien"Ecke (nur Substrat+SiO₂ oder Si_3N_4) in Richtung Probenmitte die Höhe gescannt wurde und anschließend an einem Fensterfeld ein weiterer Profilscan durchgeführt wurde (Substrat+ZnSe). Aus den Höhenunterschieden lässt sich die Selektivität bestimmen. Abbildung 4.6 zeigt zwei solcher Profilscans. Die Wachstumsselektivität von SiO_2 beträgt 0.2, für Si_3N_4 etwa 0.4.



Abbildung 4.5: Aufnahmen mit einen optischen Mikroskop bei einer 50 fachen Vergrößerung

34 KAPITEL 4. HERSTELLUNGSMETHODEN UND OPTIMIERUNG

Die Werte aus der Literatur [15][16] sind deutlich grösser. Der Unterschied zwischen den Literaturwerten und den gemessenen Werten deutet darauf hin, dass etwas die Selektivität herabsetzt. Da die Nadelspitze des Profilscanners für eine detallierte Ortsauflösung in den "Fenstern"nicht fein genug ist, wurde deshalb mittels AFM (Atom Force Microscopy) ein nochmaliger Oberflächenscan (Kontaktmodus) von Th. Koch und H. Gliemann (Arbeitsgruppe Prof. Schimmel, CFN) durchgeführt. Die AFM-Bilder zeigen, dass



Abbildung 4.6: Links: Ein Höhenscan von einer "feien"Ecke aus (von einem Substrathalter abgedeckt). Rechts: Profilscan eines Feldes.



Abbildung 4.7: AFM-Bilder eines 1.5 μm^2 -Fensters. Das linke Bild zeigt den gewachsenen Pyramidenstumpf überhöht.

ein selbstorganisiertes Wachtum in den "Fenstern"stattgefunden hat. Das ZnSe in den "Fenster"wächst, wenn der Maskenrand erreicht wird, anisotrop
4.2. SELEKTIVES WACHSTUM

über den Rand weiter, dabei weist das ZnSe eine Wachstumsanisotropie entlang der $[110]/[1\overline{10}]$ -Richtung auf. Dass die Pyramidenstümpfe optisch aktiv sind, zeigt die Kathodolumineszenz (die hell aufleuchtenden Punkte, Raumtemperatur) (Abb. 4.8 links) und die μ -PL (Mikro-Photolumineszenz, Abb. 4.8 rechts). Um die Qualität der gewachsenen Oberfläche genauer zu bestim-



Abbildung 4.8: Links: Kathodolumineszenz bei Raumtemperatur mit 1kV Beschleunigungsspannung. Die dunkel erscheinenden quadratischen Flächen leuchtet nicht, da dort keine Pyramiden sind. Die leuchtenden Punkte sind die Pyramiden. Rechts: Eine optische und ortsaufgelöste μ -PL-Aufnahme wurden übereinander gelegt. Die Anregung fand bei $\lambda = 280$ nm statt (100 fs Puls). Die Intensität ist farbkodiert dargestelt. Innerhalb des Laserspots leuchten nur die Pyramiden.

men, wurden anschließend SEM-Aufnahmen (Scanning Electron Microscope) gemacht (Abb.4.9). Man sieht eine stark zerklüftete, sehr rauhe Oberfläche zwischen den Pyramidenstümpfen. Nur die (001)-Fläche erscheint glatt. Um die Rauhigkeit etwas zu glätten, wurde das Wachstum unter "periodic supply molecular beam epitaxy" (PSE/MBE) Bedingungen durchgeführt. Die Idee ist dabei, dass eine periodische Wachstumsunterbrechung unter konstantem Se-Fluss, eine Glättung der Oberfläche mit sich bringt. Je rauher eine Oberfläche ist, desto mehr, mikroskopisch gesehen, isolierte Spitzen pro Flächenmaß findet man. Die Wahrscheinlichkeit steigt mit der Substrattemperatur an, dass die Atome an den Spitzen leichter wieder abdampfen, wenn für eine kurze Zeit eine Wachstumsunterbrechung stattfindet. Damit erreicht man mit der PSE/MBE-Technik eine Glättung der Oberfläche. Die Schichtdickenmessungen der abgedeckten Substratoberfläche und bewachsener Oberfläche mittels Profilscanner zeigten aber keine Verbesserung der Selektivität. Sie blieb ~ 0.25 und damit deutlich kleiner als in [15][16]. Der Selektivitätsfaktor war unabhängig, von der Wachstumstemperatur was im Wiederspruch zu



Abbildung 4.9: Links: Unter 45° aufgenommen (SiO₂). Rechts: Draufsicht (Si₃N₄)

[15][16] lag. Die Erklärung dafür ist, dass von Anfang an die Selektivität sehr eingeschränkt war durch eine zu rauhe Oberfläche der SiO₂- und Si₃ N_4 -Maske durch das Bedampfungsverfahren (CVD). Da eine rauhe Oberfläche auch eine größere Oberfläche besitzt bzw. die Diffussionslänge der Halbleitermoleküle klein ist, wuchsen die Schichten auf dem Fremdmaterial fast genauso schnell wie auf der freien Substratoberfläche.

Eine weiteres Material, das ein selektives Wachstum ermöglicht, besteht aus Kohlenstoff. Die Schicht kann sich in einer SEM-Vakuumkammer bilden, wenn der Elektronenstrahl entweder ein zugeführtes Gas [17] oder Ölreste der Vakuumpumpen chemisch crackt, so dass sich eine Kohlenschicht auf der "belichteten"Oberfläche des Substrates bilden kann. Dieses Verfahren hat den Vorteil, dass man einen Ätzschritt (SiO₂/Si₃N₄) weglassen kann. Da unsere SEM-Anlage einfach zu "sauber"war, konnte sich aber leider keine ausreichende Kohlenstoffschicht bilden, um ein selektives Wachstum zu ermöglichen .

4.3 Pyramidenstrukturen mittels FIB-Lithographie

Um mit einer Focused-Ion-Beam-Anlage eine Pyramidenstruktur direkt heraus zu ätzen, gibt es prinzipiell zwei Möglichkeiten:

- Den Ionenstrahl parallel zu der gewünschten Facette der Pyramide führen.
- Den Ionenstrahl senkrecht zur Probenoberfläche führen und mit wiederholten Scans daraus die Pyramidenform entstehen lassen.

Bei der ersten Möglichkeit muss die Probe viermal gedreht (jeweils um 90°) werden, damit die Pyramide entstehen kann. Man sieht sofort, dass an die mechanische Führung des Probenhalters eine Genauigkeit im Nanometerbereich gefordert werden muss. Ansonsten würden Unregelmäßigkeiten in der Struktur erzeugt werden, die die gewünschte Pyramidenform letztendlich zerstören würden. Es zeigte sich, dass der Fehler, der pro Drehung auftrat, im μ m-Bereich lag. Auch die Festlegung eines Symmetriepunktes auf der Probenoberfläche, der es der Erkennungssoftware ermöglichen sollte, eine Fehlerkorrektur durchzuführen, brachte keine deutliche Verbesserung für dieses Problem. Deswegen wurde diese Idee nicht mehr weiter verfolgt.

Für den zweiten Ansatz wurde das Schreibprogramm nach dem Matrioschka-Prinzip konzipiert (Abb. 4.10). Es wurde eine quadratische Grundfläche zu-



Abbildung 4.10: Die linke Skizze zeigt alle Flächen zusammengesetzt. Die Skizze in der Mitte bzw. Rechts zeigen wie das Matrioschka-Prinzip funktioniert.

grunde gelegt, die in der Mitte eine quadratische Aussparung besaß. Bei jedem neuen Scan wurde dieses "Fenster"etwas kleiner, so dass das Material von ausen nach innen abgetragen wurde (am Rand mehr als in der Mitte). Es bildete sich so ein Gradient in der Höhe in Richtung Quadratmitte aus.



Abbildung 4.11: Das ist eine ZnSe-Probe. Bis zum Substrat wurde hier noch nicht abgetragen

Damit konnten Pyramidenstrukturen in eine ZnSe-Probe geätzt werden, wie

38 KAPITEL 4. HERSTELLUNGSMETHODEN UND OPTIMIERUNG

in Abbildung 4.11 zu sehen ist. Die nächste Zielsetzung bestand nun darin, einen Rahmen um die Pyramiden zu realisieren und bis zum Substrat(GaAs) zu ätzen, um isolierte Pyramiden zu erreichen. Den Rahmen erhält man, indem eine größere Fläche verwendet wird als für die gewünschte Pyramidengrundfläche notwendig sind. So kann mit einem breiten Rahmen begonnen werden. In die Tiefe gelangt man durch Wiederholungsschleifen (Loops), die in das Schreibprogramm eingebaut werden. Je mehr Schleifen im Programm vorhanden sind desto steiler werden die Pyramidenseitenflächen und die resultierende Grundfläche der Pyramide wird kleiner (Abb. 4.12). In



Abbildung 4.12: Links: Pyramide nach 20 Loops. Rechts: Pyramide nach 40 Loops.



Abbildung 4.13: Die rechte Pyramide vergrößert: Seitenlänge etwa 440 nm

Abbildung 4.13 sieht man gut, dass nach 40 Loops das Substrat erreicht wurde, da sich GaAs-Tröpfchen am Boden gebildet haben. Die Pyramide gleicht eher einer Nadelspitze. Bei 20 Loops ist die Pyramidenform noch aus-

4.3. PYRAMIDENSTRUKTUREN MITTELS FIB-LITHOGRAPHIE 39

geprägter als nach 40 Loops (Abb.4.12, links). Um säulenförmige Strukturen zu vermeiden, muss dementsprechend die Höhe der gewachsenen Schicht (hier ZnSe) angepasst werden. Dies schränkt natürlich die Möglichkeit der Größenvariationen auf ein und der selben Probe ein. Auch die Oberfläche



Abbildung 4.14: Pyramide bei 17.000-facher Vergrößerung: nach 20 Loops

der Pyramidenseiten war durch die FIB-Herstellung noch zu rauh (grob). Das war ein Problem, da die Güte eines Resonators auch von der Glattheit seiner Flächen abhängt(Steuverluste). Da durch die Bearbeitung mit der FIB



Abbildung 4.15: Photolumineszenzspektrum von ZnSe Epischichten schwarze Kurve (unstrukturierten Probe), rote Kurve nach 40 Loops

auch Defekte im Probenmaterial erzeugt werden war eine weitere Frage, ob

das Materialsystem (ZnSe) noch optsch aktiv bleibt. Abbildung 4.15 zeigt die PL-Messung einer unstrukturierten Probe (schwarze Kurve) im Vergleich zur strukturierten Probe (rote Kurve nach 40 Loops). Der Vergleich zeigt, dass die bearbeitete Probe optisch aktiv bleibt.

Grundsätzlich ist es möglich, mit einer FIB-Anlage Pyramidenstrukturen herzustellen. Die Probleme der Rauhigkeit kann man noch minimieren, z.B. durch Variation der Ionenstromstärke bzw. durch eine nasschemische Nachbehandlung.

4.4 Nanostrukturbildung mittels nasschemischer Ätzverfahren

Die verschiedensten Ätzverfahren (ob trocken- oder nasschemisch) spielten schon immer eine bedeutende Rolle (insbesondere in der Chipherstellung), wenn es darum ging, räumliche Strukturen in Halbleiter im Bereich von μ m bzw. nm herzustellen. Ein bekanntes Trockenätzverfahren ist das Reaktive Ionenätzen (Reactive Ion Etching, RIE), bei dem das Material durch ein gerichtetes Ätzen mit reaktiven Ionen, die in einer Gasentladung erzeugt wer-



Abbildung 4.16: Strukturierung einer Schicht (B) auf einem Substrat (C) mit Hilfe einer Resistmaskierung (A) a) Isotropes Ätzen b) Anisotropes Ätzen

den, abgetragen wird. Dieses Verfahren ermöglicht hohe Aspektverhältnisse, benötigt aber ein eigenständiges abgeschlossenes System (wegen der benutzten Gase, die häufig toxisch wirken). Nasschemische Ätzverfahren benötigen dagegen häufig relativ einfache Sicherheitsvorkehrungen, und man hat die Möklichkeit, auf einen sehr breiten Erfahrungschatz von Ätzlösungen zurück zu greifen. Die Strukturbildung wird mit Hilfe einer Ätzmaske (z.B. aus Au, Ti oder Fotolack) ermöglicht. Dabei wird ein Teil der Oberfläche der Probe durch die Maske abgedeckt, der dadurch vor der Ätzlösung geschützt ist (Abb.4.16). Das freizugängliche Halbleitermaterial wird nach unten abgetragen, bis ein durchgeführter Ätzstopp (Neutralisierung, z.B. durch H₂O) diesen Vorgang abbricht. Das so gewonnene Profil hängt vom Ätztyp ab,

der sich auch mit der Ätzrate ändern kann. Beim isotropen Ätzen gibt es keine bevorzugte Kristallflächen, d.h. alle Flächen werden gleich stark abgetragen. Damit bekommt man ein senkrechtes Profil mit einem parabelartigen Abschluss zum Substratboden (Abb. 4.17). Dieses Profil ist am besten geeignet, um Strukturen voneinander zu trennen. Beim anisotropen Ätzen gibt es



Abbildung 4.17: Anisotropes Ätzen mit Maske auf GaAs-Substrat

bevorzugte Kristallflächen (z.B. im kubischen System die $\{101\}$ - oder $\{111\}$ -Flächen), die kaum abgetragen werden. Somit erhält man definierte Flächen (Abb. 4.18). Diese Profile können dann weiter benutzt werden, z.B. zum



Abbildung 4.18: links: eine Struktur mit {101}-Fläche, rechts: ein "Graben" mit {111}-Flächen

Bewachsen von vorstrukturierten Oberflächen. Das in dieser Arbeit benutzte Verfahren (selektives Ätzen) [12] ermöglicht es Flächen zu erzeugen, die wohldefiniert sind und frei wählbare Neigungswinkel zueinander bilden. Ohne die Grundfläche verändern zu müssen, besitzt man eine große Variabilität, das Volumen der Strukturen einfach zu ändern. Es treten auch keine Schädigungen der Kristallstruktur durch die Prozessierung auf (im Gegensatz zur FIB-Herstellung).

4.4.1 Das Prinzip des selektiven Ätzens

Der Begriff Selektivität bezieht sich hier auf das unterschiedliche Atzverhalten (Ätzraten) von verschiedenen Stoffen (z.B. GaAs, AlAs) für die gleiche Ätzlösung. Mit dieser Selektivität kann dann ein konstruktives (d.h. gesteuertes) Ätzen durchgeführt werden, wenn folgende Bedingungen erfüllt sind:

- Das Verhältnis der Ätzraten für die unterschiedlichen Stoffe muss um den Faktor 10 oder größer sein
- Das Material, das schneller abgetragen wird, dient als Opferschicht ("sacrificial layer")



Abbildung 4.19: Links: Eine, mittels MBE gewachsene, Schichtabfolge. Rechts: nach dem Ätzen, sind zwei gekoppelte Resonatoren entstanden.

Die Dicke der Opferschicht beinflusst den Neigungswinkel der Strukturflächen. Diese Variabilität erreicht man auch mit unterschiedlich stark verdünnten Åtzlösungen bei konstanter Dicke der Opferschicht (Abb. 4.21). Mit lithographischen Methoden wird eine Maske (PMMA oder Metall) auf die Probeoberfläche gebracht. Die Atzlösung, die hier verwendet wurde, besteht aus Orthophosphorsäure, Wasserstoffperoxid und Wassser (1H₃PO₄:xH₂O₂:8H₂O im Volumenverhältnis). AlAs dient hier als Opferschicht und GaAs als Cavitymaterial. Eine prinzipielle Schichtabfolge (ohne Bragg-Spiegel) der verwendeten Proben ist in Abb.4.19 dargestellt. Man bekommt am Anfang ein isotropisches Ätzen, bis die Opferschicht erreicht wird. Mit großer Ätzgeschwindigkeit wird jetzt die AlAs-Schicht lateral abgetragen und die so frei werdende "neue"GaAs-Oberfläche wird "angeriffen". Es wird durchgehend vom AlAs-"Kanal"geätzt. So erhält man letztendlich eine laterale sowie eine vertikale Ätzgeschwindigkeit. Das Verhältnis der AlAs- zu GaAs-Ätzrate bestimmt den Neigungswinkel der Seitenflächen der neuen Struktur. Die Abhängigkeit zwischen dem (gewünschten) Winkel (Z Pyramidenbasis, Seitenflächen der Pyramide) und der Stärke der Atzlösung sowie von der Dicke



Abbildung 4.20: Links: Die Skizze zeigt die zeitliche Entwicklung der Struktur beim Ätzen.[12] Rechts: zeigt die Entwicklung der realen Struktur zur einer Pyramide hin: Der obere Teil weisst ein isotropes Ätzprofil (GaAs) auf, die Opferschicht ist gerade erreicht worden (AlAs) und bildet in der unteren Schicht eine pyramidenförmige Grundstruktur (GaAs) aus. Erst spät wird die "obere"Pyramide ausgebildet.



Abbildung 4.21: Links: Ätzraten als Funktion des H_2O_2 -Gehalts in der Ätzlösung. Rechts: die Abhängigkeit des Winkels zwischen der Grundfläche der Pyramide (001) und den Seitenflächen, abhängig vom H_2O_2 -Gehalt und der Dicke der Opferschicht. [12]

der Opferschicht wird in der Abbildung 4.21 rechter Graph dargestellt. Der Graph zeigt, dass Pyramidenstrukturen mit 20° bis 60° großem Neigungswinkel (Seitenflächen) herstellbar sind. Somit besitzt die Methode des selektive Ätzens ein hohe Variabilität im Design der Pyramiden.

44 KAPITEL 4. HERSTELLUNGSMETHODEN UND OPTIMIERUNG

4.4.2 Die Herstellung und Optimierung von pyramidenförmigen Cavities



Abbildung 4.22: Links: Ein Feld von Doppel-Pyramiden. Rechts: Eine Doppel-Pyramide, in der eine zweite Opferschicht in der unteren Pyramide zu sehen ist, die später weggelassen wurde, da sie keine Auswirkung auf die Form hatte.

Abbildung 4.22 links zeigt, dass mit dem selektiven Atzverfahren auch "großflächige"strukturierte Areale gleichförmig herzustellen sind. Diese ersten Proben dienten dazu, um praktische Erfahrungen mit diesem Verfahren zu bekommen und enthielten daher kein optisch aktives Material (z.B. Quantenpunkte), noch war der Resonator vom Substratboden optisch "isoloiert". Ein weiterer Versuch zeigt die Abbhängigkeit der Ausrichtung der Ätzmasken auf die sich ausbildende Grundfläche und auf den Körper der Pyramide. In Abbildung 4.23 Bild **a**) sieht man eine Pyramide mit einer oktaedrischen



Abbildung 4.23: Die rechte Pyramide wurde länger geätzt als die linke, so dass sie keinen "Hut"mehr trägt.

Grundfläche, die nach längerer Ätzzeit, zu einem Resonator mit hexagonalen Grundfläche übergeht (Abb.4.24, **b**). Die Maske, die hier benutzt wurde,

hatte aber eine quadratische Form, deren Seiten parallel zu [110] und [1 $\overline{10}$] lagen. Es zeigte sich, dass diese Ausrichtung nicht zu einer quadratischen Pyramide führt, sondern es können sich nur die Flächen stabil ausbilden, deren Kanten paralell zu [110],[1 $\overline{10}$], [010] und [100] liegen, d.h. dass alle Flächen, die sich zunächst ausbilden, beim Ätzen auf Dauer keine stabile Fläche ausbilden können. Die Seiten, deren Kanten parallel zu [010] bzw. [100] liegen, scheinen sich auch erst spät auszubilden bzw. "durchzusetzen", wie man deutlich in Abbildung 4.24 Bild **b**) sehen kann. Diese Pyramide zeigt



Abbildung 4.24: Strecke: $A = 4.51 \ \mu m$, $B = 7.86 \ \mu m$

eine hexagonale Grundfläche, da sie länger geätzt wurde als die Pyramide in Bild **a**). Diese späte Ausbildung der $(0\overline{1}1)/(011)$ - und $(\overline{1}01)/(101)$ -Flächen zeigt sich auch deutlich bei großen Strukturen. So zum Beispiel in Abbildung 4.30, wo die quadratische Grundstruktur aufgrund ihrer Abmessungen (Kantenlänge 16μ m) hier noch deutlich dominieren bzw. existieren kann. Der Pyramidenkörper zeigt auch eine unterschiedliche Ausdehnung in Richtung [110] bzw. [110]. Dieses Verhalten deutet auf eine Abhängigkeit der lateralen Atzrate des Pyramidenkörpers auf bestimmte Kristallorientierungen hin, wie in Abbildung 4.24 zu sehen ist. Da das selektive Atzen im Prinzip ein (gesteuertes) Unterätzen der Maske beinhaltet, muss die Grundfläche der Pyramide kleiner sein als die der Atzmaske. Die Seiten der hier benutzten quadratischen Maske hatten eine Länge von 8 μ m. Mit den gemessenen Durchmessern der Pyramiden in [110]- und [110]-Richtung (Abb.4.24, Länge A und Länge B) kann, das Verhältnis der lateralen Ätzraten zueinander bestimmt werden. Bei der Probe in Abbildung 4.24 (Neigungswinkel: 45°) beträgt dieses $\frac{[1\bar{1}0]}{[110]}$ - Verhältnis =24.9 ≈ 25 an der Basis, d.h. in Richtung $[1\bar{1}0]$ nimmt der Durchmessers des Pyramidenkörpers um etwa den Faktor 25 schneller ab als in Richtung [110]. Wieweit dieser Faktor von der Stärke der Atzlösung abhängt wird im Kapitel "Photonische Moleküle"besprochen.

Um große Q-Faktoren zu erreichen, müssen die Transmissionsverluste an den



Abbildung 4.25: Berechnete Reflektionsspektren für $Al_{0.3}Ga_{0.7}As/GaAs$ (links) und AlAs/GaAs DBRs (rechts) mit unterschieddlicher Zahl von Schichtpaaren.

Resonatorflächen vermieden werden. Zum Pyramidenboden hin wird das erreicht mittels eines Bragg-Spiegels (Distributed Bragg Reflector, DBR). Derartige planare Bragg-Spiegel sind aus Schichten mit abwechseln niedrigen und hohen Brechungsindex aufgebaut (für meine Proben eine alternierende Schichtabfolgen von AlAs/GaAs-Schichtpaaren), die jeweils eine Dicke von einem Viertel der gewünschten optischen Wellenlänge im Material haben. Dadurch werden die erforderlichen Intensitätsreflektivitäten von über 99% realisiert. Um einen optimal funktionierenden DBR zu entwerfen wur-



Abbildung 4.26: Das Verhalten des Bragg-Spiegels mit unterschiedlich "dünnen" Paaren

de auf das Simulationsprogramm VASE (Woolam) zurückgegriffen. Dieses Programm nutzt die bekannten Werte der Brechungsindizes (abhängig vom Material und der Wellenlänge), um Reflektionspektren für ein vorgegebe-



Abbildung 4.27: Der Einfluss von Schichtdickenvariationen auf das Stoppband.

nes Schichtsystem zu berechnen. Damit war es möglich, rechnerisch, das Verhalten des DBR auf Materialvariation (hier: $Al_{x}Ga_{1-x}As$) zu untersuchen. Abbildung 4.25 rechts zeigt, dass eine reine AlAs-Schicht nicht nur die Anzahl der benötigten Schichtpaare für eine Reflektivität von über 99% um die Hälfte reduziert (auf 20 Paare), sondern dass auch die Breite des Stoppbandes des DBR, zunimmt. Da die gewachsenen Quantenpunkte (In-As), die als "Lichtquelle"in die Strukturen eingesetzt wurden, eine Variation ihrer Emissionwellenlänge von ~ 10 nm aufwiesen (größenabhängig), wäre ein zu schmalbandiger Spiegel nicht optimal gewesen. Ein weiterer Optimierungspunkt ist die Suche nach einem "ausreichend"dünnen Schichtpaar, um die MBE-Wachstumszeiten so klein wie möglich zu halten. Damit kann man gewährleisten, dass Störeinflüsse (z.B. durch Strahlflussschwankungen) während des Wachstums des Bragg-Spiegels in der MBE-Kammer minimiert werden (siehe Abb. 4.27) und die so gewünschte Reflektivität auch reproduzierbar bleibt. Die gesamte Wachstumszeit für einen solchen DBR betrugen etwa 12 Stunden. Die einzelen Wachstumszeiten für die jeweiligen Schichten mussten bei jedem Wachstum neu ermittelt werden mit Hilfe der gemessenen RHEED-Oszillationen (siehe Teilkapitel "Molekularstrahlepitaxie (MBE)"). Die Abbildung 4.28 zeigt einen der ersten Versuche einen Bragg-Spiegel zu wachsen. Das Spektrum wurde auf 1 normiert, um einen Fit mit dem Programm zu ermöglichen. Dieser Fit zeigt dann die sehr gute Übereinstimmung von nomineller + reale Struktur. Absolute Reflektivitäten sind mit unserem Aufbau nicht messbar. Der leichte Abfall bei $\lambda > 980$ nm ist ein instrumentelles Artefakt und hat nichts zu sagen. Bei allen nachfolgenden Proben wurden InAs-Quantenpunkte (Quantendots, QDs) in verschiedenen Höhen



Abbildung 4.28: Links: Die optimalen Dickenwerte (berechnet) der entworfenen Struktur und die realen Werte (bestimmt aus einem Fit am Reflexionsspektrum). Rechts: Experimentelles Reflektionsspektrum und Fit.

der Pyramide gewachsen (Abb. 4.29). Quantenpunkte werden auch als nulldimensionale Systeme bezeichnet, denn sie ermöglichen das Lokalisieren von Elektronen und Löchern an definierten Orten. Durch Einstrahlung von Laserlicht mit Photonenenergien größer als die Bandlücke werden Exzitonen im Halbleiter erzeugt, die sich energetisch bedingt in den QDs sammeln. Sie rekombinieren unter Aussendung von Photolumineszenzlicht definierter Wellenlänge und geben dabei Informationen über die diskrete Struktur der Energieniveaus der QDs frei. Die gewachsenen Quantenpunkte bilden sich selbstorganisiert. Selbstorganisierte Quantenpunkte entstehen beim Wachstum dünner Schichten auf einem Substrat mit einer anderen Gitterkonstante. Um die Verspannungsenergie zu relaxieren, bilden sich nach 1 - 1.5 Monolagen kleine Inseln heraus, die sog. Quantenpunkte. Die Quantenpunkte dienen in meinen Strukturen als breitbandige Lichtquelle. Um Quantenpunkte in großen Resonatorstrukturen (im μ m-Bereich) wie auch in kleinen Strukturen (im nm-Bereich) zu Verfügung zu haben wurden die Quantenpunkt-Schichten in der Regel in verschiedenen Höhen im Bereich der Cavity gewachsen (Abb.4.29). In den letzten gewachsenen Pyramidenschichtsystemen gab es drei Quantenpunkt-Schichten (in den Höhen 100 nm/333 nm/666 nm nach dem Bragg-Spiegel). Die Möglichkeit der freien Verteilung der Quantenpunkte in der Höhe des Resonators ermöglicht prinzipiell sogar das gezielte Ansprechen einzelner QDs bzw. von kleinen Gruppen von Quantenpunkten über verschiedene Resonatormoden.



Abbildung 4.29: Links: Schichtsystem mit nur einer Schicht QDs. Rechts: Schichtsystem mit zwei QD-Schichten

4.4.3 Ergebnisse

Um ein breites Einsatzspektrum der Resonatoren zu ermöglichen, muss das selektive Ätzverfahren mindestens drei Bedingungen erfüllen:

- die Pyramidenstrukturen müssen in ihren Abmessungen (Höhe und Breite) beliebig skalierbar sein, d.h. beliebig große Pyramiden auf ein und derselben Probe.
- Auch komplex zusammenhängende Strukturen müssen herzustellen sein, wie zum Beispiel gekoppelte Resonatoren ("photonische Moleküle")
- Die Oberflächen der Resonatoren müssen ausreichent glatt sein. Je geringer die Streuverluste, desto bessere Q-Faktoren sind möglich.

4.4.4 Skalierbarkeit der Pyramidenform

Die geometrischen Abmessungen eines Pyramidenresonators beeinflussen das Spektrum der Modenwellenlängen, das sich im Resonatorkörper ausbilden kann wie auch den Abstand der einzelnen Moden zueinander (Modendichte). Somit ist es wünschenswert, die Endgröße und damit die physikalischen



Abbildung 4.30: Linkes Bild: Ein "Feld"von verschieden großen Pyramidenstümpfen (von 128 μ m bis zu 16 μ m). Rechts: Einzelnen Stumpf.

Eigenschaften des Resonators mit einfachen Methoden zu variieren, je nach Einsatzbereich des Resonators. Eine Einflussnahme auf die Größe der Pyramide ist durch die gewachsene Schichtdicke der Cavity möglich, da diese (maximale) Höhe bei festgelegten Winkelwerten der Seitenflächen (siehe auch selektives Ätzen) die Größe der Resonatorgrundfläche bestimmt und damit die (maximale) Kantenlänge der Pyramide. Ein weiterer Faktor, um die Größe zu variieren (d.h. natürlich kleiner als die maximale Größe) ist durch die Ätzlösung selbst gegeben. Im allgemeinen führt das Ätzen von kristallinen Materialien zur Ausbildung von bestimmten (den chemisch stabilsten) Flächen, deren Anordnung zueinander auch die Kristallsymmetie des Materials wiederspiegel. Dieses Verhalten zeigt sich auch zum Beispiel bei einer Lösung aus Schwefelsäure, Wasserstoffperoxid und Wasser (siehe Abb. 4.31). Die dort gezeigten Gruben haben sich herausgebildet, nachdem die Schwe-





Abbildung 4.31: Links: Anordnung von V-förmigen Gruben. Rechts: eine Grube vergrößert dargestellt

felsäurelösung die Substratoberfläche ((001)-Orientierung) angreifen konnte (die Oberfläche, die unberüht ist, wurde durch eine PMMA-Lackmaske (po-

sitiv) vor der Säure geschützt). Dieses Verhalten (anisotropes Ätzen) zeigt die Ätzlösung, die für das selektive Ätzen verwendet wird, nicht. Sie verhält sich isotrop, d.h. nachdem die Opferschicht vollständig weggeätzt ist (die obere Pyramide fällt weg bzw. die Ätzmaske existiert nicht mehr) bleiben die fertig ausgebildeten Flächen und ihre dazugehörigen Winkel zur Pyramidengrundfläche erhalten. Die Kanten und die Spitze des Pyramidenkörpers



Abbildung 4.32: Die Bilder zeigen im Prinzip die mögliche "Bandbreite"der Abmessungen der Pyramiden auf einundderselben Probe

runden nur leicht ab und bilden weiterhin einen klar definierten Körper aus, obwohl diese Stellen gleichzeitig von mehreren Seiten durch die Säure "angegriffen"werden. Diese Eigenschaft ermöglicht, die Größe der Pyramiden auch über die zeitliche Dauer des Ätzvorgangs genau zu steuern. Ausgehend von der maximalen möglichen Größe eines Pyramidenresonators, die die gewachsene GaAs-Schicht (Cavity-Schicht) zulässt (Ätzzeit t_{max}), kann durch unterschiedlich langes Ätzen (für $t > t_{max}$) die Pyramidengröße nach unten skaliert werden. Für $t < t_{max}$ erhält man Doppelpyramiden bzw. Pyramidenstümpfe, wenn man mittels Flusssäure (HF) die restliche AlAs-Schicht (Opferschicht) entfernt. Durch Variation der Maskengröße können auf ein und derselben Probenfläche verschieden große Pyramiden gleicher Art (d.h. sie sind winkeltreu) bei gleicher Ätzdauer erzeugt werden (siehe Abb. 4.32). Je nach der gewünschten Endgröße muss dabei bis in die Bragg-Spiegelschichten hinein geätzt werden. Bild a) zeigt eine "große"(12 µm ursprüngliche Kantenlänge) gekoppelte Doppelpyramide. Auf der gleichen Probe befindet sich (Bild c)) ein einfacher Resonator (mit 8 μ m ursprünglicher Kantenlänge). Was an "Verkleinerungen"auf der gleichen Probe im Prinzip noch möglich ist, zeigen die Bilder b) und d). Die Pyramide in Bild d) ist nur noch etwa 200 nm groß (Kantenlänge). Um Wellenleitereffekte zu vermeiden, müssen die Pyramiden zueinander isoliert stehen, d.h. dass die Ätzung mindestens bis zum Anfang der zweiten Bragg-Schicht andauern muss. Damit erreicht man, dass keine zusammenhängenden GaAs-Flächen mehr zwischen den Pyramiden existieren können.

Zusammenfassend kann man sagen, dass das Prinzip des selektiven Ätzens nicht nur eine Skalierung der Pyramidengröße erlaubt, sondern auch bei unterschiedlichen großen Masken Doppelpyramiden, Pyramidenstümpfe oder verschieden große Pyramiden (vom μ m- bis zun nm- Bereich) auf der selben Probe mit nur einem Arbeitsgang ermöglicht. Somit besitzt diese Methode das vielfältigste Potenzial aller in dieser Arbeit untersuchten Verfahren, Pyramidenresonatoren nach Wunsch zu designen.

4.4.5 Pyramidenresonatoren als photonische Moleküle

Werden zwei Resonatoren über einen schmalen Kanal miteinander gekoppelt, so weist das Spektrum der optischen Moden deutliche Analogien zu den elektronischen Zuständen eines zweiatomigen Moleküls (z.B. Wasserstoffmolekül) auf. Durch die Kopplung zweier Systeme mit diskreten Niveaus (Moden) erwartet man eine Aufspaltung jedes dieser Niveaus in zwei Zustände. Die Stärke der Kopplung, die sich auch über die Dimensionen des verbindenden Kanals kontrollieren lässt, bestimmt dabei die Größe der Aufspaltung. Verschwindet der Kanal (Kanalbreite), entspricht dies der Situation zweier entkoppelter Punkte [18]. Die Herstellung von Ätzmasken, die zwei Resonatoren miteinander verbinden, sind mit Hilfe lithographischer Methoden leicht zu realisieren. Es bleibt also nur noch die Frage offen, ob mit der selektiven Ätztechnik auch tatsächlich gekoppelte Resonatoren realisiert werden können, inwieweit die entstehenden Strukturen von der Kristallorientierung des Substrates abhängen. Ich verfolgte zwei Strategien, um eine Kopplung zu verwirklichen:

- 1. Ein Überlappen der Resonatoren bei Ecken, die sich gegenüberliegen.
- 2. Resonatoren, die mit einer Brücke (Kanal) verbunden sind.

An einer Ecke überlappende Resonatoren:

Bei dieser Art der Kopplung werden die gegenüberliegenden Ecken der ne-



Abbildung 4.33: Die Zeichnungen stellen die Belichtungsflächen (E-Beam-Lithographie) dar, erstellt mit dem Programm ELPHY-Plus. Links: Mit einem 25%-Überlapp. Rechts: Mit einem 12.5%-Überlapp.

beneinander liegenden Ätzmasken zum Überlappen gebracht. Hier verzichtet man bewusst auf ein eigenständiges Brückenprofil unter der Annahme, dass die geätzten Flächen der Pyramiden sich ungestört ausbilden können und im Bereich der Überlappung eine Verbindung zwischen den Resonatoren entstehen wird. Um vergleichbare Aussagen zu erhalten wurden die Belichtungsfläche ($8 \times 8 \ \mu m^2$) der Ätzmaske für die Resonatoren und die Ätztiefe von 2 μ m bei allen Proben gleich gehalten. Realisiert wurde eine Überlappung der zu belichteten Flächen von 25% (Abb.4.33, links) und von 12.5% (Abb. 4.33, rechts). Die so gekoppelten Resonatoren wurden mit verschieden großen Neigungswinkeln der Seitenflächen (von ca. 38° bis zu ca. 60°) hergestellt. Um die Abhängigkeit des Ätzprofils der gekoppelten Resonatoren von der Kristallorientierung zu erfassen, gab es, wie in Abbildung 4.33 zu sehen, auch Masken, deren Struktur um 90° gedreht waren, d.h. die Verbindungsgerade, die die Mittelpunkte der Pyramiden verbindet, zeigte dann nach [110].

Ein Überlapp von 25% verursacht bei den flachen Pyramiden (Abb.4.34, a) einen Bereich, in dem die beiden Pyramidenkörper ineinander übergehen, es bildet sich also kein eigenständiger Kopplungskörper aus. Die Breite des Übergangsbereichs beträgt an der engsten Stelle 2,9 μ m. In Abb.4.34, Bild b) erkennt man, dass sich bei einer Drehung um 90° (Verbindungsgerade [110]) eher eine sattelförmige Verbindung ausbildet, die breiter ist (5,3 μ m) als in der [110]-Richtung. In Abb.4.35, Bild c) haben die zwei Resonatoren den



Abbildung 4.34: der Neigungswinkel der Seitenfläche zu Pyramidenboden beträgt hier etwa 38°.



Abbildung 4.35: im Bild d) sieht man eine Seitenanschicht (70°-Kippung) des gleichen Resonatorpaars wie im Bild c). Der "Bügel", der die Pyramidenspitzen verbindet, kann bei Bedarf durch eine längere Ätzzeit entfernt werden.

gleichen Überlappungsgrad wie auf Abb.4.34, in Bild a) (25%), aber dafür einen Winkel von ca. 60°. Der Überlapp bildet sich zu einer eigenständigen Brücke aus. Die Seitenflächen des Kanals zeigen das gleiche geneigte Profil, das auch bei den Pyramiden zu finden ist. Es entsteht ein scharfer Übergang von der Resonatoroberfläche zum Kopplungskanal. In Abb.4.36, Bild e) steht ein Pyramidenpaar ohne "Bügel" dar, man sieht dabei sehr gut wie "scharf"sich der Kanal zwischen den Pyramiden ausgebildet hat. Die Höhe der Brücke ist im Bereich, wo der Kopplungskanal und die Pyramide sich berühren, am höchsten und nimmt stetig zur Mitte (Mitte: $1,1\mu$ m) der Brücke hin ab. Die Richtungsabhängigkeit der Pyramidenätzprofile zeigt sich wieder deutlich bei der um 90° gedrehten Struktur. Es bilden, sich keine zwei unabhängigen Pyramiden mehr aus, sondern eine Art durchgeschnittene Pyramide mit einem Verbindungsstück dazwischen und somit keine voneinander "unabhängige"abgeschlossene Resonatorräume (Abb.4.36, f).

Die nächsten Bilder zeigen nun die Ätzprofile bei einer Überlappung der



Abbildung 4.36: rechts: ohne "Bügel", rechts: um 90° gedreht.

Belichtungsflächen von nur noch 12.5%. Bis auf eine Breite von etwas unter



Abbildung 4.37: Ausbildung von fast getrennten Pyramiden bei einem Überlapp von 12.5%, ein dünner Kanal hat sich gebildet (zur Kennlichmachung: Um den Kanal befindet sich ein roter Rahmen).

100 nm ist der Kopplungskanal jetzt bei der "flachen "Pyramiden heruntergeätzt worden (Abb. 4.37, g) und h)). Die Pyramiden stehen fast isoliert da. Eine Drehung um 90° (Verbindungsgerade [110]) lässt diesmal deutlicher zwei unterscheidbare Pyramidenresonatoren entstehen (Abb. 4.37, i)), die durch einen kurzen Kopplungskanal verbunden sind, der an der schmalsten Stelle 2.5 μ m breit ist. Es zeigt sich, dass bei den flachen Pyramiden eine Skalierbarkeit der Kanalbreite auf einer einzigen Probe durch Überlappung der Resonatorgrundflächen gut möglich ist. Da die Ätztiefe bei den Proben gleich blieb (nur der Winkel wurde variiert), wird es bei einem bestimmten eingestellten Winkelwert auf Grund der geometrischen Abhängigkeit zwischen Winkel, Grundfläche und Höhe einer Pyramide, zu isoliert stehenden Resonatoren kommen. Abbildung 4.38, j) zeigt ein gekoppeltes Resonatorpaar, der hier eingestellte Winkel beträgt 45°. Bei einer 60°-Winkeleinstellung (Abb.4.39, k) haben wir nur noch isoliert stehende Pyramidenpaare. Die Iso-



Abbildung 4.38: Bild j: bei ca. 45° bildet sich noch ein Kanal aus, Höhe in der Mitte: ca. 1,25 μ m.

lierung tritt nicht auf bei einer 90°- Drehung der Strukturen, trotz der relativ geringen Überschneidung der Masken. Es bleibt bei der Nicht-Ausbildung von räumlich abgeschlossenen Resonatoren (Abb.4.39, l). Die hier deutlich auftretende Abhängigkeit des Ätzvorgangs für gekoppelte Strukturen von ihrer Ausrichtung auf der Probe zeigt, dass der Ätzvorgang bei den "gedrehten" gekoppelten Resonatoren nicht mehr "ungestört"abläuft, d.h. dass die Ausbildung der Pyramiden nicht mehr unabhängig voneinander ablaufen kann. Somit ist die Möglichkeit, verschieden stark gekoppelte Resonatoren auf ein und derselben Probe zu verwirklichen, mit den flachen Pyramiden am besten zu realisieren, da die Richtungsabhängigkeit auf die Kopplungsbrücke kompensiert werden kann durch einen entsprechend angepassten Überlappungsfaktor. Bei den "steiler"ausfallenden Pyramiden ist diese Anpassung



Abbildung 4.39: Bild k: bei einem Überlapp von 12.5% und einem Winkel von ca. 60° entstehen nur noch isolierte Pyramidenstrukturen.

auf einer Probe aufgrund der vorgegebenen (d.h. der gewachsenen Höhe) nur beschränkt möglich, und in Richtung der $[1\overline{1}0]$ -Verbindungsgerade bilden sich immer nur zwei Teilpyramiden aus, die über ein langes Zwischenstück

(sattelförmig) miteinander verbunden sind (Abb. 4.39, l)). Somit sind keine skalierbaren Kopplungen möglich.

Über eine Brücke verbundene Resonatoren:

Da der Kopplungskanal hier eine separate Belichtungsfläche darstellt (siehe



Abbildung 4.40: Links: Der Kopplungskanal verbindet die Resonatoren über ihre Ecken. Rechts: Die Resonatoren werden über ihre Seitenflächen miteinander verkoppelt.

Abb. 4.40), stellt sich natürlich die Frage, wie die Kontaktflächen (Kanal \leftrightarrow Resonator) beim Ätzvorgang sich gegenseitig beeinflussen werden, bzw. ob das gewünschte Profil sich wie erhofft ungestört ausbilden wird. Als Grundfläche für eine Kopplungsbrücke habe ich die einfachste Form gewählt, ein Rechteck, wobei auch verschiedene Seitenverhältnisse von Länge (μ m) und Breite (μ m) (10/5, 14/6, 12/7) auspobiert wurden. Die Kantenlänge der Masken der Pyramiden und die gewählte Ätztiefe hatten hier die gleichen Maße, die auch bei Punkt **1.** Verwendung fanden. Zwei Kopplungsvarianten wurden getestet. Die erste Variante ist eine Kopplung über die Ecken der Resonatoren. Dies wird realisiert durch die teilweise Überlappung der Belichtungsflächen der Pyramiden und der Brücke, wobei auch Strukturen mit einer 90°-Drehung verwirklicht wurden, um eine Abhängigkeit des Ätzvorgangs von der Orientierung der Struktur auf der Probenoberflächefläche zu erkennen. Um

einen bündigen Ubergang von den Resonatoren zum Kanal zu ermöglichen, lagen die Ecken des Kopplungskanals auf den Kanten der Resonatoren (Abb. 4.39, links). Der so erzeugte Überlapp beträgt für die Pyramidenfläche (Belichtungsfläche) etwa 20%. Die zweite Variante besteht aus einer Kopplung über die Seitenflächen der Pyramide (Abb. 4.39, rechts). Hierbei berühren sich die beiden Belichtungsflächen nur. Diese Kopplungart wurde auf der Probe in zwei Ausrichtungen verwirklicht, einmal in [100]-Richtung sowie in [010]-Richtung . Wie bei Punkt 1. wurden auch hier verschieden starke Ätzlösungen verwendet, um unterschiedlich große Neigungswinkel (von ca. 38° bis zu ca. 60°) der Resonatorseiten zu erhalten bzw. des Kopplungskanals.

Wie aus Abb.4.41 zu ersehen ist, bleibt bei den "flachen" (ca. 38°) Pyra-



Abbildung 4.41: Die Ausgangsbreite des Kanals beträgt hier 6 μ m.

miden die rechteckige Grundform des Kanals erhalten und sein Übergang zu den Pyramiden verhält sich genauso sanft wie bei den Versuchen zu Punkt 1. (siehe Abb. 4.44, rechts). Die Richtungsabhängigkeit für das geätzte Profil der Kopplungsbrücke zeigt sich nur durch die unterschiedlichen Endbreiten der Brücken. Wenn die Verbindungsgerade (eine gedachte Gerade, die die beiden Spitzen der gekoppelten Pyramiden miteinander verbindet) parallel zu der Bruchkante (110) liegt, ist die Endbreite des Kopplungskanales kleiner als bei dem Kanal, der um 90° gedreht ist (Abb. 4.41, m: $2,83\mu$ m, n: $5,47\mu$ m). Der schmale Kanal ist also etwa um den Faktor $\frac{1}{2}$ dünner als der breite Kanal. Somit zeigt sich auch hier wieder, dass die flachen Pyramiden bei dieser Art der Kopplung ein "gutmütiges"Ätzverhalten haben, d.h. die Pyramidenform kann sich klar ausbilden, unabhängig von einer (110)- oder (1 $\overline{1}0$)-Orientierung der gekoppelten Strukturen auf der Probe. In Abbildung 4.42 hat man die gleiche Anordnung der Strukturen zueinander wie in Abbildung 4.41, nur beträgt hier der "geätzte"Winkel bei den Pyramiden bzw. den Kopplungskanal 50°. Das resultierende Ätzprofil

zeigt hier die gleiche Richtungsabhängigkeit wie bei den Kopplungsversuchen mit den überlappenden Resonatoren, d.h. die gekoppelten Resonatoren, die in die [110]-Richtung ausgerichtet sind, zeigen die gewünschten Eigenschaften beim Ätzen, nämlich die Ausbildung von eigenständigen Körpern (Resonator \iff Kopplungsbrücke \iff Resonator), siehe Abbildung 4.42,



Abbildung 4.42: Links: Die Ausgangsbreite des Kanals betrug 5 μ m, rechts 7 μ m. Die Endbreite beträgt nach dem Ätzen in Bild c: 666 nm, in Bild d: 2611 nm (für die oberen gekoppelten Resonatoren).

obere Strukturen. Wie "sauber"der Übergang von der Kopplungsbrücke zuden Resonatoren stattfindet, zeigt Abbildung 4.44, links sehr deutlich. Bei einer Drehung um 90° ist eine Auflösung der einzelnen Körper nicht mehr möglich (Abb. 4.42, untere Strukturen). Da die geometrischen Dimensionen der Brücke die Stärke der Kopplung bestimmt, ist es wichtig, unabhängig von den Resonatorabmessungen die gewünschten Maße der Kopplungsbrücke einstellen zu können. Die Endhöhe bzw. das Volumen des Kopplungskanals kann durch die Breite der Belichtungsfläche des Kanals bestimmt werden (die maximale Höhe ist durch die gewachsene Schichtdicke vorgegeben), denn je schmaler der Kanal beim Beginn des Atzvorganges ist, desto früher hat sich auch die pyramidale Form der Kopplungsbrücke im Vergleich zu den Resonatoren herausgebildet. An den Bildern in Abbildung 4.43 zeigt sich deutlichen diese lineare Abhängigkeit der Höhe der Brücke zur der verbleibenden Atzzeit, d.h. die Ätzzeit, die nach dem vertikalen Durchätzen der Opferschicht der Kopplungsbrücke noch zur Verfügung steht. In Abbildung 4.43 Bild e) beträgt die Höhe der Kopplung 496 nm bei einer Ausgangsbreite von 5 μ m und in in Bild f) beträgt die Höhe 1507 nm bei einer um 2 μ m breitern Brücke. Bei einer Zunahme um 1 μ m (d.h. die Ausgangsbreite 6 μ m beim "Zwischenstück"der Serie) betrug die Höhe 1020 nm. Die Höhe nimmt also pro "zugelegter"Breite (pro 1 μ m) um etwa 500 nm zu. Dieser Faktor hängt noch von der "eingestellten"Ätzrate (d.h. von der Stärke der Lösung) ab. Damit kann man die anfangs gestellte Fragen auch für diese Brückengeome-



Abbildung 4.43: die Bilder zeigen eine Seitenansicht (70° Neigung) der oberen photonischen Moleküle in Abb.4.42. Die Gesamtätzzeit war bei allen gekoppelten Pyramiden gleich, da sie auf einundderselben Probe lagen.



Abbildung 4.44: Die Aufnahe zeigt (70° Neigung) den "sauberen" Übergang von der Kopplungsbrücke zur Pyramiden.

trie, deren Verbindungsgeraden parallel zu (110) liegt, positiv beantwortet, da sie eine beliebige Skalierbarkeit des Kopplungsbrückenprofils auf ein und derselben Probe ermöglicht. Für die "flachen"Pyramiden zeigt sich keine Einschränkung (wegen der Richtungsunabhängigkeit des Profils) in der Nutzung. Dementsprechend ist der Einsatz diese Kopplungsvariante sinvoll.

Um verstehen zukönnen, warum es bei den gekoppelten Resonatorenpaaren zu dieser Richtungsabhängigkeit im Bezug auf die Ausbildung bzw. nicht Ausbildung der gewünschten Struktur kommen kann, muss man die geätzten Profile noch einmal im Detail betrachten. Beginnend mit dem Überlappungsprofil, das schon in Punk 1 besprochen wurde, zeigt Abbildung 4.45 links wie unterschiedlich die ausgebildeten Strukturen ausfallen bei einer Nutzung des selben Maskentyps (Abb 4.45 rechts). Der Überlapp erzeugt ein Rautenmuster, bei dem alle auftretenden Winkel entweder 90° oder 270° betragen. Im Idealfall sind damit alle auftretenden Flächen nach dem Ätzen durch die



Abbildung 4.45: Links: Zeigt die ausgebildeten Flächen nach dem Ätzen. Die dazugehörigen Flächenindizes stehen schon in der allgemeiner Form da, d.h. n hängt nur von dem erzeugten Winkel ab . Rechts: Das Rautenmuster entsteht nach der Entwicklung des Resist. Das untere Muster erzeugte die unteren Strukturen, dass obere Muster erzeugte die oberen Strukturen.

Maske festgelegt. Beim Belichten des Resists entstehen durch den Proximity-Effekt keine scharf ausgebildeten Ecken, sondern Ecken, die ein abgerundetes Profil aufweisen. Das bedeutet für die Schnittpunkte der Masken, dass der Ubergang zwischen den Masken stetig verläuft und geometrisch durch Kurven beschrieben werden kann. Die daraus resultierenden Tangentialvektoren liegen alle in der selben Oberfläche. Bei den von mir verwendeten Wafer ist das die (001)-Ebene, sie wird durch die [110]- und [110]-Vektoren aufgespannt. So bietet die reale Maske, aufgrund der abgerundeten Profile von Ecken und Schnittpunkten, im Prinzip die Möglichkeit, dass sich beliebig verschiedene Ebenen ausbilden können. Welche Flächen sich tatsächlich ausbilden werden zeigt Abbildung 4.45 links. Ob daraus eine Kopplungsbrücke zwischen den Resonatoren (Abb.4.45, links oben) oder nur ein "großer" Körper (Abb.4.45, links unten) entsteht hängt nun noch vom Verhältnis des lateralen Schwunds der sich schneidenden Flächen ab. Von den Messungen an den alleinstehenden Pyramiden wissen wir (siehe Abschnitt Skalierbarkeit der Pyramidenform). dass die $(\bar{n}\bar{n}\bar{2})/(\bar{n}n2)$ (für n = 0, 1, 2, 3, ...) Flächen um etwa den Faktor 25mal langsamer geätzt (Schwund) werden als die $(n\bar{n}2)/(n\bar{n}2)$ Flächen. Das bedeuten, dass beim Ätzvorgang die Fläche dominiert (erhalten bleibt), die am schnellsten geätzt wird. Darausfolgt, dass zum Beispiel bei einer [110]-Ausrichtung eines gekoppelten Resonatorpaares mit Überlapp sich nicht nur die gewünschten Pyramidenflächen $((\bar{1}0n/(10n) \text{ und } (01n)/(1\bar{1}n) \text{ ausbilden})$ sonder auch immer bei den Schnittpunkten der Masken auch die Flächen $(\bar{n}\bar{n}\bar{2})$ und $(\bar{n}n2)$ (zeltartiges Profil). Wie stark diese Flächen die restliche



Abbildung 4.46: Beim Überlappungsprofil: Hier dominieren die Flächen von der Mitte der Struktur (zeltartiges Profil). Nur die "äuseren"Pyramidenflächen existieren noch. Kein Kopplungsbrückeprofil ist entstanden.

Struktur bestimmt sieht man in Abbildung 4.46 und in Abbildung 4.47. Bei einer [110]-Ausrichtung (entspricht einer 90°-Drehung) der gekoppelten Resonatoren (mit Überlapp) können sich nach dem oben beschriebenen Prinzip auch wieder neue Ebenen aus den Schnittpunkten der Masken herausbilden, diesmal aber durch den [110] und [11n]bzw. $[\bar{1}\bar{1}n]$ -Vektoren aufgespannt (Bildung von $(n\bar{n}\bar{2})/(n\bar{n}2)$ Flächen). Dieses Profil dominiert hier aber nicht die Pyramidenstruktur, sonders es bildet sich eine echte Kopplungsbrücke aus. Wie es scheint sind hier diesmal die Pyramidenflächen, die Flächen, mit dem langsameren Schwund und können sich deshalb wie gewünscht ausbilden (Abb.4.45, links oben). Beim zweitem Kopplungstyp liegen die Seitenflächen



Abbildung 4.47: Bei vorgegebenem Brückenprofil: Im linken Bild, wie auch im rechten Bild oben dominiert hier die Flächen von der Mitte die gesamte Struktur. Nur die "äuseren"Pyramidenflächen existieren noch. Es bildet sich keine Kopplungsbrücke aus.

der Kopplungsbrücke immer parallel zur [110] oder $[1\bar{1}0]$ Richtung. Deswegen zeigt auch das Ätzprofil hier die gleiche Richtungsabhängigkeit wie sie bei der

erste Kopplungvariante (mit Überlapp) auftaucht. In Abbildung 4.47 kann man die Richtungsabhängigkeit der Brückengeometrie sehr gut erkennen. Je schwächer die Ätzlösung ist (je flacher werden die Pyramiden) desto kleiner wird auch das laterale Verhältnis für den Flächenschwund. Für die Pyramiden mit einem Neigungswinkel der Seitenflächen von 38° beträgt dieses Verhältnis nur noch $\frac{1}{2}$ und tatsächlich zeigen diese gekoppelten Strukturen auch das neutralste Verhalten gegenüber einer 90°-Drehung.

Die Abbildungen 4.48 und 4.49 zeigen nun eine 45°-Drehung der Kopplungsbrücke. Dabei werden die Seitenflächen der Pyramiden für die Kopplung ge-



Abbildung 4.48: Kopplung über die Seitenflächen ohne ein Überlapp zu erzeugen. Es bildet sich kein unabhängige Strukturen aus. Es entsteht kein Kopplungsprofil.

nutzt (siehe Abbildung 4.40 rechts). Die Verbindungsgerade zeigt bei dieser Kopplungsart in Richtung (010) bzw. (100). Wie in Abbildung 4.48, i) und



Abbildung 4.49: Hier wurde nur die Pyramide um $45^\circ,$ die Richtung des Kopplungskanals blieb wie Abb.4.36 erhalten

j) zu sehen ist, bildet sich eine durchgehende Struktur aus wobei die ausgebildeten Pyramidenflächen keine eigenständigen Resonatoren mehr bilden. Auch eine Drehung der Pyramidengrundfläche um 45° (Seitenflächen parallel

64 KAPITEL 4. HERSTELLUNGSMETHODEN UND OPTIMIERUNG

zu (100)), die eine Kopplung über die "Ecken"ermöglicht, erzeugt nicht die gewünschte Brückengeometrie (Abb.4.49). Die Ausrichtung der gekoppelten Strukturen in Richtung (010) + (100) bringt also keine weiteren nutzbaren Variate hervor.

Ein Problem, das immer wieder bei allen Proben auftauchte und unabhängig von der Geometrie der Resonatoren war, war die Bedeckung der geätzten



Abbildung 4.50: Die geätzten Resonatoren sind meist gleichmäßig mit "Flocken"bedeckt.

Probenoberfläche mit flockenartigen Teilchen (Abb.4.50 links, bei 10.000facher Vergrößung). In Abbildung 4.50 rechts, wurden einige dieser Teilchen mit Hilfe von SEM-Aufnahmen ausgemessen. Es gibt rundliche wie längliche Formen mit einer Größe bzw. einem Durchmesser von etwa 40 nm. Der Ursprung dieser flockenartigen Strukturen kann nur aus der Umgebung kommen (Staub aus der Luft bzw. Verunreinigungen bei den verwendeten Chemikalien), und/oder es sind "Reste"(GaAs bzw. AlAs), die sich beim Ätzvorgang der Halbleiterschichten bilden. Obwohl alle Proben unter Flow-Box-Bedingungen hergestellt wurden, reichte diese Maßnahme nicht aus, so dass man bei den späteren Proben die Herstellung unter Reinraumbedingungen (Klasse 1) durchführte. Bei der anschließenden Ausmessenung der Flockengrössen konnte erst bei einer Vergrößerung von 25.000 erste Strukturen erkannt werden. Das zeigt, dass die "großen"Flocken (siehe Abb. 4.50) nicht mehr vorkommen. Die "kleineren"Strukturen (bei 100.000-facher Vergrößerung) besitzen im Schnitt etwa die Größen bzw. den Durchmesser von nur noch etwa 25 nm. Es konnte also eine Reduzierung der "Flockengröße"von etwa 40% erreicht werden.

4.4.6 Simulation der Resonator-Moden und erste μ -PL-Messungen

Jeder Resonator besitzt diskrete Schwingungsfrequenzen (Resonanzfrequenzen), die eine wohldefinierte Feldkonfiguration im Resonatorraum ausbilden. Mit Hilfe von Simulationen können die Feldverteilungen "sichtbar"dargestellt werden und bilden deshalb eine sinnvolle Ergänzung zur rein experimentellen Vorgehensweise. Die hier durchgeführte Simulation erfüllt drei wichtige Eigenschaften:

- Mit der Kenntnis der Feldverteilung können 2-Niveau-Systeme (z.B. Quantenpunkte) optimal im Resonator platziert werden, um eine effiziente Ankopplung an die gewünschten Moden zu erreichen.
- Optimierung des Resonator-Designs.
- Abschätzung der Modendichte.

Da die genaue mathematische Lösung der Maxwellgleichungen (mit Randbedingungen) eines realen Resonators (GaAs/Luft) im allgemeinem eine komplizierte Struktur besitzt, versucht man mit der Nutzung der Finiten-Element Analyse dieses Problem in den Griff zu bekommen. Dieses Verfahren ermöglicht, dass das Berechnungsgebiet in eine große Zahl kleiner (mit einfachen mathematischen Lösungen), aber endlich (finit) vielen Elementen unterteilt wird. Durch diesen Prozess der Diskretisierung kann eine lineare algebraische Aufgabe mit zehntausenden von Unbekannten formuliert werden. Für die Lösung solcher Aufgaben existieren Algorithmen, die Computer in vergleichsweise kurzer Zeit lösen können. Das hier benutzte Programm FEMLAB diskretisiert die zu berechnende Struktur mittels Dreiecken, deren Größe vorher festgelegt wird (mesh). Für jedes dieser Dreieckselemente wird die Lösung durch eine lineare Interpolation an den drei Eckpunkten approximiert. Das Ziel ist, dass das Ergebnis durch eine genügend große Anzahl von Maschen die exakte Lösung sehr gut annähern wird. Aufgrund von Hardwarebegrenzungen (Speicher, Rechenleistung) sind die ersten Berechnungen für einen idealen (d.h. mit metallischen Randbedingungen) Pyramidenresonator durchgeführt worden. Die Simulation wurde für einen Wellenbereich von ca. 900 nm bis 950 nm berechnet, da in diesem Wellenbereich auch die Abstrahlung der Quantenpunkte lag. Je größer die Pyramide wird, desto dichter liegen auch die einzelnen Wellenknoten zueinander. Demzufolge klein muss die Maschengröße (Mesh immer feiner unterteilen) festgelegt werden. Dabei kommt man wieder an die Grenzen der Hardwareausstattung (Speicher), so dass momentan Pyramidenresonatoren mit einer Kantenlänge von maximal 1,5 μ m berechnet

werden können. Alle Simulationen wurde von Frank Weber aus der Arbeitsgruppe von Prof. Kalt (CFN) durchgeführt. Abbildung 4.51 zeigt die berech-



Abbildung 4.51: Berechnete Modendichte bei $\lambda = 900$ nm für verschiedene Basislängen des Resonators mit einer relativen Höhe von 0.4.

nete Modendichte bei einer Wellenlänge von $\lambda = 900$ nm in Abhängigkeit der Pyramidenbasislänge. Für eine Basislänge von 1.5 μ m liegt die Modendichte bei 0.7 Moden/ nm. Bei allen Simulationen liegen metallische Randbedingung zu Grunde und lassen deshalb nur Abschätzungen gegebüber dem realen Resonator zu. Abbildund 4.52 zeig ein Intensitätsbild (Schnittbild) von der Grundmode im Resonator. Das Maximum dieser Mode liegt im Zentrum der Pyramide (die Begrenzung der Struktur ist durch einen schwarzen Rahmen dargestellt). Die Intensitsätabstufung wird über eine Farbcodierung (blau=niedrig, rot=stark) festgelegt. Für höhere Moden wird die Verteilung deutlich anders aussehen, da Wellenknoten wie auch die Symmetrieeigenschaft der Pyramide (Drehsymmetrie: 4-zählige Drehachse) darauf Einfluss haben werden. Die nächste Abbildungen zeigt zum Beispiel eine höhere Mode (3. Mode), als Draufsicht, um besser die symmetrische Verleilung der Intensitätsmaxima im Resonator erkennen zu können.

Die zu untersuchende Probe (Abb. 4.54) wird mit Hilfe eines Kryostat bis auf einer Temperatur von etwa 5 K (flüssiges Helium) abgekühlt. Durch eine software gesteuerte Heizung kann anschließend die gewünschte Probentemperatur (bis zu 300 K) eingestellt werden. Für die Anregung der Probe zur Lumineszenz steht ein VERDI-Laser zu Verfügung. Er emitiert im Bereich von 536 nm = 2, 31 ev. Die hier verwendete Blende (Pinhole, Abb.4.54) garantiert, dass nur der Nahbereich um die zu untersuchenden Resonatorstruktur ausgemessen wird. Bei Bedarf können auch kleine Blenden eingesetzt wer-



Abbildung 4.52: Schnittbild der Grundmode eines metallischen pyramidialen Resonators.



Abbildung 4.53: Draufsicht der 3. Mode, Maximum im Bereich der Seitenflächen

den, um sehr kleine und definierten Bereiche der Struktur zu untersuchen. Die Achromaten bilden dann das Teilbild der Probe auf den Eintrittsspalt des Spektrometers (150 Linien/mm) ab. Das Signal wird mit einer CCD detektiert. Abbildung 4.55 zeigt ein erstes gemessenes μ -PL-Spektrum bei einem isoliert stehenden Pyramidenresonator mit einer Basislange von 1.5 μ m. Da die Quantenpunkte im Resonator als Lichtquellen dienen muss man eine Möglichkeit haben zwischen Resonatormoden und einzelen Quantenpunkten bzw. Quantenpunktgruppen sicher unterscheiden zu können. Eine gute Methode ist die temperaturabhängige μ -PL-Messung. Bei einer Temperaturerhöhung der Probe verkleinert sich die Bandlücke im Halbleitermaterial, und die Emission der Quantenpunkte verschiebt sich deutlich zu größeren Wel-



Abbildung 4.54: konfokaler μ -PL-Aufbau



Abbildung 4.55: μ -PL-Messung: Man sieht hier gut erkennbare Peaks, die aber erst bei einer temperaturabhängige Messung zeigen, dass sie sich verhalten wie Moden.

lenlängen hin. Da der Brechungsindex eine schwache Temperaturabhängig aufweist, erhöht sich so das effektive optische Modenvolumen des Resonators nur wenig mit der Temperatur. So verlagern sich die Resonatormoden zwar auch zu größeren Wellenlängen hin, aber diese Verlagerung verschiebt sich nicht so stark wie bei den Quantenpunkten. Auf Grund der unterschiedlich starken Verschiebung, hat man eine Möglichkeit die gemessenen Signale (Peaks) eindeutig zuordnen zu können. Abbildung 4.56 zeigt eine Übersicht über die temperaturbhängige Verschiebung der μ -Pl-Messungen von meheren Proben. Die Kurve mit den roten Quadraten (mit Fehlerbalken) zeigt die Verschiebung, die auf Grund der Temperturabhängigkeit des Brechungsindex für GaAs auftreten müsste [14]. Man erkennt hier deutlich Messungen, die praktisch das gleiche Verhalten aufzeigen und somit als Moden interpretier-



Relative wavelength change with temperature

Abbildung 4.56: Temperaturverschiebung der beobachteten Peaks. [13][14]

bar sind. Die blauen Quadrate zeigen die Verschiebung für Quantenpunkte über die Temperaturabhängigkeit der Bandlücke[13]. Auch hier gibt es



Abbildung 4.57: der hier gezeigte Temperaturshift deutet auf eine Mode hin (rote Pfeile).

vereinzelt Messungen, die dieses Temperaturverhalten (Shift) aufweisen und somit als Quantenpunkte erkennbar sind. Abbildung 4.57 zeigt nocheinmal eine temperaturabhängige μ -PL-Messung an einem einzelnen Peak. Die gelben Pfeile zeigen die Verschiebung der Emmission vom wetting layer (links) und den QDs (rechts). Die roten Pfeile zeigen eine schwache Verschiebung mit der Temperatur an und deuten auf eine Mode hin.ßß Zusammenfassen kann man sagen, dass Signale gemessen wurden, die eindeutig eine Temperaturverschiebung mit dem Brechungsindex von GaAs haben und somit auf Moden hindeuten. Wenn es Moden wären, zeigen sie aber nicht die gleiche Modendichte, die aus der Simulatuion zu erwarten wären. Es gibt mehrer Erklärungsversuche für dieses Verhalten. Entweder liegen die Moden so dicht nebeneinander und die Halbwertsbreite der einzelnen Moden überschneiden sich so, dass nur ein Signal einer Modengruppe erkennbar ist, die je nach Höhe des Resonators sich anders gruppieren (Abb. 4.58) oder der Q-Faktor hängt stark von der Modenzahl ab, d.h. man mißt nicht alle mögliche Moden im Resonator, sondern nur wenige einzelne (mir hohem Q-Faktor). Um eine sicher Aussage treffen zu können müssen die Simulationen genauer werden bzw. der reale Resonator muss zu stimulierter Emmission angeregt werden.



Abbildung 4.58: Die Modenpositionen in eienm pyramidalen Resonatot mit 1.5 μ m Basislänge für verschiedene relative Resonatorhöhen.
Kapitel 5

Zusammenfassung

5.1 Fazit

Das Verfahren des selektiven Ätzens besitzt ein grosses Potential das Resonatorvolumen (Pyramide) relativ einfach zu varieren und ist damit im Bereich der III-/V-Halbleitern ein interessante Alternative gegenüber anderen Strukturierungsvervahren (z.B. Reactive Ion Etching, RIE). Was seine Einsatzmöglichkeite etwas einschränkt ist die Richtungsabhängigkeit bei gekoppelten Resonatoren. Auch die "Flockenbildung" auf der Oberfläche der Resonatoren nach dem Atzvorgang ist noch nicht befriedigend gelöst. Vielversprechend sind aber die ersten temperaturabhängigen μ -PL-Messungen an den Pyramidenresonatoren. Sie zeigen eine Verschiebung der Wellenlängen, die für Moden typisch (Verschiebung mit dem Brechungsindex) sind. Nur die Dichte der gemessenen Moden stimmt nicht mit der berechneten Modendichte (für einen Resonator mit metallischen Randbedingungen) überein. Es ist deshalb noch nicht möglich eindeutig zu sagen, ob man einzelne Moden misst (mit gutem Q-Faktor und daher erkennbar) oder Modengruppen, die sich zu einem Signal überschneiden. Im Bereich der II-/VI-Halbleitern ist die Methode des selektive Atzen mit Opferschicht momentan nicht anwendbar, weil die bekannten Säuren nicht die notwendige Selektivität für diese Halbleitermaterialien aufweisen. So bleibt die Methode des selektive Wachstum auf vorstruktuierten Proben die einzige mir bekannte Methode, um Pyramidenresonatoren aus II-/VI-Halbleitern herzustellen. Dass die Wachstumsselektivität von ZnSe hier nicht ausreichend war, um daraus eine Resonatorstruktur zu erhalten, lag wahrscheinlich an der zu rauhen Oberfläche des SiO₂, die die Selektivität wieder verschlechterte. Hier würden Optimierungen bei Aufdampfen des SiO_2 auf das Substrat sicher eine Verbesserunge in der Selektivität bringen. Die Focused-Ion-Beam Lithographie ist eine direkte

Methode (ohne Zwischenschritte), um Resonatoren unabhängig vom Halbleitermaterial herzustellen. Da aber durch den Ion-Beschuss der FIB-Anlage Kristalldefekte in der Probenoberfläche erzeugt werden, müsste noch geklärt werden, ob ein weiterer Bearbeitungsschritt (z.B. kurzzeitiges nasschemisches Ätzen) die Defekte an der Oberfläche entfernen bzw. reduzieren könnte.

5.2 Ausblick

Für das selektive Ätzverfahren gibt es drei Bereiche, die noch optimiert bzw. untersucht werden sollten. Um eine hohe Reproduzierbarkeit und Genauigkeit bei der Herstellung der Pyramiden zu erreichen, ist die genaue Kenntnis über die Abhängigkeit zwischen der Resonatorstruktur (seinen Abmessungen) und den Atzzeiten für die verschiedenen Atzlösungen wichtig, damit der Atzprozess automatisiert werden kann, um Resonatoren hoher Genauigkeit herzustellen. Die Simulationen müssen weiter verbessert, um eine bessere Interpretaion der Messergebnise zu erreichen. Das bedeutet, dass man von der Simulation eines idealen Resonators, mit metallischen Randbedingungen, übergehen muss zu einem realen Resonator in Luft. Da das Hauptziel bei der Herstellung von Resonatoren ein hoher Q-Faktor ist, könnte man nach der Strukturierung der Pyramide ein weiteren Bragg-Spiegel auf den Resonator aufbringen, um einen verbesserten optischen Einschluss zu erhalten. Mit der Kenntnis über die stoffliche Zusammensetzung (Staub oder GaAs/AlAs-Reste) der "Flocken"auf der Resonatoroberfläche könnten effektivere Massnahmen ergriffen werden, um dieses Problem zu beheben und damit den Q-Faktor zu verbessern.

Kapitel 6

Publikationen

Artikel in regulären Zeitschriften

1. Lattice parameter and Elastic Constants of Cubic Zn1-xMnxSe Epilayers Grown by Molecular-Beam Epitaxy

M. Hetterich, B. Daniel, H. Priller, A. Reznitsky, J. Kvietkova, J. Lupaca-Schomber, C. Klingshirn, P. Pfundstein, D. Gerthsen, K. Eichhorn, and D. Spemann

11th Intern. Conf. on II-VI Compounds, Niagara Falls, N.Y., USA, Sept. 2003

phys. stat. sol. (c) 241, No. 4, 649 (2004)

 Carrier concentration, mobility, and electron effective mass in chlorinedoped n-type Zn1-xMnxSe epilayers grown by molecular-beam epitaxy
 B. Daniel, K.C. Agarwal, J. Lupaca-Schomber, C. Klingshirn, M. Hetterich Appl. Phys. Lett. 87, 212103 (2005)

3. Electrical spin injection from ZnMnSe into InGaAs quantum wells and quantum dots

W. Löffler, D. Tröndle, J. Fallert, H. Kalt, D. Litvinov, D. Gerthsen, J. Lupaca-Schomber, T. Passow, B. Daniel, J. Kvietkova, M. Grün, C. Klingshirn, M. Hetterich

Appl. Phys. Lett. 88, 062105 (2006)

4. Electrical Spin Injection into InGa(N)As Quantum Structures and Single InGaAs Quantum Dots

M. Hetterich, W. Löffler, J. Fallert, N. Hpcke, H. Burger, T. Passow, S. Li, B. Daniel, B. Ramadout, J. Lupaca-Schomber, J. Hetterich, D. Litvinov, D. Gerthsen, C. Klingshirn, and H. Kalt

7th Intern. Conf. on Excitonic Processe in Condensed Matter (EXCON 06) Winston-Salem, N.C., USA, 2006 phys. stat. sol. (b) 243, 3557 (2006)

Artikel in Konferenz-Proceedings

5. Spin and carrier relaxation dynamics in InAs/GaAs quantum dot spin-LEDs

W. Löffler, J. Fallert, D. Litvinov, D. Gerthsen, J. Lupaca-Schomber, T. Passow, B. Daniel, M. Hetterich, H. Kalt

International Conference on Nanoscience and Technology (ICN+T 2006), Basel, Switzerland

Abstract accepted, paper in preparation.

6. Electrical spin injection into InGaAs quantum dot ensembles and single quantum dots

M. Hetterich, W. Löffler, J. Fallert, T. Passow, B. Daniel, J. Lupaca-Schomber, J. Hetterich, S. Li, C. Klingshirn, H. Kalt

28th Int. Conf. on the Physics of Semiconductors, Vienna, Austria, 2006 Abstract accepted, paper submitted.

7. Single and coupled microvavities - AlAs/GaAs DBR pillars and GaAs pyramids

M. Karl, W. Löffler, J. Lupaca-Schomber, T. Passow, S. Li, J. Hawecker, F. Prez-Willard, D. Gerthsen, H. Kalt, C. Klingshirn, M. Hetterich 28th Int. Conf. on the Physics of Semiconductors, Vienna, Austria, 2006 AIP conference proceedings, Vol. 893, 1133 (2007).

8. Investigation of InAs quantum dot growth for electrical spin injection devices

T. Passow, S. Li, D. Litvinov, J. Fallert, W. Löffler, B. Daniel, J. Lupaca-Schomber, J. Kvietkova, D. Gerthsen, H. Kalt, M. Hetterich 4th Int. Conf. on Quantum Dots (QD2006), Chamonix-Mont Blanc, France To be published in Phys. Stat. Sol. (c).

9. Electrical Spin Injection into InGaAs Quantum Dots W. Löffler, D. Tröndle, J. Fallert, E. Tsitsishvili, D. Litvinov, D. Gerthsen, J. Lupaca- Schomber, T. Passow, B. Daniel, J. Kvietkova, M. Hetterich 8th Int. Workshop on Nonlinear Optics and Excitation Kinetics in Semiconductors (NOEKS 8), Münster, Germany (2006) Phys. Stat. Sol. (c), Vol.3, 2406 (2006)

74

10. Electrical spin injection from ZnMnSe into InGaAs-based quantum structures

W. Lffler, D. Tröndle, H. Kalt, D. Litvinov, D. Gerthsen, J. Lupaca-Schomber, T. Passow, B. Daniel, J. Kvietkova, M. Hetterich

Proc. 12th Int. Conf. on Modulated Semiconductor Structures (MSS-12), Albuquerque, 2005 Physica E 32, 434 (2006)

Beitrge zur Früjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft (DPG)

1. Conventional pillar-type and novel pyramidal III-V microcavities: Fabrication and haracterization

M. Karl, W. Löffler, J. Lupaca-Schomber, T. Passow, S. Li, P. Prez-Willard, J. Hawecker, D. Gerthsen, H. Kalt, C. Klingshirn, M. Hetterich 1st General Conf. of the EPS Condensed Matter Division Verhandl. DPG (VI) 41, HL 50.55 (2006).

2. Electrical spin injectiom from ZnMnSe into InGaAs/GaAs quantum dots

W. Lffler, D. Tröndle, J. Fallert, H. Kalt, D. Litvinov, D. Gerthsen, J. Lupaca-Schomber, T. Passow, B. Daniel, J. Kvietkova, M. Hetterich
21st General Conf. of the EPS Condensed Matter Division
Verhandl. DPG (VI) 41, HL 41.2 (2006).

3. Steps towards the realization of ZnMnSe-InGaAs/GaAs SQW electrical spin injection LEDs
M. Hetterich, J. Kvietkova, T. Passow, J. Lupaca-Schomber, B. Daniel, C. Klingshirn, W. Löffler, D. Tröndle, H. Kalt, D. Litvinov, D. Gerthsen

Verhandl. DPG (VI) 40, HL 16.8 (2005).

4. Transport properties of n-doped Zn1-xMnxSe semimagnetic heterostructures

B. Daniel, K.C. Agarwal, J. Lupaca-Schomber, J. Kvietkova, C. Klingshirn, M. Hetterich

Verhandl. DPG (VI) 40, HL 17.12 (2005)

 $5.~{\rm II-VI/III-V}$ semiconductor optical cavities fabricated by chemical etching, selective growth or FIB

J. Lupaca-Schomber, B. Daniel, M. Hetterich, D. Trndle, H. Kalt, F. Prez-Willard, J. Hawecker, D. Gerthsen

Verhandl. DPG (VI) 40, HL 58.24 (2005)

6. Selective area growth of self-organized ZnSe structures on patterned GaAs with SiO_2 , Si_3N_4 or carbonaceous masks by molecular-beam epitaxy J. Lupaca-Schomber, B. Daniel, M. Hetterich, P. Pfundstein, D. Gerthsen Verhandl. DPG (VI) 39, HL 12.72 (2004)

7. Molekularstrahlepitaxie, Charakterisierung und Kompositionseichung von ${\rm Zn}_{1-x}{\rm Mn}_x{\rm Se}$ Schichten

B. Daniel, J. Kvietkova, M. Hetterich, H. Priller, J. Lupaca-Schomber, C. Klingshirn, D. Spemann, M. Schubert, N. Ashkenov, P. Pfundstein, D. Gerthsen, K. Eichhorn

Verhandl. DPG (VI) 38, HL 14.26 (2003)

Kapitel 7

Literaturnachweis

[1] Quantencomputer. Wie sich Verschränkung fr die Informationsverarbeitung nutzen läßt.

Hans-Jürgen Briegel, Ignacio Cirac und Peter Zoller Physikalische Blätter 55(1999) Nr. 9

[2] Qubits, Gatter und Register Grundlagen des Quantencomputings mit quantenoptischen Systemen.J. Ignacio Cirac und Peter ZollerPhysik Journal (2005) Nr. 11

[3] Elektrische und magnetische Felder in Materie SchwingungenG.Hilscher.Wellen Elektromagnetische Felder im Vakuum. Vorlesungsskript Sommersemester 2002

[4] Klassische Elektrodynamik.John David Jackson2. verbesserte Auflage, Walter de Gruyter Verlag 1982

[5] Quantenoptik und Atomoptik.Klaus Sengstock, Malte SchmidtVorlesungsskript Wintersemester 2004/05 Uni Hamburg

[6] Licht-Atom Wechselwirkung im Zwei-Niveau System.Prof. Immanuel BlochVorlesungsskript Atomphysik WS2003/04 Johannes-Gutenberg-Universitt

[7] Zweiniveauatome Prof. Dieter Suter Universitt Dortmund, Vorlesungsskript SS 2000 in Laserspektroskopie und Quantenoptik,

[8] Zwei-Niveau AtomeProf. Dieter SuterUniversitt Dortmund, Vorlesungsskript SS 96 in Spektroskopie.

[9] HL-Bauelemente Prof. Dr. Magnussen, Universität Kiel, Vortrag im SS 2002

[10] InP-Kurzkanal-Heterostruktur-Feldeffekttransistoren mit elektronenstrahldefinierten Gate-Kontakten Vom Fachbereich Elektrotechnik der Gerhard-Mercator-Universität - Gesamthochschule Duisburg

Walter Daumann, 2006

[11] Optical spectroscopy of single, site-selected, InAs/InP self-assembled quantum dots.

D. Chithrani, R. L. Williams, J.Lefebvre, P. J. Poole, and G. C. Aers Applied Physics Letters, Vol. 84, number 6, 9 February 2004

[12] Formation of GaAs three-dimensional objects using AlAs "facet-forming" sacrificial layer and H₃PO₄, H₂O₂, H₂O based solution.
V. Cambel, a) D.Gregusova, and R. Kudela
Journal of Applied of Physics, Vol. 94, number 7, 1 October 2003

[13] Temperature dependence of the excitonic band gap in InxGa1-xAs/GaAs self-assembled quantum dots.G. Ortner, M. Schwab, and M. BayerPHYSICAL REVIEW B 72

[14] High precision temperature- and energy-dependent refractive index of GaAs determined from excitation of optical waveguide eigenmodes.
S.R. Kisting, P.W. Bohn, E. Andideh, I. Adesida. B. T. Cunningham, and G.E. Stillman
Appl. Phys. Lett. Vol. 57, No. 12, 24 September 1000

Appl. Phys. Lett., Vol. 57, No. 13, 24 September 1990

[15] Selective Growth conditions of ZnSe/ZnS Heterostructures on (001) GaAs with Metalorganic Molecular Beam Epitaxy.

Akio Ueta, Ikuo Suemune Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 36 (1997) pp. 5044-5049

[16] Selective Growth of GaAs by Molecular Beam Epitaxy.T. Sugaya. Y. Okada and M. KawabeJpn. J. Appl. Phys. Vol. 31 (1999)

[17] Low-Temperature Selective growth of ZnSe and ZnS on (001) GaAs Patterned with Carbonaceous Mask by Metalorganic Molecular-Beam Epitaxy.A. Ueta, A. Avramescu, K. Uesugi, I. Suemune, H. Machida and N. Shimoy-

ama

Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 37 (1998).

[18] Kontrolle von Licht in Mikroresonatoren Manfred BayerPhysikalische Bltter, 57 (2001) Nr. 7/8

[19] Untersuchungen zum epitaktischen Wachstum von 3C-SiC bei Verwendung einer C60-Kohlenstoffquelle Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät der Universität Augsburg Sascha Schreiber, Januar 2006

[20] Quantum Memory with a Single Photon in a CavityX. Maitre, E. Hagley, G. nogues, C. Wunderlich, P. Goy, M. Brune, J.M. Raimond and S. HarochePhysical Review Letters, Vol. 79, no.4, pp.769 (28 July 1997)

KAPITEL 7. LITERATURNACHWEIS

Anhang A

Probenbeschreibung

Bild 4.5:

Probenbezeichnung: EBM 24 (BD145) GaAs-Substrat mit 20 nm SiO_2 -Schicht

Bild 4.7, Bild 4.8 und Bild 4.9 links:

Probenbezeichnung EBM 24 (BD145) Bewachsen mit einer ZnSe-Schicht bei T= 480° C (Substrattemperatur)

Bild 4.9 rechts:

Probenbezeichnung: EBM 25 (BD146) GaAs-Substrat mit 35 nm Si_3N_4 -Schicht Bewachsen mit einer ZnSe-Schicht bei T= 480° C (Substrattemperatur)

Bild 4.18 und Bild 4.31:

GaAs-Substrat geätzt mit 8 H_2SO_4 : 1 H_2O_2 : 1 H_2O , Atzdauer: 1 min.

Bild 4.22 rechts:

Probenbezeichnung: A O153 GaAs-Substrat mit GaAs/AlAs-Schichten, gewachsen nach Rezept A 0153 Geätzt mit 1 H_3PO_4 : 2 H_2O_2 : 8 H_2O . Ätzdauer: 1 min. 53 sek.

Bild 4.23 und 4.24:

Probenbezeichnung: JLS 005b (A O153) GaAs-Substrat mit GaAs/AlAs-Schichten, gewachsen nach Rezept A 0153 Geätzt mit 1 $\rm H_3PO_4: 2~\rm H_2O_2: 8~\rm H_2O.$ Ätzdauer: 1 min. 53 sek.

Bild 4.32:

Probenbezeichnung: JLS 19 (A 0246)

GaAs-Substrat mit GaAs/AlAs-Schichten, gewachsen nach Rezept A 0246 Geätzt mit 1 H_3PO_4 : 2 H_2O_2 : 8 H_2O . Ätzdauer: Links oben 1 min 31 sek. Rechts oben 1 min 31 sek. Links unten 1 min 51 sek. Rechts unten 2 min. 11 sek.

Bild 4.34, Bild 4.37 und Bild 4.41:

Probenbezeichnung: JLS 22a (A 0255) GaAs-Substrat mit GaAs/AlAs-Schichten, gewachsen nach Rezept A 0255 Geätzt mit 1 H_3PO_4 : 1/2 H_2O_2 : 8 H_2O . Ätzdauer: 8 min 04 sek.

Bild 4.35, Bild 4.36 und Bild 4.39:

Probenbezeichnung: JLS 22d (A 0255)

GaAs-Substrat mit GaAs/AlAs-Schichten, gewachsen nach Rezept A 0255 Geätzt mit 1 $\rm H_3PO_4: 2~\rm H_2O_2: 8~\rm H_2O.$ Ätzdauer: 1 min 42 sek.

Bild 4.42, Bild 4.43, Bild 4.48 und Bild 4.49:

Probenbezeichnung: JLS 25d (A 0300)

GaAs-Substrat mit GaAs/AlAs-Schichten, gewachsen nach Rezept A 0300 Geätzt mit 1 $\rm H_3PO_4:3~\rm H_2O_2:8~\rm H_2O.$ Ätzdauer: 1 min 42 sek.

Anhang B

MBE-Wachstumsparameter

Rezept EBM 24:

GaAs-Substrat, Wachstum bei T= 480° Zn-Fluss: $4.6 \cdot 10^{-7}$ BEP bei T= 273° Se-Fluss: $2.8 \cdot 10^{-7}$ BEP bei T= 150° **Rezept EBM 25:** GaAs-Substrat, Wachstum bei T= 480° Zn-Fluss: $4.6 \cdot 10^{-7}$ BEP bei T= 273° Se-Fluss: $2.6 \cdot 10^{-7}$ BEP bei T= 149°

Rezept A 0153:

GaAs-Substrat, Wachstum bei T= 680° Ga-Fluss: $9.3 \cdot 10^{-7}$ BEP Al-Fluss: $4.9 \cdot 10^{-8}$ BEP AS-Fluss: $2.2 \cdot 10^{-5}$ BEP

Rezept A 0246:

GaAs-Substrat, Wachstum bei T= 690° Ga-Fluss: $1.0 \cdot 10^{-8}$ BEP In-Fluss: $8.1 \cdot 10^{-9}$ BEP Al-Fluss: $8.4 \cdot 10^{-9}$ BEP AS-Fluss: $6.5 \cdot 10^{-7}$ BEP

Rezept A 0255:

GaAs-Substrat, Wachstum bei T= 710° Ga-Fluss: $7.5 \cdot 10^{-9}$ BEP In-Fluss: $5.2 \cdot 10^{-9}$ BEP Al-Fluss: $5.5 \cdot 10^{-9}$ BEP AS-Fluss: $5.5 \cdot 10^{-6}$ BEP 84